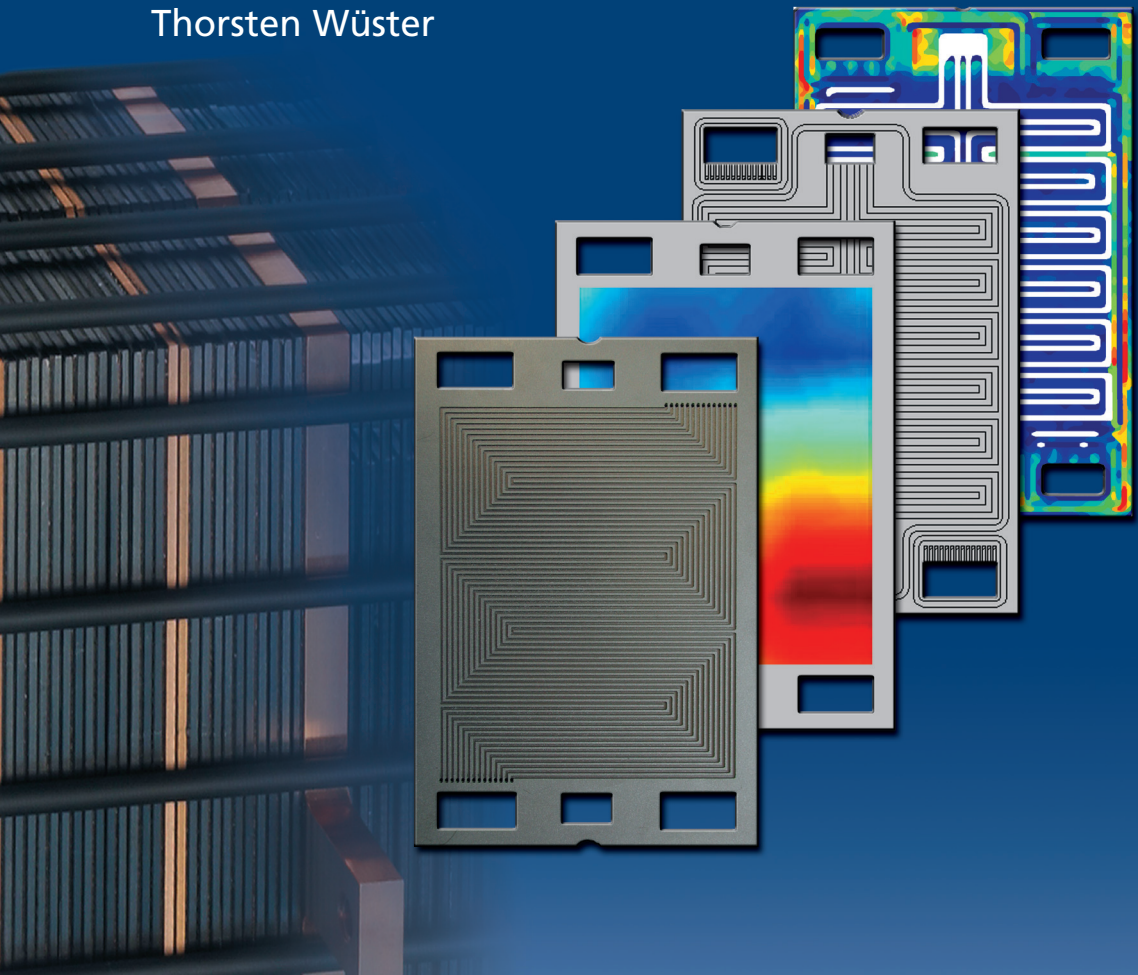




Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen- stapels der 5 kW Klasse

Thorsten Wüster



Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Werkstoffe und Verfahren der Energietechnik 3:
Energieverfahrenstechnik

Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoff- zellenstapels der 5 kW Klasse

Thorsten Wüster

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology

Band/Volume 46

ISSN 1433-5522

ISBN 3-89336-422-6

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek
Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen
Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten sind im Internet
über <<http://dnb.ddb.de>> abrufbar.

Herausgeber: Forschungszentrum Jülich GmbH
Zentralbibliothek
D-52425 Jülich
Telefon (02461) 61-5368 · Telefax (02461) 61-6103
e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de
Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2005

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology Band / Volume 46

D 82 (Diss., RWTH Aachen, 2005)

ISSN 1433-5522
ISBN 3-89336-422-6

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.

Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels der 5 kW Klasse

von Thorsten Wüster

Kurzfassung:

Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen (PEFCs) bedürfen erheblicher Optimierungen, um konkurrenzfähig im Vergleich zu bereits am Markt etablierten Technologien zu werden. Die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Ansätze tragen zur optimierten Auslegung von PEFCs der 5 kW Klasse bei. Diese Ansätze erfassen Wechselwirkungen der Einzelkomponenten des Zellstapels untereinander und stellen diese auf eine neue Modell-Grundlage. Sie umfassen unter anderem die Betrachtung des Wasser- und Wärmemanagements, die Kenntnis über die zu erwartende Strömungs- und Stromdichteverteilung sowie die Abhängigkeit der Zelleistung von den Betriebsparametern. Die abstrahierten Lösungswege können auf die Auslegung und Optimierung von Brennstoffzellenstapeln anderer Leistungsklassen übertragen werden.

Als Grundlage für die Auslegung des 5 kW Zellstapels dienen experimentelle Untersuchungen an Einzelzellen und Short-Stacks. Durch Betriebsparametervariationen hervorgerufene lokale Änderungen in der Zelleistung werden durch Messungen der Stromdichteverteilung bestimmt. Dabei kommen zwei innovative Messmethoden zum Einsatz. Das erste Verfahren basiert auf lokalen in-situ Widerstandsmessungen. Das nicht-invasive zweite Verfahren der Magnetotomographie erlaubt, durch Messung der magnetischen Flussdichte außerhalb eines Zellstapels auf die Stromdichteverteilung innerhalb des Zellstapels zu schließen.

Zur Leistungscharakterisierung von PEFCs in Form von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien wird ein neuartiger, quasi eindimensionaler Modellansatz hergeleitet. Die Anwendung des Modells zeigt, dass sich der empfohlene maximale kathodenseitige Reaktandenumsatz mit abnehmendem Betriebsdruck und steigender Stromdichte hin zu einem höheren Sauerstoffstöchiometrikoeffizienten verschiebt. Eine effektive Steigerung der Leistung kann durch eine vergrößerte Katalysatoroberfläche und eine erhöhte Katalysatoraktivität erreicht werden.

Die Gleichmäßigkeit der Medienverteilung auf die einzelnen Zellen in einem Zellstapel bestimmt ein analytischer eindimensionaler Berechnungsansatz. Dieser Ansatz wird verallgemeinert, indem die Einflussgrößen zu geeigneten dimensionslosen Kennzahlen zusammengefasst werden. Für beliebige Zellstapelgeometrien wird die Gleichmäßigkeit der Medienverteilung als Funktion dieser Kennzahlen in graphischer und analytischer Form präsentiert.

In Abhängigkeit des jeweils vorliegenden Anwendungsfalls erweist sich für den Betrieb des 5 kW Zellstapels ein Betriebsdruck von 1,1 bis 2,2 bar als besonders geeignet. Zur Abfuhr der Reaktionswärme aus dem Zellstapel wird ein wasserbasiertes Kühlkonzept ausgewählt. Die anodenseitigen Befeuchterzellen sind in den Brennstoffzellenstapel integriert. Die Speisung der Befeuchterzellen erfolgt über das nach dem Durchfluss durch den Zellstapel erwärmte Kühlwasser. Zur Befeuchtung des Oxidans wird die Verwendung eines Kapillar- oder Hohlfaserbefeuchtermoduls empfohlen.

Basierend auf den Ergebnissen der Arbeit ist ein aus 55 Zellen bestehender Brennstoffzellenstapel gebaut und in Betrieb genommen worden. Eine erste Leistungscharakterisierung verdeutlicht, dass die angestrebte Leistung von 5 kW erreicht wird.

Development and Modelling of a Polymer Electrolyte Fuel Cell Stack of the 5 kW Class

by Thorsten Wüster

Abstract:

Polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) require considerable optimization before they can compete with technologies already established on the market. The approaches described in this thesis contribute to the optimized design of PEFCs of the 5 kW class. The approaches concern the mutual interactions of individual components of the cell stack and place these interactions on a new model basis. They comprise, amongst other aspects, water and heat management, knowledge of the expected flow and current density distribution as well as the dependence of cell performance on the operating parameters. The generalized results can be transferred to the design and optimization of fuel cell stacks of different power classes.

Experimental investigations of single cells and short stacks serve as the design basis for the 5 kW cell stack. Local changes in cell power caused by varying the operating parameters are determined by measuring the current density distribution. Two innovative measuring methods are used for this purpose. The first procedure is based on local in situ resistance measurements. The second non-invasive method of magnetic tomography permits conclusions to be drawn about the current density distribution inside the cell stack from measurements of magnetic flux density outside the cell stack.

A novel, quasi-one-dimensional model is derived for characterizing PEFC performance in the form of voltage-current density curves. The application of the model shows that with decreasing operating pressure and rising current density the recommended maximum cathodic reactant conversion is shifted towards a higher oxygen stoichiometry coefficient. An effective rise in performance can be achieved by an enlarged catalyst surface area and increased catalyst activity.

An analytical one-dimensional calculation approach determines that the media are uniformly distributed among the individual cells in a cell stack. This approach is generalized by combining the factors of influence into suitable dimensionless numbers. For any cell stack geometries, the uniformity of the media distribution is presented as a function of these numbers in a graphical and analytical form.

Depending on the respective application, an operating pressure of 1.1 to 2.2 bar proves to be particularly suitable for operation of the 5 kW stack. A water-based cooling concept is selected for removing the reaction heat from the cell stack. The humidifier cells on the anode side are integrated into the fuel cell stack. The cooling water is fed into the humidifier cells after having been heated by flowing through the cell stack. The use of a capillary or hollow-fibre humidifier module is recommended in order to moisten the oxidant.

Based on the results, a fuel cell stack consisting of 55 cells has been constructed and put into operation. An initial performance characterization shows that the envisaged power of 5 kW has been achieved.

1	EINFÜHRUNG UND ZIELSETZUNG.....	1
2	LEISTUNGSMODELLIERUNG EINER PEFC	12
2.1	Analytischer eindimensionaler Modellansatz	13
2.2	Quasi eindimensionaler (Q1D-) Modellansatz.....	20
2.2.1	Anwendung des Q1D-Modellansatzes auf Zellen im Labormaßstab	22
2.2.2	Anwendung des Q1D-Modellansatzes auf Einzelzellen eines 5 kW-Stapels.....	27
2.3	Identifikation von Optimierungspotentialen bezüglich der Zelleistung	30
2.3.1	Definition eines Basisfalls	30
2.3.2	Einfluss der Modellparameter	32
2.3.3	Einfluss ausgewählter Betriebsparameter.....	34
2.4	Zusammenfassung	37
3	MESSAUFBAUTEN UND MESSMETHODEN	39
3.1	Aufbau der Einzelzellen und Zellstapel	39
3.2	Messstände und Messapparaturen	42
3.2.1	Visualisierung der Strömung in Einzelzellen	42
3.2.2	Messstand zur Leistungscharakterisierung	42
3.2.3	Passives Widerstandsnetzwerk zur Stromdichtemessung	44
3.2.4	Magnetotomographiemessstand zur Stromdichtemessung.....	45
3.3	Dichtigkeitsmessung.....	46
3.4	Kraftflussmessung	47
3.5	Stromdichtemessung.....	47
3.5.1	Passives Widerstandsnetzwerk.....	48
3.5.2	Magnetotomographie	52
3.6	Widerstandsmessung	58
3.7	Messung des Tropfenaustrags aus der Strömungsstruktur	58
4	AUSWERTUNG DER MESSERGEBNISSE.....	60
4.1	Bewertung von Strömungsstrukturen und Bipolarplattenmaterialien	60
4.1.1	Vergleich zwischen Mäander- und Kanal-Füßchen-Strömungsstruktur	60
4.1.2	Vergleich zwischen metallischen und graphitischen Bipolarplatten	63
4.2	Variation von Betriebsparametern	64
4.2.1	Durchfluss	64
4.2.2	Druck.....	65
4.2.3	Temperatur.....	66
4.2.4	Reaktandenbefeuchtung.....	68

4.3	Stromdichtemessung	69
4.3.1	Stromdichtemessung mit Hilfe des passiven Widerstandsnetzwerks	69
4.3.2	Magnetotomographie.....	74
4.4	Weiterführende Charakterisierung.....	77
4.4.1	Dichtungsscreening	77
4.4.2	Anpressdruckverteilung.....	79
4.5	Zusammenfassung.....	80
5	MEDIENVERTEILUNG IM ZELLSTAPEL	83
5.1	Verfahren zur Berechnung der Medienverteilung in einem Zellstapel.....	86
5.1.1	Eindimensionaler Rechenansatz.....	87
5.1.2	Dreidimensionale Strömungssimulation.....	90
5.1.3	Vergleich der 1D- und 3D-Rechnenergebnisse	93
5.2	Einfluss der Stackgeometrie und der Betriebsparameter auf die Medienverteilung.....	95
5.3	Kennzahlenbasierte Beschreibung der Medienverteilung	103
5.3.1	Definition dimensionsloser Kennzahlen	103
5.3.2	Ergebnisse der kennzahlenbasierten Betrachtung	106
5.3.3	Formel zur Bewertung der Medienverteilung im Zellstapel	111
5.4	Zusammenfassung.....	112
6	KÜHLUNG	114
6.1	Wärmebilanz eines 5 kW Brennstoffzellenstapels.....	115
6.2	Verlustleistung durch Kühlung	117
6.3	Vergleich der Verlustleistung bei Luft- und Wasserkühlung	119
6.4	Auslegungsroutine für Kühlkanalgeometrien.....	123
6.5	Berechnung der optimalen Kühlzellenanzahl in einem Zellstapel	128
6.6	Zusammenfassung.....	132
7	BEFEUCHTUNG.....	133
7.1	Befeuchtungskonzepte	133
7.2	Membranverfahren.....	135
7.2.1	Experimentelle Charakterisierung des Pervaporationsbefeuchters	135
7.2.2	Experimentelle Charakterisierung des Gaspermeationsbefeuchters	137
7.3	Zusammenfassung.....	139

8	BETRACHTUNG EINES PEFC-SYSTEMS DER 5 KW-KLASSE	140
8.1	Betrachtete Systemkonzepte.....	140
8.2	Modellannahmen	141
8.3	Ergebnisse der Systembetrachtung	143
8.4	Zusammenfassung	145
9	KONSTRUKTIVE BAUTEILOPTIMIERUNG	146
9.1	Endplattendesign	146
9.1.1	Einfluss der Endplattenwölbung auf die Druckverteilung im Zellstapel	147
9.1.2	Gewichtsreduktionspotential der Endplatten.....	153
9.1.3	Bauteilkosten ausgewählter Endplattenvarianten	160
9.2	Dichtung.....	166
9.3	Zusammenfassung	170
10	POLYMERELEKTROLYT-BRENNSTOFFZELLENSTAPEL DER 5 KW KLASSE	173
11	ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK.....	176
12	LITERATURVERZEICHNIS	180
13	ANHANG	187
13.1	Nomenklatur.....	187
13.2	Ergänzungen zu Kapitel 5 (Medienverteilung im Zellstapel)	192
13.3	Ergänzungen zu Kapitel 6 (Kühlung).....	196
13.4	Ergänzungen zu Kapitel 9 (Konstruktive Bauteiloptimierung)	199

1 Einführung und Zielsetzung

In naher Zukunft zeichnet sich eine Erschöpfung der kostengünstig zu gewinnenden Erdölvorräte ab. In Kombination mit Umwelt-Risiken wie dem zunehmenden Treibhauseffekt durch Kohlendioxid-Emissionen erfordert dies eine mit der Klimapolitik eng verknüpfte, zielgerichtete Politik der Ressourcenschonung. Bestandteil dieser Politik ist die Diversifizierung der verschiedenen Energiequellen nach Energieträgern und geographischen Zonen. Dies ist die Basis einer sicheren Energieversorgung, die nicht von politischen Entscheidungen oder Konflikten in den wenigen, geopolitisch instabilen Erdölexportländern abhängig ist.

Zur Schonung der endlichen Ressourcen werden hocheffiziente Energieumwandler benötigt, die chemisch gespeicherte Energie mit hohem Wirkungsgrad und geringen Schadstoffemissionen in elektrischen Strom umwandeln. Derzeitige Umwandlungsaggregate wie beispielsweise Verbrennungskraftmaschinen in Kombination mit Generatoren weisen bereits einen hohen Entwicklungsstand auf, besitzen aber ein geringes Potential, die Effizienz durch Weiterentwicklungen merklich zu steigern. Vor diesem Hintergrund sind neue Technologien zur Energieumwandlung gefordert. Die eng mit der Wasserstofftechnologie verbundene Brennstoffzellentechnik scheint die gestellten Anforderungen erfüllen zu können. Prinzipbedingt können Brennstoffzellen einen höheren theoretischen Wirkungsgrad als die durch den Carnot-Faktor begrenzten Kraft-Wärme-Prozesse erreichen. Brennstoffzellen können in sehr unterschiedlichen Anwendungen und Leistungsklassen als Energieumwandler eingesetzt werden. In den Bereichen der portablen, mobilen und stationären Anwendungen sind die angestrebten Zielkosten stark von der Leistungsklasse der Brennstoffzelle abhängig. Als Ersatz für Akkumulatoren liegen die leistungsbezogenen Zielkosten der Brennstoffzellen in einem Leistungsbereich von wenigen Watt bei ungefähr 5000 €/kW. Für brennstoffzellenbetriebene, stationäre Blockheizkraftwerke beträgt dieser Wert 1.000–1.500 €/kW. Die größte Herausforderung stellen die Zielkosten für im PKW-Antrieb eingesetzte Brennstoffzellen von circa 50 €/kW dar [1].

Um die genannten Anforderungen und Kostenziele erreichen zu können, wird an der Brennstoffzellentechnologie weltweit intensiv geforscht. Brennstoffzellen werden in Deutschland als zukunftsweisende Technologie eingestuft. Die von den Bundesministerien für die Brennstoffzellenforschung bereitgestellte Fördersumme beträgt jährlich zwischen 16 und 26 M€ [2, 3]. Des Weiteren werden im Rahmen des „Zukunftsinvestitionsprogramms (ZIP)“ Demonstrationsprojekte im Zeitraum von 2001 bis 2005 jährlich mit rund 12 M€ unterstützt [4]. Das Budget für wasserstoff- und brennstoffzellenbezogene Forschungs- und Entwicklungsprogramme der einzelnen Bundesländer und der Europäischen Union addieren sich auf eine jährliche Fördersumme von circa 25-35 M€ [3]. Die aus öffentlichen Mitteln bereitgestellte Gesamtfördersumme liegt somit derzeit zwischen 55-70 M€/a. Die privaten Investitionen der Industrie in die Brennstoffzellentechnologie sind schwierig zu beziffern, übersteigen die öffentlichen Mittel aber bei Weitem und liegen in Deutschland bei mehreren einhundert Millionen Euro jährlich [3]. Die Brennstoffzellen-

technologie wird also intensiv von staatlicher und privater Hand vorangetrieben. Mit den genannten Aktivitäten nimmt Deutschland international eine führende Rolle ein.

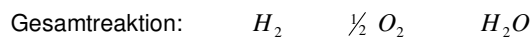
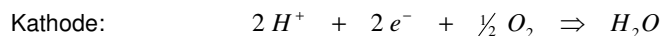
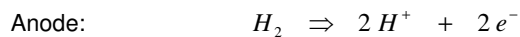
Elektrische Energieumwandlung in Brennstoffzellen

Brennstoffzellen sind elektrochemische Zellen, die die chemische Energie von kontinuierlich zugeführtem Brennstoff und Oxidans in einem idealerweise isothermen Prozess in elektrische Energie und Wärme umwandeln [5]. Die Klassifizierung der unterschiedlichen Brennstoffzellenarten erfolgt zumeist anhand der Betriebstemperatur. Die sechs wesentlichen Arten unterteilen sich in Hoch- und Niedertemperaturbrennstoffzellen. Zu den Hochtemperaturbrennstoffzellen zählen die Schmelzkarbonat-Brennstoffzelle (MCFC) und die Oxidkeramische-Brennstoffzelle (SOFC). Die Betriebstemperaturen dieser beiden Arten liegen bei circa 650 °C beziehungsweise circa 850 °C. Als Niedertemperaturbrennstoffzelle werden die alkalische (AFC), die phosphorsaure (PAFC), die Direktmethanol- (DMFC) und die Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (PEFC) bezeichnet. Die Betriebstemperaturen liegen unterhalb von 200 °C. Eine ausführliche Beschreibung und Gegenüberstellung der einzelnen Brennstoffzellenarten mit den bevorzugten Anwendungsbereichen findet sich beispielsweise in [6, 7].

Die vorliegende Arbeit ist auf die Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle fokussiert. Die typische Betriebstemperatur dieser Brennstoffzelle liegt zwischen 50 °C und 80 °C. Gegenüber den anderen Brennstoffzellenarten zeichnet sich die PEFC durch eine hohe Leistungsdichte, ein sehr dynamisches Verhalten bei Lastwechseln sowie durch schnelle Anfahrzeiten aufgrund der moderaten Betriebstemperatur aus [6]. Die PEFC erweist sich daher als interessante Alternative für den Einsatz als PKW-Antrieb, als Hilfsstromaggregat oder zur Strom- und Wärmeversorgung in Ein- und Mehrfamilienhäusern.

Wie alle Brennstoffzellen besteht auch die PEFC aus den drei Hauptkomponenten Anode, Kathode und Elektrolyt. Der Elektrolyt, eine ionenleitende Membran, trennt die beiden Elektroden räumlich voneinander. Die PEFC benötigt als Brennstoff Wasserstoff. Der Wasserstoff wird in reiner Form oder als wasserstoffreiches Synthesegas der Anode zugeführt. Katalytisch aktiviert oxidiert der Wasserstoff in Protonen und Elektronen. Während die Protonen die ionenleitende Membran passieren, gelangen die Elektronen aufgrund der Potentialdifferenz durch einen äußeren Stromleiter von der Anode über den Verbraucher zur Kathode. Im Kathodenraum entstehen katalytisch Sauerstoffionen. Das Oxidationsmittel Sauerstoff wird im Allgemeinen der Umgebungsluft entzogen. Die Sauerstoffionen rekombinieren mit den durch die Membran diffundierten Protonen zu Wasser.

Die an den einzelnen Elektroden ablaufenden Reaktionen lauten:



Die bei der Gesamtreaktion freigesetzte Enthalpie ΔH berechnet sich nach der Gibbs-Helmholz-Gleichung

$$\Delta H = \Delta G + T \Delta S \quad \text{Gl. 1.1}$$

Die Enthalpieänderung ergibt sich aus der Änderung der freien Gibbsschen Enthalpie ΔG und dem Entropieterm $T \Delta S$. Die Änderung der freien Gibbsschen Enthalpie beschreibt den unter reversiblen Betriebsbedingungen maximal in elektrische Arbeit umgesetzten Anteil der Enthalpieänderung. Nach dem Faraday-Gesetz leitet sich daraus die reversible Zellspannung ab

$$U_{rev} = -\frac{\Delta G}{n \cdot F} \quad \text{Gl. 1.2}$$

$n = 2$ ist die pro umgesetztem Wasserstoffmolekül übertragene Anzahl an Elektronen, F bezeichnet die Faraday-Konstante. Fällt das produzierte Wasser in flüssiger Form an, beträgt die reversible Zellspannung unter Standardbedingungen ($p=1$ bar und $T=25$ °C) 1,23 V.

Der thermodynamische Wirkungsgrad der Brennstoffzelle η_{th} ergibt sich zu

$$\eta_{th} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{n \cdot F \cdot U_{rev}}{n \cdot F \cdot U_{th}} = \frac{U_{rev}}{U_{th}} \quad \text{Gl. 1.3}$$

U_{th} wird als thermoneutrale Spannung oder Brennwertspannung bezeichnet und beträgt im Fall flüssigen Produktwassers 1,48 V.

Im Betrieb der Brennstoffzelle verringert sich die reversible Zellspannung aufgrund von Ohmschen Verlusten und Überspannungen. Zu den Überspannungen zählen beispielsweise Aktivierungs-, Konzentrations- und Diffusionsüberspannungen. Eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Überspannungen findet sich in [8]. Aus der Klemmspannung im Betrieb der Zelle U_z ergibt sich der Zellwirkungsgrad η_z

$$\eta_z = \frac{U_z}{U_{th}} \quad \text{Gl. 1.4}$$

Um die verfügbare Spannung einer Brennstoffzelle zu erhöhen, werden einzelne Zellen seriell zu einem sogenannten Brennstoffzellenstapel (englisch: Fuel Cell Stack) verschaltet.

Aufbau einer Brennstoffzelle mit Polymerelektrolyt

In einem Brennstoffzellenstapel erfolgt der Stromabgriff an Stromabnehmerplatten, die in elektrischem Kontakt mit den äußeren Zellen des Stapels stehen. Die einzelnen Zellen sind jeweils aus Bipolarplatten, einer Membran-Elektroden-Einheit (MEA) und Dichtungen aufgebaut. Die Zellkomponenten werden im Folgenden näher beschrieben.

Die Bipolarplatten stellen den elektrischen Kontakt zwischen benachbarten Zellen her und trennen die beiden Gasräume räumlich voneinander. In die Platten sind beidseitig Strömungsstrukturen eingebracht, die eine möglichst homogene Verteilung der gasförmigen Reaktanden auf die katalysatorbeschichtete Zellfläche sicherstellen. Die katalysatorbeschichtete Fläche wird

im Weiteren als aktive Fläche bezeichnet. Zur Abfuhr der bei der elektrochemischen Reaktion entstehenden Wärme aus dem Zellenstapel können innerhalb der Bipolarplatte Kühlstrukturen integriert sein. Eine Bipolarplatteneinheit setzt sich dazu aus zwei Bipolarplattenelementen zusammen. Zwischen den beiden Elementen ist die Kühlstruktur entweder direkt in die Platten selber oder in Form einer zusätzlichen Kühlzelle eingearbeitet.

Tabelle 1.1 zeigt die vom U.S. Department of Energy (DoE) definierten Zielwerte für die Materialanforderungen an Bipolarplatten [9]. Weitere Anforderungen sind geringe Fertigungstoleranzen, eine hohe mechanische Stabilität sowie eine hohe thermische Leitfähigkeit.

Tabelle 1.1: Zielwerte für die Materialanforderungen an Bipolarplatten [9]

Materialanforderung	Zielwert	Zweck
Gasdichtigkeit	$< 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 / (\text{s} \cdot \text{cm}^2) @ 80 \text{ }^\circ\text{C}, 3 \text{ bar}$	sichere räumliche Trennung der Reaktandengase
elektrischer Widerstand	ca. $0,01 \text{ } \Omega\text{cm}$	geringe Ohmsche Verluste
Übergangswiderstand	$< 0,02 \text{ } \Omega\text{cm}^2$	geringe Ohmsche Verluste
Oxidationsstabilität	$< 16 \text{ } \mu\text{A}/\text{cm}^2$	hohe Langzeitstabilität

Werkstoffe, die diese Anforderungen erfüllen können, sind Platten aus reinem Graphit beziehungsweise einer Graphit-Kunststoff-Mischung oder Metallbleche, die mit einer Korrosionsschutzschicht versehen sind.

Graphit eignet sich aufgrund der hohen chemischen Beständigkeit, der geringen Dichte und der guten elektrischen Leitfähigkeit als Bipolarplattenmaterial. Die Strömungsstrukturen in Bipolarplatten aus reinem Graphit müssen allerdings zeitaufwendig und damit kostenintensiv geätzt werden. Aus diesem Grund sind Bipolarplatten aus reinem Graphit für die Prototypenfertigung, nicht aber für die Serienproduktion geeignet.

Ein Gemisch aus Kunststoff und Graphit (Composit) erlaubt, die positiven Materialeigenschaften graphitischer Bipolarplatten in einem serienfertigungstauglichen Herstellverfahren zu nutzen. Einem Kunststoff, Duroplast oder Thermoplast, wird pulverisiertes Graphit mit einem Volumenanteil von mindestens 50 % [10] beziehungsweise einem Massenanteil von über 70 % [11, p. 308] beigemischt. Das Gemisch wird anschließend in einem Spritzgieß- oder Spritzprägeprozess zu Bipolarplatten mit den entsprechenden Strömungsstrukturen verarbeitet. Das bei diesem Herstellverfahren angestrebte Entwicklungsziel sieht vor, die an die Bipolarplatten gestellten Anforderungen ohne eine weitere maschinelle Nachbearbeitung zu erreichen.

Die Dicke der Compositplatten setzt sich additiv aus den Kanaltiefen der Strömungsstrukturen und der Restwandstärke zusammen. Die Restwandstärke, die mindestens eingehalten werden muss, um eine ausreichende Gasdichtigkeit und Bruchsicherheit zu erreichen, beträgt rund 0,8 mm. Alle in dieser Arbeit verwendeten Bipolarplatten auf graphitischer Basis bestehen aus Compositmaterial.

Als kostengünstige Alternative gewinnen Graphitfolien aus expandiertem Graphit [11, p. 312] als Bipolarplattenmaterial zunehmend an Bedeutung. Neben der guten Korrosionsbeständigkeit und elektronischen Leitfähigkeit, zeichnen sich Bipolarplatten aus Graphitfolie durch ein geringes Bauteilgewicht aus. Des Weiteren zeigt das Material gute Dichtungseigenschaften in Verbindung mit geringen Übergangswiderständen. Die mechanische Stabilität sowie die Gas-

dichtigkeit werden durch Imprägnieren mit beispielsweise Epoxid- oder Phenolharz erreicht. Die gewünschte Strömungsstruktur kann durch Stanzen oder Prägen in die Folie kostengünstig eingearbeitet werden. Ein Nachteil der Graphitfolie ist die starke Anisotropie der elektronischen und thermischen Leitfähigkeit des Materials.

Wegen der hohen Gasdichtigkeit und der mechanischen Stabilität können metallische Bipolarplatten dünner ausgeführt werden als solche auf Basis von Graphit. Dies resultiert in einer höheren volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte eines Zellstapels mit Bipolarplatten aus Metall. Für den Einsatz in Brennstoffzellen werden die Werkstoffe Titan, Aluminium, Edelstahl und andere Nickel- und Eisen-basierte Legierungen favorisiert. Die Strömungsstrukturen können durch massenfertigungstaugliche Verfahren wie Prägen, Stanzen oder Ätzen kostengünstig in die metallischen Platten eingebracht werden.

Die Umgebungsbedingungen in Brennstoffzellen stellen hohe Anforderungen an die metallischen Bipolarplatten. Die vorhandene Feuchtigkeit, die erhöhten Temperaturen und der geringe pH-Wert in Kombination mit elektrischen Potentialen führen bei den meisten Metallen zu Korrosion. Die bei der Korrosion entstehenden mehrwertigen Kationen schädigen die Membran, indem sie dort aktive Zentren blockieren. Einige Metalle bilden Oxidschichten, die ausreichenden Schutz gegen Korrosion bieten. Allerdings zeichnen sich diese Oxidschichten meist durch hohe elektrische Widerstände aus, die einen inakzeptablen Leistungsverlust bedingen. Um die hohen Widerstände zu vermeiden, konzentriert sich die Forschung auf zwei unterschiedliche Ansätze. Zum einen wird versucht, Materialien zu finden, die unter Brennstoffzellenbedingungen eine hoch leitfähige und korrosionsbeständige Oxidschicht ausbilden. Zum anderen besteht die Möglichkeit, die Platten durch eine Oberflächenbeschichtung mit einer chemisch und mechanisch stabilen Schicht zu schützen. Eine solche Schutzschicht muss eine zu Graphitplatten vergleichbare elektrische Leitfähigkeit mit geringen Übergangswiderständen und gleichzeitig gutem Korrosionsschutz aufweisen. Übergangsmetallkarbide, Nitride und Boride zeigen als Schutzschichten das Potential für den Einsatz in Brennstoffzellen [12]. Diese Schichten können beispielsweise in einem Tauchbad, durch Spray- oder Galvanisationsprozesse sowie durch PVD- und CVD-Verfahren (Physical-, Chemical Vapor Deposition) auf die metallischen Platten aufgetragen werden.

Als MEA wird die Einheit aus der katalysatorbeschichteten ionenleitenden Polymermembran und beidseitig aufgetragenen Gasdiffusionsschichten bezeichnet. In der Sandwich-artig aufgebauten MEA finden die elektrochemischen Reaktionen statt. Die Aufgabe der typischerweise zwischen 25 und 180 μm dicken Polymermembran besteht in der Leitung der Protonen von der Anode zur Kathode, bei gleichzeitiger elektronischer Isolation der beiden Elektroden. Darüber hinaus gewährleistet die Membran die räumliche Trennung der beiden Gasräume voneinander. Die Materialanforderungen an die Membran sind in Tabelle 1.2 in Form der vom DoE definierten Zielwerte aufgelistet [9].

Tabelle 1.2: Zielwerte für die Materialanforderungen an Polymermembranen [9]

Materialanforderung	Zielwert	Zweck
Gasdichtigkeit	$< 1 \text{ mA/cm}^2$	sichere räumliche Trennung der Reaktandengase / Verringerung der Mischpotentialbildung
Flächenwiderstand	$< 0,1 \text{ } \Omega\text{cm}^2$	geringe Ohmsche Verluste
Quellgrad	$< 10 \%$	homogene Anpressdruckverteilung
Leistungsdegradation	$< 2 \text{ mV/1000h}$	geringe Alterung

Das perfluorierte sulfonierte Ionomer Nafion[®] der Firma *E.I. DuPont de Nemours* ist das derzeit meistverwendete Membranmaterial in PEFCs. Das Grundgerüst dieses Polymers besteht aus Polytetrafluorethylen (PTFE). Die Leitung der Protonen wird durch Sulfonsäuregruppen ermöglicht, die kovalent an die Haupt-Polymerkette gebunden sind. Die mechanische Stabilität der Membran kann erhöht werden, wenn das ionenleitende Polymer durch ein Gewebe aus PTFE verstärkt wird [13]. Obwohl das fluorierte Haupt-Polymer der Grundstruktur der Membran einen hydrophoben Charakter gibt, sind die Sulfonsäuregruppen hydrophil. Die Leitfähigkeit der Sulfonsäuregruppen hängt stark von dem Wassergehalt in der Membran ab. Im drucklosen Betrieb stellt die Siedetemperatur des Wassers einen Grenzwert für die Betriebstemperatur dar. Nahe 100 °C führt die Wasserverdampfung zur Austrocknung der Membran und somit zum Verlust der protonenleitenden Eigenschaft.

Ein neuartiges Membranmaterial, Phosphorsäure-dotiertes Polybenzimidazol (PBI), unterliegt nicht dieser Temperaturbeschränkung. Da es sich bei der Phosphorsäure um einen intrinsischen Protonenleiter handelt, benötigt diese Membran kein Wasser zur Leitung der Protonen. Dies verringert den Befeuchtungsaufwand der Reaktandengase und ermöglicht Betriebstemperaturen von deutlich über 100 °C auch unter Umgebungsdruck [14]. Ein Nachweis der geforderten Langzeitstabilität der PBI Membranen steht noch aus.

Eine umfangreiche Beschreibung weiterer Membranmaterialien in Kombination mit einer Wirtschaftlichkeitsbetrachtung findet sich in [15].

Die elektrochemische Reaktion bedarf einer katalytischen Aktivierung, um eine ausreichend hohe Reaktionsrate gewährleisten zu können. Aus diesem Grund befindet sich auf beiden Seiten der Membran eine Katalysatorschicht. Die Aufgabe des Katalysators besteht in der Absorption, Dissoziation und Oxidation beziehungsweise Reduktion der Wasserstoff- und Sauerstoffmoleküle. Die Anforderungen an den Katalysator sind demnach eine hohe elektrokatalytische Aktivität bei gleichzeitiger Stabilität in oxidierender und reduzierender Atmosphäre. In Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen kommt auf der Anoden- und Kathodenseite bevorzugt das Edelmetall Platin als Katalysatormaterial zum Einsatz. Zur weiteren Steigerung der katalytischen Aktivität von Platin wird derzeit der Zusatz von Legierungsmetallen wie Ruthenium, Rhodium sowie Nickel, Chrom und Kobalt erforscht [16, 17]. Bereits durch einen Kohlenstoffmonoxidgehalt von weniger als 5 ppm im Brenngas kann der Platinkatalysator entscheidend inaktiviert werden [18]. Bei Betrieb der Brennstoffzelle mit Synthesegas ist daher die Verwendung einer geeigneten Katalysatorlegierung notwendig.

Um den An- und Abtransport der Reaktanden sowie der Elektronen und Protonen an den Katalysatorplätzen zu gewährleisten, müssen die Katalysatorpartikel in Kontakt mit der entsprechen-

enden Gasphase, dem ionenleitenden Polymer und einem elektronisch leitfähigen Material stehen. Diese sogenannte Dreiphasen-Grenzschicht muss eine möglichst große Fläche umfassen, da es sich um eine oberflächenproportionale Umwandlungsreaktion handelt. Eine optimierte Katalysatorschicht zeichnet sich durch ein extrem feines Gefüge mit ausreichender Porosität aus. Um den Gehalt an katalytisch inaktivem Katalysatormaterial zu minimieren, strebt die Entwicklung derzeit nach immer kleineren Katalysatorpartikeln. Diese Partikel mit einer Größe von wenigen Nanometern [17, 19, 20] werden auf einer Kohlenstoffstruktur geträgert.

Zwischen der Bipolarplatte und der Katalysatorschicht befindet sich sowohl auf der Anoden- als auch auf der Kathodenseite eine Gasdiffusionsschicht (GDL). Die Funktionen der GDL umfassen:

- homogene Verteilung der Reaktandengase auf die Katalysatorschicht. Dies erfordert eine hohe Gaspermeabilität sowohl quer zur als auch in der Ebene der GDL, damit auch die Katalysatorplätze versorgt werden, die benachbart zu den Stegen der Strömungsstruktur liegen.
- Abtransport des Produktwassers aus der Katalysatorschicht in die Kanäle der Strömungsstruktur. Um Ansammlungen flüssigen Wassers, die den Gastransport behindern, in der GDL zu vermeiden, wird diese mit circa 5-30 Ma.% PTFE hydrophobisiert [21].
- homogene Verteilung der über die Kanalstege in die GDL eintretenden Elektronen auf die Katalysatorschicht. Die geforderte hohe elektronische Leitfähigkeit ist typischerweise stark von dem Anpressdruck beziehungsweise der Kompression der GDL abhängig.
- Abtransport der bei der elektrochemischen Reaktion in der MEA entstehenden Wärme zu den Bipolarplatten, in denen die Kühlstrukturen integriert sind. Eine hohe thermische Leitfähigkeit begünstigt eine homogene Temperaturverteilung über der aktiven Fläche und geringe Temperaturgradienten zwischen Membran und Kühlmedium.
- Schutz der Membran bei auftretenden Druckunterschieden zwischen dem Anoden- und Kathodenraum. Dies erfordert eine hohe mechanische Stabilität der im eingebauten Zustand zwischen 200 und 400 µm dicken GDL. Die nur auf den Stegen der Strömungsstruktur aufliegende GDL muss steif sein, um nicht in die Kanäle gedrückt zu werden. Dies würde zu erhöhten Druckverlusten oder sogar verstopften Kanälen führen.

In PEFCs werden bevorzugt entweder Kohlepapier oder Kohlenstoffgewebe als Gasdiffusionsschicht eingesetzt. Häufig werden diese Diffusionsschichten zusätzlich mit einem sogenannten Microlayer an der Grenzschicht zwischen Katalysatorschicht und GDL versehen. Der Microlayer, bestehend aus Karbon- oder Graphitpartikeln und PTFE, stellt einen verbesserten Wassereintrag in die GDL sicher und setzt die Übergangswiderstände herab.

Die vornehmliche Aufgabe der Dichtungen besteht in der sicheren räumlichen Trennung der Medien gegeneinander und zur Umgebung hin. Um die geforderte Langzeitstabilität erreichen zu können, müssen die Dichtungen gegenüber den in der Brennstoffzelle vorherrschenden Bedingungen beständig sein. Neben der mechanischen sind hier vor allem die chemische und thermische Beständigkeit gefordert. Erfüllen die Dichtungswerkstoffe diese Anforderungen nicht, können freigesetzte niedermolekulare Bestandteile und Abbauprodukte der Dichtungen

Katalysatorplätze blockieren oder sich in der Gasdiffusionsschicht anlagern und dort die hydrophilen und hydrophoben Eigenschaften verändern [22].

Weitere Anforderungen an die Dichtungswerkstoffe sind in Tabelle 1.3 aufgelistet. Zum derzeitigen Entwicklungszeitpunkt können noch keine verlässlichen Zielwerte für die unterschiedlichen Anforderungen angegeben werden.

Tabelle 1.3: Anforderungen an Dichtungswerkstoffe [23]

Materialanforderung	Zweck
geringe Gasdurchlässigkeit	hohe Sicherheit und guter Wirkungsgrad
hoher elektrischer Widerstand	Isolation der Halbzellen
geringe Quellung	hohe Lebensdauer der Dichtung, geringe Stackkräfte
geringer Druckverformungsrest (compression set)	hohe Rückfederwirkung ohne Dichtkraftverlust, um Wärmeausdehnungen und Quellung von Dichtungspartnern auszugleichen, hohe Lebensdauer der Dichtung
große Reißdehnung	guter Toleranzausgleich, hohe Lebensdauer, geringe Stackkräfte
niedrige Shore-Härte	geringe Stackkräfte, große Freiheit bei der Auslegung des Dichtprofils

Während lose und durch Trägerfolien verstärkte Dichtungen nur in Einzelanfertigungen bis hin zu mittleren Serienstückzahlen zum Einsatz kommen, werden für die Massenproduktion integrierte Dichtungen favorisiert [24]. Integrierte Dichtungen lassen sich in einem Spritzgießprozess auf die Bipolarplatte [25], die Diffusionsschicht [24] oder die MEA [26] applizieren. Dabei geht der Entwicklungstrend hin zu profilierten Dichtungen. Diese erlauben im Vergleich zu Flachdichtungen einen größeren Toleranzausgleich bei gleichzeitig geringerer Bauteilbeanspruchung und Anpresskraft.

Derzeit konzentriert sich die Entwicklung auf folgende Polymerfamilien:

- Silikon
- Polyisobutylen (PIB)
- Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk (EPDM)
- Acrylnitril-Butadien-Kautschuk (NBR)
- Fluorelastomere (FPM)
- Thermoplastische Elastomere (TPE)

Die Materialien zeichnen sich bei der Verarbeitung durch eine niedrige Viskosität aus. Daher können sie in einem Spritzgießprozess bei moderaten Drücken von wenigen 10 bar auf die sensiblen Bauteile appliziert werden. Der geschätzte Preis der unterschiedlichen Elastomere bewegt sich in einem Bereich von ungefähr 15-25 €/kg. Eine Ausnahme bilden die bis circa 200 °C hochtemperaturbeständigen FPM-Materialien, deren massenbezogener Preis den der anderen Materialien um mehr als den Faktor 10 übersteigt. Thermoplastische Elastomere auf Basis von Polyurethan stellen einen Hybrid aus Thermoplast und Elastomer dar und verbinden die positiven Eigenschaften beider. Zum einen erlauben die thermoplastischen Eigenschaften kurze Zykluszeiten und die Wiederverwertung des Angussverteilers, zum anderen besitzt das Material hervorragende elastische Eigenschaften. Allerdings führt die derzeit noch unzureichende chemische Beständigkeit unter Brennstoffzellenbedingungen zu einer schnellen Alterung des Materials.

Bezogen auf den derzeitigen Stand der Technik sind in Tabelle 1.4 die verschiedenen Werkstoffe anhand ausgewählter Werkstoffeigenschaften gegenübergestellt. Das Potential für den Einsatz in Brennstoffzellen kann allerdings zum jetzigen Zeitpunkt basierend auf den material-spezifischen und fertigungstechnischen Vor- und Nachteilen der unterschiedlichen Polymerfamilien noch nicht abschließend beurteilt werden.

Tabelle 1.4: Bewertung ausgewählter Werkstoffeigenschaften unterschiedlicher Dichtungsmaterialien
(+ hoch, o mittelmäßig, - niedrig)

	Silikon	PIB	EPDM	NBR	FPM	TPE
chem. Beständigkeit	-	+	+	-	+	-
therm. Beständigkeit	+	o	o	-	+	-
mech. Beständigkeit	+	+	+	+	o	o
Gaspermeabilität	-	+	o	o	+	-
Verarbeitbarkeit	+	o	o	+	o	+
Preis	-	-	-	-	+	-

Zielsetzung und Vorgehensweise der vorliegenden Arbeit

Im Rahmen der weltweiten intensiven Forschung im Bereich der PEFC-Entwicklung besteht ein erheblicher Optimierungsbedarf dieser Technologie, um die Konkurrenzfähigkeit der Brennstoffzelle zu bereits am Markt etablierten Technologien zu erreichen. Die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Ansätze sollen dazu beitragen, die Auslegung von PEFC-Stacks der 5 kW Klasse hinsichtlich unterschiedlicher Auslegungskriterien wissenschaftlich fundiert zu optimieren. Solche Auslegungskriterien sind beispielsweise der Wirkungsgrad oder das Leistungsvolumen und –gewicht der Brennstoffzelle.

Aus der Literatur sind verschiedene Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen in der Leistungsklasse von 5 kW bekannt. Beispielhaft seien hier die in [27-35] beschriebenen Zellstapel aufgeführt. Bei der Auslegung und Optimierung derartiger Zellstapel ist eine Vielzahl an Einflussgrößen zu beachten. Dies erfordert einen breiten Ansatz, der bisher in keiner Veröffentlichung systematisch für PEFC-Stapel beschrieben worden ist. Ein breiter Ansatz umfasst unter anderem die Betrachtung des Wasser- und Wärmemanagements, die Kenntnis über die zu erwartende Strömungs- und Stromdichteverteilung und den Kraftfluss in dem Zellstapel sowie die Abhängigkeit der Zelleistung von den Betriebsparametern. Das vorrangige Ziel dieser Arbeit besteht darin, einen solchen breiten Ansatz zu verfolgen, um Wechselwirkungen der Einzelkomponenten des Stacks untereinander zu erfassen und diese auf eine neue Modell-Grundlage zu stellen. Durch eine detaillierte Beschreibung der erarbeiteten Ansätze können die abstrahierten Lösungswege und Ergebnisse zu einem hilfreichen Werkzeug bei der Auslegung und Optimierung zukünftiger Brennstoffzellenstapel auch anderer Leistungsklassen werden.

Die Arbeit gliedert sich im Einzelnen in folgende Kapitel:

Kapitel 2 beschreibt einen neuartigen Modellansatz zur Leistungscharakterisierung von PEFC in Form von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien. Für die betrachteten Brennstoffzellen werden anhand von experimentell ermittelten Messreihen funktionale Abhängigkeiten der verwendeten Modellparameter unter variierenden Betriebsparametern abgeleitet. Diese Abhängigkeiten dienen der Interpretation der Messergebnisse und erlauben, den experimentellen Messaufwand zu verringern. Eine Sensitivitätsanalyse der Modellparameter zeigt am Ende des Kapitels für das gewählte Zelldesign des 5 kW Zellstapels Optimierungspotentiale bezüglich der Zelleistung auf.

Kapitel 3 erläutert die Messaufbauten und Messmethoden, die zur Charakterisierung der untersuchten Einzelzellen und Zellstapel zum Einsatz kommen. Den Schwerpunkt dieses Kapitels bildet die Beschreibung von zwei innovativen Verfahren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen. Das erste Verfahren basiert auf lokalen Widerstandsmessungen. Die vorgestellte Messapparatur, die keine Segmentierung der MEA oder Bipolarplatte erfordert, ist kostengünstig zu fertigen und leicht in Zellstapel zu integrieren. Das als Magnetotomographie bezeichnete zweite Verfahren ist das derzeit einzige bekannte nicht-invasive und somit rückwirkungsfreie Verfahren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung. Das Verfahren erlaubt, durch Messung der magnetischen Flussdichte außerhalb eines Zellstapels auf die Stromdichteverteilung innerhalb des Zellstapels zu schließen.

Kapitel 4 beschreibt und bewertet die experimentellen Ergebnisse, die als Grundlage für die Auslegung des 5 kW Zellstapels dienen. Die Ergebnisse umfassen eine systematische Charakterisierung von Einzelzellen und aus maximal drei Zellen bestehenden Zellstapeln. Untersucht werden unter anderem die Einflüsse unterschiedlicher Strömungsstrukturen und Bipolarplattenmaterialien sowie variierender Betriebsparameter auf die Zelleistung.

Kapitel 5 behandelt die Medienverteilung in einem Brennstoffzellenstapel. Eine gleichmäßige Verteilung der Medien auf die einzelnen Zellen eines Zellstapels ist Voraussetzung für eine hohe Leistungsausbeute. Die Verteilung der Medien ist neben verschiedenen Geometrie- und Betriebsparametern von der Art der Strömungsführung in dem Zellstapel abhängig. Der gewählte Ansatz zur Berechnung der Medienverteilung untersucht die Auswirkungen der unterschiedlichen Einflussgrößen auf die Verteilung und bestimmt für den 5 kW Stapel eine auf die Strömungsstruktur der Zellen abgestimmte Auslegung der Versorgungskanäle. In einem weiteren Schritt erfolgt die Verallgemeinerung des gewählten Ansatzes, indem die Einflussgrößen zu dimensionslosen Kennzahlen zusammengefasst werden. Für beliebige Zellstapelgeometrien wird die Gleichmäßigkeit der Medienverteilung in Abhängigkeit der Kennzahlen für ausgewählte Kennzahlbereiche in graphischer und analytischer Form präsentiert.

Kapitel 6 befasst sich mit dem Wärmemanagement einer 5 kW PEFC. Zur Abfuhr der Reaktionswärme aus dem Zellstapel werden luft- und wasserbasierte Kühlkonzepte gegenübergestellt und bewertet. Eine entwickelte Auslegungsroutine optimiert die Kühlzelligeometrie bezüglich der durch die Kühlung bedingten Verlustleistung. Diese Routine erlaubt neben der Betrachtung der strömungsbedingten und Ohmschen Verlustleistung auch eine Berücksichtigung wärmetechnischer Gesichtspunkte.

Kapitel 7 gibt einen Überblick über verschiedene Befeuchtungskonzepte und bewertet diese im Hinblick auf den Einsatz in der Brennstoffzelle. Ebenfalls erfolgt eine experimentelle Charakterisierung von Befeuchtern, die auf der Membrantechnologie basieren. Anhand der Messdaten erfolgt unter Berücksichtigung der experimentellen Ergebnisse aus Kapitel 4 die Auslegung der Befeuchtereinheiten für den 5 kW Zellstapel.

Kapitel 8 betrachtet ein vereinfachtes 5 kW PEFC-System. Für dieses System werden bevorzugte Betriebsbereiche identifiziert, die einen wasserautarken Betrieb ermöglichen. Die Berechnungen des Wärme- und Wassermanagements sowie der Verlustleistung der peripheren Systemkomponenten orientieren sich an den Ergebnissen der vorherigen Kapitel.

Zur Steigerung der volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte werden in Kapitel 9 ausgewählte Bauteile diesbezüglich optimiert. Betrachtet werden die Endplatten und Dichtungen des Zellstapels.

In Kapitel 10 wird der gebaute und in Betrieb genommene Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel vorgestellt. Die Auslegung des Zellstapels basiert auf den in den vorangehenden Kapiteln vorgestellten Ergebnissen. Eine erste Leistungscharakterisierung zeigt, dass die Leistung von 5 kW erreicht wird.

In Kapitel 11 sind die gewonnenen Erkenntnisse der Arbeit abschließend zusammengefasst.

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen des vom Ministerium für Wissenschaft und Forschung des Landes Nordrhein-Westfalen geförderten Projektes „Auslegung eines kompakten PEFC-Stacks der 5 kW Klasse“. Die experimentellen Arbeiten wurden im Forschungszentrum Jülich durchgeführt.

2 Leistungsmodellierung einer PEFC

Die Modellbildung gewinnt im Bereich der Brennstoffzellentechnologie nicht zuletzt aufgrund der ständig steigenden Rechnerleistung einen immer größer werdenden Einfluss. Rechenmodelle vertiefen das Verständnis der in den Zellen ablaufenden elektrochemischen Reaktionen und helfen bei der Interpretation von Messergebnissen. Sie zeigen Optimierungspotentiale auf und erlauben, Voraussagen über das Zellverhalten zu treffen. Die Modellierung trägt dadurch entscheidend zu der verfahrenstechnischen Auslegung von Brennstoffzellen bei und verringert den experimentellen Messaufwand.

Verschiedene Modelle einer Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle sind aus der Literatur bekannt. Eindimensionale Rechenansätze beschränken sich auf die Beschreibung der Transportvorgänge rechtwinklig zur Zellebene und vernachlässigen jegliche Änderungen der Einflussgrößen entlang der Zellebene. Die ersten Modelle dieser Art sind in [36-38] publiziert worden. Zweidimensionale Modelle generieren die Verteilung der Parameter in einem Querschnitt der Zelle. Die untersuchte Schnittebene durch die Membranelektroden Einheit kann entweder entlang eines Strömungskanals (along-the-channel) oder quer zu der Strömungsstruktur (across-the-channel) erfolgen [39-45]. Dreidimensionale Berechnungen liefern die detailliertesten Informationen, sind aber aufgrund des hohen Rechenaufwands sehr zeitaufwendig. Sie beschränken sich deshalb meist auf Detailbetrachtungen einer Brennstoffzelle oder eines Zellstapels [46-48]. Dreidimensionale Berechnungen basieren auf einer großen Anzahl von Einflussgrößen und Parametern, die zum Teil schwierig zu bestimmen sind. Einen umfangreichen Überblick über die weltweiten Modellierungsaktivitäten im Bereich der PEFC bietet [49].

Ziel der folgenden Überlegungen ist es, ein aus grundlegenden physikalischen Zusammenhängen abgeleitetes Modell zu entwickeln, das experimentelle Messergebnisse zufrieden stellend beschreiben kann. Dieses Modell soll anhand einer minimalen Parameteranzahl bei geringen Rechenzeiten eine Leistungscharakterisierung von Brennstoffzellen in Form von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien erlauben. Dies ermöglicht die Interpretation von Messergebnissen und hilft, Optimierungspotentiale zu identifizieren. Des Weiteren soll das Modell in der Lage sein, aus wenigen Experimenten funktionale Abhängigkeiten zu ermitteln, die eine Voraussage der Leistungscharakteristik unter variierenden Betriebsbedingungen zulassen. Somit trägt das Modell dazu bei, den experimentellen Messaufwand entscheidend zu verringern. Die genannten Forderungen erfüllt ein eindimensionales (1D) Modell am besten.

In diesem Kapitel werden ausgewählte, aus der Literatur bekannte 1D-Modellansätze diskutiert. Zur verbesserten Beschreibung des diffusionskontrollierten Bereiches der Spannungs-Stromdichte-Kennlinien wird ein um lokale zweidimensionale Effekte erweiterter, quasi eindimensionaler (Q1D) Ansatz vorgestellt und zwecks Validierung experimentellen Ergebnissen gegenübergestellt. Anhand eines definierten Basisfalls zeigt am Ende des Kapitels eine Sensitivitätsanalyse der aus dem Q1D-Ansatz gewonnenen Parameter Optimierungspotentiale der Zelleistung auf.

2.1 Analytischer eindimensionaler Modellansatz

Die Leistungscharakteristik einer Brennstoffzelle wird im Allgemeinen durch Spannungs-Stromdichte-Kennlinien (U-i-Kennlinien) beschrieben. Verschiedene empirische und semi-empirische Ansätze zur Berechnung der Spannungs-Stromdichte-Kennlinien sind in den letzten Jahren veröffentlicht worden [50-57]. Die in diesen Arbeiten vorgestellten Gleichungen enthalten zum Teil eine Vielzahl an sogenannten Fitting-Koeffizienten, durch die bei der Reproduktion von experimentellen Daten eine hohe Übereinstimmung erzielt wird. Dabei basieren einzelne Terme dieser Gleichungen nicht immer auf physikalischen Effekten. Dies erschwert die physikalische Interpretation der berechneten Parameter und lässt keine gesicherte Übertragung auf andere Betriebsbedingungen zu. Das manifestiert sich darin, dass die systematische Applikation dieser Gleichungen auf Messdatensätze keine klaren Trends der (Fitting-) Koeffizienten zeigt [50, 51]. Somit bietet sich nicht die Möglichkeit, mit Hilfe der gewonnenen Parameter auf die Leistungscharakteristik unter anderen Betriebsbedingungen zu schließen und Verständnis der ablaufenden Vorgänge zu erlangen.

In einem in [58] beschriebenen 1D-Ansatz zur Berechnung einer Spannungs-Stromdichte-Kennlinie einer PEFC sind alle enthaltenen Parameter durch elementare Transport- und Kinetikparameter ausgedrückt. Die resultierenden Gleichungen sind aus den grundlegenden physikalischen Gleichungen zur Beschreibung der Vorgänge in der Katalysatorschicht hergeleitet.

Dem Ansatz liegen folgende Annahmen zugrunde: Die Eigenschaften der Membran sind in der gesamten Zelle identisch. Aufgrund der guten Kinetik der Wasserstoffoxidation wird der Beitrag der Anode der PEFC zu den Überspannungen vernachlässigt. Betrachtet wird ausschließlich die Kathodenseite. Wegen der hohen elektronischen Leitfähigkeit des Kohlenstoffs ist das Potential der Kohlenstoffphase in der Katalysatorschicht als konstant angenommen. Ebenso ist die Leitfähigkeit der Membranphase in der Katalysatorschicht konstant. Das Potential der ionischen Phase ergibt sich aus der Summe aus den kathodischen Überspannungen und dem Potential der Kohlenstoffphase in der Katalysatorschicht. Unter der Annahme einer dünnen Katalysatorschicht mit einem hohen Sauerstoffdiffusionsvermögen ist die Sauerstoffkonzentration in der Katalysatorschicht c_{Kat} konstant. Die Sauerstoffkonzentration in dem Strömungskanal ist vom Zelleintritt bis zum Zellaustritt ebenfalls konstant. Diese Annahme entspricht einem großen Sauerstoffstöchiometriekoeffizienten λ .

Die Katalysatorschicht wird beschrieben durch:

$$\frac{\partial i_x^P}{\partial x} = -Q(x) \quad \text{Gl. 2.1}$$

$$i_x^P = -\sigma \cdot \frac{\partial \phi}{\partial x} \quad \text{Gl. 2.2}$$

Gleichung 2.1 beschreibt die Verringerung der Protonenstromdichte i_x^P entlang des Weges aufgrund der elektrochemischen Reaktion mit der Umsatzrate $Q(x)$. Die x -Achse hat ihren Ursprung an der Grenzfläche zwischen der Membran und der Katalysatorschicht ($x=0$) und verläuft orthogonal durch die Katalysator- und Diffusionsschicht (Bild 2.1). Die Dicke der

Katalysatorschicht ist mit l_{Kat} , die Dicke der Diffusionsschicht mit l_{Diff} bezeichnet. An der Stelle $x = l_{Kat} + l_{Diff}$ beginnt der kathodenseitige Strömungskanal. Gleichung 2.2 stellt das Ohmsche Gesetz dar, indem die Protonenleitfähigkeit der Polymerelektrolyt-Phase in der Katalysatorschicht ist. Da entsprechend der Annahme das Potential der Kohlenstoffphase konstant ist, ist in Gleichung 2.2 das Potential der ionischen Phase durch die Überspannung ersetzt.

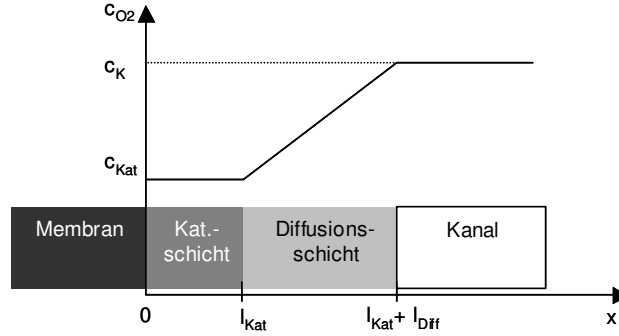


Bild 2.1: Schematischer Aufbau des Kathodenraumes mit dem Verlauf der Sauerstoffkonzentration

Die Umsatzrate der elektrochemischen Reaktion ist gegeben durch die Tafel-Gleichung

$$Q(x) = i_{ex} \cdot \left(\frac{c_{Kat}}{c_{Ref}} \right)^{\gamma} \cdot \exp \left(\frac{\alpha \cdot F}{R \cdot T} \cdot \eta(x) \right) \quad \text{Gl. 2.3}$$

i_{ex} ist die auf das Volumen bezogene Austauschstromdichte, c_{Kat} und c_{Ref} bezeichnen die Sauerstoffkonzentration in der Katalysatorschicht beziehungsweise die Referenzsauerstoffkonzentration. Die Reaktionsordnung der Sauerstoffreduktion wird in den weiteren Betrachtungen nach [59] mit $\gamma = 1$ angenommen. α ist der Transferkoeffizient, F die Faraday-Konstante, R die allgemeine Gaskonstante und T die Zelltemperatur.

Der Sauerstofftransport durch die Diffusionsschicht wird durch das Fick'sche Gesetz beschrieben. Der durch die Diffusionsschicht diffundierende Sauerstoffmolenstrom ist proportional zu der Protonenstromdichte, die in die Katalysatorschicht eintritt.

$$D_{Diff} \cdot \frac{\partial c}{\partial x} = - \frac{i_0^P}{4} \quad \text{Gl. 2.4}$$

D_{Diff} ist der effektive Sauerstoffdiffusionskoeffizient in der Diffusionsschicht, i_0^P die Protonenstromdichte an der Grenzfläche zwischen Membran und Katalysatorschicht. 4 ist die Anzahl der pro Sauerstoffmolekül an der Reaktion teilnehmenden Elektronen.

Die Lösung der Gleichung 2.4 liefert die Abhängigkeit der Sauerstoffkonzentration in der Katalysatorschicht von der Sauerstoffkonzentration im Strömungskanal c_K .

$$c_{Kat} = c_K \cdot \left(1 - \frac{i_0^P}{i_G} \right) \quad \text{Gl. 2.5}$$

mit der Grenzstromdichte i_G

$$i_G = 4 \cdot F \cdot \frac{D_{Diff} \cdot c_K}{l_{Diff}} \quad \text{Gl. 2.6}$$

Entspricht die Stromdichte der Grenzstromdichte, fällt die Sauerstoffkonzentration in der Katalysatorschicht auf den Wert null. Eine weitere Steigerung der Stromdichte ist somit nicht möglich. Gleichung 2.5 und Gleichung 2.3 eingesetzt in Gleichung 2.1 ergeben

$$\frac{\partial i_x^P}{\partial x} = -i_{ex} \cdot \left(\frac{c_K}{c_{Ref}} \right) \cdot \left(1 - \frac{i_0^P}{i_G} \right) \cdot \exp\left(\frac{\alpha \cdot F}{R \cdot T} \cdot \eta(x) \right) \quad \text{Gl. 2.7}$$

Unter Berücksichtigung von Gleichung 2.2 kann für Gleichung 2.7 für die beiden Grenzfälle $i_0^P \ll i_*$ und $i_0^P \gg i_*$ eine analytische Lösung angegeben werden.

$$\frac{\eta_0}{b} = \ln\left(\frac{i_0^P}{i_*} \right) - \ln k - \ln\left(1 - \frac{i_0^P}{i_G} \right), \quad i_0^P \ll i_* \quad \text{Gl. 2.8}$$

$$\frac{\eta_0}{b} = 2 \cdot \ln\left(\frac{i_0^P}{i_*} \right) - \ln k - \ln\left(1 - \frac{i_0^P}{i_G} \right), \quad i_0^P \gg i_* \quad \text{Gl. 2.9}$$

$$i_* = \frac{2 \cdot \sigma \cdot b}{l_{Kat}}, \quad k = \frac{l_{Kat} \cdot i_{ex}}{i_*} \cdot \frac{c_K}{c_{Ref}}, \quad b = \frac{R \cdot T}{\alpha \cdot F} \quad \text{Gl. 2.10}$$

In Gleichung 2.10 bezeichnet i_* die charakteristische Stromdichte, der Faktor k beschreibt die Konzentrationsüberspannung und der Faktor b steht für die Tafel-Steigung. Aus den Gleichungen 2.8 und 2.9 geht hervor, dass die Überspannungen mit größer werdendem Verhältnis i_0^P / i_* steigen. Gleichung 2.8 entspricht dem Fall einer über die Katalysatorschicht nahezu konstanten Überspannung (x) konstant. Ist entsprechend Gleichung 2.9 die Stromdichte größer als die charakteristische Stromdichte, findet die Reaktion in einer dünnen Unterschicht an der Grenzfläche zwischen Katalysatorschicht und Membran statt. Um den gleichen Strom zu produzieren, benötigt dieser Zustand eine um den Faktor 2 höhere Überspannung als der durch Gleichung 2.8 charakterisierte Zustand.

Durch die Funktion werden die beiden in den Gleichungen 2.8 und 2.9 beschriebenen Grenzfälle zu einer für alle Protonenstromdichten i_0^P gültigen Gleichung verbunden:

$$\frac{\eta_0}{b} = \phi \cdot \ln\left(\frac{i_0^P}{i_*} \right) - \ln k - \ln\left(1 - \frac{i_0^P}{i_G} \right) \quad \text{Gl. 2.11}$$

Die Funktion variiert zwischen den Werten 1 für $i_0^P \ll i_*$ und 2 für $i_0^P \gg i_*$ und ist definiert als

$$\phi = 1 + \frac{\frac{i_0^P}{i_*}}{1 + \frac{i_0^P}{i_*}} \quad \text{Gl. 2.12}$$

In Gleichung 2.11 beschreiben die ersten beiden Terme auf der rechten Seite die Aktivierungs- und Konzentrationsüberspannung und der letzte Term die Diffusionsüberspannung.

Brennstoffzellen werden überstöchiometrisch mit Luft versorgt. Das Verhältnis aus zugeführtem zu bei stöchiometrischer Reaktion umgesetztem Sauerstoffmolenstrom wird als Stöchiometrie-koeffizient bezeichnet. Da der luftseitige Stöchiometrie-koeffizient typischerweise jedoch nur zwischen $\lambda = 1,5 - 4$ liegt, kann die Sauerstoffabreicherung vom Zelleintritt bis zum Zellaustritt nicht vernachlässigt werden. In [60] wird der obige Ansatz auf die Abhängigkeit der kathoden-seitigen Überspannung von dem Stöchiometrie-koeffizienten erweitert. Es wird gezeigt, dass der Einfluss der Sauerstoffabreicherung auf die Zelleistung beschrieben werden kann, indem die Protonenstromdichte i_0^P durch das Produkt $f_\lambda \cdot i$ ersetzt wird. bezeichnet die über die gesamte Zelle gemittelte Stromdichte, der Faktor f_λ berücksichtigt die Abhängigkeit der Überspannungen von dem Stöchiometrie-koeffizienten. Aus Gleichung 2.11 folgt:

$$\frac{\eta_0}{b} = \phi \cdot \ln\left(\frac{f_\lambda \cdot i}{i_*}\right) - \ln k_0 - \ln\left(1 - \frac{f_\lambda \cdot i}{i_{G0}}\right) \quad \text{Gl. 2.13}$$

mit

$$\phi = 1 + \frac{\frac{f_\lambda \cdot i}{i_*}}{1 + \frac{f_\lambda \cdot i}{i_*}}, \quad k_0 = \frac{l_{Kat} \cdot i_{ex}}{i_*} \cdot \frac{c_0}{c_{Ref}}, \quad i_{G0} = 4 \cdot F \cdot \frac{D_{Diff} \cdot c_0}{l_{Diff}} \quad \text{Gl. 2.14}$$

Hierin bezeichnet c_0 die Sauerstoffkonzentration am Zelleintritt. f_λ variiert zwischen unendlich (für $\lambda \rightarrow 1$) und dem Wert 1 (für $\lambda \rightarrow \infty$) und ist definiert als

$$f_\lambda = -\lambda \cdot \ln\left(1 - \frac{1}{\lambda}\right) \quad \text{Gl. 2.15}$$

Für $\lambda \rightarrow 1$ liegt eine entlang des gesamten Strömungskanals nahezu konstante Sauerstoffkonzentration vor. In diesem Fall ist $f_\lambda \rightarrow 1$ und somit die Überspannung unabhängig vom Stöchiometrie-koeffizienten. Eine stark ungleichmäßige Verteilung der Sauerstoffkonzentration im Strömungskanal stellt sich bei $\lambda \rightarrow \infty$ ein. Der Wert von f_λ steigt und die Grenzstromdichte i_{G0} erscheint um den Faktor f_λ verringert. In den weiteren Betrachtungen wird der Quotient i_{G0} / f_λ als Lambda-korrigierte Grenzstromdichte bezeichnet.

Die Zellspannung U_Z der PEFC berechnet sich nach Gleichung 2.16.

$$U_Z = U_{rev} - \eta_0 - R \cdot i \quad \text{Gl. 2.16}$$

Ebenfalls vernachlässigt ist in Gleichung 2.16 die Verringerung der Zellspannung aufgrund der Diffusion der Reaktanden durch die Membran. U_{rev} bezeichnet die temperaturabhängige reversible Zellspannung. Der Flächenwiderstand $R = R_{Mem} + R_{Bulk}$ setzt sich zusammen aus dem Flächenwiderstand der Membran R_{Mem} und dem Flächenwiderstand R_{Bulk} , der die Kontakt- und Materialwiderstände der restlichen Zellkomponenten umfasst. Unter der Annahme, dass die

Membran über der gesamten Zelle ausreichend befeuchtet ist, kann eine Änderung von R_{Mem} und damit von i_{G0} mit dem Protonenstrom vernachlässigt werden.

Gleichung 2.13 eingesetzt in Gleichung 2.16 liefert die Berechnungsgrundlage zur Bestimmung der Spannungs-Stromdichte-Kennlinie

$$U_Z = U_{rev} - b \cdot \phi \cdot \ln\left(\frac{f_\lambda \cdot i}{i_*}\right) - b \cdot \ln k_0 - b \cdot \ln\left(1 - \frac{f_\lambda \cdot i}{i_{G0}}\right) - \tilde{R} \cdot i \quad \text{Gl. 2.17}$$

Neben der Stromdichte i sind in Gleichung 2.17 die sieben Einflussgrößen auf die Zellspannung: die reversible Zellspannung U_{rev} , die Tafel-Steigung b , der Faktor $\ln k_0$, die Grenzstromdichte i_{G0} , die charakteristische Stromdichte i_* , f_λ als Funktion des Stöchiometrikoeffizienten und der Flächenwiderstand $\tilde{R}$. In Tabelle 2.1 ist aufgetragen, durch welche Größen die Modellparameter zur Beschreibung der kathodischen Überspannungen beeinflusst werden. ϕ bezeichnet die relative Feuchte der Reaktanden am Zelleintritt. Für die weiteren Untersuchungen sind jeweils die Betriebstemperatur und die relative Feuchte der Reaktanden am Zelleintritt konstant.

Tabelle 2.1: Einflussgrößen auf die Modellparameter

Modellparameter		Beeinflussbar durch:					
		c_0 (p)	T	λ	ϕ	Geometrie der Zellkomponenten	Materialeigenschaften der Zellkomponenten
U_{rev}	:		+				
b	:		+				+
$\ln k_0$	:	+	+			+	
i_{G0}	:	+	+		+	+	+
i_*	:		+			+	+
f_λ	:			+			
	:		+		+	+	+

Der Modellansatz nach Gleichung 2.17 wird im Folgenden anhand von experimentellen Messdaten überprüft. Systematisch werden die Parameter aus dem Modellansatz auf einen aus mehreren experimentell ermittelten Spannungs-Stromdichte-Kennlinien bestehenden Messdatensatz angepasst.

Die Experimente erfolgen an einer Einzelzelle im Labormaßstab. Die aktive Fläche beträgt 18 cm^2 . Untersucht wird der Einfluss der Sauerstoffkonzentration am Zelleintritt auf die Zelleistung. Bei konstantem Sauerstoffstöchiometrikoeffizienten ($\phi_{O_2}=2$) wird der Sauerstoffmolenbruch im Kathodengas variiert, indem Stickstoff und Sauerstoff in dem gewünschten Verhältnis vor dem Zelleintritt gemischt werden. Der Sauerstoffmolenbruch x_{O_2} ist auf das unbefeuchtete Kathodengas bezogen.

$$x_{O_2} = \frac{n_{O_2}}{\dot{n}_{O_2} + \dot{n}_{N_2}} \cdot 100\% \quad \text{Gl. 2.18}$$

n_{O_2}, n_{N_2} bezeichnen den Sauerstoff- und Stickstoffmolenstrom am Zelleintritt. Die Kathodengaszusammensetzung variiert zwischen $x_{O_2} = 5\%$ und $x_{O_2} = 100\%$.

Bei allen Messungen beträgt der Betriebsdruck 2 bar, die Betriebstemperatur 70 °C und der anodenseitige Stöchiometriekoeffizient $\lambda = 1,1$. Die Reaktandengase sind vollständig befeuchtet. Der Aufbau des Teststands ist in Kapitel 3.2.2 näher beschrieben.

Die in obigem Ansatz in Gleichung 2.17 aufgeführten Parameter, die auf die experimentellen Daten angepasst werden, sind die Tafel-Steigung b , der Faktor $\ln k_0$, die Grenzstromdichte i_{G0} und die charakteristische Stromdichte i_* . Bezogen auf den Standarddruck von 1 bar beträgt die reversible Zellspannung für die vorliegenden Bedingungen 1,18 V. Der Einfluss des von dem Standarddruck abweichenden Sauerstoffpartialdrucks wird über den Faktor $\ln k_0$ berücksichtigt. Der Flächenwiderstand wird mittels Abschaltmessungen (siehe Kapitel 3.6) während der Versuche direkt experimentell ermittelt. In allen Experimenten sind die Stöchiometriekoeffizienten des Anoden- und Kathodengases konstant. Nach Gleichung 2.15 ist der kathodenseitige Faktor $f_\lambda = 1,39$ bekannt.

Von der Sauerstoffkonzentration abhängige Parameter sind der Faktor $\ln k_0$ sowie die Grenzstromdichte i_{G0} (siehe Tabelle 2.1). Die Tafel-Steigung b und die charakteristische Stromdichte i_* hängen nicht von der Sauerstoffkonzentration ab und sind daher bei der Berechnung der unterschiedlichen Spannungs-Stromdichte-Kennlinien konstant.

Die Berechnung der Parameter erfolgt, indem für die verschiedenen U-i-Kurven die Summe aus den Quadraten der Differenzen zwischen experimentellen und theoretischen Werten mit Hilfe einer Lösungsroutine minimiert werden.

Die berechneten Werte für die einzelnen Parameter sind in Tabelle 2.2 aufgeführt. Die Tafel-Steigung $b = 60$ mV (138 mV/dec) liegt in einem für PEFC typischen Bereich. Die berechnete charakteristische Stromdichte beträgt $i_* = 3,6$ A/cm². Bei einem Sauerstoffmolenbruch von $x_{O_2} = 21\%$ ist die Stromdichte der Zelle kleiner als die charakteristische Stromdichte ($f_\lambda i < i_*$). Bei dieser Betriebsführung ist von einem gleichmäßigen Reaktionsumsatz in der Katalysatorschicht auszugehen. Für $x_{O_2} = 21\%$ arbeitet die Zelle in dem intermediären Stromdichteregime ($f_\lambda i < i_*$). Der Übergang von dem Regime geringer ($f_\lambda i < i_*$) zu dem hoher ($f_\lambda i > i_*$) Stromdichte ist verbunden mit einer Zunahme der Aktivierungsüberspannung. Diesem unerwünschten Effekt kann zuvorgekommen werden, indem die charakteristische Stromdichte erhöht wird. Dies gelingt durch eine verbesserte Protonenleitfähigkeit, durch eine verringerte Katalysatorschichtdicke oder eine erhöhte Tafel-Steigung (siehe Gleichung 2.10). Die berechneten Werte für den von der Sauerstoffkonzentration abhängigen Faktor $\ln k_0$ sowie das Verhältnis f_λ / i_{G0} zeigen einen deutlichen Trend. Wie aus Gleichung 2.14 ersichtlich, werden beide Parameter mit zunehmender Sauerstoffkonzentration kleiner. Bei dem Experiment mit einem Sauerstoffmolenbruch von $x_{O_2} = 100\%$ wird nicht der diffusionskontrollierte Bereich der Spannungs-Stromdichte-Kennlinie erreicht. Die berechnete Grenzstromdichte ist in diesem Fall für physikalische Interpretationen ungeeignet.

Tabelle 2.2: Berechnete Modellparameter für unterschiedliche Kathodengaszusammensetzungen

	Sauerstoffmolenbruch (bez. auf trockenes Kathodengas)						
	5 %	10 %	21 %	40 %	80 %	100 %	
b	60	60	60	60	60	60	[mV]
i_*	3,6	3,6	3,6	3,6	3,6	3,6	[A/cm ²]
f_λ	1,39	1,39	1,39	1,39	1,39	1,39	[-]
(aus Exp.)	0,19	0,19	0,19	0,18	0,18	0,14	[Ωcm^2]
$\ln k_0$	9,57	8,36	7,49	7,03	6,69	6,20	[-]
f_λ / i_{G0}	1,98	1,19	0,71	0,47	0,4	0	[1/(A/cm ²)]

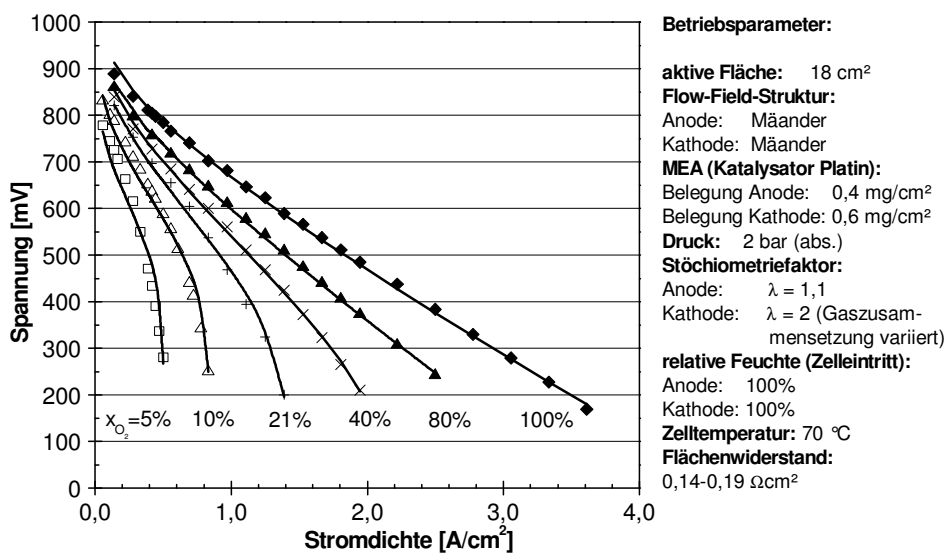


Bild 2.2: Vergleich zwischen Messdaten und Simulation (Symbol: Experiment, Linie: Modell)

Die mit den Parametern aus Tabelle 2.2 berechneten Simulationsergebnisse sind in Bild 2.2 den experimentellen Messdaten gegenübergestellt. Der gewählte Modellansatz bildet im Bereich hoher Sauerstoffeintrittskonzentrationen die Messdaten gut ab. Der Korrelationskoeffizient für die Kennlinien mit einem Sauerstoffmolenbruch $\geq 40\%$ liegt über 0,999. Allerdings zeigt sich bei geringen Sauerstoffkonzentrationen und hohen Stromdichten, dass die simulierten Kennlinien nur unbefriedigend dem gemessenen Verlauf folgen. Bei der Kennlinie mit dem Sauerstoffmolenbruch $x_{O_2} = 5\%$ tritt die größte Abweichung zwischen berechnetem und experimentellem Wert auf. In diesem Fall beträgt der Korrelationskoeffizient 0,988. Bei gleicher Zellspannung beträgt die maximale Differenz aus berechneter und gemessener Stromdichte 55 mA/cm². Dies entspricht einer prozentualen Abweichung von 33 %. Die mittlere Abweichung der drei Kennlinien mit geringer Sauerstoffkonzentration ($x_{O_2} = 5\%, 10\%, 21\%$) beträgt 28 mA/cm². In Bild 2.3 ist zu erkennen, dass der Übergang von dem nahezu linearen Bereich,

der durch die Ohmschen Überspannungen kontrolliert ist, in den diffusionskontrollierten Bereich bei den berechneten Kurven bei höheren Stromdichten erfolgt als bei den experimentellen Daten. Dagegen fallen im diffusionskontrollierten Bereich die berechneten Kurven steiler ab. Dies deutet darauf hin, dass die für die gesamte Zelle angesetzte Grenzstromdichte durch den Term, der die Diffusionsüberspannung beschreibt, zu stark berücksichtigt wird. Ein neuer Modellansatz, der dieser Problematik Rechnung trägt, ist im folgenden Kapitel beschrieben.

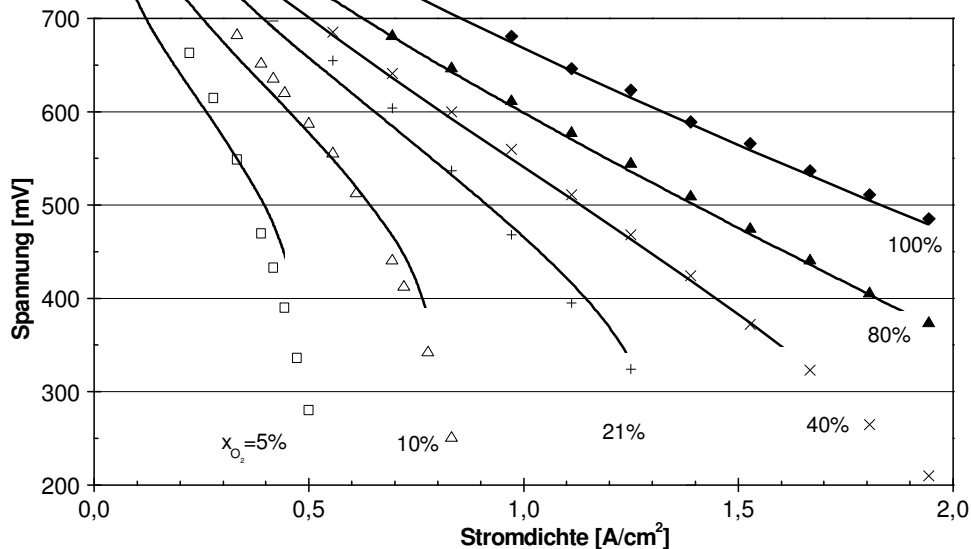


Bild 2.3: Vergleich zwischen Messdaten und Simulation, Ausschnittsvergrößerung des diffusionskontrollierten Bereiches der U-i-Kennlinien aus Bild 2.2 (Symbol: Experiment, Linie: Modell)

2.2 Quasi eindimensionaler (Q1D-) Modellansatz

Dem in Kapitel 2.1 beschriebenen Ansatz liegt die Annahme zugrunde, dass in der Zelle homogene Verhältnisse vorliegen. Dies erlaubt, gemittelte Parameter zur Leistungscharakterisierung heranzuziehen. Reale Zellen weichen von diesen idealen Bedingungen ab. Ortsaufgelöste Stromdichtemessungen in Brennstoffzellen, wie sie in Kapitel 4.3 gezeigt sind, und dreidimensionale Simulationsrechnungen [61] bestätigen dies. Demnach zeigen sich Inhomogenitäten in einer Zelle in Form von Gebieten hoher und geringer Leistungsdichte. Gründe für die Abweichungen von dem homogenen Idealfall sind zum Beispiel:

- die über die Kanallänge stetig sinkende Sauerstoffkonzentration
- unterschiedliche Weglängen bei der Diffusion der Reaktanden zu den Katalysatorplätzen, die unter einem Steg oder unter einem Kanal liegen

Darüber hinaus können eine partielle Austrocknung der Membran sowie Wasseransammlungen in der Katalysator- oder Diffusionsschicht Inhomogenitäten in einer Zelle bedingen.

In Folge dessen setzt sich die über die gesamte Zelle gemessene Spannungs-Stromdichte-Kennlinie aus vielen „lokalen“ U-i-Kennlinien zusammen. Dies ist in Bild 2.4 veranschaulicht.

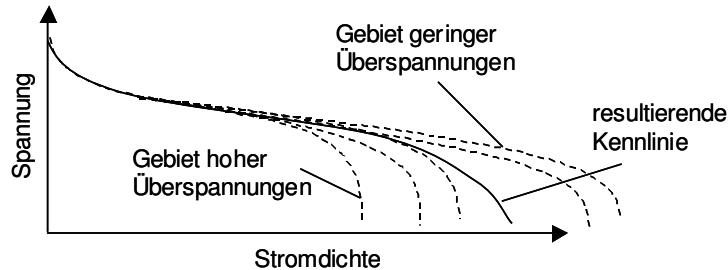


Bild 2.4: Schematische Darstellung der lokalen Spannungs-Stromdichte-Kennlinien in einer Brennstoffzelle

Unter der Annahme, dass die gesamte Membranfläche gleichmäßig befeuchtet ist, sind die unterschiedlichen Spannungs-Stromdichte-Kennlinien nur durch unterschiedliche Grenzstromdichten zu erklären. Die Grenzstromdichte ist nach Gleichung 2.14 eine Funktion der Diffusionsschichtdicke beziehungsweise der Diffusionsweglänge, des effektiven Sauerstoffdiffusionskoeffizienten sowie der Sauerstoffkonzentration am Zelleintritt. Beispielhaft ist in Bild 2.5 gezeigt, dass sich die Diffusionsweglänge zu Katalysatorplätzen unter einem Kanal von der zu Katalysatorplätzen unter einem Steg unterscheidet. Somit unterscheiden sich auch die dort vorliegenden Grenzstromdichten.

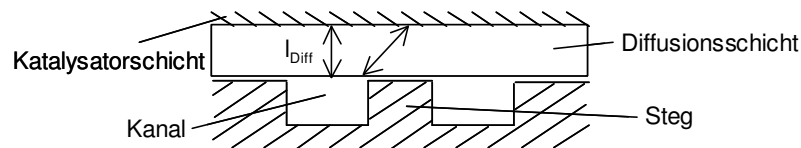


Bild 2.5: Unterschied der Weglänge bei der Diffusion zu Katalysatorplätzen unter Stegen und Kanälen

Auf dieser Überlegung aufbauend wird im Folgenden ein neuer Modellierungsansatz vorgestellt. Basierend auf den im vorherigen Kapitel vorgestellten Modellvorstellungen wird in dem neuen Ansatz die resultierende Spannungs-Stromdichte-Kurve aus zwei U-i-Kurven generiert. Eine der beiden Kurven repräsentiert ein Gebiet mit höheren Überspannungen, die andere ein Gebiet mit geringeren Überspannungen. Bei beiden Kurven sind alle Parameter bis auf die Grenzstromdichte identisch. Die resultierende U-i-Kurve berechnet sich aus dem arithmetischen Mittel der isopotentialen Stromdichten der beiden Einzelkurven:

$$i_{\text{resultierend}} = 0,5 \cdot i_{\text{hohe Übersp.}} + 0,5 \cdot i_{\text{geringe Übersp.}} \quad U_z \text{ konstant} \quad \text{Gl. 2.19}$$

Dadurch, dass lokale zweidimensionale Effekte in das eindimensionale Modell integriert werden, wird der neue Ansatz im Weiteren als quasi eindimensional (Q1D) bezeichnet.

2.2.1 Anwendung des Q1D-Modellansatzes auf Zellen im Labormaßstab

Im Folgenden wird der Q1D-Ansatz auf die bereits in Kapitel 2.1 vorgestellten Messergebnisse einer Brennstoffzelle mit einer aktiven Fläche von 18 cm² angewendet. Beispielhaft für die Spannungs-Stromdichte-Kennlinie mit $x_{O_2}=21\%$ zeigt Bild 2.6, wie nach dem Q1D-Ansatz die resultierende Kennlinie aus den beiden lokalen Einzelkurven ermittelt wird. Die für diese beiden Kurven konstanten Parameter lauten $b=56$ mV, $i_*=3,6$ A/cm² und $\ln k_0=8,8$.

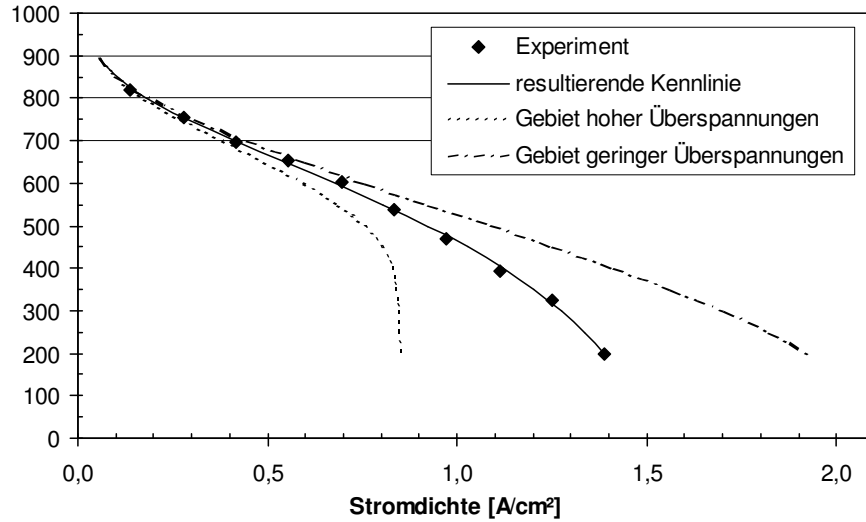


Bild 2.6: Bestimmung der U-i-Kennlinie für $x_{O_2}=21\%$ mittels des Q1D-Ansatzes

Die Kurve, die das Gebiet der hohen Überspannungen repräsentiert, erreicht bei einer Zellspannung von circa 400 mV die maximale Stromdichte. Die Lambda-korrigierte Grenzstromdichte i_{G0}/f_λ liegt in diesem Gebiet bei 0,85 A/cm². Die Lambda-korrigierte Grenzstromdichte der Kennlinie des Gebiets geringer Überspannungen berechnet sich zu 2,09 A/cm². Die effektive Grenzstromdichte der resultierenden Kennlinie ergibt sich aus dem arithmetischen Mittel der beiden Grenzstromdichten zu 1,47 A/cm². Nach Gleichung 2.14 unterscheiden sich die Grenzstromdichten der Gebiete hoher und geringer Überspannungen ausschließlich durch den Massentransferkoeffizienten (D_{Diff}/l_{Diff}). Aufgrund lokaler zweidimensionaler Effekte ist dieser Koeffizient für das Gebiet der hohen Überspannungen um den Faktor 2,5 kleiner als für das Gebiet der geringen Überspannungen.

In Bild 2.7 sind die Messdaten den Simulationsergebnissen des Q1D-Ansatzes gegenübergestellt. Wiederum variieren zwischen den einzelnen Kennlinien nur die von der Sauerstoffkonzentration abhängigen Parameter $\ln k_0$ (Bild 2.9) und die Grenzstromdichte i_{G0} (Bild 2.10). Gemäß des neuen Modells liegen für jede berechnete U-i-Kurve zwei Grenzstromdichten vor. Die für alle Kennlinien konstanten Parameter lauten: $b=56$ mV, $i_*=3,6$ A/cm², $=0,14-0,19$ Ωcm² (gemessen, siehe Tabelle 2.2).

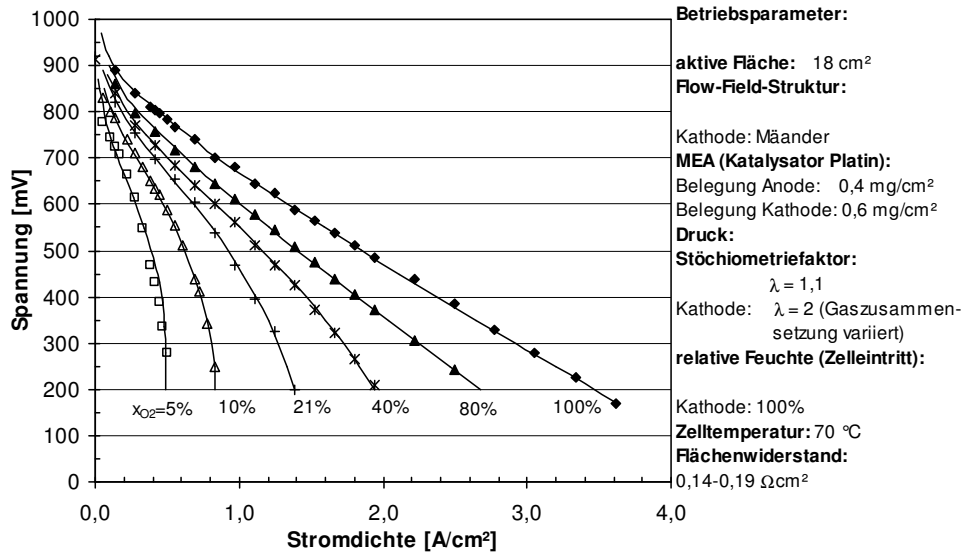


Bild 2.7: Vergleich der Messdaten mit den Simulationsrechnungen des quasi eindimensionalen Modells (Symbol: Experiment, Linie: Q1D-Modell)

Ein Vergleich zwischen beiden Modellansätzen zeigt unter Verwendung des quasi eindimensionalen Ansatzes für den Bereich der hohen Stromdichten bei geringen Sauerstoffkonzentrationen eine deutlich bessere Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentellen Werten. In Bild 2.8 ist dieser Bereich fokussiert. Die berechneten Kennlinien folgen dem Verlauf der Messdaten im diffusionskontrollierten Bereich zufrieden stellend. Die maximale Abweichung von rund 31 mA/cm² zwischen gemessenem und experimentellem Wert gleicher Spannung findet sich wiederum bei der Kennlinie mit einem Sauerstoffmolenbruch von 5 %. Die mittlere Abweichung der drei Kennlinien mit geringer Sauerstoffkonzentration ($x_{O_2} = 5\%$, 10 %, 21 %) beträgt 12 mA/cm². Dies entspricht im Vergleich zu dem Modellansatz aus Kapitel 2.1 einer Verringerung der Abweichungen um 57 %. In Tabelle 2.3 sind die Korrelationskoeffizienten der drei Kennlinien mit geringer Sauerstoffkonzentration für beide Ansätze gegenübergestellt.

Tabelle 2.3: Korrelationskoeffizienten der Kennlinien mit geringer Sauerstoffkonzentration

Sauerstoffmolenbruch	Korrelationskoeffizient	
	erweiterter 1D-Ansatz nach [60]	Q1D-Ansatz
5 %	0,988	0,995
10 %	0,995	0,999
21 %	0,998	0,999

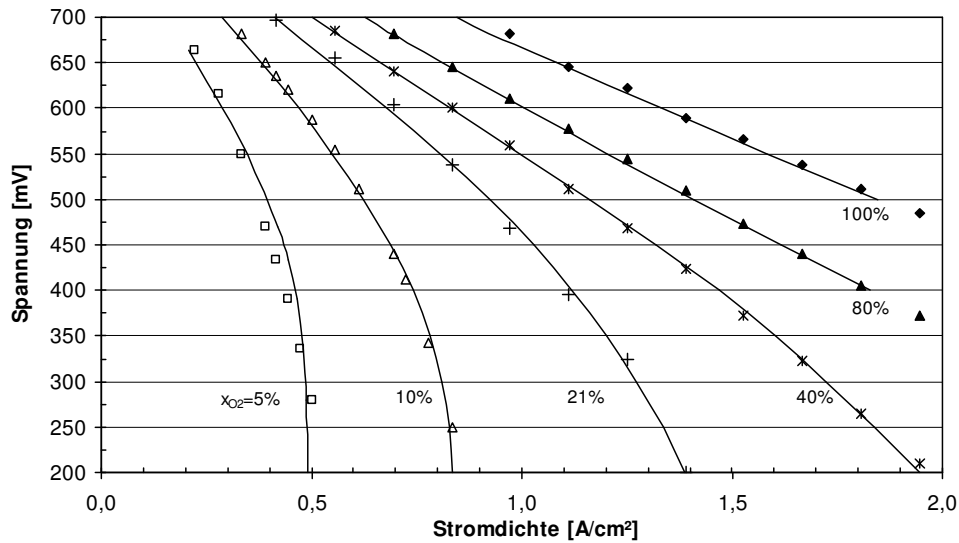


Bild 2.8: Vergleich zwischen Messdaten und Simulation, Ausschnittsvergrößerung des diffusionskontrollierten Bereiches der U-i-Kennlinien aus Bild 2.7 (Symbol: Experiment, Linie: Q1D-Modell)

In Bild 2.9 ist der ermittelte Verlauf des Faktors $\ln k_0$ in Abhängigkeit der molaren Sauerstoffkonzentration des befeuchteten Kathodengases am Zelleintritt aufgetragen. Wie nach Gleichung 2.14 zu erwarten ist, steigen im Bereich der geringen Eintrittssauerstoffkonzentrationen die Werte für $\ln k_0$ steil an. Gleichung 2.20 folgt direkt aus der Definition von $\ln k_0$ in Gleichung 2.14

$$y = -\ln k_0 = -\ln(a \cdot c_0) \quad \text{mit} \quad a = \frac{l_{Kat} \cdot i_{ex}}{i_* \cdot c_{Ref}} \quad \text{Gl. 2.20}$$

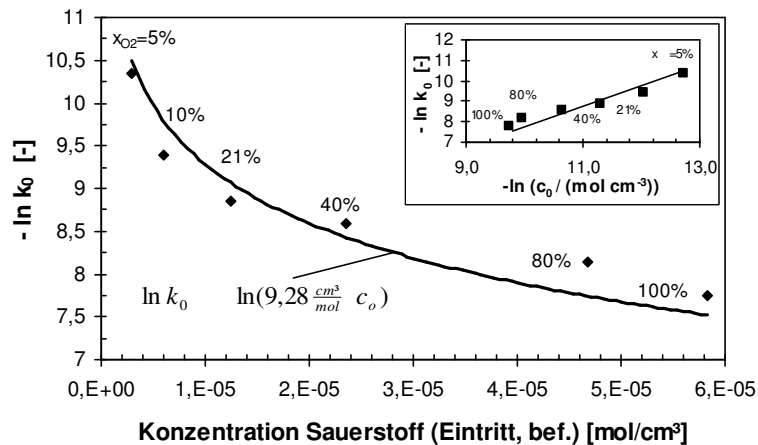


Bild 2.9: Abhängigkeit des Parameters $-\ln k_0$ von der Sauerstoffkonzentration am Zelleintritt

Die in Bild 2.9 dargestellte logarithmische Regressionsfunktion liefert den Wert des in Gleichung 2.20 aufgeführten Faktors $\approx 9,28 \text{ cm}^3/\text{mol}$. Unter den vorherrschenden Betriebsbedingungen und einer angenommenen Katalysatorschichtdicke von $10 \mu\text{m}$ kann daraus das Verhältnis $i_{\text{ex}} / c_{\text{Ref}} = 3,34 \cdot 10^4 \text{ A/mol}$ grob abgeschätzt werden.

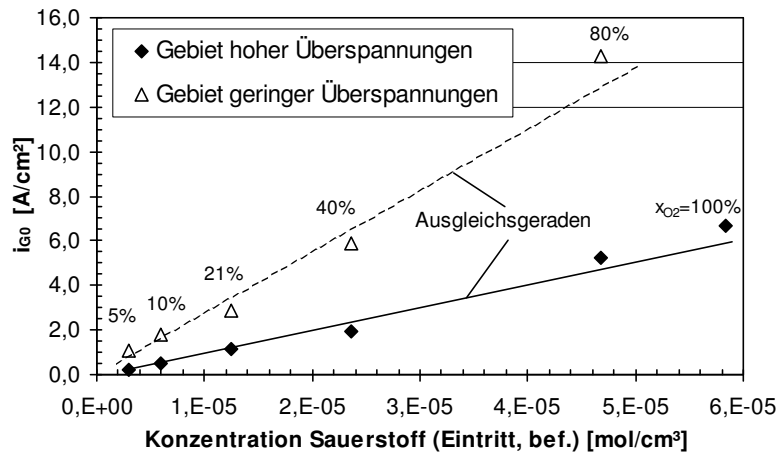


Bild 2.10: Abhängigkeit der Grenzstromdichten von der Sauerstoffkonzentration am Zelleintritt

In Bild 2.10 sind die Grenzstromdichten der einzelnen Spannungs-Stromdichte-Kennlinien für hohe und niedrige Diffusionsüberspannungen als Funktion der Sauerstoffkonzentration des befeuchteten Kathodengases am Zelleintritt aufgetragen. Für Sauerstoffkonzentrationen oberhalb von $x_{\text{O}_2} = 80\%$ sind die ermittelten Grenzstromdichten nicht mehr belastbar, da die Messdaten nicht den diffusionskontrollierten Bereich abdecken.

Beide Grenzstromdichten steigen mit größer werdender Sauerstoffkonzentration an und zeigen nahezu den erwarteten linearen Verlauf. Aufgrund des höheren Massentransferkoeffizienten in den Gebieten geringer Überspannungen ist der Verlauf der Grenzstromdichte mit steigender Sauerstoffkonzentration für dieses Gebiet steiler. Die Differenz zwischen den beiden Grenzstromdichten nimmt somit mit steigender Sauerstoffkonzentration zu. Dies hat zur Folge, dass die beiden Kennlinien der Gebiete hoher und geringer Überspannungen bei hohen Sauerstoffkonzentrationen weiter auseinander liegen. Der Übergang vom Ohmschen in den diffusionskontrollierten Bereich der resultierenden Kurven verläuft daher bei hohen Sauerstoffkonzentrationen flacher, wie Bild 2.8 zeigt.

An weiteren Messungen an der Messzelle wird überprüft, inwieweit sich die aus der Modellierung der U-i-Kurven bei unterschiedlichen Gaszusammensetzungen gewonnen Parameter auf andere Betriebsbedingungen übertragen lassen.

Bei den folgenden Messungen entspricht die Kathodengaszusammensetzung der von Luft ($x_{\text{O}_2} = 21\%$). Der Betriebsdruck wird von 2 bar auf 3 bar erhöht. Der kathodenseitige Stöchiometrikoeffizient variiert für die gemessenen U-i-Kurven zwischen $\phi_{\text{O}_2} = 1,5$ und $\phi_{\text{O}_2} = 2,5$. Für die Modellierung der neuen Messkurven wird wiederum der aus Abschaltmessungen ermittelte Wert für den Flächenwiderstand angesetzt. Die Tafel-Steigung ist keine Funktion des Drucks

oder der Durchflussmenge (siehe Gleichung 2.10). Sie wird daher aus den vorherigen Modellierungsergebnissen mit $b=56$ mV übernommen. Wie aus Gleichung 2.14 hervorgeht, sind der Faktor $\ln k_0$ sowie die Grenzstromdichte i_{G0} keine Funktion der Durchflussmenge. Wird also bei konstantem Druck und konstanter Sauerstoffeintrittskonzentration der Stöchiometriekoeffizient geändert, bleiben der Faktor $\ln k_0$ und die Grenzstromdichte i_{G0} konstant. Aufgrund der Druckänderung von 2 bar auf 3 bar ändert sich die Sauerstoffeintrittskonzentration in dem gesättigten Kathodengas von circa $1,24 \cdot 10^{-5}$ mol/cm³ auf circa $1,97 \cdot 10^{-5}$ mol/cm³. Mit Hilfe der nach Gleichung 2.20 ermittelten Regressionsfunktion berechnet sich der Wert des Faktors $\ln k_0$ für den neuen Druck von 3 bar zu $\ln k_0 = 8,6$.

Nach Gleichung 2.14 ist die Grenzstromdichte proportional zu der Sauerstoffkonzentration und dem effektiven Diffusionskoeffizienten. Lokale zweidimensionale Effekte wie beispielsweise Ansammlungen flüssigen Wassers in der Diffusions- oder Katalysatorschicht beeinflussen den effektiven Diffusionskoeffizienten entscheidend. Der Anteil des Wassers im System ist abhängig von dem vorherrschenden Betriebsdruck. Es ist daher davon auszugehen, dass die bei einem Betriebsdruck von 2 bar für unterschiedliche Sauerstoffeintrittskonzentrationen ermittelten Abhängigkeiten der Grenzstromdichten nicht direkt auf andere Betriebsdrücke übertragbar sind. Bei Variation des Betriebsdrucks lassen sich die Grenzstromdichten somit nicht aus den in Bild 2.10 gezeigten Verläufen ableiten. Aus diesem Grund werden die Grenzstromdichten so berechnet, dass die Abweichung zwischen den modellierten Spannungs-Stromdichte-Kennlinien und den Messdaten minimiert ist. Gleichzeitig sind für die Kennlinien mit unterschiedlichem kathodenseitigen Stöchiometriekoeffizienten die Grenzstromdichten der Gebiete hoher und niedriger Überspannungen gleich groß. Die einzige sich für die Kennlinien bei unterschiedlichen Stöchiometriekoeffizienten ändernde Einflussgröße ist der Faktor f_λ . Dieser berechnet sich für die unterschiedlichen Durchflüsse nach Gleichung 2.15.

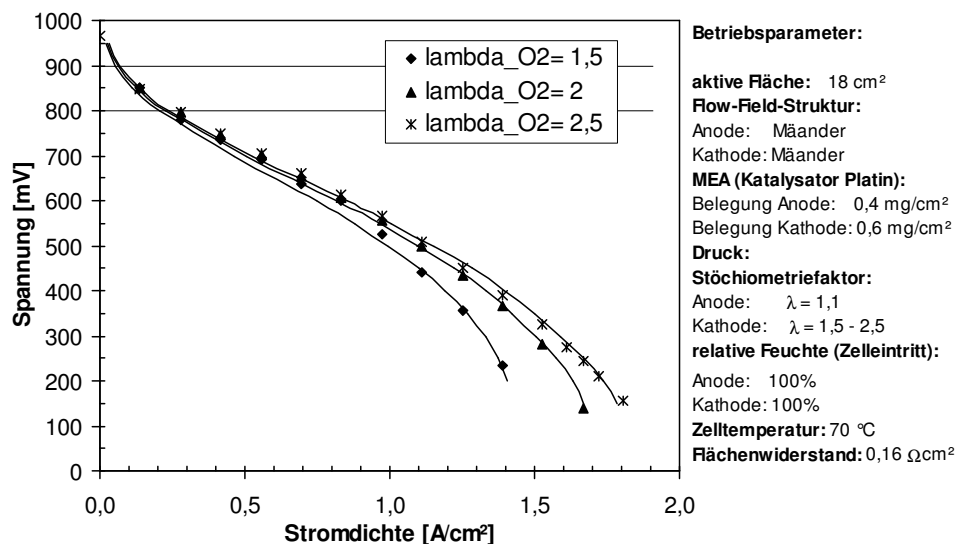


Bild 2.11: Vergleich der Messwerte mit den Q1D-Simulationsrechnungen für einen Betriebsdruck von 3 bar (Symbol: Experiment, Linie: Q1D-Modell)

Der Vergleich zwischen den experimentellen Daten und den modellierten Kennlinien zeigt eine zufrieden stellende Übereinstimmung. Die aus den vorherigen Messungen bei einem Betriebsdruck von 2 bar übernommenen oder abgeleiteten Parameter lauten: $b = 56 \text{ mV}$, $i_* = 3,6 \text{ A/cm}^2$,

$\ln k_0 = 8,6$. Der gemessene Flächenwiderstand beträgt $= 0,16 \Omega \text{cm}^2$. Die auf die Experimente angepassten, aber für alle Kennlinien konstanten Grenzstromdichten i_{G0} lauten: Gebiet hoher Überspannungen $i_{G0} = 1,4 \text{ A/cm}^2$, Gebiet geringer Überspannungen $i_{G0} = 3,3 \text{ A/cm}^2$. Entsprechend den untersuchten Stöchiometriekoeffizienten variiert der Faktor f_λ zwischen den Werten 1,28 und 1,65.

Wie von dem theoretischen Ansatz vorhergesagt, beschreiben die vom Durchfluss unabhängigen, konstanten Grenzstromdichten die diffusionskontrollierten Bereiche der Kurven für unterschiedliche Stöchiometriekoeffizienten sehr genau. Im Vergleich zu den ermittelten Grenzstromdichten für Luft bei einem Betriebsdruck von 2 bar bewirkt die Druckerhöhung eine Steigerung der Grenzstromdichten um jeweils circa 20 %. Demnach verringert die Druckerhöhung die Diffusionsüberspannung sowohl in dem Gebiet hoher als auch in dem Gebiet geringer Überspannungen.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass der quasi eindimensionale Modellansatz die experimentellen Messdatensätze sehr gut abbildet und generische Einflüsse erkennen lässt. Die aus Messungen bei einem Betriebsdruck von 2 bar gewonnene Tafel-Steigung und die charakteristische Stromdichte können direkt für die Modellierung der Kennlinien unter verändertem Betriebsdruck oder Stöchiometriekoeffizienten herangezogen werden. Aus der ermittelten Abhängigkeit des Faktors $\ln k_0$ von der Sauerstoffeintrittskonzentration bei einem Betriebsdruck von 2 bar kann der Wert des Faktors für einen anderen Betriebsdruck berechnet werden. Der Verlauf der Grenzstromdichte, ermittelt unter Variation der Kathodengaszusammensetzung, kann nicht direkt auf eine Änderung des Betriebsdrucks übertragen werden. Dazu muss die Abhängigkeit des Massentransferkoeffizienten vom Druck bei konstantem Sauerstoffmolenbruch bekannt sein. Die gute Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment bestätigt die physikalischen Ansätze, nach denen die Grenzstromdichte keine Funktion des Stöchiometriekoeffizienten ist.

2.2.2 Anwendung des Q1D-Modellansatzes auf Einzelzellen eines 5 kW-Stapels

Die bisher vorgestellten experimentellen Messungen erfolgten an einer Einzelzelle mit einer aktiven Fläche von 18 cm^2 . Brennstoffzellen, die im Kilowattbereich arbeiten, besitzen aktive Zellflächen, die um mehr als eine Größenordnung größer sein können. Die folgenden Untersuchungen bestätigen, dass der quasi eindimensionale Modellansatz auch auf Zellen dieser Größe angewendet werden kann. Dazu werden Messungen an einer Zelle mit einer aktiven Fläche von 244 cm^2 durchgeführt. Der weitere Verlauf der Arbeit zeigt, dass Zellen dieser Größe für den Einsatz in Brennstoffzellenstapeln der 5 kW-Klasse geeignet sind. Die Strömungsstruktur der Zelle sieht 14 mäanderförmig verlaufende Kanäle vor. Der Aufbau der Zelle ist detailliert in Kapitel 3.1 beschrieben. Der Betrieb einer PEFC unterhalb einer Zellspannung

von 500 mV ist aufgrund des geringen Wirkungsgrads nicht von wirtschaftlichem Interesse. Diese Zellspannung wird bei den vorliegenden Messungen bei einer Stromdichte von circa 1,1 A/cm² erreicht. Die maximal untersuchte Stromdichte ist daher bei diesen Messungen auf 1,2 A/cm² begrenzt. Unter den vorherrschenden Betriebsbedingungen wird die effektive Grenzstromdichte nicht erreicht. Bei den Messungen variiert der Betriebsdruck zwischen 1,5 bar und 2,5 bar und der kathodenseitige Stöchiometriekoeffizient zwischen 1,5 und 4. Der anodenseitige Stöchiometriekoeffizient beträgt 1,1. Die Reaktanden sind am Zelleintritt vollständig befeuchtet, die Betriebstemperatur beträgt 70 °C. Kathodenseitig wird Luft ($x_{O_2} = 21\%$) zugeführt.

Tabelle 2.4: Berechnete Modellparameter für unterschiedliche Betriebsdrücke

	Betriebsdruck			
	1,5 bar	2 bar	2,5 bar	
b	42	42	42	[mV]
i_*	3,66	3,66	3,66	[A/cm ²]
f_λ	1,39	1,39	1,39	[-]
(aus Exp.)	0,17	0,17	0,17	[Ωcm ²]
$\ln k_0$	11,62	11,32	11,17	[-]
f_λ/i_{G0} (geringe Überspg.)	0,50	0,50	0,50	[1/(A/cm ²)]
f_λ/i_{G0} (hohe Überspg.)	1,00	0,89	0,75	[1/(A/cm ²)]

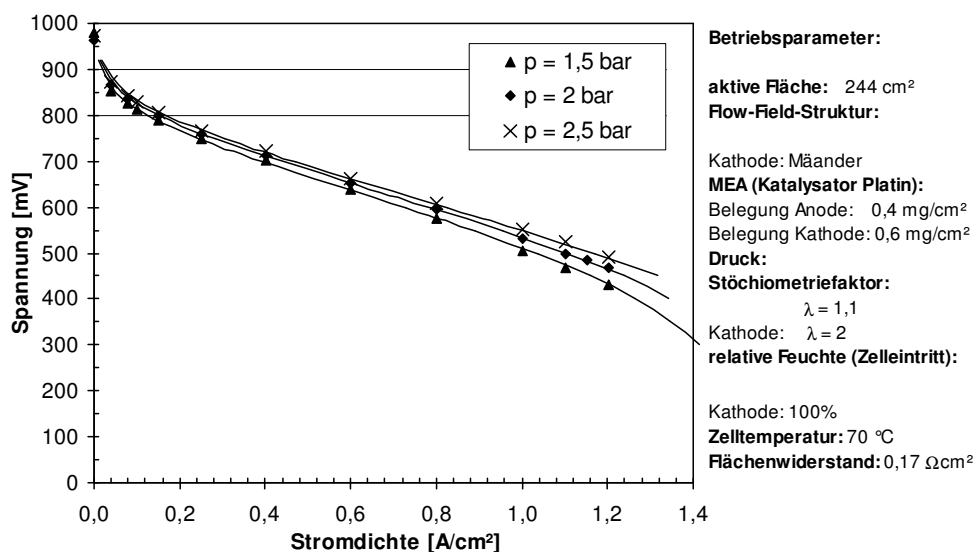


Bild 2.12: Vergleich der Messwerte mit den berechneten Werten für unterschiedliche Betriebsdrücke (Symbol: Experiment, Linie: Q1D-Modell)

Ein Messdatensatz bestehend aus drei U-i-Kennlinien mit unterschiedlichen Betriebsdrücken dient der Bestimmung der Modellparameter. Die für die Druckvariationen konstante Tafel-Steigung und die konstante charakteristische Stromdichte sowie die Abhängigkeit des Faktors

$\ln k_0$ und der Grenzstromdichten von der Sauerstoffeintrittskonzentration werden ermittelt. Der Flächenwiderstand ist aus Messungen bekannt ($r = 0,17 \Omega \text{cm}^2$). In Tabelle 2.4 sind die berechneten Parameter aufgeführt. Bei maximaler Stromdichte erreichen die Messdaten nicht den Bereich der diffusionskontrollierten Überspannungen. Die Grenzstromdichten der unterschiedlichen Kennlinien sind unter der Annahme ermittelt worden, dass die Grenzstromdichte im Gebiet geringer Überspannungen bei Druckänderungen konstant ist. Unter dieser Annahme kann eine zufrieden stellende Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den berechneten Werten erzielt werden (Bild 2.12).

Überprüft wird der Anwendungsbereich des quasi eindimensionalen Modells, indem die ermittelten Parameter auf einen weiteren Messdatensatz appliziert werden. Simuliert werden Spannungs-Stromdichte-Kennlinien für unterschiedliche kathodenseitige Stöchiometriekoeffizienten bei konstantem Betriebsdruck. Die Berechnungen beruhen auf den konstanten Parametern aus Tabelle 2.4. Aufgrund des sich ändernden Durchflusses wird ausschließlich der Faktor f_λ nach Gleichung 2.15 an die unterschiedlichen Stöchiometriekoeffizienten angepasst. Die modellierten Kennlinien sind in Bild 2.13 den Messdaten gegenübergestellt. Bei der Kennlinie mit einem kathodenseitigen Stöchiometriekoeffizienten von $\lambda_{O_2} = 1,5$ zeigt sich, dass der diffusionskontrollierte Bereich für die berechnete Kennlinie schon bei geringeren Stromdichten einsetzt als bei Extrapolation der Messdaten zu erwarten ist. Der bei diesen Messungen im Vordergrund stehende technisch relevante Bereich ist allerdings auch für diese Kennlinie mit einer sehr guten Übereinstimmung zu den Experimenten abgebildet.

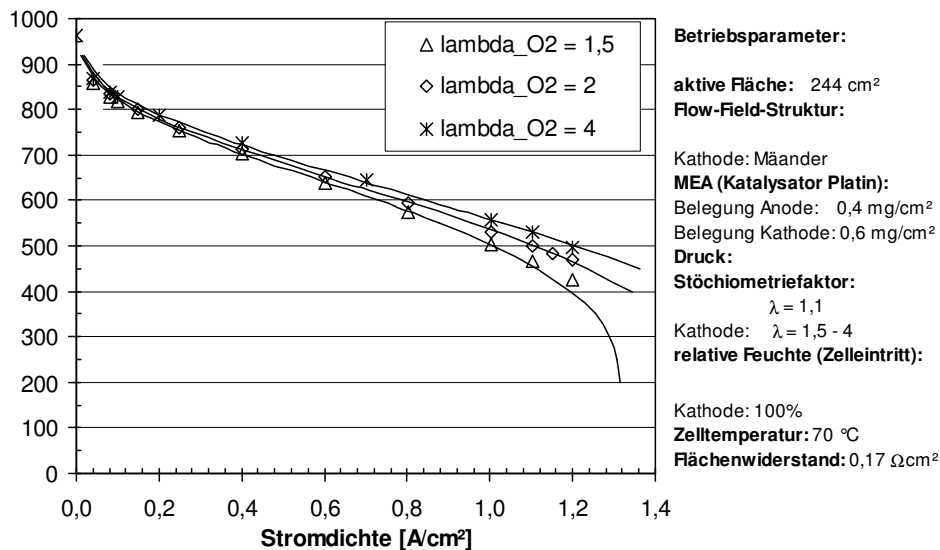


Bild 2.13: Vergleich der Messwerte mit den Simulationsrechnungen für unterschiedliche Sauerstoffstöchiometriekoeffizienten (Symbol: Experiment, Linie: Q1D-Modell)

Die Abhängigkeit von der Sauerstoffeintrittskonzentration des Parameters $\ln k_0$ und der Grenzstromdichten kann wiederum mit Gleichung 2.20 beziehungsweise durch entsprechende Regressionsfunktionen beschrieben werden. Diese Abhängigkeiten sind unter Variation des Betriebsdrucks und nicht wie im vorherigen Kapitel unter Variation des Sauerstoffmolenbruchs ermittelt worden. Dies erlaubt zur Modellierung der Kennlinien unter einem anderen Betriebsdruck und einer anderen Durchflussmenge des Kathodengases zwischen den Messpunkten zu interpolieren. Voraussetzung dabei ist, dass die trockene Kathodengaszusammensetzung, die Temperatur und die Eintrittsfeuchte der Reaktandengase konstant sind.

Die obigen Ergebnisse lassen darauf schließen, dass zur Bestimmung der Parameterabhängigkeiten nur rund drei bis vier Messungen bei unterschiedlichen Betriebsdrücken benötigt werden. Diese Abhängigkeiten erlauben, die Leistungscharakteristik der Zelle unter Variation der Durchflussmenge des Kathodengases und des Betriebsdrucks zumindest im technisch relevanten Bereich vorherzusagen. Unter Verwendung des hier vorgestellten quasi eindimensionalen Modellansatzes kann demnach die Anzahl der zur Leistungscharakterisierung einer Zelle benötigten Experimente deutlich verringert werden.

2.3 Identifikation von Optimierungspotentialen bezüglich der Zelleistung

Dieses Kapitel analysiert anhand eines zuvor definierten Basisfalls den Einfluss der Modell- und Betriebsparameter auf das Leistungsverhalten der Brennstoffzelle. Die einzelnen Verlustterme werden getrennt voneinander quantifiziert. Die Auswirkung auf das Leistungsverhalten bei Variation der Einflussgrößen wird mittels einer Sensitivitätsanalyse bewertet. Aus den Ergebnissen werden Maßnahmen zur Steigerung der Leistung abgeleitet und Betriebsparameterbereiche zur optimierten Betriebsführung identifiziert.

2.3.1 Definition eines Basisfalls

Zur Bewertung des Einflusses der Modell- und Betriebsparameter auf das Leistungsverhalten wird ein Basisfall definiert. Der gewählte Basisfall entspricht der in Kapitel 2.2 vorgestellten Messung an der Zelle mit einer aktiven Flächen von 244 cm² und ist somit für die Auswahl geeigneter Betriebspunkte eines 5 kW PEFC-Stacks von Interesse. Der dieser Messung zugrunde liegende Betriebsdruck beträgt 2 bar, der kathodenseitige Stöchiometriekoeffizient $\phi_{O_2} = 2$ ($f_{\lambda} = 1,39$) und die Betriebstemperatur 70 °C. Die Reaktandengase sind vollständig befeuchtet, das Kathodengas ist Luft. Die unter diesen Betriebsbedingungen mittels des Q1D-Ansatzes ermittelten Modellparameter sind in Tabelle 2.5 aufgeführt.

Tabelle 2.5: Q1D-Modellparameter des Basisfalls

b	:	42	[mV]
i_*	:	3,66	[A/cm ²]
	:	0,17	[Ωcm ²]
$\ln k_0$	:	11,32	[-]
f_λ/i_{G0} (hohe Überspg.)	:	0,89	[1/(A/cm ²)]
f_λ/i_{G0} (geringe Überspg.)	:	0,50	[1/(A/cm ²)]

Bild 2.14 zeigt die resultierende Spannungs-Stromdichte-Kennlinie mit dem entsprechenden Verlauf der flächenspezifischen Leistung. Für den Basisfall werden zwei Betriebspunkte definiert. Für stationäre Anwendungen wird als Auslegungspunkt bevorzugt eine Zellspannung zwischen 600 mV und 700 mV gewählt. Der erste Betriebspunkt wird deshalb bei 700 mV festgelegt. Bei dieser Zellspannung beträgt der auf den Brennwert bezogene Wirkungsgrad circa 47 %. Der zweite Betriebspunkt liegt in dem Punkt maximaler flächenspezifischer Zellleistung (557 mW/cm²). Die zugehörige Spannung beträgt 475 mV, der Wirkungsgrad circa 32 %.

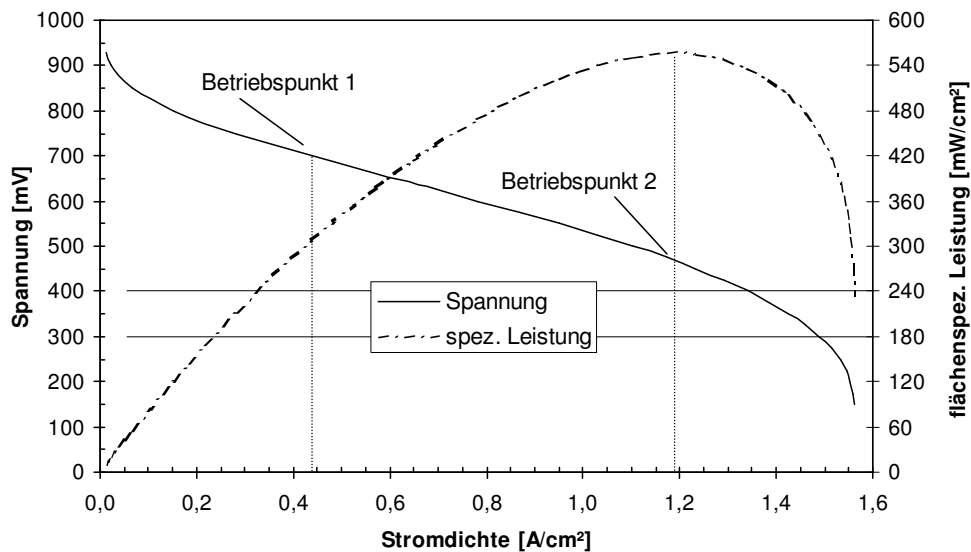


Bild 2.14: Abhängigkeit der Zellspannung und der flächenspezifischen Leistung von der Stromdichte im Basisfall

2.3.2 Einfluss der Modellparameter

In Bild 2.15 sind für den Basisfall die Verläufe der einzelnen Überspannungsterme als Funktion der Stromdichte aufgetragen. Die Überspannungsterme berechnen sich nach Gleichung 2.17. In dem betrachteten Arbeitsbereich der Brennstoffzelle bedingen die Aktivierungs- und Konzentrationsüberspannungen den größten Potentialabfall. Die Änderung dieser Überspannungen mit steigender Stromdichte ist nur geringfügig und beträgt zwischen Betriebspunkt (1) und (2) 42 mV. Die Ohmschen Überspannungen sind proportional zu der Stromdichte. Naturgemäß kommen die Diffusionsüberspannungen erst in dem diffusionskontrollierten Bereich der Spannungs-Stromdichte-Kennlinie zum Tragen.

Die Summe der Überspannungen beträgt im Betriebspunkt (1) 480 mV, im Betriebspunkt (2) 705 mV. Während im Betriebspunkt (1) die Ohmschen Überspannungen 15 % (74 mV) des Potentialabfalls verursachen, beträgt im Betriebspunkt der maximalen Leistung der Anteil 28 % (199 mV). Der Anteil der Aktivierungs- und Konzentrationsüberspannungen sinkt dagegen von 81 % (390 mV) auf 61 % (432 mV). Die Diffusionsüberspannungen steigen von circa 16 mV (<4 %) im Betriebspunkt (1) auf 74 mV (11 %) im Betriebspunkt (2).

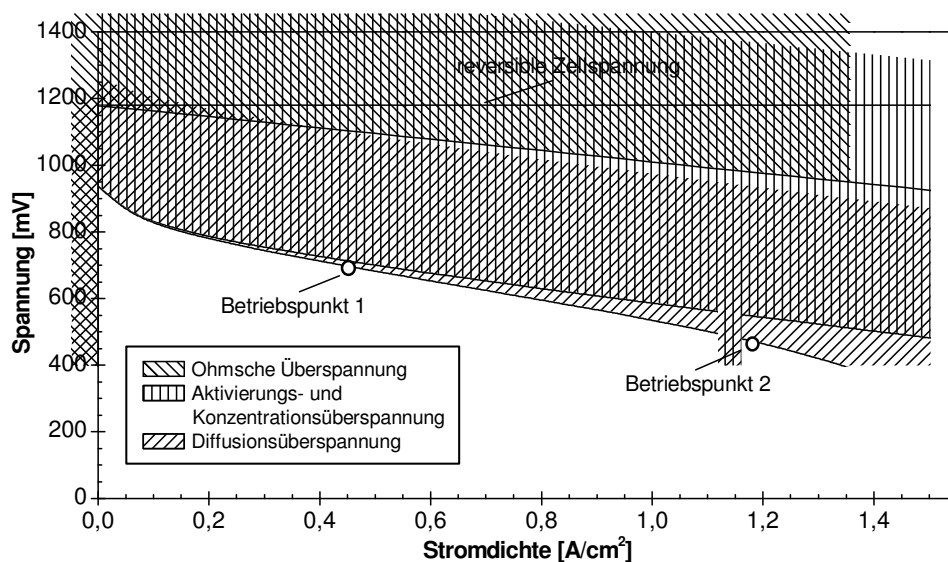


Bild 2.15: Berechnung der einzelnen Überspannungsanteile in Abhängigkeit der Stromdichte am Beispiel des Basisfall bei 70 °C

Anhand einer Sensitivitätsanalyse wird im Folgenden der Einfluss der Modellparameter auf die Zelleistung diskutiert. Die Modellparameter aus Tabelle 2.5 werden dazu um $\pm 10\%$ um den jeweiligen Wert im Basisfall variiert.

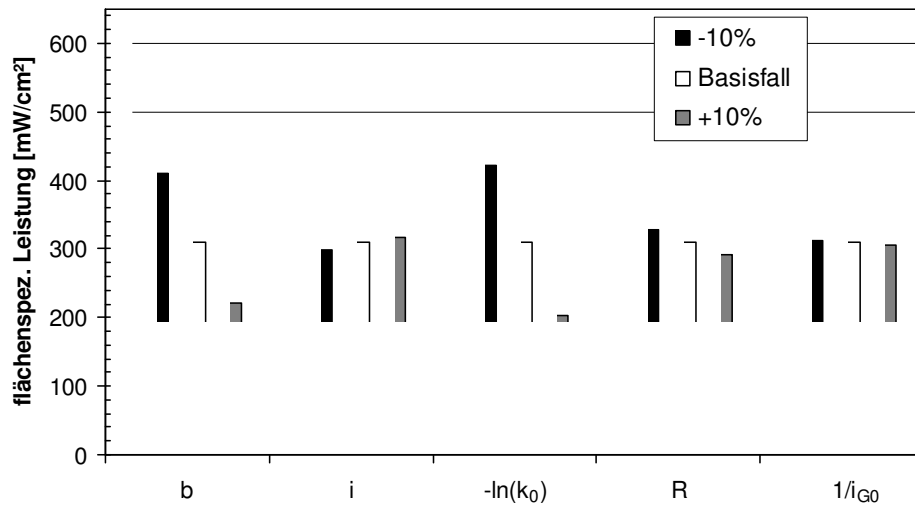


Bild 2.16: Modellparametervariation im Betriebspunkt (1) bei einer Zellspannung von 700 mV

In Bild 2.16 und Bild 2.17 sind die Ergebnisse der Parametervariation für die Betriebspunkte (1) und (2) wiedergegeben. Dargestellt ist die flächenspezifische Leistung in Abhängigkeit der variierten Parameter. Im Basisfall beträgt für den Betriebspunkt (1) die flächenspezifische Zellleistung 310 mW/cm², für den Betriebspunkt der maximalen Leistung ergibt sich eine flächenspezifische Leistung von 557 mW/cm².

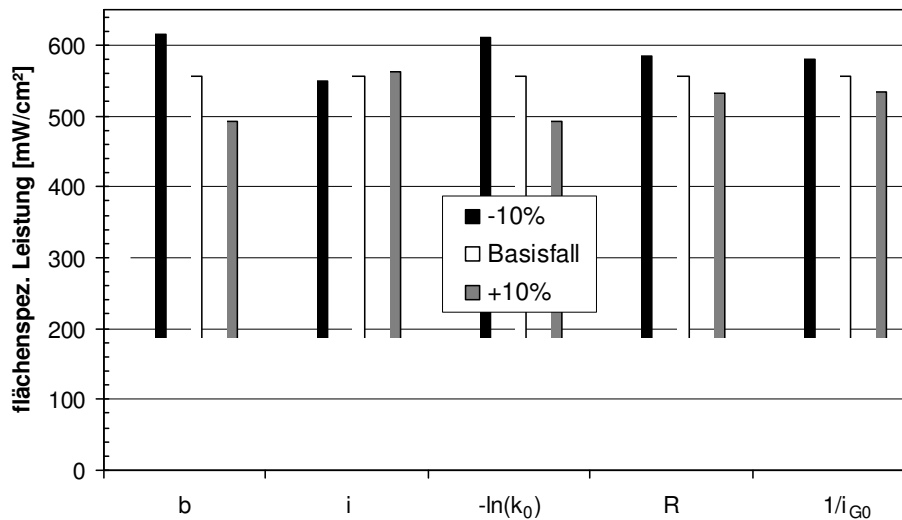


Bild 2.17: Modellparametervariation im Betriebspunkt (2) bei einer Zellspannung von 475 mV

Bei Variation der Tafel-Steigung b ändert sich die flächenspezifische Leistung um circa $\pm 30\%$ im Betriebspunkt (1) beziehungsweise um $\pm 11\%$ im Betriebspunkt (2). Demnach kann die Zell-

leistung durch eine verringerte Tafel-Steigung insbesondere im Teillastbetrieb betr chtlich gesteigert werden.

Der Einfluss der charakteristischen Stromdichte ist in den untersuchten Betriebspunkten vernachl ssigbar. Die  nderung der Zelleistung durch die Variation von i_* ist f r beide Betriebspunkte kleiner als 3 %. Selbst bei der Verringerung um 10 % ist die charakteristische Stromdichte circa drei mal so gro  als die maximale untersuchte Stromdichte. Demnach ist bereits in diesem Fall die  berspannung in der gesamten Katalysatorschicht nahezu konstant, so dass die Leistung der Zelle durch eine Erh hung der charakteristischen Stromdichte nur marginal beeinflusst wird.

Starke Auswirkung auf die Zelleistung hat die Variation des Faktors $\ln k_0$. Bei Variation um ± 10 %  ndert sich die Zelleistung im Betriebspunkt (1) um ± 35 % beziehungsweise im Betriebspunkt (2) um ± 11 %. Dies entspricht einer absoluten  nderung von circa ± 110 mW/cm² beziehungsweise circa ± 60 mW/cm². Die Zelleistung erh ht sich durch eine Verringerung des Faktors $\ln k_0$. Beispielsweise k nnen eine vergr  erte Katalysatorschichtdicke und Austauschstromdichte diese Verringerung von $\ln k_0$ bewirken. Die Austauschstromdichte wird wiederum durch eine vergr  erte Katalysatoroberfl che und –aktivit t beg nstigt.

Die Variation des Zellwiderstands beeinflusst die Leistung bei beiden Betriebspunkten weniger als die Tafel-Steigung oder der Faktor $\ln k_0$ ($< \pm 6$ %). Im Gegensatz zu den anderen Einflussgr  en l sst sich der Ohmsche Widerstand aber h ufig mit geringem konstruktivem und fertigungstechnischem Aufwand senken. Zum Beispiel k nnen ein erh hter Anpressdruck ebenso wie eine d nne Goldbeschichtung bei metallischen Bipolarplatten die Kontaktwiderst nde ma geblich verringern.

Beide Betriebspunkte liegen nicht im diffusionskontrollierten Bereich der Spannungs-Stromdichte-Kennlinie. Daher ist der Einfluss der Grenzstromdichte auf die Zelleistung gering. Die fl chenspezifische Leistung  ndert sich im Betriebspunkt (1) um weniger als ± 2 %, im Betriebspunkt (2) um ± 4 %. Die gew nschte hohe Grenzstromdichte wird erreicht durch eine Diffusionschicht geringer Dicke in Kombination mit einem gro en effektiven Sauerstoffdiffusionskoeffizienten. Produktwasser, das sich in der Katalysator- und Diffusionsschicht anreichert, behindert die Sauerstoffdiffusion. Ein Ansatz, das Produktwasser wirkungsvoller aus diesen Schichten auszutragen, besteht darin, die Schichten hydrophober auszuf hren.

Zusammenfassend zeigt sich, dass die maximalen  nderungen der Zelleistung f r den Betriebspunkt mit der h heren Zellspannung prozentual und absolut gr  er sind als im Betriebspunkt der maximalen Zelleistung. Bei beiden Betriebspunkten er ffnen eine verringerte Tafel-Steigung und ein kleinerer Faktor $\ln k_0$ das gr  te Potential zur Steigerung der Zelleistung. Eine effektive Nutzung dieses Potentials ergibt sich durch eine Vergr  erung der aktiven Katalysatoroberfl che und eine Verbesserung der Katalysatoraktivit t.

2.3.3 Einfluss ausgew hlter Betriebsparameter

Im Folgenden wird untersucht, wie sich f r den Basisfall die Zellspannung als Funktion des Sauerstoffumsatzes im Kathodengas verh lt. Der Sauerstoffumsatz ist definiert als der

Reziprokwert des Stöchiometrikoeffizienten. Zum Beispiel entspricht der Stöchiometrikoeffizient $\lambda=2$ einem Reaktandenumsatz von 50 %.

Große Stoffströme und hohe Betriebsdrücke bedingen eine große Verlustleistung durch die Peripherieaggregate, zu denen beispielsweise Verdichter und Pumpe zählen. Das Wassermanagement beziehungsweise der wasserautarke Betrieb eines Brennstoffzellensystems ist ferner für große Stoffströme, die vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle befeuchtet werden müssen, aufwendig. Für den Betrieb einer Brennstoffzelle wird daher ein Betriebspunkt mit möglichst hohem Umsatz bei gleichzeitig geringem Betriebsdruck angestrebt. Ist die Reaktandenverteilung in einem Zellstapel inhomogen, besteht bei einem hohen Umsatz die Gefahr, dass einzelne Zellen im diffusionskontrollierten Bereich arbeiten. Aufgrund der in diesen Zellen auftretenden hohen Überspannungen kann die Gesamtleistung des Stapels deutlich verringert sein und eine beschleunigte Alterung der Membran-Elektroden-Einheit auftreten [62, 63]. Die geringere Strömungsgeschwindigkeit der Reaktanden bei hohen Umsätzen erschwert den Ausstrom von flüssigem Produktwasser. Das flüssige Wasser kann für die Zelle schädliche Verunreinigungen aus den verwendeten Zellkomponenten auswaschen und diese in der Zelle verteilen. Dies kann beispielsweise zu einer Verringerung der Hydrophobizität der Diffusionsschicht oder der ionischen Leitfähigkeit der Membran führen. Blockiert das flüssige Wasser die Strömungsstrukturen, resultiert dies in einer Verringerung der elektrochemisch aktiven Fläche und somit in Leistungsverlusten.

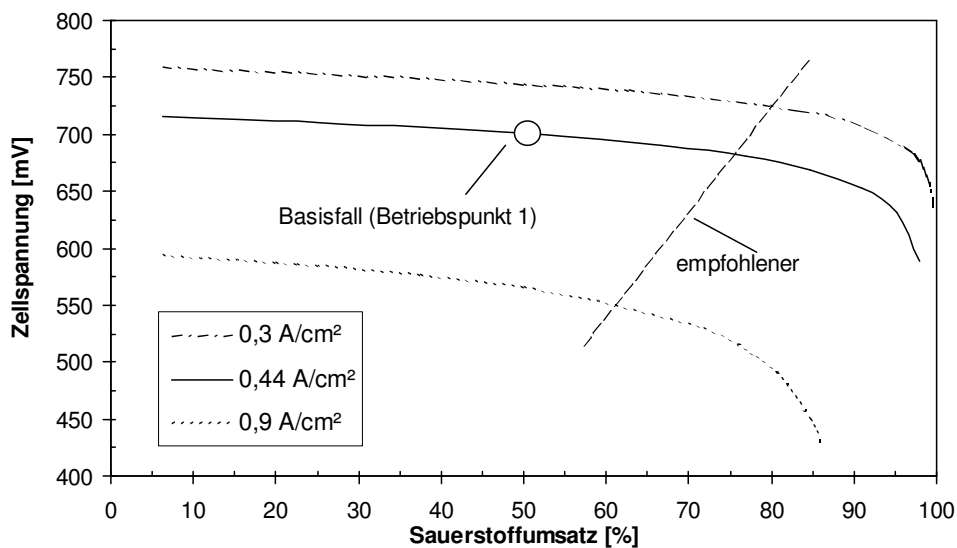


Bild 2.18: Zellspannung als Funktion des Kathodengasumsatzes bei konstantem Druck von $p=2$ bar für unterschiedliche Stromdichten

Für den Basisfall ist in Bild 2.18 für drei verschiedene Stromdichten die Abhängigkeit der Zellspannung vom Umsatz des Sauerstoffs aufgetragen. Arbeitet die Brennstoffzelle im diffusionskontrollierten Bereich ihrer Spannungs-Stromdichte-Charakteristik, fällt bei konstanter Stromdichte mit steigendem Umsatz die Zellspannung rapide ab. Dieser Arbeitsbereich ist im

Betrieb aus oben genannten Gründen zu vermeiden. Zur Identifikation eines geeigneten Arbeitsbereichs wird der Umsatz des Basisfalls (50 %) als Referenzumsatz angesetzt. Die bei diesem Umsatz für die jeweiligen Stromdichten vorherrschenden Zellspannungen sollen bei Variation des Umsatzes um weniger als 2,5 % unterschritten werden. In dem betrachteten Betriebsbereich kann für die verschiedenen Stromdichten diese Zellspannung in Abhängigkeit des entsprechenden Umsatzes hinreichend genau durch eine Regressionsgerade abgebildet werden (siehe Bild 2.18). Die Regressionsgerade bestimmt den empfohlenen maximalen Umsatz bei den verschiedenen Stromdichten. Das Gebiet links der Geraden stellt den bevorzugten Bereich der Betriebsführung dar. Der Arbeitsbereich ist in Bild 2.18 nicht zu geringen Umsätzen hin beschränkt, da dies eine Betrachtung des gesamten Brennstoffzellensystems voraussetzen würde. Die Lage der Regressionsgeraden in Bild 2.18 verdeutlicht, dass bei der gewählten maximalen Spannungsänderung von 2,5 % des jeweiligen Referenzwertes die Zelle noch nicht im diffusionskontrollierten Bereich arbeitet. In einem Zellstapel können sich aufgrund einer ungleichmäßigen Medienverteilung die Reaktandenumsätze in den einzelnen Zellen des Stapels unterscheiden. Bei Umsatzunterschieden von 10 % ist bei dem für den gesamten Stapel gemittelten empfohlenen maximalen Umsatz auch in den schlecht versorgten Zellen noch eine ausreichende Sicherheit gegenüber hohen lokalen Diffusionsüberspannungen gegeben. Den Anforderungen des Brennstoffzellenstapels entsprechend, kann sich der Verlauf des empfohlenen maximalen Umsatzes zu höheren beziehungsweise geringeren Umsätzen verschieben. Bei einer Stromdichte von $0,44 \text{ A/cm}^2$ beträgt der empfohlene maximale Umsatz 75 %. Wird ein Zellspannungsabfall von 2,5 % in Kauf genommen, kann der Stöchiometriekoeffizient im Betriebspunkt (1) von $\lambda=2$ um 33 % auf $\lambda=1,33$ gesenkt werden. Aufgrund der steigenden Diffusionsüberspannungen verschiebt sich mit zunehmender Stromdichte der empfohlene maximale Umsatz zu einem geringeren Wert. Während bei der Stromdichte von $0,3 \text{ A/cm}^2$ der Umsatz kleiner als 80 % gewählt werden sollte, verringert sich bei der Stromdichte von $0,9 \text{ A/cm}^2$ dieser Wert auf 61 %.

In Bild 2.19 ist für drei verschiedene Betriebsdrücke die Abhängigkeit der Zellspannung vom Umsatz des Sauerstoffs aufgetragen. Die zur Berechnung der Abhängigkeiten benötigten Modellparameter sind Tabelle 2.4 (Kapitel 2.2) entnommen. Bei allen Verläufen beträgt die Stromdichte $0,44 \text{ A/cm}^2$. In Form einer Regressionsgeraden verläuft wiederum der empfohlene maximale Umsatz durch die um 2,5 % verringerten Zellspannungen bei Referenzumsatz $\lambda=2$. Aufgrund der steigenden Diffusionsüberspannungen verschiebt sich mit abnehmendem Betriebsdruck der empfohlene maximale Umsatz zu einem geringeren Wert. Die Abhängigkeit des empfohlenen maximalen Umsatzes vom Betriebsdruck ist gering. Der empfohlene Wert variiert für die unterschiedlichen Betriebsdrücke um weniger als 2 Prozentpunkte um den Umsatz von 75 % bei 2 bar. Ebenso wie der empfohlene minimale Umsatz kann der optimale Betriebsdruck nur aus einer Betrachtung des Gesamtsystems identifiziert werden.

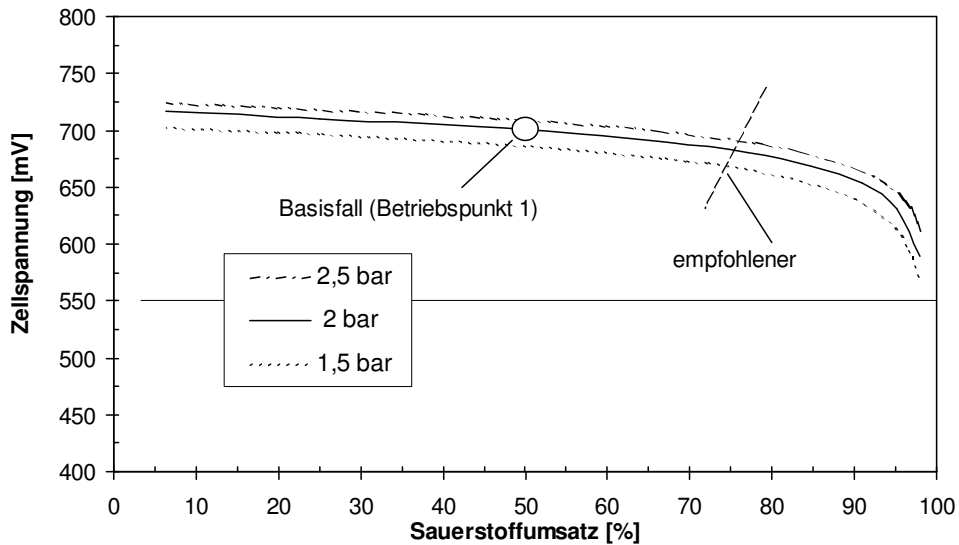


Bild 2.19: Zellspannung als Funktion des Kathodengasumsatzes für unterschiedliche Betriebsdrücke bei konstanter Stromdichte ($i=0,44 \text{ A/cm}^2$)

2.4 Zusammenfassung

Aufbauend auf einem aus der Literatur bekannten Modellansatz [60] wird ein neuer, quasi eindimensionaler (Q1D-) Modellansatz zur Berechnung von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien einer PEFC abgeleitet. Der Q1D-Ansatz berücksichtigt, dass sich die resultierende Spannungs-Stromdichte-Kennlinie einer Brennstoffzelle aufgrund verschiedener Einflussfaktoren aus unterschiedlichen lokalen U-i-Kennlinien zusammensetzt. Der Ansatz basiert auf der Annahme, dass die resultierende U-i-Kennlinie aus zwei lokalen Spannungs-Stromdichte-Charakteristiken generiert wird. Eine dieser Charakteristiken repräsentiert ein Gebiet mit hohen Überspannungen, die andere ein Gebiet mit geringen Überspannungen. Die resultierende U-i-Kennlinie berechnet sich aus dem arithmetischen Mittel der isopotentialen Stromdichten beider Einzelkurven. Die in dem Ansatz berücksichtigten Überspannungen setzen sich aus Aktivierungs-, Konzentrations- und Diffusionsüberspannungen an der Kathode sowie Ohmschen Überspannungen zusammen. Der Modellansatz wird anhand von experimentellen Messdaten überprüft. Systematisch werden die Parameter aus dem Modellansatz auf einen aus mehreren Spannungs-Stromdichte-Kennlinien bestehenden Messdatensatz angepasst. Dabei zeigt sich, dass die Messdaten mittels des Q1D-Ansatzes mit hoher Genauigkeit auch im diffusionskontrollierten Bereich der U-i-Kennlinien beschrieben werden können. Bei konstanter Betriebstemperatur und Reaktandenbefeuchtung am Zelleintritt werden durch die systematische Applikation des Ansatzes auf einen weiteren Messdatensatz die funktionalen Abhängigkeiten der Modellparameter vom Betriebsdruck er-

mittelt. Die erzielten Ergebnisse lassen darauf schließen, dass zur Bestimmung der Parameterabhängigkeiten nur rund drei bis vier Messungen bei unterschiedlichen Betriebsdrücken benötigt werden. Diese Abhängigkeiten erlauben, die Leistungscharakteristik der Zelle unter Variation der Durchflussmenge des Kathodengases und des Betriebsdrucks mindestens im technisch relevanten Bereich zu beschreiben. Unter Verwendung des Q1D-Modellansatzes kann demnach die Anzahl der zur Leistungscharakterisierung einer Zelle benötigten Experimente deutlich verringert werden. Die ermittelten Parameter sind nur für ein Zelldesign gültig. Bei Design- oder Geometrieänderungen müssen die funktionalen Abhängigkeiten der Parameter erneut durch Experimente ermittelt werden.

Anhand eines Basisfalls werden an zwei ausgewählten Betriebspunkten die einzelnen Überspannungen quantifiziert. In diesen Betriebspunkten haben die Aktivierungs- und Konzentrationsüberspannungen den größten Anteil (>60 %) an den gesamten Überspannungen. Die Auswirkung auf das Leistungsverhalten einer Brennstoffzelle bei Variation der Einflussgrößen wird mittels einer Sensitivitätsanalyse bewertet. Bei beiden Betriebspunkten eröffnen eine Verringerung der Tafel-Steigung und des Faktors $\ln k_0$ (Gleichung 2.14) das größte Potential zur Steigerung der Zelleistung. Eine effektive Nutzung dieses Potentials ergibt sich durch die Vergrößerung der Katalysatoroberfläche und eine Steigerung der Katalysatoraktivität.

Im letzten Kapitel erfolgt eine Betrachtung der flächenspezifischen Zelleistung in Abhängigkeit des kathodenseitigen Reaktandenumsatzes. Im Basisfall wird für unterschiedliche Stromdichten und Betriebsdrücke ein empfohlener maximaler Umsatz ermittelt. Dieser empfohlene maximale Umsatz verschiebt sich mit abnehmendem Betriebsdruck und steigender Stromdichte hin zu einem höheren Sauerstoffstöchiometriekoeffizienten.

3 Messaufbauten und Messmethoden

Das folgende Kapitel erläutert die zur Charakterisierung von Einzelzellen und Zellstapeln verwendeten Messaufbauten und Messmethoden. Die Beschreibung der Messaufbauten erfolgt in den Kapiteln 3.1 - 3.2. Sie umfasst neben dem Aufbau der Brennstoffzellen die verschiedenen Messstände und -apparaturen, die in den Versuchen zum Einsatz kommen. Die Kapitel 3.3 - 3.7 erläutern die Messmethoden, die der Charakterisierung der Brennstoffzellen dienen.

3.1 Aufbau der Einzelzellen und Zellstapel

Eine einzelne Brennstoffzelle setzt sich aus zwei Bipolarplattenelementen, einer Membran-Elektroden-Einheit und Dichtungen zusammen. Die serielle Verschaltung mehrerer einzelner Zellen ist als Zellstapel bezeichnet. Die äußeren Bipolarplattenelemente eines Zellstapels beziehungsweise einer Einzelzelle sind von Endplatten umfasst. Die Explosionszeichnung in Bild 3.1:

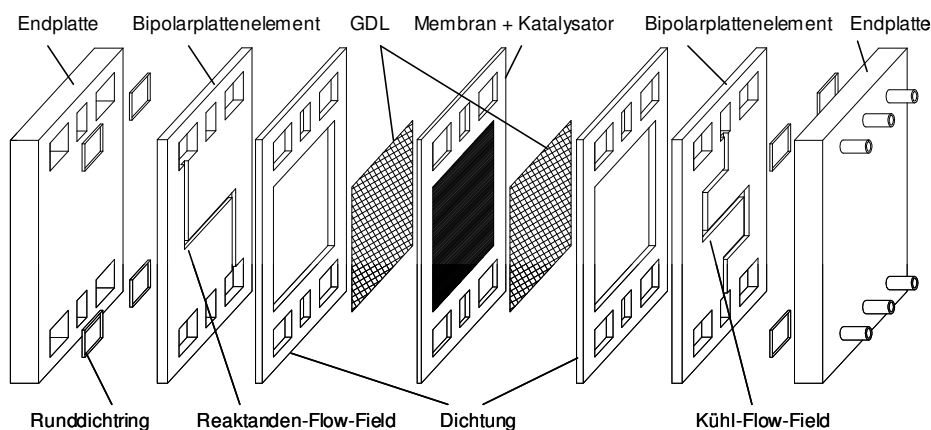


Bild 3.1: Explosionszeichnung einer Einzelzelle

Bei den Untersuchungen kommen Bipolarplattenelemente (BPE) aus Composit-Graphit und Titan zum Einsatz. Länge und Breite der BPE betragen 240 mm x 160 mm. Die Dicke variiert in Abhängigkeit des verwendeten Kühlzellendesigns zwischen 1,8 und 3,5 mm. Die Strömungsstruktur, das sogenannte Flowfield, ist in die BPE gefräst. Es werden zwei unterschiedliche Flowfields untersucht. Das erste Flowfield besteht aus 14 mäanderförmig verlaufenden, gleich langen Kanälen (siehe Bild 3.2a). Die Kanäle sind 1,5 mm breit und 1 mm tief, die zwischen den Kanälen befindlichen Stege sind 1 mm breit. Das zweite Flowfield besteht aus einer Kom-

bination einer Füßchen- und einer Kanalstruktur. Die im Mittelteil der Strömungsstruktur befindlichen 69 Kanäle sind ebenso wie die Stege 1 mm breit. Im Ein- und Auslaufbereich sind quadratische Füßchen mit einer Kantenlänge von 1 mm angeordnet. Beide Strukturen sind 1 mm tief. Das Design ist in Bild 3.2b gezeigt. Auf der Anoden- und Kathodenseite kommen jeweils die gleichen Strömungsstrukturen zum Einsatz.

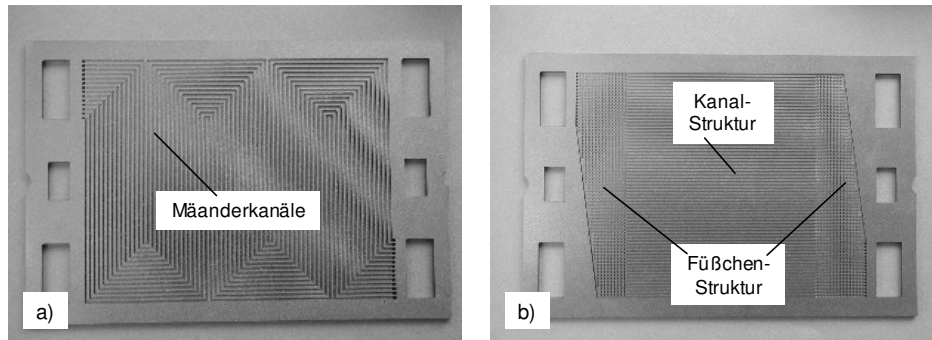


Bild 3.2: Strömungsstrukturen: a) Mäanderstruktur b) Kanal-Füßchen-Struktur

Die jeweiligen Gasräume der seriell verschalteten Einzelzellen sind untereinander durch Versorgungskanäle, sogenannte Manifolds, verbunden. Um Leckagen im Übergangsbereich vom Manifold in das Flowfield zu vermeiden, erfolgt die Strömungsführung über zwei horizontal versetzte Ebenen, die über Durchtrittsbohrungen miteinander verbunden sind. Auf der Oberfläche der bipolaren Platte entsteht durch diese Bauart ein flächiger, ebener Bereich, der mit Hilfe von Flachdichtungen abgedichtet werden kann. Zur Verdeutlichung dieses Bauprinzips und der Strömungsführung vom Manifold in die Flowfieldstruktur ist in Bild 3.3 eine Detailansicht abgebildet.

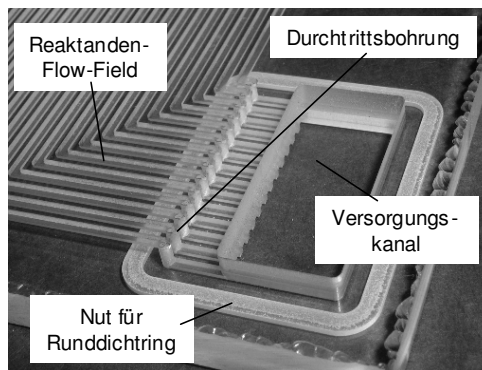


Bild 3.3: Plexiglasmodell eines Bipolarplattenelements (Detailansicht)

Zwischen einer aus zwei Bipolarplattenelementen bestehenden Bipolarplatteneinheit befindet sich die Kühlstruktur. In einer ersten Variante ist die Kühlstruktur in Form von vier Mäanderkanälen rückseitig in die BPE eingearbeitet (siehe Bild 3.4a). Runddichtringe aus dem Material NBR dichten das Kühlflowfield und die Reaktandenmanifolds ab. In einer zweiten Variante ist das Kühlflowfield nicht mehr in die BPE eingearbeitet, sondern in Form einer separaten

Kühlstruktur zwischen den BPE integriert. In diesem Fall sind die Bipolarplattenelemente rückseitig eben. Die Kühlstruktur bildet eine Folie aus expandiertem Graphit, in die die Kühlkanalstruktur eingearbeitet ist (siehe Bild 3.4b). Die Explosionszeichnung in Bild 3.5 verdeutlicht den Zellaufbau dieser Konstruktion. Die Graphitfolie dichtet die Reaktanden sowie das Kühlwasser gegeneinander und zur Umgebung hin ab und gewährleistet durch ihre elektrische Leitfähigkeit den Stromfluss durch die Bipolarplatteneinheit.

Bei allen Experimenten wird jede Zelle des Stapels gekühlt. Um parasitäre Verlustströme in den Zellen zu vermeiden, kommt als Kühlmedium deionisiertes Wasser zum Einsatz.

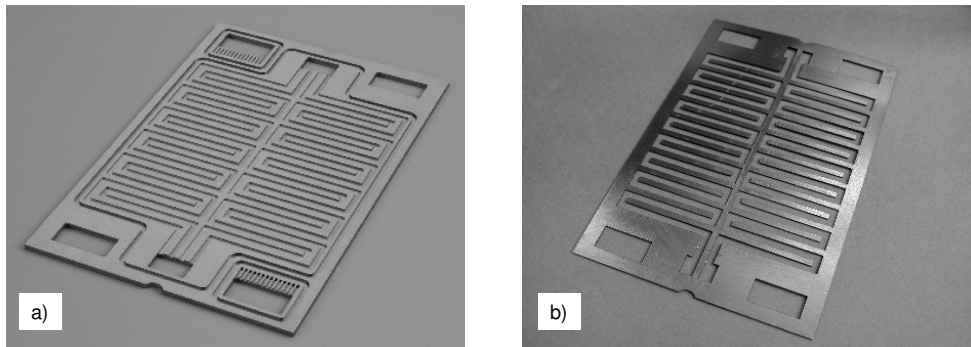


Bild 3.4: Kühlstrukturen a) in BPE integriert b) aus expandiertem Graphit

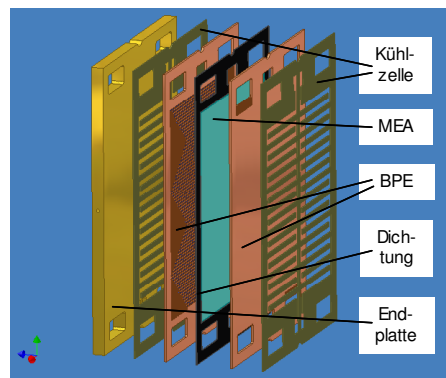


Bild 3.5: Explosionszeichnung des Zellaufbaus mit Kühlkanalstruktur aus expandiertem Graphit

Die Membranfläche umfasst nicht nur den katalytisch aktiven Bereich, sondern überstreicht die gesamte Bipolarplattenfläche. Diese Bauweise vermeidet Höhenunterschiede, die schwer abzudichten sind. Die Dicke der kommerziell erhältlichen Membran beträgt 35 μm . Außerhalb des katalysatorbeschichteten Bereiches ist die Membran durch ein sogenanntes Subgasket verstärkt. Der verwendete Katalysator Platin ist mit einer Beladung von 0,4 mg/cm^2 auf der Anode und 0,6 mg/cm^2 auf der Kathode aufgetragen. Die aktive Fläche beträgt für die Zellen mit Mäanderstruktur 244 cm^2 , für die Zellen mit Kanal-Füßchenstruktur 219 cm^2 . Als Gasdiffusionschicht kommt ein Kohlenstoffgewebe mit Microlayer zum Einsatz, das von einer Flachdichtung umrahmt wird. Aufgabe der Flachdichtung ist es, die Reaktanden sowie das Kühlwasser gegen-

einander und gegen die Umgebung abzudichten. Durch die begrenzte Kompressionsfähigkeit der Dichtung schützt diese zusätzlich die Gasdiffusionsschicht vor übermäßiger Kompression. Endplatten aus Edelstahl (1.4571) umfassen die Zellen. Die Endplatten besitzen eine Vorrichtung für den Strom- und Spannungsabgriff, eine Bohrung für ein Thermoelement sowie Anschlüsse für die Reaktandenzufuhr und -abfuhr und Kühlwasserzufuhr und -abfuhr. Um die Übergangswiderstände zwischen den Endplatten und den anliegenden Bipolarplattenelementen zu verringern, sind die Platten mit einer 1 μm dicken Goldschicht beschichtet. 20 elektrisch isolierte Zuganker, die durch die Endplatten geführt sind und außerhalb der Bipolarplatten verlaufen, verspannen den gesamten Brennstoffzellenstapel.

3.2 Messstände und Messapparaturen

3.2.1 Visualisierung der Strömung in Einzelzellen

Die Bewertung der Strömungssituation in den unterschiedlichen Flowfelddesigns der Bipolarplatten erfolgt anhand einer qualitativen Bestimmung der lokalen Strömungsgeschwindigkeiten. Der zu diesem Zweck konzipierte Messstand besteht aus zwei Flüssigkeitstanks, einer Pumpe und einem zwischen zwei Endplatten eingespannten Bipolarplattenelement. Die Bipolarplatte sowie die sie umfassenden Endplatten sind aus transparentem Plexiglas gefertigt, um eine optische Auswertung der Strömungssituation zu ermöglichen.

Eine Schlauchpumpe fördert aus einem Wassertank definierte Wasservolumenströme durch das Flowfield der Bipolarplatte. Aus einem zweiten Flüssigkeitsreservoir kann der Strömung mit Lebensmittelfarbstoff (E124) gefärbtes Wasser vor der Pumpe zugemischt werden. Zur Visualisierung der Strömung durchfließen jeweils abwechselnd klares und gefärbtes Wasser das Flowfield. Durch die wechselnde Beaufschlagung ist zu erkennen, welche Bereiche der Strömungsstruktur bevorzugt beziehungsweise verlangsamt durchströmt werden. Die Strömungsgeschwindigkeit des Wassers korreliert über Ähnlichkeitsgesetze mit den entsprechenden Mediengeschwindigkeiten in der Brennstoffzelle. Die aufgrund der elektrochemischen Reaktion in einer Brennstoffzelle auftretende Änderung des Volumenstroms sowie das anfallende flüssige Produktwasser bleiben bei den Visualisierungsversuchen unberücksichtigt.

Bei den Versuchen ist darauf zu achten, dass keine Luftblasen in der Messvorrichtung enthalten sind, da diese einzelne Kanäle verstopfen können und somit das Messergebnis verfälschen würden.

3.2.2 Messstand zur Leistungscharakterisierung

Der nachfolgend beschriebene Messstand dient der Leistungscharakterisierung von Einzelzellen und Short-Stacks. Als Short-Stack sind Zellstapel mit maximal 3 Einzelzellen bezeichnet. Zur Leistungscharakterisierung der PEFC wird ausschließlich reiner Wasserstoff ($\geq 99,9\%$) als Brennstoff verwendet. Als Kathodengas kommt wahlweise Sauerstoff oder Luft zum Einsatz.

Vordruckregler reduzieren die Gase auf den erforderlichen Betriebsdruck. Die Gase gelangen über elektronische Massenströmmesser zu den externen Befeuchtereinheiten. Aus Gleichteilgründen weisen die als Permeationsbefeuchter ausgeführten Befeuchter die gleiche Geometrie wie die Brennstoffzellen auf. Eine quellfähige Membran trennt den Gasraum von dem temperierten Wasserbad räumlich. Beim Durchströmen der Befeuchtereinheit nimmt der Gasstrom das durch die Membran permeierte Wasser auf. Die Befeuchterfunktion ist in Abhängigkeit des Betriebsdrucks, der Temperatur der Befeuchtereinheit und des Gasvolumenstroms vor Beginn der Versuche mit Hilfe eines Taupunktmessgerätes umfangreich charakterisiert worden. Nach Austritt aus den Befeuchtereinheiten werden die befeuchteten Gase der Brennstoffzelle zugeführt. Hinter der Zelle befindet sich ein Kondensatabscheider, der das flüssige Produktwasser aus dem Gasstrom abscheidet. Die Steuerung der Massenströme geschieht mit Hilfe von Nadelventilen am Austritt der Gase. Bild 3.6 zeigt das Fließschema des Messstands.

Zur Ableitung der Reaktionswärme verfügen sowohl die Einzelzellen als auch die Zellstapel über eine Wasserkühlung. Das in einem Thermostaten temperierte Kühlwasser durchströmt die Kühlstrukturen der Zellen. Der Kühlwasserkreislauf ist in Bild 3.6 aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt.

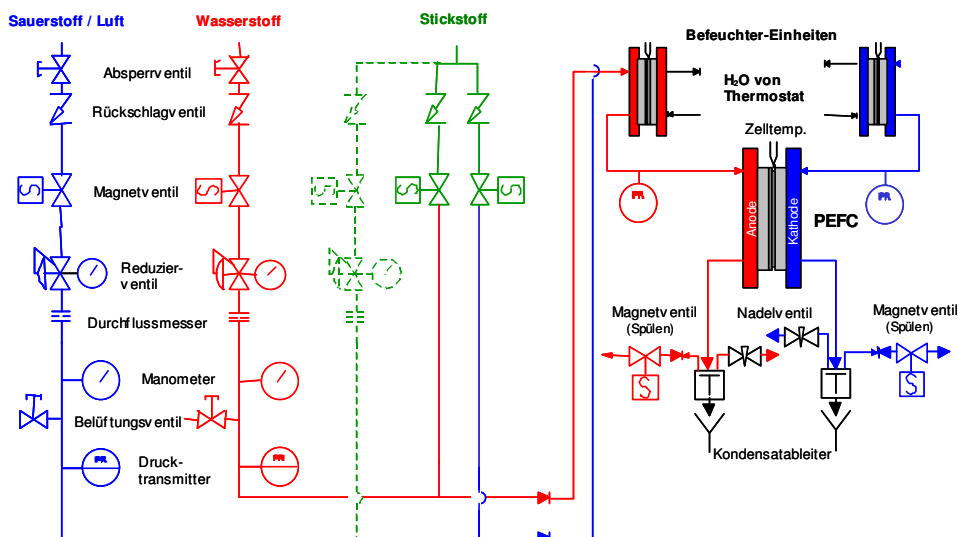


Bild 3.6: Fließschema (Kühlwasserkreislauf nicht dargestellt)

NiCr-Ni-Thermoelemente erfassen an verschiedenen Stellen im Messstand die Temperaturen. Die in den jeweiligen Gasräumen vorherrschenden Drücke werden über Manometer und elektronische Drucktransmitter bestimmt. Als Betriebsdruck ist der Druck der Gase am Eintritt in die Brennstoffzelle bezeichnet.

Eine elektrische Last ist über eine stromführende Leitung mit der Brennstoffzelle verbunden. Der Maximalstrom ist auf 300 A beschränkt.

Der Messstand verfügt über eine Sicherheitsabschaltung. Diese spricht an, sobald der Druck, die Temperatur oder die Zellspannung definierte Grenzwerte über- beziehungsweise unter-

schreiten. Die Sicherheitsabschaltung überführt den Messstand in einen sicheren Betriebszustand, indem sie die elektrische Last abschaltet, die Brennstoff- und Oxidansmagnetventile schließt und das gesamte System zur Inertisierung mit Stickstoff flutet.

Die in Kapitel 2.1 beschriebenen Messungen an der Laborzelle mit einer aktiven Fläche von 18 cm^2 erfolgen in einem entsprechend Bild 3.6 aufgebauten Messstand, der an die geringeren Massenströme angepasst ist. Zusätzlich besteht bei diesem Messstand die Möglichkeit, Stickstoff und Sauerstoff in dem gewünschten Verhältnis vor Eintritt in die kathodenseitige Befeuchtereinheit zu mischen. Diese Vorrichtung ist in Bild 3.6 gestrichelt dargestellt.

3.2.3 Passives Widerstandsnetzwerk zur Stromdichtemessung

Eine Methode zur Messung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen bietet der Ansatz über ein passives Widerstandsnetzwerk. Während sich dieses Unterkapitel ausschließlich mit der Beschreibung der Messapparatur befasst, ist in Kapitel 3.5.1 die Messmethode beschrieben.

Das passive Widerstandsnetzwerk ist aus einer Folie aus expandiertem Graphit gefertigt. Die Stärke der Graphitfolie beträgt im unverpressten Zustand 1 mm , Länge und Breite entsprechen den Abmaßen der Bipolarplattenelemente aus Kapitel 3.1. Die Messapparatur kann sowohl in Einzelzellen als auch Zellstapeln zum Einsatz kommen. In Einzelzellen wird sie zwischen BPE und Endplatte eingebaut, in Zellstapeln zwischen zwei benachbarten BPE. Hierbei erlauben die guten Dichtungseigenschaften des Graphitmaterials eine einfache Integration in den Zellstapel. Wird die angrenzende Brennstoffzelle gekühlt, so befindet sich die Messapparatur benachbart zu der Kühlstruktur. In diesem Fall wird zum Schutz vor Korrosion eine $0,2 \text{ mm}$ dicke Graphitfolie zwischen Apparatur und Kühlstruktur angeordnet. Die beschriebene Messmethode erfordert keine Modifikation der BPE, GDL und MEA.

In der vorliegenden Arbeit wird die Stromdichteverteilung ausschließlich in Zellen ermittelt, die die in Kapitel 3.1 beschriebene Mäander-Strömungsstruktur aufweisen. Die Zellen mit Mäanderstruktur besitzen eine aktive Fläche von 244 cm^2 . Diejenige Fläche der Messvorrichtung, die auf Höhe der aktiven Fläche der benachbarten Zelle liegt, ist in 20 gleich große Segmente der Fläche $32 \times 32 \text{ mm}^2$ unterteilt. Das resultierende passive Widerstandsnetzwerk besteht aus 5×4 Segmenten. Um sicherzustellen, dass der gesamte Strom durch die 20 Segmente fließt, wird die nicht-segmentierte Fläche mit einer Isolationsschicht versehen. Ein Foto der Messapparatur zeigt Bild 3.7. Die Segmente sind entlang der Mäanderkanäle vom Reaktandeneintritt bis zum Austritt aufsteigend nummeriert. Zur Verdeutlichung der Position der Segmente bezüglich der Strömungsstruktur ist in Bild 3.7 den nummerierten Segmenten das Mäander-Flowfield überlagert dargestellt.

Um den lateralen Stromfluss in der Ebene der Graphitfolie zu verringern, befinden sich zwischen den Segmenten Spalte der Größe $2 \times 30 \text{ mm}^2$. Es besteht somit keine vollständige elektrische Isolation der einzelnen Segmente, da diese über Ecken der Fläche $4 \times 4 \text{ mm}^2$ noch miteinander verbunden sind. Dieser Aufbau ermöglicht eine kostengünstige Fertigung des Widerstandsnetzwerks aus einem einzigen Bauteil.

Auf beiden Seiten der Messapparatur sind jeweils 20 isolierte, gleich lange Kupferdrähte mit einem Durchmesser von 0,15 mm mittig auf den Segmenten kontaktiert. Die Drähte werden durch die Spalte geführt beziehungsweise in den expandierten Graphit eingedrückt, um Höhenunterschiede zu vermeiden. Zum Schutz der Drähte und Kontaktierungen ist auf beiden Seiten der Messvorrichtung jeweils eine weitere segmentierte Graphitfolie angeordnet. Die Drähte dienen der Messung des Spannungsabfalls, der sich einstellt sobald die Segmente von Strom durchflossen werden. Ein 20-Kanal-Datenlogger misst und zeichnet die Potentialdifferenz für jedes Segment auf. Die Messwertaufnahme aller Segmente dauert circa 1 Sekunde.

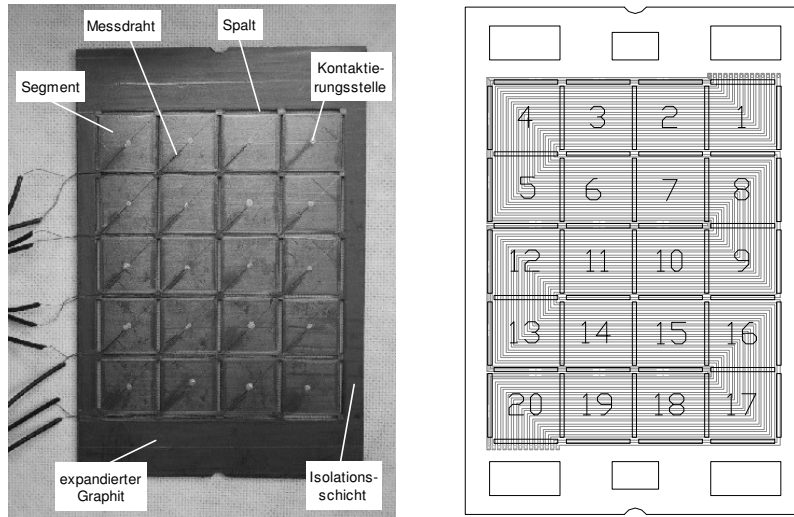


Bild 3.7: Passives Widerstandsnetzwerk zur Stromdichtemessung in Brennstoffzellen

3.2.4 Magnetotomographiemessstand zur Stromdichtemessung

Magnetotomographie ist ein neuartiges Verfahren, um die Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen rückwirkungsfrei zu bestimmen. Das folgende Kapitel befasst sich mit der Beschreibung der Messapparatur, die Messmethode ist in Kapitel 3.5.2 beschrieben.

Der in einer Brennstoffzelle fließende Strom erzeugt ein Magnetfeld. Durch die Messung der magnetischen Flussdichte außerhalb der Brennstoffzelle kann auf die Stromdichteverteilung innerhalb der Zelle zurückgeschlossen werden. Den mechanischen Aufbau der Messapparatur zeigt Bild 3.8. Zwei Sensoren (Honeywell HMC2003) messen an den sechs Mantelflächen der Brennstoffzelle jeweils in allen drei Raumrichtungen die magnetische Flussdichte, die in Luft direkt proportional zu der magnetischen Feldstärke ist. Der Messbereich der magnetoresistiven Sensoren liegt zwischen $\pm 200 \mu\text{Tesla}$ bei einer Auflösung von $0,004 \mu\text{Tesla}$ und einem relativen Wiederholbarkeitsfehler von weniger als $\pm 0,2 \%$. Aufgrund des limitierten Messbereichs der Sensoren ist die Gesamtstromstärke, mit der die Brennstoffzellen belastet werden können, auf $<100 \text{ A}$ beschränkt. Bei den untersuchten Brennstoffzellen (siehe Kapitel 3.1) entspricht dies einer maximalen Stromdichte von ungefähr $0,4 \text{ A/cm}^2$.

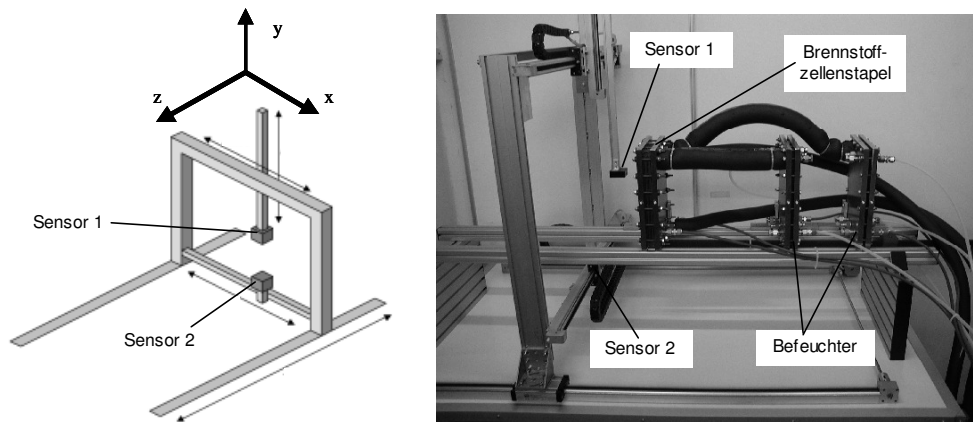


Bild 3.8: Aufbau des Magnetotomographiemessstands

Die Positionierung der Sensoren erfolgt über eine 4-achsige Positioniereinrichtung. Die Sensorführung ist derart gestaltet, dass der erste Sensor die beiden Seitenflächen, die vordere und hintere Stirnfläche und die Dachfläche der Brennstoffzelle abtastet. Der zweite Sensor dient der Messung der magnetischen Flussdichte unterhalb der Grundfläche der Zelle. Die einzelnen Achsen der Positioniereinrichtung werden jeweils mit Hilfe eines Schrittmotors verfahren. Eine spezielle Software, die die Koordinaten der zuvor festgelegten Sensormesspositionen beinhaltet, steuert die Motoren über eine serielle Schnittstelle an. Die gemessenen magnetischen Flussdichten werden digitalisiert, gefiltert und zusammen mit der entsprechenden Sensorposition in einem Datenfile abgespeichert.

Um eine Beeinflussung der Magnetfelder durch feldverstärkende Materialien zu vermeiden, ist die Messapparatur weitgehend frei von ferromagnetischen Werkstoffen ausgeführt. Die Profile und Achsen der Positioniereinrichtung bestehen aus Aluminium, die verwendeten Schrauben aus rostfreiem, nicht-magnetisierbarem Stahl. Die schwach-magnetisierbaren Edelstahlendplatten der Brennstoffzellen werden durch nicht-magnetisierbare Platten (Thyssen-Krupp-Nirosta 4565) der gleichen Geometrie ausgetauscht. Zuganker aus Messing ersetzen solche aus Stahl.

Die Brennstoffzelle ist über Stromschienen aus Kupfer mit der elektrischen Last verbunden. Um den Einfluss der Stromschienen auf die Magnetfeldmessungen zu minimieren, werden Hin- und Rückleiter dicht nebeneinander geführt, damit sich deren Magnetfelder gegenseitig kompensieren.

3.3 Dichtigkeitsmessung

Bei den untersuchten Einzelzellen und Short-Stacks kommen unterschiedliche Dichtungskonzepte zur Anwendung. Die vornehmliche Aufgabe der Dichtungen besteht in der sicheren räumlichen Trennung der Medien. Um eine Vermischung zu unterbinden, müssen die Reaktanden sowie das Kühlwasser gegeneinander und zur Umgebung hin abgedichtet sein.

Die Dichtigkeitsmessungen erfolgen in Form von Druckhaltetests. Die Tests umfassen die Überprüfung der Querdichtigkeit zwischen den unterschiedlichen Medienräumen und der Dichtigkeit der gesamten Brennstoffzelle gegen die Umgebung. Zur Durchführung der Tests werden die assemblierten Zellen, bestehend aus Endplatten, Bipolarplatten, MEAs und Dichtungen, mit Stickstoff mit einem Druck von 2 bar beaufschlagt. Bei bekanntem Gasvolumen in den Zellen wird der Druckabfall als Funktion der Zeit aufgezeichnet und ausgewertet.

3.4 Kraftflussmessung

Aufgrund der stark von der Anpresskraft abhängigen Übergangswiderstände ist eine homogene Druckverteilung in den Zellen Voraussetzung für eine gleichmäßige Stromdichteverteilung. Die Kenntnis über den Kraftfluss in einem Zellstapel erleichtert die Auslegung der Endplatten sowie der Kombination aus Dichtung und Diffusionsschicht.

Zur Messung der Anpressdruckverteilung in den Brennstoffzellen kommt ein Druckmesssystem der Firma Tekscan zum Einsatz. Das Kernstück des Systems bildet der circa 0,1 mm dicke Tastdrucksensor. Der Tastdrucksensor besteht aus zwei dünnen Kunststofffolien, von denen die eine spaltenweise und die andere zeilenweise mit Leiterbahnen versehen ist. Auf die Leiterbahnen ist eine elektrisch leitende Beschichtung aufgetragen, die in Abhängigkeit der auf sie wirkenden Kraft ihren elektrischen Widerstand ändert. Die Schnittpunkte der leitfähigen Zeilen und Spalten bilden die Messstellen. Die Messstellen werden elektronisch ausgewertet und über eine Software visualisiert.

Der verwendete Tastdrucksensor hat eine quadratische Messfläche von 125 cm² mit insgesamt 1936 Messstellen. Der Messbereich liegt zwischen 0 und 6,9 MPa.

3.5 Stromdichtemessung

Die Leistung einer Brennstoffzelle wird unter anderem durch Einflussfaktoren wie der Betriebstemperatur und dem Betriebsdruck, der Reaktandenbefeuchtung, der Anpressdruckverteilung aber auch dem Zusammenspiel von Strömungsstruktur und MEA beeinflusst. Ein verbessertes Verständnis der Einflüsse der unterschiedlichen Faktoren auf die Leistung kann durch die Messung der Stromdichteverteilung in einer Brennstoffzelle erzielt werden. Die gewonnenen Erkenntnisse helfen, das Zelldesign zu optimieren und die Betriebsbedingungen auf die vorliegenden Zellgeometrien und -materialien abzustimmen.

Aus der Literatur sind verschiedene Ansätze zur Bestimmung der Stromdichteverteilung bekannt. In [64] werden drei verschiedene Methoden vorgestellt. Um das lokale Stromdichteverhalten zu untersuchen, basiert die sogenannte „partial MEA technique“ auf der gezielten Inaktivierung bestimmter Gebiete der MEA. Dies geschieht entweder durch Maskierung oder durch partielle Katalysatorbeschichtung der MEA. Bei der „subcell technique“ wird die Stromdichte an kreisförmigen, über der Zelle verteilten und jeweils elektrisch vom Rest der Zelle isolierten Gebieten der Anode und gegenüberliegender Kathode gemessen. Die als „current mapping“

bezeichnete dritte Methode sieht ein passives Widerstandsnetzwerk auf der Rückseite der Flowfieldstruktur oder Stromsammelplatte vor. Das Widerstandsnetzwerk besteht aus orthogonal zu der unmodifizierten MEA angeordneten Graphitblöcken. Über den Spannungsabfall der als Shunts verwendeten Graphitblöcke wird über das Ohmsche Gesetz die Stromdichte bestimmt. Modifikationen der „current mapping“-Methode finden sich in [65, 66, 67].

[68] und [69] beschreiben einen Ansatz, bei dem eine auf die segmentierte Elektrode der PEFC angepasste Leiterplatte (printed circuit board) als Stromsammel der Stromdichtemessung dient. Die Integration einer solchen Leiterplatte in eine Bipolarplatte erlaubt, die Stromdichteverteilung nicht nur in Einzelzellen sondern auch in Zellstapeln zu ermitteln [70].

[71] und [72] stellen ein Stromdichtemessverfahren vor, bei dem innerhalb segmentierter Flowfieldplatten Hall-Sensoren integriert sind. Die durch die einzelnen Segmente fließenden Ströme erzeugen Magnetfelder, die von den Hall-Sensoren gemessen und zur Bestimmung der Stromdichteverteilung verwendet werden. [73] verwendet ebenfalls Hall-Sensoren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung in Einzelzellen.

Alle bisher beschriebenen Ansätze bedingen Modifikationen der untersuchten Brennstoffzellen. Die derzeit einzige bekannte nicht-invasive und somit rückwirkungsfreie Methode zur Bestimmung der Stromdichteverteilung beschreibt [74]. Die dort verwendete Magnetotomographie basiert auf der Messung der magnetischen Flussdichte außerhalb der Brennstoffzelle. Mit Hilfe der Magnetfelddaten kann auf die Stromdichteverteilung innerhalb der Zelle geschlossen werden.

In der vorliegenden Arbeit kommen zwei Verfahren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung zum Einsatz. Ähnlich dem Ansatz von [64] basiert das erste Verfahren auf lokalen Widerstandsmessungen an einem passiven Widerstandsnetzwerk. Das zweite Verfahren bildet die Magnetotomographie. Beide Verfahren werden im Folgenden detailliert vorgestellt.

3.5.1 Passives Widerstandsnetzwerk

Die oben vorgestellten invasiven Methoden zeichnen sich durch einen hohen Implementierungsaufwand aus. Die zu untersuchenden Messzellen werden modifiziert, indem entweder BPE, GDL oder MEA segmentiert werden. Die dadurch entstehenden Rückwirkungen auf die Brennstoffzelle verursachen Änderungen der fluiddynamischen, elektrischen und thermischen Eigenschaften der Zelle. Bei einigen Methoden ist die Strömungsstruktur in die Sensorplatte eingearbeitet. Dies erfordert einen hohen Fertigungsaufwand und erlaubt nicht, die Messapparatur auf andere Strömungsstrukturen und Bipolarplattenmaterialien anzupassen. Darüber hinaus wird bei einigen Messmethoden der Stromfluss umgelenkt, so dass Messungen nur an Einzelzellen möglich sind.

Die in Kapitel 3.2.3 beschriebene Messvorrichtung zur Stromdichtemessung bietet durch ihren einfachen Aufbau und die hohe Integrationsfähigkeit deutliche Vorteile gegenüber den herkömmlichen Ansätzen. Die Methode verzichtet auf eine aufwendige und kostspielige Segmentierung der Brennstoffzellenkomponenten und ist deshalb unabhängig vom Zellaufbau. Dadurch, dass die einzelnen Segmente der Messapparatur nicht vollständig getrennt voneinander

sind, kann das Widerstandsnetzwerk beispielsweise durch einen Stanz- oder Laserschneidprozess kostengünstig aus einem einzigen Bauteil hergestellt werden. Die Rückwirkungen der Apparatur auf die Brennstoffzellen sind gering, da die Zellkomponenten nicht modifiziert sind, der Stromfluss nur minimal gestört wird und die Materialeigenschaften der Messvorrichtung denen der Zelle entsprechen. Kühlstruktur und Messapparatur bestehen aus dem gleichen Material und besitzen somit die gleichen thermischen und elektrischen Eigenschaften sowie die gleiche Dichtungswirkung. Die Integration der Messvorrichtung in einen Zellstapel ist ebenso möglich wie die Kühlung der untersuchten Zellen. Der kurze Messzyklus erlaubt die Untersuchung instationärer Betriebszustände.

Es werden zwei Arten zur Bestimmung der Stromdichteverteilung unterschieden. Die erste ist als Differenzstromdichtemessung, die zweite als Absolutstromdichtemessung bezeichnet. Die Differenzstromdichtemessung vergleicht bei gleicher Gesamtstromstärke zwei unterschiedliche Betriebszustände einer Brennstoffzelle. Die Differenz der Stromdichteverteilungen beider Betriebszustände dient der Bewertung des Einflusses des variierten Betriebsparameters auf die Stromdichteverteilung. Die Absolutstromdichtemessung ermittelt die absolute Verteilung der Stromdichte in der Brennstoffzelle. Beide Arten zur Bestimmung der Stromdichteverteilung beruhen auf der Messung von Potentialdifferenzen. Aufgrund des elektrischen Materialwiderstands des expandierten Graphits tritt eine Potentialdifferenz auf, wenn Strom durch die einzelnen Segmente fließt. Die über die Kupferdrähte (vergleiche Bild 3.7) gemessene Potentialdifferenz ist direkt proportional zu dem Strom, der durch das entsprechende Segment fließt. Die Stromdichte in einem Segment ergibt sich aus dem Ohmschen Gesetz zu

$$i_{Seg} = \frac{I_{Seg}}{A_{Seg}} = \frac{U_{Seg}}{R_{Seg} \cdot A_{Seg}} \quad \text{Gl. 3.1}$$

Die Segmentfläche A_{Seg} ist bekannt, der Spannungsabfall an dem Segment U_{Seg} wird gemessen. Die Bestimmung des Segmentwiderstands R_{Seg} kann über zwei verschiedene Ansätze erfolgen.

Der erste Ansatz bestimmt die Segmentwiderstände, indem in einer Messvorrichtung unter bekanntem Anpressdruck und bekannter Temperatur ein definierter Strom $I_{Seg,Kal}$ durch ein einzelnes Segment geleitet wird. Aus dem resultierenden Spannungsabfall $U_{Seg,Kal}$ wird auf den Widerstand des betreffenden Segments geschlossen.

$$R_{Seg} = \frac{U_{Seg,Kal}}{I_{Seg,Kal}} \quad \text{Gl. 3.2}$$

Weichen die Bedingungen im Brennstoffzellenbetrieb von denen in der Messvorrichtung ab, entstehen aufgrund der Abhängigkeit der Segmentwiderstände vom Anpressdruck und der Temperatur Messfehler. In den für den Brennstoffzellenbetrieb relevanten Bereichen ist die Änderung des Materialwiderstands bei Variation des Anpressdrucks $< 0,25 \text{ \% / bar}$ beziehungsweise bei Variation der Temperatur $< 0,2 \text{ \% / K}$. Der Anpressdruck über der aktiven Fläche variiert in den untersuchten Brennstoffzellen um bis zu 4 bar (siehe Kapitel 9.1.1). Dies bedingt einen Messfehler von weniger als 1 %. Der Fehler durch eine ungleichmäßige Temperatur-

verteilung liegt bei ungefähr 1 %, wenn eine maximale Temperaturdifferenz von 5 K in der Zelle unterstellt wird. Messfehler, die auf die Messgenauigkeit des Datenloggers zurückzuführen sind beziehungsweise durch die stromlosen Messdrähte bedingt sind, werden mit $< 1\%$ abgeschätzt.

Im weiteren Verlauf der Arbeit wird der zweite Ansatz zur Bestimmung der Segmentwiderstände verwendet. Dieser Ansatz basiert auf der Annahme, dass bei einem definierten Betriebszustand die Stromdichteverteilung über der aktiven Fläche homogen ist. Um diesen Zustand zu erreichen, wird die Brennstoffzelle mit reinem, befeuchtetem Sauerstoff betrieben. Um eine möglichst gleichmäßige Sauerstoffkonzentration über der gesamten aktiven Fläche zu gewährleisten, wird ein Sauerstoffstöchiometriekoeffizient $\phi_{O_2} = 8$ gewählt. Der hohe Durchfluss beugt ebenfalls einer möglichen Verstopfung der Kanäle durch Produktwasser (Flooding) vor. Um Diffusionsüberspannungen zu vermeiden, arbeitet die Zelle unter geringer Last ($< 50 \text{ mA/cm}^2$). Die an den einzelnen Segmenten ermittelten Potentialdifferenzen dienen bei angenommener homogener Stromdichte der Berechnung der Segmentwiderstände gemäß Gleichung 3.2. Ist die Annahme einer homogenen Stromdichteverteilung nicht erfüllt, führt dies zu Messfehlern. Bauteilinhomogenitäten sowie eine ungleichmäßige Anpressdruckverteilung können Ursache einer inhomogenen Stromdichteverteilung sein. Die Bauteilinhomogenitäten der im Maschinenprozess hergestellten BPE und GDL sind gering. Ihr Einfluss auf den Messfehler wird mit $< 5\%$ abgeschätzt. Vernachlässigbar ist der Einfluss der Bauteilinhomogenitäten des expandierten Graphits auf die Stromdichteverteilung, da der Flächenwiderstand der Segmente um circa Faktor 50 unter dem der Gesamtzelle liegt. Unter den vorliegenden Betriebsbedingungen wird der durch eine inhomogene Anpressdruckverteilung hervorgerufene Messfehler mit maximal 5 % abgeschätzt. Weichen die Betriebsbedingungen von denen der Sauerstoffmessung ab, resultiert die Druck- und Temperaturabhängigkeit des Widerstands der Graphitfolie in den bereits für den ersten Ansatz beschriebenen Messfehlern.

Aufgrund des lateralen Stromflusses in der Gasdiffusionsschicht und der Bipolarplatte weicht die an der Position der Messapparatur gemessene Stromdichteverteilung geringfügig von der an der MEA vorliegenden Verteilung ab. Der laterale Stromfluss in der Messapparatur ist weitgehend durch die zwischen den Segmenten befindlichen Spalte unterbunden.

Ein vereinfachter Berechnungsansatz dient im Folgenden der Abschätzung der lateral fließenden Ausgleichsströme. Auf Basis der Ergebnisse werden bevorzugte Anwendungsgebiete für das Messverfahren identifiziert. Die Berechnungen entstanden bei der Arbeitsgruppe Elektrochemische Energiewandlung und Speichersystemtechnik des Instituts für Stromrichtertechnik und Elektrische Antriebe der RWTH Aachen [75]. Zur Simulation der elektrischen Schaltungen wird das unter MATLAB arbeitende Programmpaket Plecs der Firma Plexim verwendet.

Die in Form eines Widerstandsnetzwerks simulierte Einzelzelle besteht aus jeweils zwei Endplatten, BPE und GDL, einer katalysatorbeschichteten Membran sowie der Messapparatur. Die Messapparatur ist zwischen BPE und Endplatte eingebaut. Die Membran ist in dem Netzwerk durch 5x4 Reihenschaltungen, jeweils bestehend aus Spannungsquelle und elektrischem Widerstand, dargestellt. Während alle Spannungsquellen die gleiche Spannung aufweisen, können die einzelnen Widerstände gezielt variiert werden.

Jede weitere Zellkomponente wird durch eine Widerstandsmatrix mit jeweils 20 Knotenpunkten (5x4) modelliert. In Hauptstromrichtung (z-Richtung) sind die Materialwiderstände jeweils zur Hälfte vor und hinter den Knoten des entsprechenden Bauteils angeordnet. Diese Anordnung der Widerstände stellt sicher, dass der laterale Stromfluss durch die Bauteilmitte geleitet wird. In lateraler Richtung verbindet je ein Widerstand in x- und y-Richtung die benachbarten Knoten eines Bauteils.

Da die simulierte Messzelle im Gegensatz zu der realen Messapparatur keine Spalte zwischen den einzelnen Segmenten aufweist, liegt bezüglich der auftretenden Querströme eine konservative Abschätzung vor. Die äußeren Flächen der Endplatten sind vereinfachend als Isopotentialflächen ausgeführt. Die relevanten Werkstoffkennwerte und Geometriedaten der Zellkomponenten sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Tabelle 3.1: Material- und Geometriewerte

	GDL	BPE		Messapparatur	Endplatte	
		Graphit	Titan			
Leitfähigkeit	5	z=40, xy=80	10000	25	10000	[S/cm]
Bauteildicke (z-Richtung)	0,25	1,8		1	10	[mm]

An Einzelzellen mit unterschiedlich großer aktiver Fläche und unterschiedlichen Bipolarplattenmaterialien wird der Einfluss der lateral fließenden Ströme auf die Glättung der Stromdichteverteilung untersucht. Der Einfluss wird mit Hilfe der prozentualen Abweichung der Stromdichte zwischen MEA und der von der MEA abgewandten Fläche der Messapparatur bewertet. Um eine inhomogene Stromdichteverteilung an der Membran zu erzeugen, werden zwei der 20 Membranwiderstände doppelt so groß wie die restlichen ausgeführt. Die veränderten Widerstände befinden sich entsprechend der Bezeichnung in Bild 3.7 auf Höhe von Segment 1 und Segment 2.

Eine Brennstoffzelle mit Bipolarplatten aus Graphit und einer aktiven Fläche von 252 cm² wird mit einem Strom von 252 A belastet. Unter Berücksichtigung der orthotropen elektrischen Materialeigenschaften der Bipolarplatte ergibt sich eine maximale Abweichung der Stromdichte zwischen MEA und Messapparatur von weniger als 1 %. Bei einer Zelle gleicher Geometrie mit Bipolarplatten aus Titan zeigt sich dagegen eine Abweichung in der Stromdichteverteilung von rund 23 %. Bei konstanter mittlerer Stromdichte, aber einer um den Faktor 10 verkleinerten aktiven Fläche verstärkt sich die Glättung der Stromdichte. In diesem Fall beträgt die maximale prozentuale Abweichung für die Zelle mit Graphitplatten 4 % und für die Zelle mit Titanplatten 31 %.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass bei allen Messungen aufgrund der lateral fließenden Ströme eine Glättung der Stromdichteverteilung auftritt. Sind die Dimensionen der Zelle in xy-Richtung hinreichend groß im Vergleich zu der Bauteildicke ausgeführt und ist die elektrische Leitfähigkeit der Bauteile gering, sind die Einflüsse der Querströme auf die Stromdichteverteilung sowie die Rückwirkung der Messapparatur auf das Messobjekt vernachlässigbar. Das Verfahren eignet sich somit für höherohmige Bipolarplatten aus Graphit, aber nicht für metallische Bipolarplatten. Die gestellten Anforderungen an die Messung der Stromdichteverteilung an den in Kapitel 3.1 beschriebenen Zellen mit graphitischen Bipolarplatten erfüllt das vor-

liegende Messverfahren. Der Aufwand einer Segmentierung der Diffusionsschichten und Bipolarplatten der Zelle scheint nicht gerechtfertigt.

3.5.2 Magnetotomographie

Die noch in der Entwicklungsphase befindliche Magnetotomographie stellt das derzeit einzige bekannte Verfahren zur nicht-invasiven Bestimmung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen dar. Eingriffe in die Brennstoffzellen sind ebenso nicht erforderlich wie eine Segmentierung der Zellen. Somit muss bei der Magnetotomographie im Gegensatz zu den invasiven Verfahren nicht durch den Einbau einer Messapparatur im Vorfeld festgelegt werden, an welcher Position im Zellstapel die Stromdichteverteilung ermittelt werden soll. Diese Eigenschaften machen das Verfahren gerade für den Bereich der Qualitätssicherung in der Produktion interessant.

Die Magnetotomographie basiert auf der Messung der durch den Stromfluss in der Brennstoffzelle induzierten magnetischen Flussdichte. Die Messung der Flussdichte erfolgt außerhalb der Brennstoffzelle. Das Messprinzip ist auf das Messobjekt rückwirkungsfrei und erlaubt, die Stromdichteverteilung dreidimensional in Einzelzellen und Zellstapeln zu visualisieren. Der derzeitige Entwicklungsstand des Verfahrens erlaubt ausschließlich Messungen an Brennstoffzellen, die keine magnetisierbaren Werkstoffe enthalten. Zellstapel mit Bipolarplatten aus magnetisierbaren Metallen, zu denen auch Edelstahlplatten zählen, können demnach nicht untersucht werden. Messungen instationärer Betriebszustände sind mit dem in Kapitel 3.2.4 vorgestellten Messstand aufgrund der langen Messzeit von circa 15 Minuten pro Messung nicht möglich. In einem nächsten Entwicklungsschritt kann die Messzeit beispielsweise durch eine erhöhte Anzahl an Messsensoren entscheidend verringert werden, so dass auch Untersuchungen instationärer Zustände möglich erscheinen.

Die physikalisch-mathematischen Grundlagen der Stromdichteberechnung werden im Folgenden erläutert. Aus Gründen der besseren Verständlichkeit wird für die Erläuterungen die in realen Brennstoffzellen vorherrschende dreidimensionale Problemstellung vereinfachend auf den zweidimensionalen Fall reduziert, indem die Stromleiter als unendlich lang und gerade angenommen werden.

Die Maxwell-Gleichung beschreibt den Zusammenhang zwischen der Stromdichte i und der magnetischen Feldstärke H . Das Integral der magnetischen Feldstärke ist längs einer geschlossenen Umlauflinie gleich dem Integral der Stromdichte über die Fläche innerhalb der geschlossenen Linie

$$\oint H \cdot ds = \int_A i \cdot dA \quad \text{Gl. 3.3}$$

Für einen einzelnen konzentrierten Stromleiter ergibt sich durch Integration der Gleichung 3.3 entlang einer kreisförmigen Feldlinie mit dem Abstand r vom Mittelpunkt des Leiters der Betrag der Feldstärke zu

$$H = \frac{I}{2 \cdot \pi \cdot r} \quad \text{Gl. 3.4}$$

Die im Messstand verwendeten magnetoresistiven Sensoren messen die magnetische Flussdichte B . Zwischen magnetischer Flussdichte und Feldstärke gilt die Beziehung

$$B = \mu_0 \cdot \mu_R \cdot H \quad \text{mit} \quad \mu_0 = 4 \cdot \pi \cdot 10^{-7} \frac{\text{Vs}}{\text{A m}} \quad \text{Gl. 3.5}$$

μ_0 bezeichnet die magnetische Permeabilitätskonstante im materiefreien Raum. Die materialabhängige Permeabilitätszahl μ_R besitzt für alle bei den Messungen relevanten Materialien den konstanten Wert $\mu_R \approx 1$.

In einer Brennstoffzelle liegen flächig beziehungsweise räumlich verteilte Ströme vor. Das räumliche Magnetfeld dieser nicht konzentrierten Ströme kann durch Superposition der Magnetfelder verschiedener diskreter Einzelströme erzeugt werden. Bild 3.9 zeigt eine in 36 Flächenelemente diskretisierte Zelloberfläche einer Brennstoffzelle. Es wird angenommen, dass durch das Zentrum der einzelnen Flächenelemente ein jeweils unbekannter Strom fließt. Die Summe der Einzelströme entspricht dem Gesamtstrom, mit dem die Brennstoffzelle belastet ist.

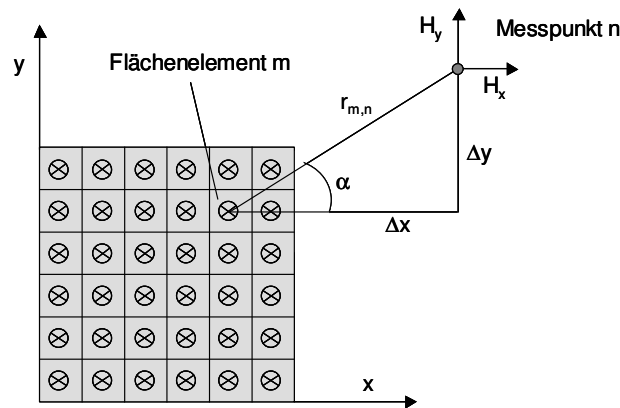


Bild 3.9: Diskretisierte Zelloberfläche (6 x 6 Flächenelemente)

Der Strom I_m , der durch das Flächenelement m fließt, erzeugt in dem Messpunkt n im Abstand

$r_{m,n} = \sqrt{\Delta x_{m,n}^2 + \Delta y_{m,n}^2}$ ein Magnetfeld mit den Komponenten $H_{x,n}^m, H_{y,n}^m$.

$$H_{x,n}^m = \frac{-I_m}{2 \cdot \pi \cdot \sqrt{\Delta x_{m,n}^2 + \Delta y_{m,n}^2}} \cdot \sin(\arctan \frac{\Delta y_{m,n}}{\Delta x_{m,n}})$$

$$H_{y,n}^m = \frac{I_m}{2 \cdot \pi \cdot \sqrt{\Delta x_{m,n}^2 + \Delta y_{m,n}^2}} \cdot \cos(\arctan \frac{\Delta y_{m,n}}{\Delta x_{m,n}})$$

Gl. 3.6

Die Gesamtfeldstärke in dem Messpunkt n ergibt sich aus der Superposition der entsprechenden Magnetfeldkomponenten aller Einzelströme

$$\begin{aligned} H_{x,n} &= \sum_m H_{x,n}^m \\ H_{y,n} &= \sum_m H_{y,n}^m \end{aligned} \quad \text{Gl. 3.7}$$

Die folgende Gleichung stellt den Zusammenhang zwischen Einzelströmen und Magnetfeld in Matrixform dar. Beispielhaft ist dazu die Magnetfeldkomponente in x-Richtung ausgewählt.

$$\begin{pmatrix} H_{x,1} \\ \vdots \\ H_{x,n} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} w_{1,1} & \dots & w_{1,m} \\ \vdots & & \vdots \\ w_{n,1} & \dots & w_{n,m} \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} i_1 \\ \vdots \\ i_m \end{pmatrix} \Leftrightarrow \begin{pmatrix} H_{x,1} \\ \vdots \\ H_{x,n} \end{pmatrix} = \overline{\overline{W}} \cdot \begin{pmatrix} i_1 \\ \vdots \\ i_m \end{pmatrix} \quad \text{Gl. 3.8}$$

Die Matrix $\overline{\overline{W}}$ mit den Elementen $w_{n,m}$ enthält die geometrischen Abhängigkeiten, über die die Einzelströme mit den Magnetfelddaten an den entsprechenden Messpositionen in Verbindung stehen.

Die in Brennstoffzellen vorherrschenden Verhältnisse erfordern eine dreidimensionale Betrachtung der Magnetfeldverteilung. Aufgrund der endlich langen, dreidimensional verlaufenden Stromfäden in den Zellen erfolgt die Magnetfeldberechnung im Raum über das Biot-Savart'sche Gesetz.

$$H(x) = \int_{\Omega} \frac{i \, y \, x \, y}{|\vec{x} - \vec{y}|^3} ds(y) \quad \text{Gl. 3.9}$$

bezeichnet das stromdurchflossene Raumgebiet. Auch Gleichung 3.9 lässt sich entsprechend Gleichung 3.8 in Matrixform darstellen.

Die Magnetotomographie erlaubt, auf die unbekannten Ströme in einer Brennstoffzelle durch die von ihnen erzeugten magnetischen Felder zurückzuschließen. Um beispielsweise die in Bild 3.9 gezeigten 36 unbekannten Einzelströme aus Magnetfelddaten zu rekonstruieren, werden mindestens 36 gemessene magnetische Feld- beziehungsweise Flussdichtedaten benötigt. Da an jeder Messstelle im zweidimensionalen Fall jeweils die x- und y-Komponente der Flussdichte ermittelt werden, sind demnach mindestens 18 verschiedene Messpositionen notwendig. Sind die Magnetfelddaten mit den entsprechenden Messpositionen relativ zu den Flächenelementen bekannt, kann Gleichung 3.8 nach den Strömen in den Elementen aufgelöst werden. Bei Gleichung 3.8 handelt es sich um eine Integralgleichung erster Art mit analytischem Kern, die im Sinne von Hadamard [76] „schlecht gestellt“ ist. Dies bedeutet, dass die Lösung der Gleichung im Allgemeinen nicht eindeutig und instabil ist. So besteht die Möglichkeit, dass sich die Magnetfelder bestimmter Stromdichten in der Brennstoffzelle gegenseitig kompensieren, so dass sie kein äußeres messbares Magnetfeld erzeugen. Diese auf Null abgebildeten Stromdichten können nicht rekonstruiert werden. Numerische Experimente zeigen, dass diese „nicht-sichtbaren“ Stromdichten die grundsätzliche Realisierbarkeit der magnetischen Tomographie

nicht beeinträchtigen, da die rekonstruierbaren Stromdichten die für das Anwendungsproblem wesentlichen Eigenschaften umfassen [77]. Die Instabilität der Lösung äußert sich darin, dass kleine Datenfehler sowohl in dem Biot-Savart-Integraloperator $\overline{W}$ als auch in dem Messdatenvektor unter Umständen zu starken Änderungen in der Lösung für die Stromdichteverteilung führen. In diesem Fall würde die Rekonstruktion physikalisch unsinnige Ergebnisse liefern [78]. Aus diesen Gründen ist es nicht möglich, die Inverse des linearen Biot-Savart-Integraloperators $\overline{W}^{-1}$ für die Berechnungen heranzuziehen. Vielmehr muss das Rekonstruktionsproblem durch einen geeigneten Ansatz stabilisiert werden. Einen solchen Ansatz bietet die Tikhonov-Regularisierung, die die Berechnung einer approximativen Lösung der Gleichung erlaubt [77, 79]. Es gilt

$$\begin{pmatrix} i_1 \\ \vdots \\ i_m \end{pmatrix} = \overline{R}_w \cdot \begin{pmatrix} H_{x,1} \\ \vdots \\ H_{x,n} \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \overline{R}_w = \left(\alpha \cdot \overline{E} + \overline{W}^T \cdot \overline{W} \right)^{-1} \cdot \overline{W}^T \quad \text{Gl. 3.10}$$

$\overline{R}_w$ bezeichnet die Tikhonov-Inverse, α den Regularisierungsparameter und $\overline{E}$ die Einheitsmatrix. Dadurch, dass die L2-Norm $\|\overline{R}_w\|$ im Gegensatz zu der Norm $\|\overline{W}^{-1}\|$ endlich ist, werden die Datenfehler durch $\overline{R}_w$ stärker gedämpft. Durch die Verwendung der Approximation $\overline{R}_w$ entsteht allerdings ein Regularisierungsfehler, der zu einer Glättung der Stromverteilung führt. In der Regel muss der Regularisierungsparameter so gewählt werden, dass die Summe aus Daten- und Regularisierungsfehler minimal wird [78].

Der Fehler zwischen der berechneten und der tatsächlich in der Brennstoffzelle vorliegenden Stromdichteverteilung hängt stark von der räumlichen Auflösung des Verfahrens ab. Eine erhöhte Auflösung verstärkt in der Regel die Instabilität des Gleichungssystems und hat somit einen größeren Fehler zur Folge. Weiterhin ist der Fehler abhängig von:

- der Anordnung und Anzahl der Messpunkte relativ zu der Brennstoffzelle
- dem Messfehler bei der Positionsbestimmung der Messpunkte relativ zu der Brennstoffzelle
- dem Messfehler in den magnetischen Flussdichtedaten
- der Diskretisierung des Messobjekts
- dem verwendeten Regularisierungsverfahren zur Stabilisierung des schlecht gestellten Gleichungssystems
- den Nebenbedingungen, die bei der Rekonstruktion der Stromdichteverteilung Berücksichtigung finden

Nebenbedingungen, die bei dem derzeitigen Entwicklungsstand der Magnetotomographie noch nicht in den Algorithmus integriert sind, sind beispielsweise die Divergenzfreiheit in dem diskretisierten Messobjekt oder eine Stromrichtungsbedingung. Als Richtungsbedingung ist die Annahme bezeichnet, dass entgegen der Hauptstromrichtung, also orthogonal zu der Membran, keine Ströme fließen.

Die in einem Messsensor enthaltenen drei Sensorelemente zur Messung der magnetischen Flussdichte in allen drei Raumrichtungen stehen nicht ideal orthogonal zueinander. Des Weiteren sind die Sensorelemente nicht exakt in Richtung der Koordinatenachsen ausgerichtet und aufgrund ihrer räumlichen Ausdehnung zueinander versetzt angeordnet. Um den Datenfehler bei der Messwerterfassung zu verringern, wird zu Beginn der Messungen einmalig eine rechnerische Korrektur der Winkel- und Positionsfehler der Sensoren gegenüber einem definierten Koordinatensystem durchgeführt. Dazu ist eine Leiterschleife über verdrehte Zuleiter mit einer Stromquelle verbunden. Bei bekanntem Stromfluss wird die von der Leiterschleife erzeugte magnetische Flussdichte mit den Sensoren vermessen. Aufgrund der bekannten Position und Geometrie der Leiterschleife kann das Magnetfeld berechnet werden. Ein Vergleich zwischen der berechneten und der gemessenen magnetischen Flussdichte der Leiterschleife erlaubt, die Sensorelementposition und die Verkippung beziehungsweise Verdrehung des Sensors relativ zu der Leiterschleife zu bestimmen. Die Korrektur der Messdaten für die Rekonstruktionsrechnungen erfolgt entsprechend den Abweichungen der Sensoren von der idealen Anordnung. Der Einfluss des Wechselspannungsnetzes auf die Messwerte ist vernachlässigbar. Bedingt durch die im Wechselspannungsnetz dicht nebeneinander, parallel verlegten Hin- und Rückleiter sind die entstehenden Störfelder klein im Vergleich zu den Magnetfeldern der Brennstoffzelle. Zusätzlich dämpfen Filter den Einfluss der Wechselfelder auf die Messergebnisse. Eine fundierte Fehlerabschätzung ist bei derzeitigem Entwicklungsstand der Magnetotomographie noch nicht möglich. Eine detaillierte Studie bezüglich der Messfehler und der erreichbaren Auflösung muss daher Gegenstand der nächsten Entwicklungsschritte sein.

Zur Visualisierung der rekonstruierten dreidimensionalen Stromdichteverteilungen steht ein umfangreiches Programmpaket zur Verfügung. Die zur Zeit verwendete Rekonstruktionssoftware weist die Stromdichte beziehungsweise Änderungen in der Stromdichteverteilung nur qualitativ in Form unterschiedlicher Farbtöne aus. Eine Zuweisung der Farbskala auf absolute Einheiten in A/cm² ist prinzipiell möglich und wird derzeit getestet. Die Skalierung der rekonstruierten Stromdichteverteilung hängt von dem Regularisierungsparameter, der Art der Datenfehler und der speziellen Geometrie der Brennstoffzelle ab. Unter der Voraussetzung, dass für einen gegebenen Brennstoffzellenaufbau die systematischen Fehler und damit der Fehlertyp erhalten bleiben, kann ein Abgleich zwischen rekonstruierten Stromdichteverteilungen und bekannten Verteilungen erfolgen. Messungen an zwei Betriebszuständen mit bekannter Stromdichteverteilung erlauben, eine Skalierung der Rekonstruktion für unterschiedliche Regularisierungsparameter vorzunehmen. Die resultierende, von dem Regularisierungsparameter abhängige Skalierungsfunktion kann für weitere Rekonstruktionen an geometrisch ähnlichen Brennstoffzellen genutzt werden [80]. Eine Änderung des Zellaufbaus oder der Diskretisierung würde in diesem Fall eine neue Kalibrierung erfordern.

Die von den magnetoresistiven Sensoren gemessene magnetische Flussdichte B_{Mess} um einen Brennstoffzellenstapel setzt sich additiv aus drei Anteilen zusammen.

$$B_{\text{Mess}} = B_{\text{Erde}} + B_{\text{Zuleiter}} + B_{\text{BZ}} \quad \text{Gl. 3.11}$$

B_{Erde} beinhaltet alle zeitlich konstanten Flussdichten, die beispielsweise durch das Erdmagnetfeld oder andere konstante Störquellen erzeugt werden. $B_{Zuleiter}$ beschreibt den Einfluss der Stromschienen sowie aller weiteren stromdurchflossenen Kabel auf die gemessene magnetische Flussdichte. Die durch die Stromdichteverteilung in der Brennstoffzelle erzeugte magnetische Flussdichte ist mit B_{BZ} bezeichnet. Für die Stromdichterekonstruktion nach Gleichung 3.10 ist ausschließlich die Flussdichte B_{BZ} beziehungsweise das entsprechende Magnetfeld H_{BZ} relevant.

Die Magnetotomographie unterscheidet zwischen Differenz- und Absolutrekonstruktion. Die Differenzrekonstruktion erfordert zwei Messungen der magnetischen Flussdichte außerhalb der Brennstoffzelle unter unterschiedlichen Betriebsbedingungen. Bei beiden Messungen sind der Gesamtstrom und die Position der Messpunkte identisch. Unter der Annahme, dass das Erdmagnetfeld über die Messdauer konstant ist, keine schweren Metallteile in Nähe des Messaufbaus während der Messung bewegt werden und die Stromschienen nicht verrückt werden, ergibt sich

$$\begin{aligned} B_{Diff} &= B_{Mess,1} - B_{Mess,2} \\ &= (B_{Erde} + B_{Zuleiter} + B_{BZ,1}) - (B_{Erde} + B_{Zuleiter} + B_{BZ,2}) \\ &= B_{BZ,1} - B_{BZ,2} \end{aligned} \quad \text{Gl. 3.12}$$

Die Differenz beider Messdatensätze erlaubt, mit Hilfe der Tikhonov-Regularisierung nach Gleichung 3.10 die Stromdichteänderung approximativ zu rekonstruieren.

Absolutrekonstruktionen erfordern ebenso wie die Differenzrekonstruktionen zwei Messungen. Mit der ersten Messung werden die Flussdichtedaten einer unter den gewünschten Betriebsparametern arbeitenden Brennstoffzelle ermittelt. Der Messdatensatz enthält nach Gleichung 3.11 auch die Anteile des Erdmagnetfeldes sowie der Zuleiter. Bei der zweiten Messung wird die Brennstoffzelle von den Stromschienen getrennt und durch eine Kurzschlussbrücke (KSB) aus Kupfer ersetzt. Anstelle der elektrischen Last werden die über die Kurzschlussbrücke kurzgeschlossenen Stromschienen mit einer Stromquelle verbunden. Die Stromquelle erzeugt einen Strom gleichen Vorzeichens und gleicher Stärke wie bei der ersten Messung. Die magnetische Flussdichte wird wiederum an den gleichen Positionen wie bei der ersten Messung aufgezeichnet. Dieser Messdatensatz beinhaltet neben dem Einfluss des Erdmagnetfeldes sowie der Zuleiter auch den Flussdichteanteil der durch die KSB erzeugt wird.

$$B_{Mess,2} = B_{Erde} + B_{Zuleiter} + B_{KSB} \quad \text{Gl. 3.13}$$

Die Differenz beider Messdatensätze enthält neben dem Flussdichteanteil der Brennstoffzelle den der Kurzschlussbrücke.

$$\begin{aligned} B_{Abs} &= B_{Mess,1} - B_{Mess,2} \\ &= (B_{Erde} + B_{Zuleiter} + B_{BZ,1}) - (B_{Erde} + B_{Zuleiter} + B_{KSB}) \\ &= B_{BZ,1} - B_{KSB} \end{aligned} \quad \text{Gl. 3.14}$$

Sind Geometrie und Position der Kurzschlussbrücke bekannt, kann B_{KSB} nach dem Biot-Savart'schen Gesetz berechnet und aus Gleichung 3.14 eliminiert werden. Der verbleibende

Flussdichteanteil ist ausschließlich durch die Stromdichte innerhalb der Brennstoffzelle bedingt und dient der Rekonstruktion der Stromdichteverteilung nach Gleichung 3.10. Die Genauigkeit der Absolutmessung beruht wesentlich auf der Simulation des magnetischen Feldes der Kurzschlussbrücke sowie auf einer unveränderten Lage der Stromschienen bei beiden Messungen.

Die Berechnung des von der Kurzschlussbrücke erzeugten Magnetfeldes ist derzeit noch zu ungenau für die Rekonstruktion von Absolutrekonstruktionen. Die in Kapitel 4.3.2 vorgestellten Ergebnisse beschränken sich daher auf Differenzrekonstruktionen.

3.6 Widerstandsmessung

Der im Betrieb der Brennstoffzelle vorherrschende flächenbezogene Ohmsche Anteil der Überspannungen wird mit Hilfe von Abschaltmessungen ermittelt. Ein elektronischer Schalter schaltet während des Brennstoffzellenbetriebs die elektrische Last im Bereich von wenigen Mikrosekunden ab. Ein Oszilloskop zeichnet den zeitlichen Verlauf der resultierenden Spannungsantwort der Brennstoffzelle auf. Der zeitlich unverzögerte Anteil des Spannungssprungs U_{UV} ist direkt proportional zu den Ohmschen Verlusten. Bei bekannter Stromdichte folgt der Flächenwiderstand aus dem Ohmschen Gesetz

$$\tilde{R} = \frac{U_{UV}}{i} \quad \text{Gl. 3.15}$$

3.7 Messung des Tropfenaustrags aus der Strömungsstruktur

Sind die Reaktandengase mit Wasser gesättigt, kann Produktwasser in flüssiger Form anfallen. Der Austrag des flüssigen Wasser aus der Zelle beziehungsweise aus dem Zellstapel ist notwendig, um einer Verstopfung der Strömungsstrukturen und der dadurch bedingten Inaktivierung elektrochemisch aktiver Bereiche vorzubeugen.

Der Wasseraustrag aus einer Brennstoffzelle wird beispielsweise durch

- das Aspektenverhältnis und die Radien der Kanalgeometrie
- die Oberflächenspannung und Rauigkeit des Bipolarplattenmaterials
- die Fließgeschwindigkeit und den Druckverlust in der Strömungsstruktur

beeinflusst.

Der Einfluss der Fließgeschwindigkeit und des Druckverlustes in der Strömungsstruktur auf den Wasseraustrag wird an den vorhandenen Flowfelddesigns (siehe Kapitel 3.1) untersucht. Eine Halbzelle, bestehend aus einer Plexiglas-Bipolarplatte mit der zu untersuchenden Strömungsstruktur, einer Dichtung sowie einer befeuchteten Diffusionsschicht, wird zwischen zwei Plexiglasplatten gespannt. An verschiedenen Stellen in dem Flowfield werden Wassertropfen eingebracht. Ein Durchflussregler regelt den Luftvolumenstrom, der durch die Halbzelle strömt. Der Durchfluss wird so lange erhöht, bis durch die Plexiglasplatten der Tropfenaustrag beobachtet wird. Die Fließgeschwindigkeit und die Druckdifferenz zwischen Zellenein- und -austritt in

diesem Punkt werden gemessen. Aufgrund der unterschiedlichen Materialeigenschaften der in diesen Versuchen verwendeten Plexiglasplatten und den in den Brennstoffzellen zum Einsatz kommenden graphitischen Platten können die Ergebnisse zum Wasserausstrag nur eine Abschätzung darstellen.

4 Auswertung der Messergebnisse

Das folgende Kapitel beinhaltet die Beschreibung und Bewertung der experimentellen Ergebnisse, die als Grundlage für die Auslegung des 5 kW Zellstapels und der Verifikation getroffener Modellannahmen dienen. Die Ergebnisse umfassen eine systematische Charakterisierung von Einzelzellen und Short-Stacks. Als Short-Stack sind in der vorliegenden Arbeit Zellstapel bezeichnet, die aus drei seriell verschalteten Einzelzellen bestehen. Bei allen Experimenten kommt auf der Brenngasseite reiner Wasserstoff zum Einsatz. Der Brennstoffzellenbetrieb mit wasserstoffreichem Synthesegas wird nicht untersucht.

4.1 Bewertung von Strömungsstrukturen und Bipolarplattenmaterialien

4.1.1 Vergleich zwischen Mäander- und Kanal-Füßchen-Strömungsstruktur

Die vornehmliche Aufgabe der Strömungsstrukturen besteht in der gleichmäßigen Verteilung der Reaktanden über der aktiven Fläche. Die in Brennstoffzellen bevorzugt verwendeten Flowfields bestehen aus Kanal-, Mäander-, Finger-, Füßchen- oder Netzstrukturen. Eine ausführliche Beschreibung der unterschiedlichen Strukturen findet sich beispielsweise in [81].

Die beiden im Weiteren gegenübergestellten Strömungsstrukturen sind in Bild 3.2, Kapitel 3.1, dargestellt. Das erste Flowfielddesign sieht eine Mäanderstruktur vor, das zweite Design besteht aus einer Kombination aus Füßchen- und Kanalstruktur. Mit Hilfe des zweiten Designs sollen nach Möglichkeit die Vorteile beider Strukturen vereint werden. Im Ein- und Auslassbereich der Reaktanden soll die Füßchenstruktur, die die Verteilung der Fluide quer zur Hauptströmungsrichtung zulässt, eine homogene Anströmung der im Mittelteil des Flowfields befindlichen Kanalstruktur gewährleisten. Die in Hauptströmungsrichtung ausgerichteten Kanäle stellen die gleichmäßige Verteilung der Fluide im weiteren Verlauf der Strömung bei geringem Druckverlust sicher.

Eine angestrebte hohe volumetrische Leistungsdichte setzt einen hohen Flächennutzungsgrad der Zelle voraus. Der Flächennutzungsgrad ist definiert als das Verhältnis von aktiver Fläche zu der Gesamtfläche der Bipolarplatte. Im Fall der Mäanderstruktur beträgt der Flächennutzungsgrad 64 %, bei der Kanal-Füßchen-Struktur 57 %. Der unterschiedliche Flächennutzungsgrad resultiert aus dem Umstand, dass die Fläche über dem abgeschrägten Einlaufbereich der Füßchenstruktur nur teilweise für die elektrochemische Reaktion genutzt werden kann.

Die Druckverluste beider Strukturen befinden sich auf geringem Niveau. Die Kanal-Füßchen-Struktur weist den größeren Strömungsquerschnitt bei gleichzeitig kürzerem Strömungsweg auf. Daher ist der Druckverlust bei dieser Struktur beispielsweise bei einem Betriebsdruck von 2 bar, einer Temperatur von 70 °C, einer Stromdichte von 0,6 A/cm² und einem kathodenseitigen Stö-

chiometriefaktor von 2 bei einem Absolutwert von 8 mbar um circa 30 % geringer als bei der mit gleichem Volumenstrom durchflossenen Mäanderstruktur. Der geringere Druckverlust bedingt zwar eine geringere Leistung des Verdichters, hat aber auch zur Folge, dass die Medienverteilung auf die einzelnen Zellen im Zellstapel ungleichmäßiger ist (siehe Kapitel 5).

Die Leistungscharakterisierung von Einzelzellen und Short-Stacks mit den beiden unterschiedlichen Strömungsstrukturen zeigt, dass die Spannungs-Stromdichte-Charakteristiken beider Strukturen im technisch relevanten Bereich bis circa 500 mV nahezu deckungsgleich sind. Bei kurzen Diffusionswegen für die Reaktanden sollte die Kontaktfläche zwischen Bipolarplatte und Diffusionsschicht größtmöglich sein, um die Ohmschen Überspannungen gering zu halten. Das Verhältnis aus Steg- zu Kanalfläche beträgt für das Mäander-Design rund 0,67, für die Kanal-Füßchen-Struktur rund 0,77. Abschaltmessungen zeigen, dass die Flächenwiderstände beider Strukturen nur marginale Unterschiede aufweisen. Da beide Zellen mit der gleichen Anpresskraft verspannt sind, ist bei der Kanal-Füßchen-Struktur aufgrund der größeren Kontaktfläche der Anpressdruck, also die flächenbezogene Anpresskraft, zwischen Bipolarplatte und Diffusionsschicht geringer. Der geringere Anpressdruck bedingt höhere Übergangswiderstände. Die höheren Übergangswiderstände bei gleichzeitig größerem Kontaktflächenverhältnis resultieren in einem gleichen Flächenwiderstand beider Strömungsstrukturen.

Bei galvanostatischem Betrieb der Zellen mit Kanal-Füßchen-Struktur ist bei geringen Stromdichten von weniger als 0,3 A/cm² auffällig, dass die Zellspannung nach einiger Zeit konstanten Betriebs beginnt abzufallen. Dieses instabile Betriebsverhalten ist durch die Ansammlung von Produktwasser in der Strömungsstruktur bedingt. Das Produktwasser kann bei den geringen Strömungsgeschwindigkeiten der Reaktanden nicht ausgetragen werden und verstopft die Kanäle. Versuche zum Austrag von Wassertropfen (siehe Kapitel 3.7) verdeutlichen, dass Tropfen am Ausgang der Kanäle im Mittelteil erst bei einem Gasvolumenstrom, der einem Luftstöchiometriekoeffizienten von ungefähr 5 bei der Stromdichte von 0,3 A/cm² entspricht, ausgetragen werden können. Bei der Mäanderstruktur können sich dagegen selbst bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten der Medien Wassertropfen nicht in den Kanälen festsetzen. Dies bestätigen auch Aufnahmen mit einem Endoskop, das während des Betriebs in die Mäanderstruktur eingeführt wurde. Die Beobachtungen zeigen, dass sich Wassertropfen nur bis zu einer für die Strömung unkritischen Dicke im Kanal halten können und dann von der Strömung mitgerissen werden.

Bei Zellspannungen unter 500 mV zeigt sich, dass die Zellen mit Kanal-Füßchen-Struktur bei einer geringeren Stromdichte in den diffusionskontrollierten Bereich der Spannungs-Stromdichte-Kennlinie eintreten als die Zellen mit Mäander-Struktur. Der Grund dafür liegt in einer schlechten Medienverteilung innerhalb der Zelle, die dazu führt, dass lokal Gebiete mit Reaktanden unterversorgt sind. Die Visualisierung der kathodenseitigen Strömung erlaubt, diese Gebiete zu lokalisieren. Die Aufnahmen in Bild 4.1 weisen ein Gebiet geringer Strömungsgeschwindigkeit beim Übergang von den Kanälen in die Füßchen-Struktur am Auslass der Zelle auf. Die Bereiche geringer Strömungsgeschwindigkeit indizieren Bereiche schlechter Medienverteilung, die im Brennstoffzellenbetrieb aufgrund einer Reaktandenunterversorgung zu erhöhten Diffusionsüberspannungen führen können. In diesen Gebieten ist darüber hinaus der Austrag von flüssigem Produktwasser erschwert. Die Tatsache, dass die Leistung der Zellen mit

Mäander- und Kanal-Füßchen-Struktur bei niedriger Last nahezu gleich groß ist, lässt allerdings darauf schließen, dass die unterversorgten Gebiete keine gravierenden Diffusionsüberspannungen hervorrufen.

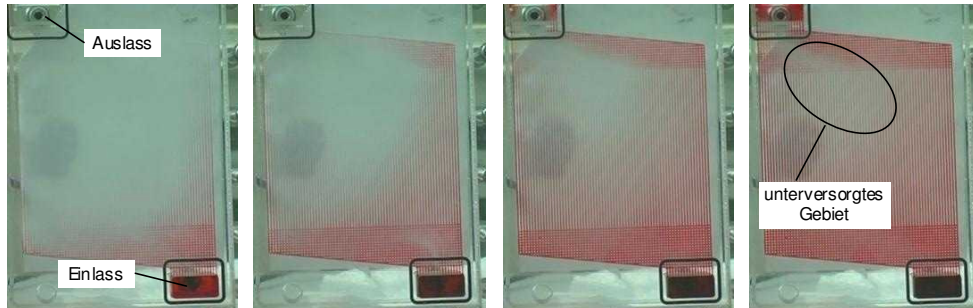


Bild 4.1: Visualisierung der Strömung in der Kanal-Füßchen-Struktur

Bei der Visualisierung der Strömung in der Mäander-Struktur (Bild 4.2) zeigt sich eine sehr homogene Verteilung der Reaktanden. Auffällig ist, dass in den äußeren Kanälen die Strömungsgeschwindigkeit um rund 3 % höher ist als in den mittleren Kanälen. Dies liegt darin begründet, dass die Druckverluste für die in den äußeren Kanälen vorkommenden 180° Strömungsumlenkungen geringer sind als für zwei hintereinander angeordnete 90° Umlenkungen, wie sie bei den mittleren Kanälen vorliegen. Der Einfluss der Fertigungstoleranzen von $\pm 0,03$ mm zwischen den einzelnen Kanälen auf die Strömungsgeschwindigkeit wird mit maximal 5 % abgeschätzt.

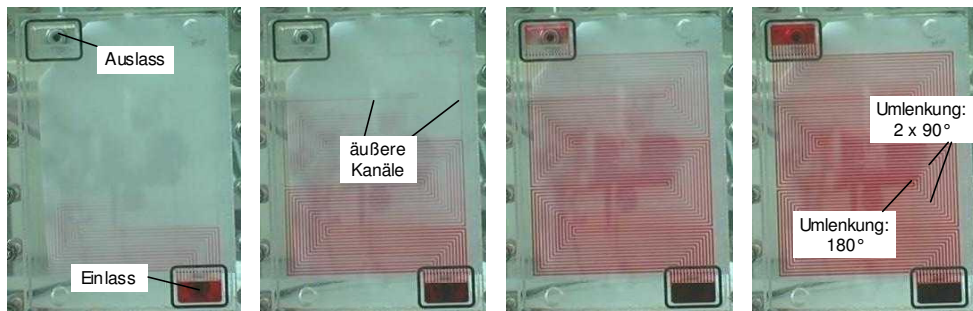


Bild 4.2: Visualisierung der Strömung in der Mäander-Struktur

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die Kanal-Füßchen-Struktur im Vergleich zu der Mäander-Struktur einen geringeren Strömungsdruckverlust aufweist, aber auch einen um 11 % geringeren Flächennutzungsgrad besitzt. Ferner ist bei Zellen mit einer Kanal-Füßchen-Struktur bei geringen Stromdichten keine stabile Betriebsführung möglich. Bei hohen Stromdichten weisen die Zellen größere Diffusionsüberspannungen als Zellen mit Mäanderstruktur auf. Die Mäander-Struktur zeichnet sich durch eine homogene Verteilung der Reaktanden über der aktiven Fläche bei einem ebenfalls geringen Druckverlust aus. Im Hinblick auf einen späteren Massenfertigungsprozess zeigen Bipolarplatten mit Mäander-Struktur weitere Vorteile, da sie im Gegensatz zu solchen mit Kanal-Füßchen-Struktur in einem Spritzgießprozess gefertigt werden können.

Aus diesen Gründen wird für den Einsatz im 5 kW Zellstapel die Mäander-Struktur ausgewählt. Alle im Weiteren beschriebenen Experimente beziehen sich auf Zellen mit Mäander-Strömungsstrukturen.

4.1.2 Vergleich zwischen metallischen und graphitischen Bipolarplatten

Als Bipolarplattenmaterialien stehen verschiedene Werkstoffe zur Auswahl. Im Folgenden wird in Form von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien die Leistungscharakteristik von Einzelzellen mit Bipolarplatten aus Titan und mit Bipolarplatten aus Graphit-Composit-Material verglichen. Aufgrund der hohen mechanischen Stabilität und Gasdichtigkeit der Titanplatten können diese theoretisch dünner als die graphitischen Platten ausgeführt werden. Um gleiche Versuchsrandbedingungen zu gewährleisten, sind bei den vorliegenden Experimenten die Geometrie und die Strömungsstrukturen der metallischen Zelle mit denen der graphitischen Zelle identisch. Zur Vermeidung von hohen Übergangswiderständen durch die Bildung von Passivierungsschichten sind die Titanplatten mit einer 1 µm dicken Goldschicht beschichtet.

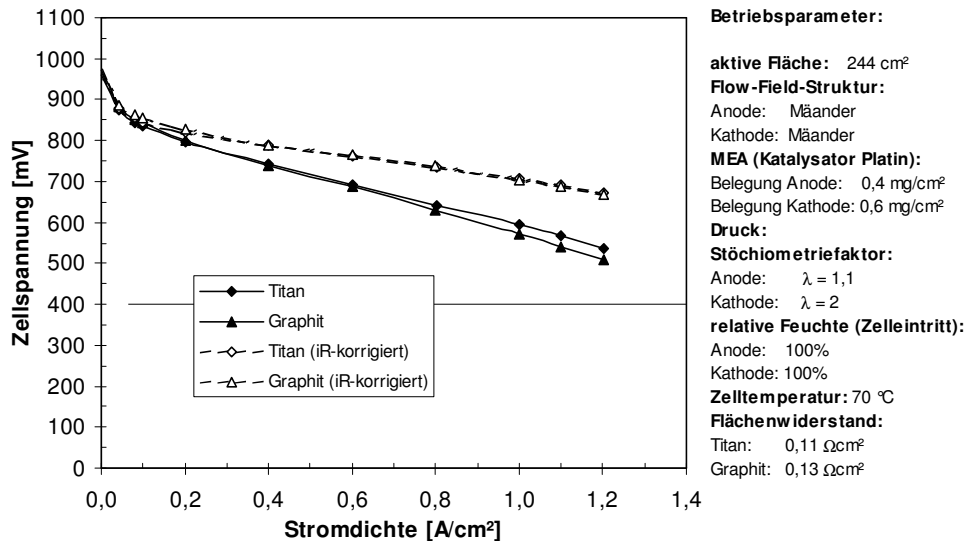


Bild 4.3: Vergleich der U-i-Charakteristiken von Einzelzellen mit unterschiedlichen Bipolarplattenmaterialien

Bild 4.3 zeigt die U-i-Charakteristiken beider Bipolarplattenmaterialien. Der maximale Laststrom ist auf 300 A, einer Stromdichte von 1,2 A/cm² entsprechend, beschränkt. Beide Kennlinien erreichen bei dieser Stromdichte noch nicht den diffusionskontrollierten Arbeitsbereich. Die Kennlinie der Titan-Zelle weist über den gesamten Messbereich eine geringfügig höhere Leistung auf. Beispielsweise beträgt bei einer Stromdichte von 1 A/cm² die Zellspannung der Titanzelle 593 mV. Bei gleicher Stromdichte liegt die Zellspannung der Graphit-Zelle nur um circa 20 mV darunter. Der Flächenwiderstand der Zelle mit graphitischen Bipolarplatten liegt mit 0,13 Ωcm²

um circa 15 % über dem der Titan-Zelle. Der Unterschied zwischen den beiden Kennlinien ist ausschließlich durch die unterschiedlichen Ohmschen Widerstände bedingt. Dies verdeutlichen die beiden ebenfalls in Bild 4.3 gezeigten iR-korrigierten Kennlinien, die im Rahmen der Messgenauigkeit kongruent sind. iR-korrigiert bedeutet, dass die Ohmschen Widerstände der U-i-Kennlinie rechnerisch zu Null gesetzt sind.

Aufgrund der nur geringfügig höheren Leistung der Zelle mit Bipolarplatten aus vergoldetem Titan scheinen die hohen Materialkosten und die bei der Vergoldung entstehenden hohen Fertigungskosten nicht gerechtfertigt. Des Weiteren liegen keine Kenntnisse über die chemische Langzeitbeständigkeit dieser Zelle vor. Aus diesen Gründen werden für den Einsatz im 5 kW Zellstapel Bipolarplatten auf Basis von Graphit ausgewählt. Alle im Weiteren beschriebenen Experimente beziehen sich auf Zellen mit Bipolarplatten aus Graphit-Composit-Material.

4.2 Variation von Betriebsparametern

Im Folgenden wird der Einfluss einer Variation der Betriebsparameter auf die Leistung der Einzelzellen und Short-Stacks untersucht. Die Untersuchungen dienen der Validierung der Modellannahmen und der Berechnung der Modellparameter in Kapitel 2 sowie der Identifikation geeigneter Betriebsparameter. Als Referenzbetriebsbedingung wird der Betrieb der Zelle bei

- Zelltemperatur: $T_z = 70 \text{ °C}$
- Druck am Zelleintritt: $= 2 \text{ bar}$
- anoden- und kathodenseitiger Stöchiometriekoeffizient: $H_2 = 1,1$, $Luft = 2$
- relative Feuchte der Reaktandengase am Zelleintritt: $= 100 \text{ %}$

definiert.

4.2.1 Durchfluss

In Brennstoffzellen sind hohe Umsatzraten sowohl für Brennstoff als auch Oxidans angestrebt, um die Verlustleistung und Baugröße der Verdichter zu minimieren. Liegt der Arbeitspunkt der Brennstoffzelle aufgrund eines hohen Umsatzes in dem diffusionskontrollierten Bereich der Spannungs-Stromdichte-Charakteristik, resultiert dies in Leistungseinbußen. Ist der kathodenseitige Umsatz entsprechend einem hohen Durchfluss gering, führt dies zu einer Leistungssteigerung aufgrund der höheren mittleren Sauerstoffkonzentration in der Zelle. Ein hoher Durchfluss erfordert ein aufwendiges Wassermanagement, um einer Austrocknung der MEA besonders am Zelleintritt vorzubeugen. Dies verdeutlicht, dass eine Gesamtsystembetrachtung erforderlich ist, um den optimalen Stoffumsatz für eine bestimmte Brennstoffzellenanwendung zu ermitteln.

Die experimentellen Ergebnisse der Variation des kathodenseitigen Durchflusses sind bereits in Bild 2.13, Kapitel 2.2.2, präsentiert worden. Die Betriebsbedingungen entsprechen den Referenzbedingungen und sind bis auf den Luftstöchiometriekoeffizienten konstant. Der Luftstöchio-

metriekoeffizient variiert in dem Bereich $\lambda_{\text{eff}} = 1,5 - 4$. Über einen weiten Lastbereich ist bei gleicher Stromdichte der Betrag der Abweichung der Zellspannung von dem Wert unter Referenzdurchfluss für $\lambda_{\text{eff}} = 1,5$ und $\lambda_{\text{eff}} = 4$ ungefähr gleich groß. Bei einer Stromdichte von 1 A/cm^2 liegt die Spannung der Kennlinie $\lambda_{\text{eff}} = 1,5$ um 27 mV unter und die der Kennlinie $\lambda_{\text{eff}} = 4$ um 26 mV über der Spannung von 532 mV des Referenzdurchflusses. Erst bei Stromdichten über 1 A/cm^2 fällt die Spannung der Kennlinie $\lambda_{\text{eff}} = 1,5$ stärker ab, da dort die Kennlinie in den diffusionskontrollierten Bereich eintritt. Der im Vergleich zu den Messungen aus Bild 4.3 um circa $0,04 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ höhere Flächenwiderstand ist auf die Verwendung unterschiedlicher Graphit-Bipolarplattenwerkstoffe zurückzuführen. Unter gleichen Betriebsbedingungen sind die iR -korrigierten Kennlinien aus Bild 2.13 und Bild 4.3 deckungsgleich.

Die bei hohen Umsätzen vorherrschende geringere Strömungsgeschwindigkeit der Reaktanden erschwert prinzipiell den Austrag von flüssigem Produktwasser. Jedoch konnte selbst bei dem geringsten Stöchiometriekoeffizienten $\lambda_{\text{eff}} = 1,5$ ein durch Wasseransammlungen in der Strömungsstruktur verursachtes instabiles Betriebsverhalten nicht beobachtet werden.

Anodenseitig ist ein sogenannter Dead-End-Betrieb der Brennstoffzelle, das heißt ein Betrieb bei vollständigem Wasserstoffumsatz, denkbar. Diese Art der Betriebsführung erfordert einen Spülmechanismus, der in zeitlichen Abständen Gasverunreinigungen und Wasseransammlungen aus der Zelle abführt. Bei der vorliegenden Größe der Zelle würde diese Betriebsführung zu einem stark instationären Betriebsverhalten führen. Daher wird auf der Anodenseite ein Wasserstoffumsatz von 91% gewählt. Dies entspricht einem Stöchiometriekoeffizienten von $\lambda_{\text{eff}} = 1,1$. Eine weitere Steigerung des anodenseitigen Durchflusses führt nur zu einer marginalen Leistungssteigerung.

4.2.2 Druck

Ebenso wie die Wahl des optimierten Durchflusses ist die Frage nach dem Betriebsdruck nur durch eine Analyse des gesamten Brennstoffzellensystems zu klären. In einer unter Druck betriebenen Brennstoffzelle erhöht sich aufgrund der größeren Sauerstoffkonzentration die Zellleistung. Dagegen steigen auch die für die Kompression aufzubringende Leistung, die Kosten und die Bauteilgröße der benötigten Peripherieaggregate. Darüber hinaus können andere Faktoren die Wahl des Betriebsdrucks beeinflussen. So ist der Druck beispielsweise eng mit dem Wassermanagement des Systems verknüpft. Bezüglich der Reaktandenbefeuchtung erweisen sich höhere Drücke als vorteilhaft, da weniger Wasser benötigt wird, um die gleiche relative Feuchte der Gase zu erreichen.

In Bild 2.12, Kapitel 2.2.2, sind bereits die bei Variation des Betriebsdruckes resultierenden Spannungs-Stromdichte-Kennlinien vorgestellt worden. Unter Beibehaltung der anderen Referenzbedingungen variiert der Betriebsdruck in dem Bereich von $1,5$ bis $2,5 \text{ bar}$. Zum Schutz der $35 \text{ } \mu\text{m}$ dünnen Membran vor mechanischer Überbeanspruchung herrscht auf der Anoden- und Kathodenseite jeweils der gleiche Betriebsdruck. Aufgrund der Druckabhängigkeit der Konzentrationsüberspannungen sind die Spannungs-Stromdichte-Kennlinien nahezu über den gesamten Lastbereich vertikal zueinander verschoben. Bezogen auf den Referenzdruck von

2 bar bewirkt eine Drucksteigerung um 0,5 bar eine Steigerung der Zellspannung um circa 8 mV. Eine Verringerung des Referenzbetriebsdrucks um 0,5 bar führt zu einer Senkung der Zellspannung um 12 mV. Ab einer Stromdichte von rund 1,2 A/cm² beginnt für die Kennlinie des Betriebsdrucks von 1,5 bar der Übergang vom Ohmschen in den diffusionskontrollierten Teil der Kennlinie.

Trotz der geringeren Strömungsgeschwindigkeit in Kombination mit einem geringeren Druckunterschied zwischen Ein- und Austritt der Zelle konnte bei dem größten untersuchten Betriebsdruck von 2,5 bar kein instabiles Betriebsverhalten festgestellt werden.

4.2.3 Temperatur

Die nach Gleichung 1.2 definierte reversible Zellspannung sinkt aufgrund des entropischen Anteils mit steigender Betriebstemperatur. Dieser Effekt wird durch eine Verringerung der Aktivierungsüberspannungen, die bedingt ist durch die Steigerung der Katalysatoraktivität und Austauschstromdichte, überkompensiert, so dass die Zellspannung absolut steigt. Weitere Vorteile einer gesteigerten Betriebstemperatur liegen in einer aufgrund des höheren Temperaturniveaus verbesserten Wärmeabfuhr der Reaktionswärme an die Umgebung. Außerdem steigt die CO-Toleranz des Platin-Katalysators [82]. Dies ist von besonderem Interesse, wenn die Brennstoffzelle mit Synthesegas betrieben wird. Da die Leitfähigkeit der verwendeten Membran stark von ihrem Wassergehalt abhängt, muss einer Austrocknung der Membran durch Befeuchtung der Reaktandengase vorgebeugt werden. Hier wirkt sich nachteilig aus, dass die Wasseraufnahme der Reaktandengase überproportional mit steigender Temperatur ansteigt. Dies erschwert das Wassermanagement im Brennstoffzellensystem.

Die in einem Bereich zwischen 60 °C und 80 °C ermittelte Temperaturabhängigkeit der Spannungs-Stromdichte-Charakteristik der betrachteten Einzelzelle ist in Bild 4.4 dargestellt. Bei allen untersuchten Betriebstemperaturen werden die Reaktandengase in gesättigtem Zustand der Zelle zugeführt. Die Abhängigkeit der Zelleistung von der Temperatur erweist sich als gering. Bei einer Stromdichte von 1 A/cm² unterscheiden sich die Spannungen der einzelnen Kennlinien um weniger als 10 mV. Die flächenspezifische Leistung liegt in diesem Punkt bei rund 0,55 W/cm². Die maximale flächenspezifische Leistung von circa 0,57 W/cm² erreichen die Kennlinien bei einer Stromdichte von ungefähr 1,2 A/cm². Die geringe Temperaturabhängigkeit der Leistung lässt sich dadurch erklären, dass die mit steigender Temperatur verbesserte Reaktionskinetik durch den mit steigendem Sättigungsdampfdruck abnehmenden Sauerstoffpartialdruck kompensiert wird.

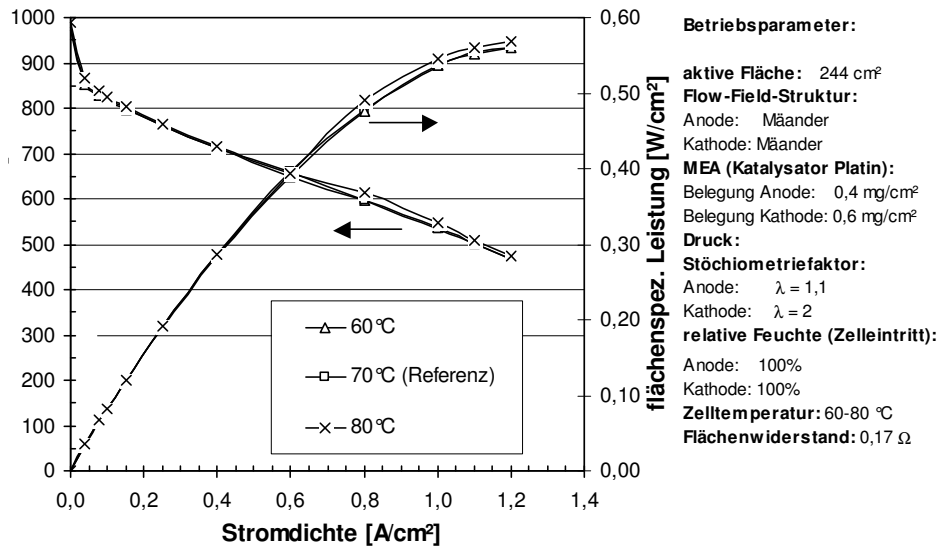


Bild 4.4: Temperaturabhängigkeit der Leistungscharakteristik

In Bild 4.5 ist für verschiedene in der Literatur beschriebene PEFC-Stacks die Betriebstemperatur über der elektrischen Leistung aufgetragen. Aufgeführt sind Brennstoffzellen mit einer elektrischen Leistung von wenigen Watt bis zu knapp 100 kW. Die Temperaturspanne erstreckt sich über einen Bereich von 50 – 90 °C. Tendenziell zeigt sich, dass die gewählte Betriebstemperatur mit zunehmender Leistung der Zellstapel steigt. Ab einer elektrischen Leistung von über 30 kW arbeiten die aufgeführten Zellstapel bei einer Temperatur von 80 °C. Diesen Trend verdeutlicht das grau unterlegte Gebiet, das sich keilförmig der Betriebstemperatur von 80 °C annähert. Zellstapel der 5 kW Klasse erstrecken sich über ein Temperaturfenster von 55 – 80 °C mit einem mittleren Wert von ungefähr 70 °C.

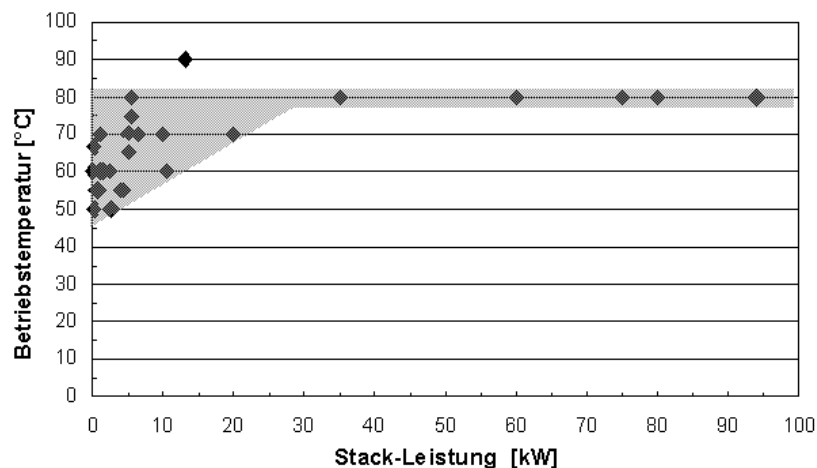


Bild 4.5: Betriebstemperatur von PEFC-Stacks als Funktion der Stackleistung

4.2.4 Reaktandenbefeuchtung

Die Messungen zur Untersuchung des Einflusses der Reaktandenbefeuchtung auf die Brennstoffzellenleistung erfolgen an einem aus drei Zellen bestehenden Short-Stack. In Bild 4.6 ist für unterschiedliche Befeuchtungsgrade die über alle drei Zellen gemittelte flächenspezifische Leistung für ausgewählte Stromdichten aufgetragen. Die flächenspezifischen Leistungen der einzelnen Zellen weichen untereinander um weniger als ein Prozent ab. Dieses homogene Verhalten der Zellen deutet auf eine gute Strömungsverteilung in dem Short-Stack hin. Unter konstanten Referenzbedingungen wird die relative Feuchte der in die Zelle eintretenden Gase auf der Anode von $H_2 = 15 - 100\%$ ($T_{\text{Tau}, H_2} = 33 - 70\text{ °C}$) und auf der Kathode von $L_{\text{uft}} = 60 - 100\%$ ($T_{\text{Tau}, \text{Luft}} = 33 - 70\text{ °C}$) variiert.

Bei einer Stromdichte von $0,4\text{ A/cm}^2$ hat die Befeuchtung nur einen marginalen Einfluss auf die flächenspezifische Leistung. Der maximale Unterschied zwischen den untersuchten Befeuchtungsvariationen beträgt 6 mW/cm^2 . Die größten Leistungseinbußen stellen sich unter der maximalen untersuchten Stromdichte von 1 A/cm^2 ein. Eine auf 15% gesenkte relative Feuchte des Wasserstoff führt im Vergleich zu der Referenzbefeuchtung von $H_2 = 100\%$ zu einer um 34 mW/cm^2 , entsprechend 6% , verringerten flächenspezifischen Leistung. Außerdem zeigt sich, dass eine Verringerung der relativen Feuchte des Wasserstoff auf 50% nahezu die gleiche flächenspezifische Leistung wie eine Verringerung der Luftfeuchte auf 80% aufweist. Abschaltmessungen zeigen, dass der Widerstand mit abnehmender Reaktandenbefeuchtung aufgrund der verringerten ionischen Leitfähigkeit der Membran ansteigt. Der Flächenwiderstand unterscheidet sich im Fall der maximalen zur minimalen Befeuchtung um ungefähr $0,03\text{ }\Omega\text{cm}^2$. Demnach können die Unterschiede in der Leistung direkt auf die erhöhten Ohmschen Überspannungen zurückgeführt werden.

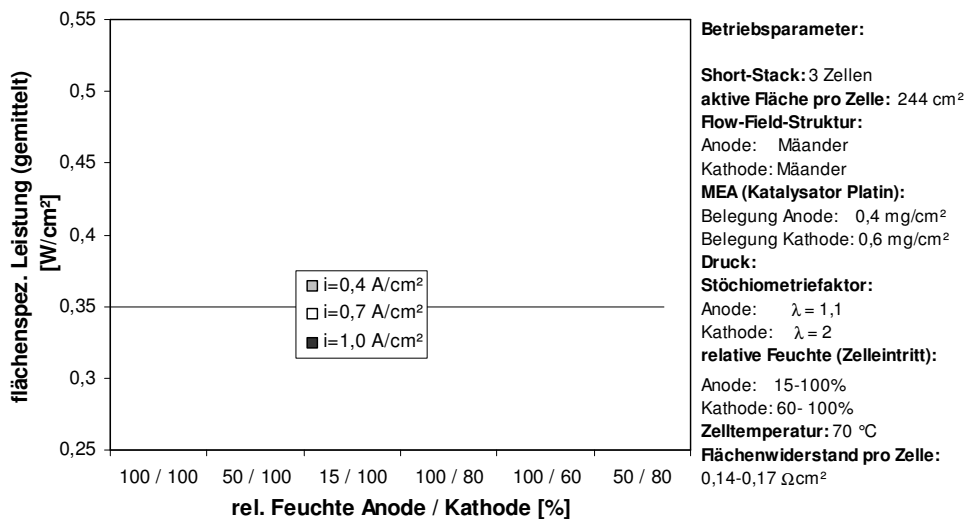


Bild 4.6: Abhängigkeit der flächenspezifischen Leistung von der Reaktandenbefeuchtung

Sind die Reaktandengase am Zelleintritt nicht vollständig gesättigt, kann eine Strömungsführung der Fluide im Gegenstrombetrieb ein verbessertes Wassermanagement in der Zelle bedingen. Aufgrund unterschiedlicher Wasserpartialdrücke entlang der Strömungsstrukturen beider Elektroden entstehen lokale Wasserkonzentrationsgradienten zwischen Anode und Kathode. Die Konzentrationsgradienten erlauben neben dem osmotischen Wassertransport auch Diffusion von Wasser durch die Membran. Durch einen Nettowassertransfer durch die Membran können sich die Gase gegenseitig intern befeuchten.

Bei der vorliegenden Mäanderströmungsstruktur erweist sich eine Gegenstrom-Betriebsführung als nicht vorteilhaft. Zum einen ist die Leistungssteigerung im Vergleich zum Gleichstrom-Betrieb vernachlässigbar, zum anderen gestaltet sich der Austrag von flüssigem Wasser entgegen der Schwerkraft bei dem von unten nach oben strömenden Gas als problematisch. Dies äußert sich in einem instabilen Betriebsverhalten der Zelle. Aus diesen Gründen wird bei allen Messungen der Gleichstrom-Betrieb mit von oben nach unten strömenden Fluiden gewählt.

Die Experimente zeigen, dass der Einfluss der Reaktandenbefeuchtung auf die Gesamtleistung der Zellen in den untersuchten Bereichen als gering einzustufen ist. Ungeklärt bleibt, ob die bei geringer Reaktandenbefeuchtung verringerte Zelleistung aus einer auf das Gebiet des Reaktandeneintritts beschränkten Verringerung der Membranleitfähigkeit resultiert und dort zu einer beschleunigten Alterung und Schädigung der Membran führt. Ob die Auswirkungen einer verringerten Reaktandenbefeuchtung in der Zelle lokal beschränkt sind, wird im folgenden Kapitel mit Hilfe der Messung der Stromdichteverteilung in den Zellen untersucht.

4.3 Stromdichtemessung

Die in diesem Kapitel vorgestellten Stromdichtemessungen erfolgen ausschließlich an Einzelzellen. Die Messungen dienen der Ermittlung der Stromdichteverteilung in stationären Betriebspunkten. Einfahrvorgänge oder Lastwechseländerungen werden nicht zeitlich aufgelöst.

4.3.1 Stromdichtemessung mit Hilfe des passiven Widerstandsnetzwerks

Die Messapparatur ist in der Einzelzelle zwischen Endplatte und kathodenseitigem Bipolarplattenelement angeordnet. Die anoden- und kathodenseitigen Bipolarplattenelemente sind jeweils wassergekühlt. Die Bestimmung der 20 Segmentwiderstände $R_{Seg,i}$ erfolgt entsprechend Kapitel 3.5.1 unter der Annahme, dass bei einem definierten Betriebszustand die Stromdichteverteilung über der aktiven Fläche homogen ist. Die diesem Zustand zugrunde liegenden Betriebsbedingungen sehen einen Betrieb der Zelle mit reinem und vollständig befeuchteten Sauerstoff auf der Kathodenseite bei einer Betriebstemperatur von 70 °C und einem Druck von 2 bar vor. Um eine nahezu konstante Sauerstoffkonzentration in der gesamten Zelle sicherzustellen beträgt der Durchfluss $\dot{O}_2 = 9$. Die Zelle ist unter diesen Betriebsbedingungen mit einem Gesamtstrom von 10 A belastet.

Bild 4.7 zeigt das Ergebnis einer Absolutstromdichtemessung an der Einzelzelle unter den in Kapitel 4.2 beschriebenen Referenzbedingungen. Die Summe der einzelnen Segmentströme liegt um weniger als 2 % über dem gemessenen Gesamtstrom von 196 A. Dies verdeutlicht, dass die bei 10 A ermittelten Segmentwiderstände einen geringen Linearitätsfehler aufweisen. Tendenziell zeigt sich, dass die Stromdichte entlang der kathodenseitigen Strömungsstruktur vom Eintritt zum Austritt aufgrund der sinkenden Sauerstoffkonzentration abfällt. Ein weiterer Grund für die entlang der Kanäle abnehmende Stromdichte ist der steigende Anteil flüssigen Wassers, der die Diffusion der Reaktanden zu den Katalysatorplätzen erschwert. Diese Einflüsse auf die Stromdichteverteilung sind geringfügig von der entlang der anodenseitigen Strömungsstruktur abnehmenden Wasserstoffkonzentration überlagert. Bedingt durch die lokale Wasserstoffkonzentration liegt daher die maximale Stromdichte von $1,04 \text{ A/cm}^2$ am Wasserstoffeintritt, die minimale Stromdichte von $0,7 \text{ A/cm}^2$ am Wasserstoffaustritt vor. Die maximalen prozentualen Abweichungen von der mittleren Stromdichte von $0,8 \text{ A/cm}^2$ betragen demnach +30 % und -13 %.

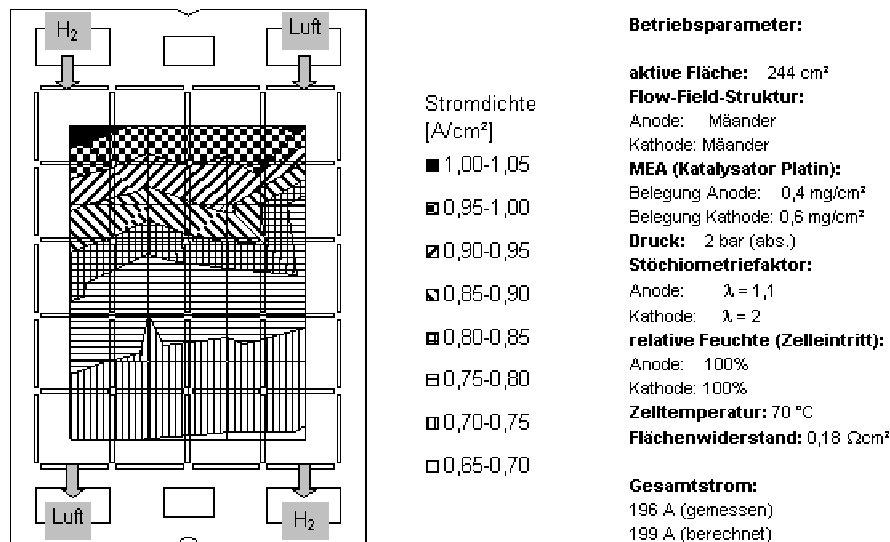


Bild 4.7: Stromdichteverteilung unter Referenzbedingungen

In Bild 4.8 ist die Stromdichte als Funktion der Segmentposition entlang der kathodenseitigen Strömungskanäle für unterschiedliche mittlere Stromdichten dargestellt. Aufgrund der abnehmenden Sauerstoffkonzentration entlang der Strömungsstruktur zeigt sich am Lufteintritt eine höhere Stromdichte als am Luftaustritt. Aus den in Kapitel 2.1 aufgeführten Gleichungen kann abgeleitet werden, dass die Stromdichte unter idealisierten Bedingungen exponentiell über die Kanallänge abfällt [60]. Dieser Trend ist in Bild 4.8 durch exponentielle Regressionsfunktionen verdeutlicht. Bei den einzelnen Messungen steigt die Differenz zwischen der maximalen und minimalen lokalen Stromdichte mit steigender mittlerer Stromdichte an. Während bei einer mittleren Stromdichte von $0,1 \text{ A/cm}^2$ die Differenz zwischen maximaler und minimaler Stromdichte weniger als $0,02 \text{ A/cm}^2$ beträgt, steigt die Differenz auf rund $0,75 \text{ A/cm}^2$ im Fall einer

mittleren Stromdichte von $1,2 \text{ A/cm}^2$ an. Wiederum zeigt sich bei den Messungen ein Anstieg der Stromdichte in dem Gebiet des Wasserstoffeintritts.

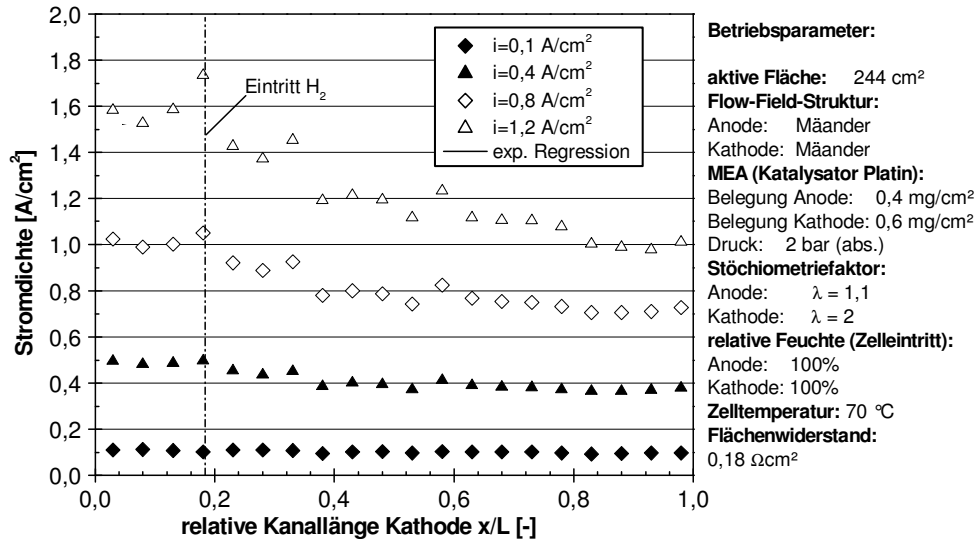


Bild 4.8: Stromdichte als Funktion der Segmentposition entlang der kathodenseitigen Strömungskanäle

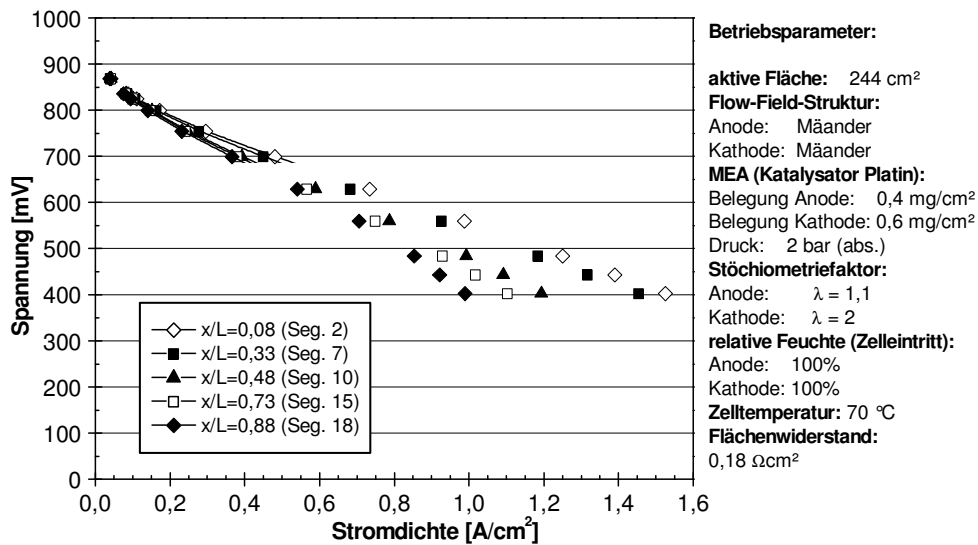


Bild 4.9: Spannungs-Stromdichte-Kennlinien einzelner Segmente

In Bild 4.9 sind für ausgewählte Segmente die Spannungs-Stromdichte-Kennlinien dargestellt. Die Segmentbezeichnung entspricht der in Bild 3.7 eingeführten Nummerierung. Der Verlauf der Leistungscharakteristik der gesamten Zelle ist unter den vorliegenden Betriebsbedingungen zufällig deckungsgleich mit der Kennlinie von Segment 10. Über den gesamten Lastbereich zeigt sich, dass aus oben genannten Gründen bei gleicher Zellspannung die Stromdichte der

Segmente entlang der kathodenseitigen Strömungskanäle absinkt. Die Segmente 2 und 7, die im ersten Drittel der Kanallänge liegen und somit mit einer relativ hohen Sauerstoffkonzentration beaufschlagt sind, arbeiten im gesamten Lastbereich in dem durch Ohmsche Verluste charakterisierten Bereich der Kennlinie. Bei dem nahe des Luftaustritts positionierten Segment 18 vollzieht dagegen die Spannungs-Stromdichte-Kennlinie bereits ab einer Zellspannung von ungefähr 550 mV den Übergang in den diffusionskontrollierten Bereich.

Da selbst das Segment mit der schlechtesten Leistung im Betriebspunkt maximaler Last ausreichend weit von der lokalen Grenzstromdichte entfernt ist, ist der Leistungsverlust durch die Diffusionsüberspannungen gering. Aus diesem Grund scheinen die Referenzbetriebsbedingungen für den Betrieb der Zelle geeignet.

Bild 4.10 zeigt den Einfluss des Luftstöchiometrie-Koeffizienten auf die Verläufe ausgewählter lokaler Spannungs-Stromdichte-Kennlinien. Die Verläufe der Kennlinien sind jeweils am Luftaustritt und -austritt sowie auf halber Strecke dazwischen für einen Durchfluss von $\lambda_{\text{Luft}}=2$ und $\lambda_{\text{Luft}}=1,5$ gegenübergestellt.

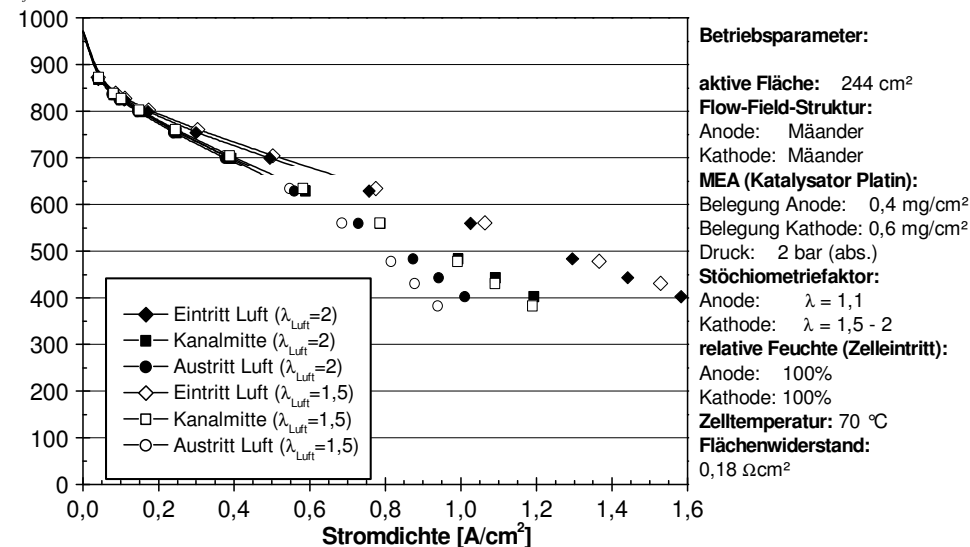


Bild 4.10: Einfluss des Luftstöchiometriefaktors auf lokale Spannungs-Stromdichte-Kennlinien

Im Luftaustritts- und Mittelbereich sind die Verläufe der lokalen Kennlinien für beide Durchflüsse ähnlich. Aufgrund der geringeren Sauerstoffkonzentration und den daraus resultierenden höheren Diffusionsüberspannungen am Luftaustritt tritt die Kennlinie für $\lambda_{\text{Luft}}=1,5$ bei einer geringeren Stromdichte in den diffusionskontrollierten Bereich ein. Wie die Kennlinienverläufe in Bild 4.10 verdeutlichen, ist die Stromdichte für die Messung mit geringerem Durchfluss am Luftaustritt geringfügig größer. Dies ist dadurch bedingt, dass bei für die unterschiedlichen Stöchiometrie-Koeffizienten gleichem Gesamtstrom und somit gleicher mittlerer Stromdichte die verringerte Stromdichte im Bereich des Luftaustritts kompensiert werden muss. Der Effekt, dass die

elektrochemische Reaktion bevorzugt im Lufteintrittsbereich der Zelle stattfindet, verstärkt sich mit sinkendem Luftstöchiometriekoeffizienten zunehmend.

Um zu vermeiden, dass besonders in Zellstapeln, die eine ungleichmäßige Verteilung der Reaktanden auf die Einzelzellen aufweisen, Bereiche in den unterversorgten Zellen im diffusionskontrollierten Bereich arbeiten, wird ein Luftstöchiometriekoeffizient von $\lambda_{\text{Luft}} = 2$ empfohlen.

Der Einfluss der Wasserstoffbefeuchtung auf die Verläufe lokaler Spannungs-Stromdichte-Kennlinien ist in Bild 4.11 dargestellt. Verglichen werden die Verläufe der anodenseitigen Referenzbefeuchtung von $\varphi_{\text{H}_2} = 100\%$ und einer auf $\varphi_{\text{H}_2} = 50\%$ verringerten Befeuchtung. Am Wasserstoffeintritt bewirkt die verringerte Befeuchtung eine Reduktion der Stromdichte um 5 % auf $1,77 \text{ A/cm}^2$. Die Spannungsdifferenz zwischen den beiden Messungen in diesem Bereich lässt darauf schließen, dass dort der lokale Flächenwiderstand bei verringerter Befeuchtung um circa $0,03 \Omega \text{cm}^2$ über dem mit vollständiger Befeuchtung liegt. Die Auswirkungen der verringerten Befeuchtung auf die Stromdichte reichen entlang der anodenseitigen Strömungsstruktur bis hin zu dem Bereich des Lufteintritts. Dass es sich um lokal beschränkte Effekte handelt, verdeutlichen die Kennlinien im weiteren Verlauf des Kathodenkanals. Bereits ab der Mitte der Kanallänge zeigen sich nur noch vernachlässigbare Unterschiede in der Stromdichte. Das bis zu dieser Stelle anfallende Produktwasser bewirkt einen Nettowassertransfer durch die Membran, der den Wasserkonzentrationsgradienten aufgrund der verringerten Befeuchtung ausgleicht.

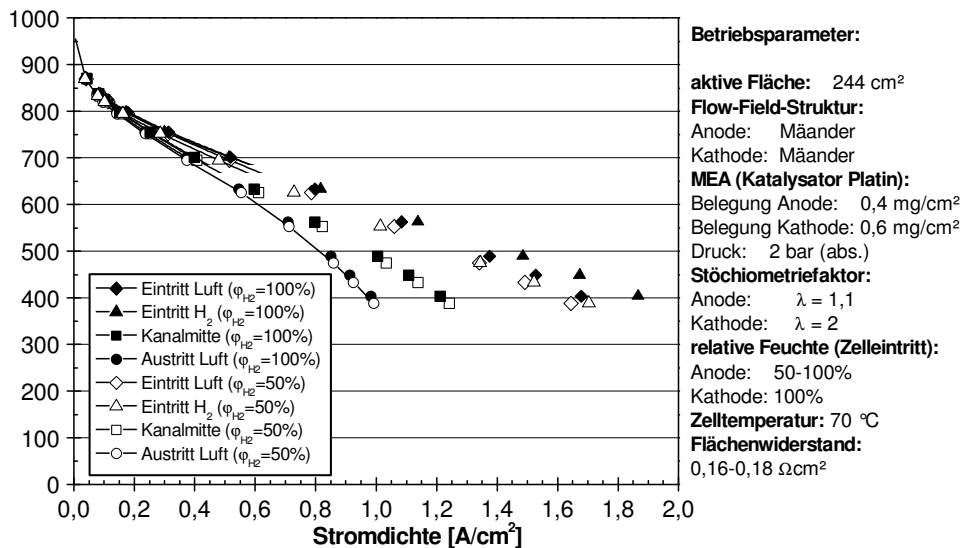


Bild 4.11: Einfluss der Wasserstoffbefeuchtung auf lokale Spannungs-Stromdichte-Kennlinien

Die bereits für die verringerte Wasserstoffbefeuchtung beschriebenen Beobachtungen und angeführten Erklärungen lassen sich direkt auf eine verringerte kathodenseitige Befeuchtung der Luft übertragen. Die Ergebnisse der Stromdichtemessungen zeigt Bild 4.12. Verglichen werden

die Verläufe der Spannungs-Stromdichte-Kennlinien der kathodenseitigen Referenzbefeuchtung von $\varphi_{Luft}=100\%$ und einer auf $\varphi_{Luft}=50\%$ verringerten Befeuchtung.

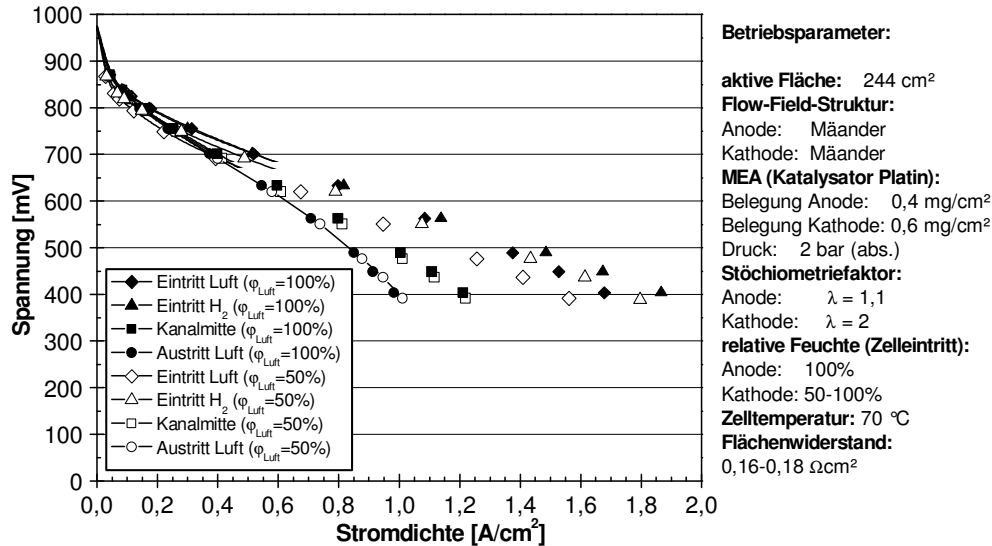


Bild 4.12: Einfluss der Luftbefeuchtung auf lokale Spannungs-Stromdichte-Kennlinien

Beide untersuchten Fälle einer verringerten Reaktandenbefeuchtung weisen einen deutlich erhöhten lokalen Flächenwiderstand im Bereich des entsprechenden Reaktandeneintritts auf. Dies kann zu einer beschleunigten Alterung sowie einer Zerstörung der Membran-Elektroden-Einheit durch lokale Temperaturspitzen führen. Um einer Zellschädigung vorzubeugen, wird daher für den Betrieb des 5 kW Zellstapel eine Befeuchtung von H_2 80 % und $Luft$ 80 % empfohlen.

4.3.2 Magnetotomographie

Die im Folgenden beschriebenen Ergebnisse entstanden in Zusammenarbeit mit der Firma Tomoscience und dem Institut für Numerische Angewandte Mathematik der Universität Göttingen. Bei den vorgestellten Ergebnissen handelt es sich um die erste vollständig dokumentierte Visualisierung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen unter Verwendung der Magnetotomographiemethode. Die Ergebnisse beschränken sich auf Differenzrekonstruktionen von Messungen an Einzelzellen.

Die Messungen erfolgen unter Referenzbedingungen bei einem Gesamtstrom von 73,3 A. Dieser durch den limitierten Sensormessbereich beschränkte Strom entspricht einer mittleren Stromdichte von 0,3 A/cm². Bei den vorliegenden Messungen dauert die Messwertaufnahme der magnetischen Flussdichte rund 15 Minuten. Die Berechnung zur Rekonstruktion der Stromdichteverteilung benötigt ungefähr 1 Minute auf einem 1 GHz Computer mit Intel® Pentium® 4 Prozessor. Die Diskretisierung der gesamten Brennstoffzelle inklusive Endplatten sieht ein

5x6x3 Gitter vor. Dementsprechend ist die Brennstoffzelle durch 90 Volumenelemente abgebildet. Die Nebenbedingung der Divergenzfreiheit in den Volumenelementen ist bei der Rekonstruktion nicht berücksichtigt. Bei der Rekonstruktion werden die Stromdichteänderungen in allen drei Raumrichtungen für die einzelnen Volumenelemente berechnet. Die Darstellung und Diskussion der Ergebnisse beschränkt sich auf die für technische Anwendungsfälle maßgebliche Stromdichtekomponente, die orthogonal zu der Membranebene verläuft. Beim derzeitigen Entwicklungsstand der Magnetotomographie für Brennstoffzellen ist eine Quantifizierung der berechneten Stromdichteänderungen noch nicht möglich. Aus diesem Grund sind die Stromdichteänderungen nur qualitativ in Form unterschiedlicher Farbtöne ausgewiesen. Bei Differenzrekonstruktionen indiziert die Farbe Blau ein Gebiet negativer Stromdichteänderung, die Farbe Rot ein Gebiet positiver Stromdichteänderung. Zur Bewertung der mittels der Magnetotomographie gewonnenen Ergebnisse sind diese den Ergebnissen des in die Messzelle integrierten passiven Widerstandsnetzwerks gegenübergestellt.

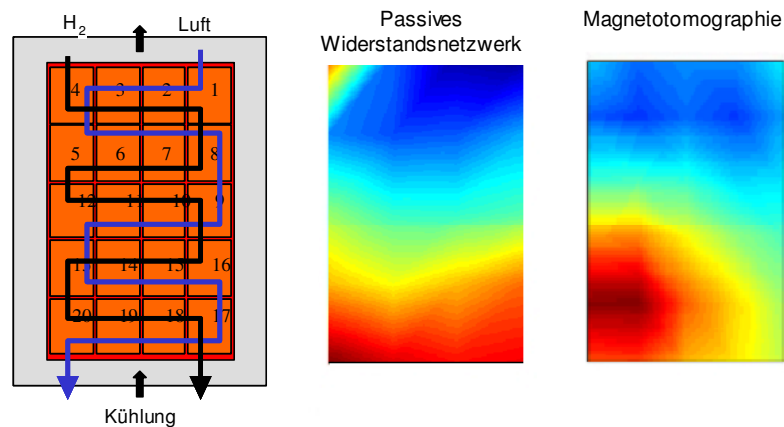


Bild 4.13: Rekonstruktion der Stromdichteänderung unter Variation der Luftstöchiometrie [80]

In Bild 4.13 ist die Änderung der Stromdichte bei Variation des Luftstöchiometriekoeffizienten gezeigt. Die Messung der magnetischen Flussdichte erfolgt in einem ersten Fall bei kathoden-seitigem Stöchiometriekoeffizienten von $\lambda_{Luft}=4$, in einem zweiten Fall bei $\lambda_{Luft}=2$. Gemäß Gleichung 3.12 wird die Differenz der magnetischen Flussdichte beider Messungen zur Rekonstruktion der Stromdichteverteilung verwendet. Die Differenz ergibt sich, indem die Flussdichtedaten der Messung unter Referenzbedingungen von denen der Messung unter erhöhtem Stöchiometriekoeffizienten subtrahiert werden.

Bezüglich der in Bild 4.13 dargestellten Stromdichteänderungen zeigen beide Messmethoden einen ähnlichen Trend. Deutlich zu erkennen ist, dass eine Erhöhung des Stöchiometriekoeffizienten eine Reduktion der Diffusionsüberspannungen bevorzugt im Bereich des Luftaustritts bewirkt (vergleiche auch Bild 4.10). Aufgrund des konstanten Gesamtstroms bei den beiden Messungen mit unterschiedlichem Durchfluss muss bei Differenzrekonstruktionen ein Gebiet erhöhter Stromdichte durch ein Gebiet verringerter Stromdichte kompensiert werden. Dieses Gebiet verringerter Stromdichte liegt erwartungsgemäß in der oberen Hälfte der Zelle. Die mit

Hilfe der Ergebnisse des passiven Widerstandsnetzwerks skalierte Farbskala eröffnet, dass die vorliegenden Farbunterschiede der rot und blau gefärbten Bereiche einer Stromdichteänderung von maximal $\pm 10 \text{ mA/cm}^2$ entsprechen.

In Bild 4.14 ist die Stromdichteänderung bei Verringerung der anodenseitigen Befeuchtung von $H_2 = 100\%$ auf eine Befeuchtung von $H_2 = 15\%$ dargestellt. Wiederum zeigen beide Messmethoden tendenziell eine ähnliche Verteilung der Stromdichteänderungen. Entsprechend den Ergebnissen aus Bild 4.11 bewirkt eine Verringerung der Wasserstoffbefeuchtung einen lokal im Bereich des Wasserstoffeintritts erhöhten Membranwiderstand. Die dadurch bedingte Verringerung der Stromdichte ist deutlich als blau gefärbtes Gebiet zu erkennen. Da die integrale Stromdichteänderung über die gesamte Zelle gleich null ist, zeigt sich in den vom Wasserstoffeintritt entfernten Gebieten eine erhöhte Stromdichte. Die mit Hilfe des passiven Widerstandsnetzwerks ermittelte Quantifizierung der Farbunterschiede zeigt, dass die Stromdichteänderungen in einem Bereich von maximal 80 mA/cm^2 liegen.

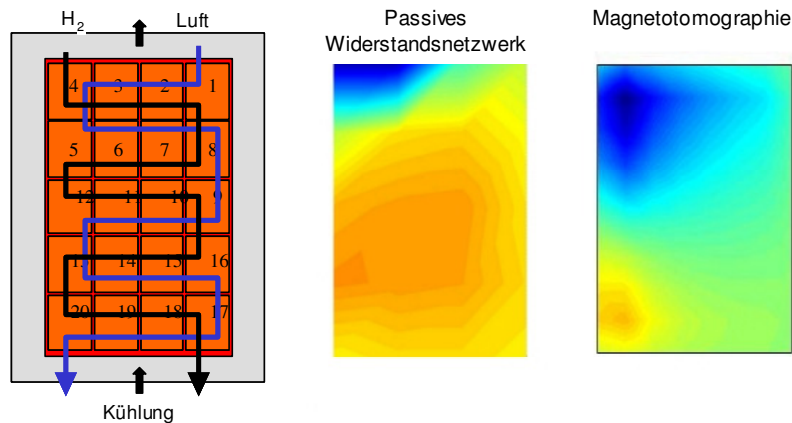


Bild 4.14: Rekonstruktion der Stromdichteänderung unter Variation der Wasserstoffbefeuchtung [80]

Stromdichterekonstruktionen, die auf unterschiedlichen Messungen unter gleichen Betriebsbedingungen basieren, zeichnen sich durch eine hohe Wiederholgenauigkeit mit Abweichungen der berechneten Stromdichten von wenigen Prozent aus. Ebenso erweisen sich die vorliegenden Stromdichterekonstruktionen als robust gegenüber geringen Änderungen der Diskretisierung des Brennstoffzellenvolumens. Beispielsweise bewirkt eine Änderung des Gitters von $5 \times 6 \times 3$ Elementen auf $6 \times 7 \times 4$ Elementen nur marginale Änderungen in der rekonstruierten Stromdichteverteilung. Der bei obigen Rekonstruktionen gewählte Regularisierungsparameter (siehe Gleichung 3.10), der eine Glättung der Stromverteilung bedingt, beträgt $1e-4$. Es zeigt sich, dass die charakteristischen Merkmale der rekonstruierten Stromdichteverteilung bei der Tikhonov-Regularisierung über eine große Bandbreite des Regularisierungsparameters von $1e-3$ bis $1e-5$ bestehen bleiben. Einen großen Einfluss auf die Stromdichterekonstruktionen haben dagegen Änderungen am Messobjekt. Solche Änderungen umfassen beispielsweise ein Verdrücken der Brennstoffzelle oder der Stromschienen während der Messungen.

Obwohl ein ähnlicher Trend in der Änderung der Stromdichteverteilung in den Bildern 4.13 und 4.14 zu erkennen ist, zeigen sich teilweise deutliche lokale Unterschiede zwischen den beiden Messmethoden. Diese Unterschiede lassen sich auf mehrere Ursachen zurückzuführen:

- Das passive Widerstandsnetzwerk ermittelt die Stromdichteverteilung in der Ebene zwischen End- und Bipolarplatte. Diese Stromdichte kann aufgrund von lateralen Ausgleichsströmen, die in der unsegmentierten Diffusionsschicht und Bipolarplatte fließen, von der an der Membran vorherrschenden Stromdichteverteilung abweichen (siehe Kapitel 3.5.1). Im Unterschied dazu umfasst die mittels Magnetotomographie rekonstruierte Stromdichte eine in Abhängigkeit der Diskretisierung über Membran, Diffusionsschicht und Bipolarplatte gemittelte Stromdichteverteilung.
- Das bei der Magnetotomographie verwendete Regularisierungsverfahren zur Stabilisierung des schlecht gestellten Gleichungssystems führt zu einer Glättung der rekonstruierten Stromdichteverteilung.
- Beide Messmethoden enthalten unterschiedliche Messfehler. Bei Variation der Betriebsparameter verstärken Rückwirkungen auf die Messapparatur die Messfehler des passiven Widerstandsnetzwerks zusätzlich, während die Messfehler der Magnetotomographie in diesem Fall unbeeinflusst bleiben.

Die präsentierten Rekonstruktionen beschränken sich auf Differenzrekonstruktionen. Die auf den gleichen Algorithmen basierenden Absolutrekonstruktionen gestalten sich derzeit aus unterschiedlichen Gründen noch schwierig. Zum einen bedingen systematische Messfehler durch die Verkipfung und Verdrehung der Sensorelemente (siehe Kapitel 3.5.2) sowie eine zu grobe Modellierung der Stromzuführung inklusive Kurzschlussbrücke große Fehler bei der Berechnung der Stromdichteverteilung. Zum anderen bergen kleine Positionsänderungen der Stromschienen, wie sie beim Umbau der Messapparatur für die Kurzschlussbrückenmessung auftreten können, große Fehlerquellen.

4.4 Weiterführende Charakterisierung

4.4.1 Dichtungsscreening

Die Arbeit fokussiert auf Eignungstests unterschiedlicher Dichtungsmaterialien für den Einsatz in Brennstoffzellen. Als Dichtung zwischen Bipolarplatte und MEA werden Flachdichtungen aus verschiedenen Materialien untersucht. Das Dichtungsscreening basiert auf Druckhaltetests.

Untersucht werden Flachdichtungen aus:

- Polytetrafluorethylen (PTFE)
- AFM 34[®], Firma Reinz (Aramidfasern in NBR gebunden, asbestfrei)
- Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk (EPDM)
- Acrylnitril-Butadien-Kautschuk (NBR)

Die Tests entsprechen den in Kapitel 3.3 beschriebenen Druckhaltetests, bei denen beide Gasräume der Brennstoffzellen mit Stickstoff mit einem Druck von 2 bar beaufschlagt werden.

Beträgt der Druckabfall in der Zelle nach 30 Minuten weniger als 50 mbar, wird die Zelle für den Betrieb mit Wasserstoff als hinreichend dicht definiert. Dies entspricht einem Wasserstoffverlust von ungefähr 0,1 % des Gesamtwasserstoffmassenstroms, wenn die Brennstoffzelle bei einem Druck von 2 bar, einer Stromdichte von 0,6 A/cm² und einem Stöchiometriekoeffizienten von 1,1 betrieben wird.

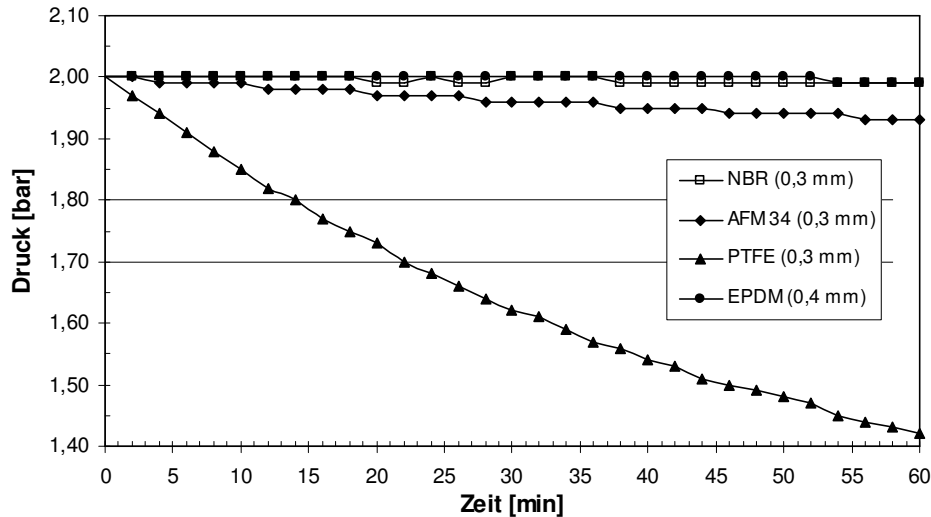


Bild 4.15: Dichtigkeitsmessungen mit unterschiedlichen Flachdichtungsmaterialien

In Bild 4.15 sind die Ergebnisse des Druckhaltetests dargestellt. Zellen mit PTFE-Flachdichtungen zeigen keine ausreichende Dichtigkeit. Das Aufbringen einer zusätzlichen Silikonschicht auf die PTFE-Dichtungen sowie kurzfristiges Erwärmen der montierten Zellen auf 60 °C erhöht die Dichtigkeit der Zellen bis auf den geforderten Wert. Diese Zusatzmaßnahmen erscheinen allerdings aufgrund des hohen zeitlichen Aufwands für die Anwendung in Brennstoffzellen als nicht geeignet. Eine weitere Nachteil ist die Kriechneigung des PTFE-Materials, die dazu führt, dass die Dichtigkeit der Zelle mit der Zeit nachlässt. Die elastischeren Materialien NBR, AFM und EPDM mit geringem Druckverformungsrest (compression set) erzielen alle die geforderte Dichtwirkung. Bei Zellen mit NBR- und AFM-Flachdichtungen beträgt selbst nach einer Stunde der Druckverlust nur 10 mbar. Im Vergleich zu dem NBR-Material ist aufgrund der höheren Steifigkeit des AFM-Materials bei gleichem Anpressdruck die Verpressung der Diffusionsschicht geringer. Dies resultiert in höheren Übergangswiderständen, die sich im Betrieb der Zellen in Form eines um rund 50 % höheren Flächenwiderstands als bei Zellen mit NBR-Dichtung zeigen. Aus diesen Gründen kommen in allen in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Brennstoffzellen Flachdichtungen aus NBR zum Einsatz. Die Langzeitbeständigkeit des ausgewählten Dichtungsmaterials unter Betriebsbedingungen in Brennstoffzellen muss in einem nächsten Schritt untersucht werden.

Jede Bipolarplatteneinheit besteht aus zwei Bipolarplattenelementen. Zwischen den Bipolarplattenelementen befindet sich die Kühlstruktur. Entsprechend Bild 3.4a dichten bei den oben

vorgestellten Druckhaltetests Runddichtringe aus dem Material NBR die Reaktanden sowie das Kühlwasser gegeneinander und zur Umgebung hin ab. Die Dichtungsnuten der Runddichtringe sind in die Bipolarplattenelemente integriert. Die verwendeten Dichtringe bauten insbesondere in den Eckradialen der Dichtungsnuten der Bipolarplatten Druck- und Scherspannungen auf, die zum Ausbrechen großer Materialstücke und damit zu Bauteilversagen führten. In einem modifizierten Design, das auf den Einsatz von Runddichtringen verzichtet, ist das Kühlflowfield nicht mehr in die Bipolarplattenelemente eingearbeitet, sondern in Form einer separaten Kühlstruktur zwischen diesen integriert. Die Kühlstruktur, die aus expandiertem Graphit gefertigt ist, dichtet die Reaktanden und das Kühlwasser ab und gewährleistet durch ihre elektrische Leitfähigkeit den Stromfluss durch die Bipolarplatteneinheit. Weitere Vorteile dieser Konstruktion sind, dass die Übergangswiderstände zwischen den Komponenten verringert werden und dass die Struktur durch preisgünstige Fertigungsverfahren wie Stanzen hergestellt werden kann. Obwohl die Dichtwirkung des Designs auf Basis von expandiertem Graphit schlechter ist als die der Runddichtringe, konnte die geforderte Zelldichtigkeit mit dem neuen Ansatz erreicht werden. Aufgrund der genannten Vorteile findet diese Kombination in den untersuchten Brennstoffzellen Verwendung.

4.4.2 Anpressdruckverteilung

Werden Einzelzellen und Short-Stacks unter den gleichen Betriebsbedingungen betrieben, ist der Flächenwiderstand der Short-Stacks um rund 20 % geringer als der der Einzelzellen. Dies ist ein Hinweis auf unterschiedliche Übergangswiderstände in den Brennstoffzellen. Aufgrund der stark von der Anpresskraft abhängigen Übergangswiderstände der einzelnen Zellkomponenten wird der Kraftfluss durch die Brennstoffzellen mit Hilfe der in Kapitel 3.4 beschriebenen Druckmessfolien ermittelt. Die Druckmessung erfolgte zwischen Endplatte und Bipolarplattenelement. Die Brennstoffzellen sind mit 20 Zugankern (siehe Bild 13.4) bei gleicher Kraft verspannt. Die acht an den Eckbereichen der Endplatten befindlichen Zuganker sind mit 3 Nm, die zwölf restlichen Zuganker sind mit 4 Nm angezogen. Diese experimentell ermittelten Anzugsmomente der Zuganker erwiesen sich bezüglich der Zelldichtigkeit als optimal.

In Bild 4.16 ist die Anpressdruckverteilung von Einzelzelle und Short-Stack gegenübergestellt. Die in dem Short-Stack vorliegende Druckverteilung entspricht ungefähr der Verteilung in einer Einzelzelle, in die das passive Widerstandsnetzwerk zur Stromdichtemessung integriert ist. Der elektrochemisch aktive Bereich der Zellen ist mit einer schwarz gestrichelten Linie umrandet. In diesem Bereich beträgt bei dem aus drei Zellen bestehenden Stapel der mittlere Anpressdruck rund 7 bar. Damit liegt der Anpressdruck um rund 80 % über dem Wert der Einzelzelle. Neben einem hohen mittleren Anpressdruck ist eine homogene Druckverteilung in den einzelnen Zellen Voraussetzung für eine hohe Leistungsdichte. Eine ungleichmäßige Anpressdruckverteilung führt zu lateralen Stromflüssen in den Zellen und somit zu erhöhten Ohmschen Verlusten. Auch hier zeigen sich Vorteile des Short-Stacks, in denen der lokale Anpressdruck im Mittelbereich zwischen 6 - 7,5 bar variiert, während in der Einzelzelle der Druckbereich von rund 2,5 – 5 bar reicht. Beide beschriebenen Effekte erklären die verringerten Ohmschen Widerstände im Be-

trieb des Short-Stacks. Die im Short-Stack verbesserte Kontaktierung ist dadurch bedingt, dass die erhöhte Anzahl der Bipolarplatten die mechanische Nachgiebigkeit zwischen den Endplatten erhöht. Somit können sich die Platten besser an die Endplatten anpassen, die aufgrund der Zugankerverspannung gewölbt sind. Der Einfluss der Endplattendeformation auf die Druckverteilung in Zellstapeln mit mehr als drei Zellen wird in Kapitel 9.1.1 numerisch untersucht.

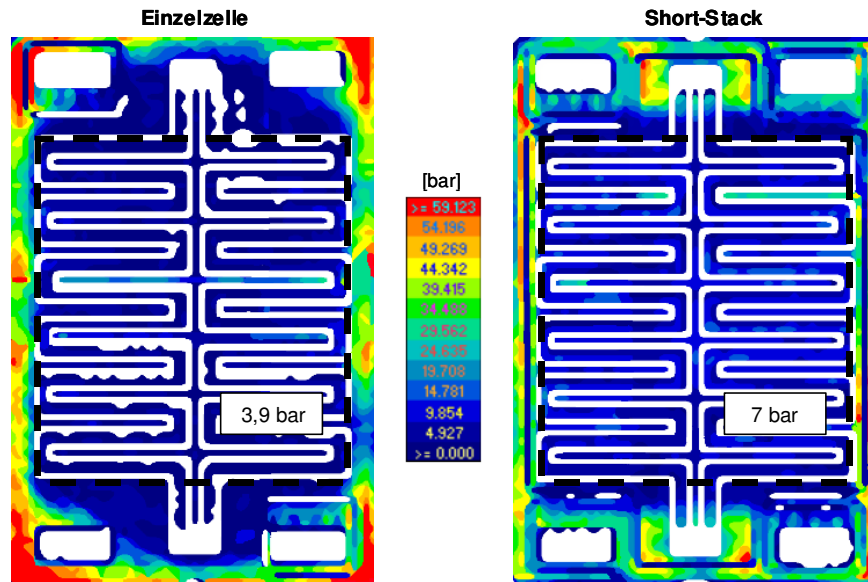


Bild 4.16: Anpressdruckverteilung zwischen End- und Bipolarplatte

Sowohl bei der Einzelzelle als auch dem Short-Stack zeigt sich, dass in dem von der Flachdichtung abgedeckten Randbereich der Zellen die Anpressdrücke am größten sind. In beiden Fällen wird ungefähr dreiviertel der Vorspannkraft durch die Flachdichtung geleitet. In Kapitel 9.2 werden optimierte Dichtungskonzepte vorgestellt, die eine geringere Vorspannkraft benötigen.

4.5 Zusammenfassung

Es werden zwei unterschiedliche Strömungsstrukturen untersucht. Das erste Flowfelddesign sieht eine Mäanderstruktur mit einer aktiven Fläche von 244 cm² vor. Das zweite Design mit einer aktiven Fläche von 219 cm² besteht aus einer Kombination aus einer Füßchen- und einer Kanalstruktur. Die Kanal-Füßchen-Struktur weist im Vergleich zu der Mäander-Struktur einen geringeren Strömungsdruckverlust auf, besitzt aber einen um 11 % geringeren Flächennutzungsgrad. Aufgrund von Wasseransammlungen in der Struktur ist bei Zellen mit einer Kanal-Füßchen-Struktur bei geringen Stromdichten keine stabile Betriebsführung möglich. Bei hohen Stromdichten weisen die Zellen größere Diffusionsüberspannungen als Zellen mit Mäanderstruktur auf. Die Mäander-Struktur zeichnet sich durch eine homogene Verteilung der Reaktanden über der aktiven Fläche bei einem ebenfalls geringen Druckverlust aus. Im Hinblick auf einen späteren Massenfertigungsprozess zeigen Bipolarplatten mit Mäander-Struktur

weitere Vorteile, da sie im Gegensatz zu solchen mit Kanal-Füßchen-Struktur in einem Spritzgießprozess gefertigt werden können. Aus diesen Gründen wird für den Einsatz im 5 kW Zellstapel die Mäander-Struktur ausgewählt.

Ein Vergleich der Leistungscharakteristiken von Einzelzellen mit Bipolarplatten aus vergoldetem Titan und mit Bipolarplatten aus Graphit-Composit-Material offenbart, dass die Zellen mit Titan nur eine geringfügig höhere Leistung besitzen. Dies rechtfertigt nicht die hohen Material- und Fertigungskosten. Des Weiteren liegen keine Kenntnisse über die chemische Langzeitbeständigkeit der Titan-Bipolarplatten vor. Daher werden für den Einsatz im 5 kW Zellstapel Bipolarplatten auf Basis von Graphit ausgewählt.

Der Einfluss einer Variation der Betriebsparameter auf die Leistung von Einzelzellen und Short-Stacks wird untersucht. Die Untersuchungen dienen der Identifikation geeigneter Betriebsparameter. Die Auswahl des Auslegungspunktes kann allerdings erst nach einer Gesamtsystembetrachtung erfolgen. Innerhalb der betrachteten Stöchiometrie- und Druckbereiche zeigt sich kein instabiles Betriebsverhalten der Zellen. Der Einfluss der Betriebstemperatur sowie der Reaktandenbefeuchtung auf die Zelleistung wird als gering eingestuft. Unterschiede in der flächenspezifischen Leistung zwischen den einzelnen Zellen der Short-Stacks sind kleiner als ein Prozent. Zur Bestimmung der durch die Betriebsparametervariationen hervorgerufenen lokalen Änderungen hinsichtlich der Zelleistung erfolgen Messungen der Stromdichteverteilung. Es kommen zwei Verfahren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung zur Anwendung. Das erste Verfahren basiert auf lokalen in-situ Widerstandsmessungen an einem passiven Widerstandsnetzwerk. Das zweite Verfahren bildet die Magnetotomographie.

Das neu entwickelte passive Widerstandsnetzwerk bietet bei niedriger Auflösung durch seinen einfachen und kostengünstigen Aufbau und die hohe Integrationsfähigkeit deutliche Vorteile gegenüber herkömmlichen Ansätzen. Der Aufbau verzichtet auf eine aufwendige und kostspielige Segmentierung der Brennstoffzellenkomponenten und ist von daher unabhängig vom Zellaufbau. Das Netzwerk erweist sich für den Einsatz in den vorliegenden Zellen als sehr geeignet.

Die Ergebnisse zeigen, dass Betriebsparametervariationen deutliche lokale Änderungen der Stromdichte hervorrufen können. Um einer Zellschädigung vorzubeugen, wird daher für den Betrieb des 5 kW Zellstapels eine Befeuchtung von H_2 80 % und L_{Luft} 80 % sowie ein Luftstöchiometriekoeffizient von L_{Luft} 2 empfohlen.

Die Magnetotomographie stellt das derzeit einzige bekannte Verfahren zur nicht-invasiven Bestimmung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen dar. Die Stromdichterekonstruktionen mittels Magnetotomographie zeigen bereits in dem frühen Entwicklungsstadium der Methode vielversprechende Ergebnisse. Die präsentierten Rekonstruktionen bestätigen, dass die Magnetotomographie geeignet ist, um die Einflüsse von Betriebsparametervariationen auf die Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen zu untersuchen. Ebenfalls zeigen die Ergebnisse, dass keine aufwendige magnetische Abschirmung des Teststands benötigt wird.

Nachdem die prinzipielle Eignung des Verfahrens gezeigt wurde, muss nun eine Potentialabschätzung mit detaillierter Fehlerrechnung folgen. Bisher ist die Magnetotomographie nur an Einzelzellen durch Differenzrekonstruktionen getestet worden. Versuche an Short-Stacks sowie Absolutrekonstruktionen der Stromdichteverteilung müssen in einem nächsten Schritt folgen. Die Quantifizierung der rekonstruierten Stromdichteverteilung bildet einen weiteren Arbeits-

punkt. Darüber hinaus bedarf es einer Verringerung der vorhandenen systematischen und statistischen Fehler. Dies erfordert:

- eine verbesserte Sensorik der Messwerterfassung. Dies umfasst beispielsweise den Einsatz magnetischer Flusssichtesensoren, die einen größeren Messbereich bei gleichzeitig verringerten Messfehlern und Sensorverkippen aufweisen.
- eine detailliertere Modellierung der Brennstoffzellen- und Kurzschlussbrückegeometrie mittels angepasster Gittermodelle sowie in ihrer Lage und Anzahl optimierte Messpunkte der magnetischen Flusssichte.
- auf den vorhandenen Ansätzen aufbauende, verbesserte Rekonstruktionsalgorithmen. Diese müssen durch zusätzliche Randbedingungen, wie beispielsweise der Divergenzfreiheit, ergänzt werden.

Das durchgeführte Dichtungsscreening bei Verwendung unterschiedlicher Flachdichtungsmaterialien führt zu der Wahl eines NBR-Materials der Stärke 0,3 mm. Flachdichtungen aus NBR zeigen im Vergleich zu den anderen untersuchten Werkstoffen die beste Dichtigkeit bei gleichzeitig geringsten elektrischen Zellwiderständen. Untersuchungen der Anpressdruckverteilung in den Zellen verdeutlichen, dass bei der verwendeten Kombination aus Flachdichtung und Gasdiffusionsschicht rund dreiviertel der Anpresskraft durch die Flachdichtung geleitet wird. Aufgrund einer erhöhten mechanischen Nachgiebigkeit zwischen den Endplatten erhöht und vergleichmäßigt sich der Anpressdruck der Diffusionsschicht in Zellstapeln mit zunehmender Zellenanzahl.

Anforderungen, die an einen aus vielen Einzelzellen bestehenden Zellstapel gestellt werden, können teilweise nur unzureichend an Einzelzellen und Short-Stacks untersucht werden. Im Gegensatz zu Einzelzellmessungen stellt in einem Zellstapel die gleichmäßige Medienverteilung auf die einzelnen Zellen eine große Herausforderung dar. Mit der Medienverteilung in Zellstapeln beschäftigt sich das nächste Kapitel.

5 Medienverteilung im Zellstapel

Für den optimierten Betrieb eines Brennstoffzellenstapels ist eine homogene Verteilung der Medien auf die einzelnen Zellen von grundlegender Bedeutung. In Kapitel 2.3.3 wurden bereits die Auswirkungen einer ungleichmäßigen Medienverteilung diskutiert. Eine ungleichmäßige Verteilung kann dazu führen, dass einzelne Zellen des Stapels mit Reaktanden unterversorgt werden. Die in Folge dessen erhöhten Diffusionsüberspannungen verringern die Gesamtleistung des Stacks und beschleunigen die Alterung der Membran-Elektroden-Einheiten [63]. Die in unterversorgten Zellen verringerte Strömungsgeschwindigkeit erschwert den Austrag von flüssigem Produktwasser. Blockiert das flüssige Wasser die Strömungsstrukturen, führt dies wiederum zu Leistungsverlusten. Das Ziel bei der Auslegung einer Brennstoffzelle ist daher, in jedem Betriebspunkt eine gleichmäßige Medienverteilung zu garantieren. Dies ist bei einem geringen Druckverlust im gesamten Stapel zu realisieren, um die Leistung der Peripherieaggregate zu minimieren.

Ein Brennstoffzellenstapel besteht aus seriell verschalteten Einzelzellen. Die Gasräume der Einzelzellen sind durch Vorsorgungskanäle, sogenannte Manifolds, miteinander verbunden. Die beiden Manifolds, im Folgenden zur Unterscheidung als Verteiler- und Sammlerkanal bezeichnet, sind rechtwinklig zu den einzelnen Zellen angeordnet. Der Verteilermanifold führt den Zellen die Medien zu. Im Sammlermanifold werden die Reaktionsprodukte sowie im Überschuss zugeführte Reaktanden gesammelt und aus dem System abgeführt. Im Allgemeinen liegt in einem Zellstapel entweder eine U- oder eine Z-förmige Strömungsführung vor. Der schematisch dargestellten Strömungsführung in Bild 5.1 ist zu entnehmen, dass bei der U-Strömung der Strömungsvektor der austretenden Medien dem der eintretenden Medien entgegengesetzt ist. Bei der Z-Strömung zeigen beide Strömungsvektoren in die gleiche Richtung.

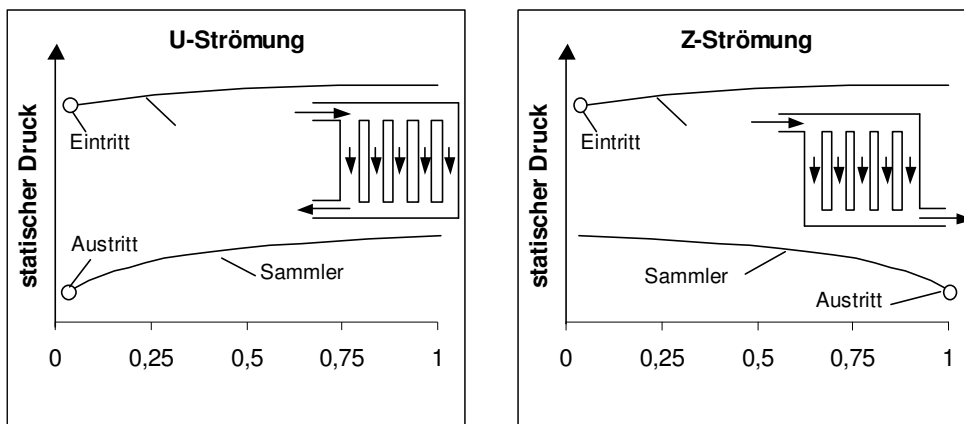


Bild 5.1: Charakteristischer Verlauf des statischen Drucks in den Manifolds eines Zellstapels

Die Volumenstromverteilung über die Zellen ist abhängig von den Strömungsverhältnissen im gesamten Zellstapel. Nicht nur die Strömungswiderstände in den Zellen selbst, sondern auch die Druckverläufe in den Manifolds beeinflussen die Medienverteilung. Die Druckverluste in den Manifolds sind im Wesentlichen durch Reibungs- und Verzweigungsverluste bedingt. Die im Bereich der Volumenstromtrennung und –vereinigung auftretenden Verzweigungsverluste sind bedingt durch Verluste in Ablösebereichen und Sekundärströmungen. Der in Bild 5.1 gezeigte beispielhafte Verlauf des statischen Drucks in den Manifolds ergibt sich aus dem Verlauf der Druckverluste und der Änderung des dynamischen Drucks. Ausschlaggebend für den Volumenstrom in einer Einzelzelle ist die örtliche Druckdifferenz zwischen Verteiler- und Sammlerkanal. Wie in Bild 5.1 qualitativ dargestellt, ist diese Druckdifferenz über den gesamten Stapel bei der U-Strömung gleichmäßiger als bei der Z-Strömung. Damit ist auch die Medienverteilung auf die Einzelzellen bei U-förmiger Strömungsführung homogener. In einem für Brennstoffzellenanwendungen seltenen Fall kann auch bei gleichen Betriebsbedingungen und gleicher Geometrie die Z-Strömung eine gleichmäßigere Verteilung liefern als die U-Strömung. Voraussetzung dafür ist, dass in dem Verteilerkanal die Druckänderungen durch Reibungsverluste größer sind als die Änderungen des dynamischen Drucks.

Aus der Literatur sind bereits mehrere Ansätze zur Berechnung der Volumenstromverteilung in Verzweigungssystemen beziehungsweise Brennstoffzellenstacks bekannt. Eine Veröffentlichung aus dem Jahr 1952 [83] beschreibt grundlegende theoretische Betrachtungen über die Verteilung der Durchflussmenge in einem ebenen Verzweigungssystem. Die theoretischen Ansätze werden experimentellen Daten gegenübergestellt. Die ermittelten Widerstandsbeiwerte sind nur unter den vorliegenden Versuchsbedingungen gültig und somit nicht auf beliebige Zellstapelgeometrien und Betriebsbedingungen übertragbar.

[84] beschreibt einen systematischen Algorithmus zur Berechnung der Druck- und Volumenstromverteilung in einem U- oder Z-förmig durchströmten Zellstapel. Der auf den Gleichungen der eindimensionalen Rohrströmung basierende Ansatz berücksichtigt nicht die Druckverluste, die durch Volumenstromvereinigung und –trennung entstehen. Bezogen auf einen speziellen Anwendungsfall, werden die Einflüsse unterschiedlicher Druckverlustterme in den Manifolds auf die Medienverteilung im Stapel diskutiert.

[85] befasst sich mit der Medienverteilung in Hochtemperaturbrennstoffzellen. An einem Zellstapelmodell werden die Stoßverluste in den Manifolds experimentell untersucht. Aus den Messungen wird geschlussfolgert, dass die Druckverlustbeiwerte in den Manifolds unabhängig von dem Volumenstrom und dem Manifoldquerschnitt sind.

In [86] wird für U-förmig durchströmte Zellstapel beliebiger Geometrie eine analytische Formel zur Berechnung der Zellvolumenströme präsentiert. Der beschriebene Ansatz ist unter der Annahme einer nicht näher quantifizierten gleichmäßigen Medienverteilung im Zellstapel abgeleitet. Die Widerstandsbeiwerte sind konstant und nicht von den lokalen Strömungsverhältnissen im Stack abhängig.

Die Autoren in [87] beschränken sich in ihrer Beschreibung auf Z-förmige Strömungsführungen. Ein Berechnungsansatz für die Medienverteilung in Einzelzellen mit parallelen Kanälen wird auf einen Zellstapel übertragen. In dem nur für laminare Strömungen gültigen Berechnungsansatz

werden die Verzweigungsverluste nicht berücksichtigt. Die Medienverteilung ist in Abhängigkeit dimensionsloser Kennzahlen berechnet. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in graphischer Form dargestellt.

In [88] wird die Medienverteilung mit Hilfe eines kommerziellen numerischen Strömungs-lösungsprogramms berechnet. Die Simulation der dreidimensionalen Strömung innerhalb des Stapels erfolgt ohne detaillierte geometrische Darstellung der Strömungsstrukturen der Einzelzellen. Ein integriertes Druckverlustmodell erlaubt, die Effekte der Zelldurchströmung abzuschätzen. Die Strömungsstrukturen der Zellen können so vereinfacht durch gerade Kanäle abgebildet werden. Dieser Ansatz ermöglicht die Berechnung der Medienverteilung unter reduziertem Rechenaufwand. Für einen konkreten Anwendungsfall werden die Simulationsergebnisse mit einem nicht näher beschriebenen eindimensionalen Berechnungsansatz verglichen.

In der Literatur ist keine verallgemeinerte Beschreibung für Z- und U-förmig durchströmte Zellstapel bekannt, bei der die laminaren und turbulenten Reibungsverluste in den Manifolds sowie die Verzweigungsverluste durch Volumenstromtrennung und -vereinigung berücksichtigt sind. Daher wird in diesem Kapitel ein analytisches, eindimensionales Modell (1D) zur Berechnung der Volumenstromverteilung in einem Zellstapel hergeleitet, aus dem eine solche verallgemeinerte Beschreibung abgeleitet werden kann. Auf experimentelle Untersuchungen zur Medienverteilung wird im Rahmen dieser Arbeit aufgrund des extremen technischen Aufwandes verzichtet. In der Literatur sind keine systematischen experimentellen Untersuchungen zu finden, die zum Vergleich herangezogen werden könnten. Aus diesem Grund wird ein kommerzielles numerisches Verfahren für dreidimensionale (3D) Strömungssimulationen zur Validierung des 1D-Modells eingesetzt. Aufgrund der sehr langen Rechenzeiten werden nur für ausgewählte Beispiele dreidimensionale Simulationsrechnungen durchgeführt und mit den Ergebnissen des eindimensionalen Modells verglichen.

Eine Sensitivitätsanalyse an einem zuvor definierten Basisdesign ermittelt die Einflüsse der Geometrie- und Betriebsparameter auf die Volumenstromverteilung. Im Hinblick auf die Auslegung der Manifolds werden Optimierungspotentiale bezüglich der Summe aus Verteiler- und Sammlerkanalfläche sowie dem Flächenverhältnis beider Kanäle zueinander aufgezeigt.

Dimensionslose Variablen erlauben, den 1D-Berechnungsansatz zu verallgemeinern. Anhand der so identifizierten dimensionslosen Kennzahlen wird der maximale Volumenstromunterschied zwischen den einzelnen Zellen als Maß für die Gleichmäßigkeit der Medienverteilung ermittelt. Die dimensionslosen Kennzahlen basieren auf den Geometriedaten des Zellstapels und den untersuchten Betriebsparametern. In graphischer Form präsentierte Berechnungsergebnisse erlauben für beliebige Anwendungsfälle die Bestimmung des maximalen Volumenstromunterschieds in Abhängigkeit der Kennzahlen. In einem letzten Schritt werden jeweils für die Z- und U-Strömung eine Formel abgeleitet, mit denen bei bekannten Geometriedaten und Betriebsbedingungen überprüft werden kann, ob der maximale Volumenstromunterschied größer oder kleiner als ein zuvor definierter Grenzwert ist.

Die in dieser Arbeit betrachteten Brennstoffzellen werden anodenseitig mit reinem ($\geq 99,9\%$), befeuchtetem Wasserstoff betrieben. Auf der Kathodenseite kommt befeuchtete Luft zum Einsatz. Wegen der geringen Sauerstoffkonzentration im Kathodengas sind die Auswirkungen

einer ungleichmäßigen Verteilung des Oxidans auf die Leistung des Zellstapels groß. Aufgrund des höheren Volumenstroms bedarf die Kathodenseite im Vergleich zur Anodenseite bei der Auslegung besonderer Aufmerksamkeit. In den weiteren Betrachtungen wird daher nur die Kathodenseite der Brennstoffzelle behandelt. Die Ausführungen beschränken sich auf Zellstapel mit jeweils einem Verteiler- und einem Sammlerkanal. Über die Länge der Manifolds ist der Querschnitt konstant.

5.1 Verfahren zur Berechnung der Medienverteilung in einem Zellstapel

Ein eindimensionaler Modellansatz zur Berechnung der Volumenstromverteilung in einem Zellstapel sowie der für Vergleichsrechnungen verwendete numerische Strömungslöser werden im Folgenden näher beschrieben. Beide Berechnungsverfahren vernachlässigen die in den Zellen stattfindende elektrochemische Reaktion. Temperatureffekte sowie eine Änderung der Gaszusammensetzung beziehungsweise des Gesamtmassenstroms werden nicht berücksichtigt. Die Stoffwerte (Dichte, Viskosität) werden im gesamten System als konstant angenommen und entsprechen den Bedingungen am Stapeleintritt. Die Annahme eines konstanten Gesamtmassenstroms erlaubt, die Ergebnisse auch auf andere Anwendungen, wie zum Beispiel Plattenwärmeübertrager, zu übertragen.

Durch die elektrochemische Reaktion verringert sich der Sauerstoffanteil und erhöht sich der Wasseranteil im Kathodengas. Dies führt zu einer verringerten Gemischviskosität. Fällt das Produktwasser in flüssiger Form an, verringert sich der Gasvolumenstrom und damit die Strömungsgeschwindigkeit. Unter der Annahme, dass das flüssige Produktwasser die Gasströmung nur vernachlässigbar beeinflusst, verringern beide Effekte die Druckverluste im Sammlermanifold. Unter für Brennstoffzellen typischen Betriebsbedingungen begünstigt dies wiederum eine gleichmäßige Verteilung der Reaktanden auf die einzelnen Zellen. Die Vernachlässigung der elektrochemischen Reaktion stellt daher bezüglich der Reaktandenverteilung im Zellstapel eine konservative Abschätzung dar.

Sowohl bei dem 1D- als auch bei dem 3D-Berechnungsverfahren werden die Strömungsstrukturen in den einzelnen Zellen nicht im Detail betrachtet. Es wird angenommen, dass sich der Volumenstrom in den Zellen proportional zu dem Druckverlust verhält. Der Proportionalitätsfaktor wird im Folgenden mit Strömungsleitfähigkeit bezeichnet. Die Strömungsleitfähigkeit der Zelle ist experimentell zu ermitteln oder für die in den Zellen vorliegenden Strömungsstrukturen geeignet abzuschätzen. Der unter dieser Annahme entstehende Fehler in der Berechnung der Volumenstromverteilung ist gering, wenn die Volumenströme der einzelnen Zellen nicht stark voneinander abweichen.

Fertigungsbedingte Strömungsunterschiede zwischen den einzelnen Zellen, die ebenfalls die Medienverteilung negativ beeinflussen, sind hier nicht Gegenstand der Betrachtung.

5.1.1 Eindimensionaler Rechenansatz

Für den eindimensionalen (1D-) Berechnungsansatz wird der Brennstoffzellenstapel durch ein Netzwerk aus hydraulischen Widerständen vereinfacht abgebildet. Die Knotenpunkte dieses Netzwerks sind jeweils durch einen statischen Druck sowie eine mittlere Strömungsgeschwindigkeit beschrieben. Die Anzahl der Knotenpunkte in dem Netzwerk ist bestimmt durch die Anzahl der Einzelzellen im Zellstapel N_z

$$\text{Anzahl der Knotenpunkte} = 4 N_z + 2$$

Gl. 5.1

Schematisch ist der Aufbau des Netzwerks für einen aus 5 Einzelzellen bestehenden Stapel in Bild 5.2 dargestellt. Die vorliegende Strömungsführung in dem Stapel entspricht einer U-Strömung.

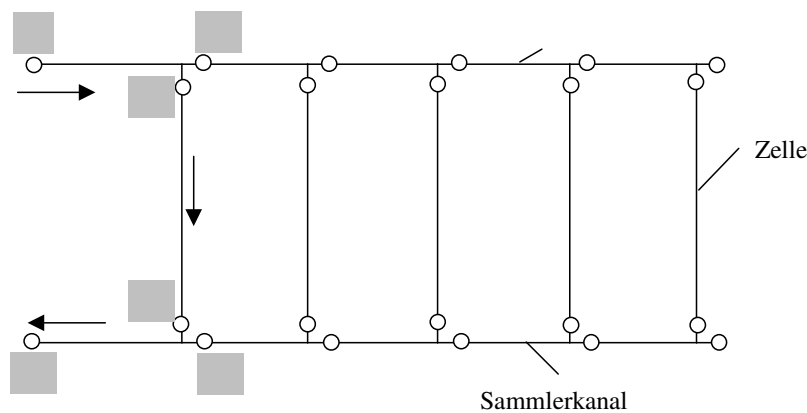


Bild 5.2: Ersatzschaltbild für einen aus 5 Zellen bestehenden Brennstoffzellenstapel

Die hydrodynamischen Grundlagen zur Berechnung der Strömungsverteilung sind im Folgenden exemplarisch für die erste Zelle aus Bild 5.2 ausgeführt. Wie in Bild 5.2 dargestellt, sind die relevanten Knotenpunkte mit den Zahlen „1“ bis „6“ nummeriert. Strömungseffekte am Ein- und Austritt des Zellstapels bleiben unberücksichtigt.

Für die betrachtete Zelle werden drei Massenbilanzgleichungen formuliert

$$u_1 A_V - u_3 A_Z - u_5 A_V = 0 \quad \text{mit} \quad A_V, b_V, h_V \quad \text{Gl. 5.2}$$

$$u_3 A_Z - u_4 A_Z = 0 \quad \text{Gl. 5.3}$$

$$u_6 A_S - u_4 A_Z - u_2 A_S = 0 \quad \text{mit} \quad A_S, b_S, h_S \quad \text{Gl. 5.4}$$

Die über den Querschnitt gemittelte Geschwindigkeit an den entsprechenden Knotenpunkten wird mit u_i bezeichnet. A_V , A_S und A_Z stehen für die durchströmte Verteiler-/ Sammler manifoldfläche beziehungsweise für den Strömungsquerschnitt der Zelle. b und h bezeichnen die jeweilige Manifoldbreite und -höhe.

Die Druckänderung zwischen zwei Knoten ergibt sich aus der um Druckverlustterme erweiterten Bernoullischen Gleichung (siehe auch [89]). Die Gleichung besteht aus der Differenz aus den

statischen und dynamischen Drücken sowie den entsprechenden Druckverlusttermen. Die Gleichung für die Volumenstromtrennung im Verteilermanifold (Knoten 1 nach Knoten 3) lautet

$$p_1 - p_3 + \frac{\rho}{2} \cdot u_1^2 - u_3^2 - \frac{\rho}{2} \cdot u_1^2 \cdot \zeta_{V,ab} - \frac{\rho}{2} \cdot u_1^2 \cdot \zeta_R \cdot \frac{l}{d_{hyd,V}} = 0 \quad \text{Gl. 5.5}$$

p_i bezeichnet den statischen Druck, ρ die Fluidichte, ζ_i den jeweiligen Widerstandsbeiwert und l den Abstand zwischen zwei Knoten. Der hydraulische Durchmesser $d_{hyd,V}$ ergibt sich aus

$$d_{hyd,V} = \frac{4 \cdot A_V}{U_V} \quad \text{mit} \quad U_V = 2 \cdot (b_V + h_V) \quad \text{Gl. 5.6}$$

Der Druckverlust zwischen zwei Knoten setzt sich aus dem Impulsverlust infolge der Reibung und dem Verlust durch Verzweigung zusammen. Die Verzweigungsverluste berücksichtigen die Stoß- und Wirbelverluste, die bei der Ent- und Vermischung der Volumenströme am Zelleintritt beziehungsweise –austritt entstehen. Eine Zusammenstellung experimenteller Messergebnisse für die Verzweigungswiderstandsbeiwerte in unterschiedlichen Verzweigungsgeometrien ist beispielsweise in [90] zu finden. Die Ansätze beschreiben nur einzelne Verzweigungen, nicht aber wie sich bei Vielfachverzweigungen diese untereinander beeinflussen können. Aufgrund der großen Anzahl an geometrischen und fluidmechanischen Einflussfaktoren (Querschnittsform, -fläche, Reynoldszahl, u.a.) ist kein verallgemeinerter Ansatz zur Berechnung der Widerstandsbeiwerte in der Literatur vorhanden. Ersatzweise werden zur Berechnung der Widerstandsbeiwerte Abhängigkeiten angesetzt, die für turbulent durchströmte, kreisförmige Rohre ermittelt worden sind [91, pp. Lc3-Lc4]. Bei den Untersuchungen hatten das Haupt- und Abzweigrohr den selben Durchmesser. Die ermittelten Widerstandsbeiwerte sind ausschließlich eine Funktion des Quotienten aus abzweigendem zu ankommendem Volumenstrom. Eine mögliche zusätzliche Abhängigkeit vom Verhältnis aus durchströmter Manifold- und Zellquerschnittsfläche wird nicht berücksichtigt.

$$\zeta_{V,ab} = f_{V,ab} \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right) \quad \text{Gl. 5.7}$$

Die polynomische Regressionsfunktion $f_{V,ab}$ beschreibt die in [91, pp. Lc3-Lc4] in graphischer Form dargestellten Abhängigkeiten. Entsprechend Gleichung 5.7 ist der Widerstandsbeiwert für die Durchströmung im Verteilermanifold $\zeta_{V,durch}$ (Knoten 1 nach Knoten 5) als Funktion des Quotienten aus abzweigendem zu ankommendem Volumenstrom formuliert. Die Bernoulli-Gleichungen der Stromvereinigung und Durchströmung im Sammlermanifold werden mit den entsprechenden Abhängigkeiten für die Widerstandsbeiwerte gebildet. Hier ergeben sich die Widerstandsbeiwerte der Stromvereinigung und Durchströmung ($\zeta_{S,zu}$, $\zeta_{S,durch}$) als Funktion des Quotienten aus ankommendem zu zuströmendem Volumenstrom. Die Regressionsfunktionen der Verzweigungswiderstandsbeiwerte sind im Anhang (Kapitel 13.2, Gleichungen 13.1 bis 13.4) aufgeführt.

Der letzte Term auf der linken Seite von Gleichung 5.5 beschreibt die Reibungsdruckverluste. In typischen Brennstoffzellenanwendungen ist die Strömung am Stapeleintritt turbulent. Im Ver-

teilerkanal kann dagegen am Stapelende aufgrund der verringerten Strömungsgeschwindigkeit ein laminares Strömungsprofil vorliegen. Der Widerstandsbeiwert ζ_R berechnet sich daher nach einem Ansatz, der das Hagen-Poiseuillesche-Gesetz für laminare Rohrströmungen mit dem Widerstandsgesetz für turbulente Rohrströmungen nach Blasius kombiniert.

$$\zeta_R = \left[\left(\frac{\varphi \cdot 64}{\text{Re}} \right)^4 + \frac{0,3164}{\text{Re}} \right]^{0,25} \quad \text{Gl. 5.8}$$

$$\text{Re} = \frac{u_i \cdot d_{\text{hyd}}}{\mu} \quad \text{Gl. 5.9}$$

bezeichnet die dynamische Viskosität des betrachteten Fluids. Der Ansatz nach Gleichung 5.8 deckt das gesamte Strömungsregime ab und ist gültig für auf den Rohrdurchmesser bezogene Reynoldszahlen kleiner als $\text{Re} = 10^5$. Der Beiwert ζ_R ist für laminare Rohrströmungen mit Rechteckquerschnitt eine Funktion des Seitenverhältnisses aus Breite und Höhe des Manifoldquerschnitts (siehe [91, p. Lb7]).

Wie zu Beginn des Kapitels 5.1 beschrieben, ist der Volumenstrom in den Zellen proportional zu dem Druckverlust. Der Proportionalitätsfaktor ist mit Strömungsleitfähigkeit (Leit_Z) bezeichnet. Die Strömungsleitfähigkeit ist abhängig von der Geometrie der Strömungskanäle in den Zellen und den Stoffeigenschaften des Gemischs. Der Druckverlust der ersten Zelle aus Bild 5.2 ergibt sich zu

$$p_3 - p_4 = \text{Leit}_Z \cdot u_3 \cdot A_Z \quad \text{Gl. 5.10}$$

Das sich aus den entsprechenden Gleichungen für alle Zellen des Stapels ergebende nicht-lineare Gleichungssystem wird iterativ mit dem Newton-Verfahren gelöst. Zur Lösung der dabei auftretenden linearen Gleichungssysteme wird das Softwarepaket LAPACK [92] verwendet.

Neben den oben beschriebenen Gleichungen werden vier weitere Gleichungen in Form von Randbedingungen zur eindeutigen Lösung des Gleichungssystems benötigt. Als Randbedingungen werden der statische Druck am Stapelaustritt und die Strömungsgeschwindigkeit am Stapeleintritt vorgegeben. Die Strömungsgeschwindigkeit am Stapeleintritt ergibt sich aus dem Gesamtmassenstrom des Stapels und der Querschnittsfläche des Verteilerkanals. Außerdem ist für die U-förmige Strömung die Strömungsgeschwindigkeit in den Knotenpunkten, die sich am Ende des Verteiler- und Sammlerkanals befinden, gleich null (siehe Bild 5.2). Bei der Z-Strömung ist die Strömungsgeschwindigkeit in den Knotenpunkten am Ende des Verteilers und am Anfang des Sammlers gleich null.

Die Initialisierung der unbekannten statischen Drücke und mittleren Geschwindigkeiten in den Knoten erfolgt unter der Annahme, dass die Medien über alle Zellen homogen verteilt sind. Es konnte nicht festgestellt werden, dass sich das Berechnungsergebnis ändert, wenn eine andere beliebige Startverteilung gewählt wurde. Das Ergebnis der Berechnung liefert an jedem Knotenpunkt den statische Druck sowie die über den Kanalquerschnitt gemittelte Geschwindigkeit. Die

Betrachtung der mittleren Geschwindigkeiten in den einzelnen Zellen gibt Auskunft über die Medienverteilung im Zellstapel.

Die Gleichungen zur Berechnung eines Z-förmig durchströmten Zellstapels sind analog aufgebaut.

5.1.2 Dreidimensionale Strömungssimulation

Die im Folgenden beschriebene fluiddynamische Strömungssimulation erfolgt unter Verwendung des kommerziell erhältlichen Programmpakets FLUENT der Firma *Fluent, Inc* [93]. Die zur Beschreibung der Strömungsverteilung in einem Zellstapel benötigten Gleichungen beschränken sich auf die Impuls- (Navier-Stokes-Gleichungen) und Massenerhaltungsgleichungen (Kontinuitätsgleichungen). Für die dreidimensionale Betrachtung der Medienverteilung in einem Zellstapel gelten ebenfalls die in Kapitel 5.1 getroffenen Annahmen (Massenstrom und Stoffwerte konstant). Die betrachtete Luftströmung in den Zellstapeln kann aufgrund der geringen Strömungsgeschwindigkeit als inkompressibel angesehen werden. In allgemeiner Form sind in Gleichung 5.11 die Navier-Stokes-Gleichung und in Gleichung 5.12 die Kontinuitätsgleichung für inkompressible Strömungen unter Vernachlässigung von Volumenkräften formuliert:

$$\rho \cdot \left[\frac{\partial u}{\partial t} + (u \cdot \nabla) \cdot u \right] = -\nabla p + \mu \cdot \nabla^2 u \quad \text{Gl. 5.11}$$

$$u \cdot \nabla = 0 \quad \text{Gl. 5.12}$$

Zur approximativen Berechnung des dreidimensionalen Strömungsfeldes werden die Erhaltungsgleichungen 5.11 und 5.12 in Integralform überführt und mit Hilfe einer Finite-Volumen Formulierung diskretisiert. Die numerische Lösung der diskreten Gleichungen liefert Aussagen über die Geschwindigkeiten und Drücke in den Kontrollvolumina des Lösungsgebietes.

Der Zellstapel besteht aus dem Sammler- und Verteilerkanal sowie aus den die beiden Kanäle verbindenden Einzelzellen. Exemplarisch ist in Bild 5.3 für einen aus zwei Einzelzellen bestehenden Stapel die Geometrie mit den zugehörigen Geometriebezeichnungen abgebildet. Da nur die Volumenstromverteilung auf die einzelnen Zellen des Stacks die gesuchte Größe darstellt, ist zur Verringerung der Rechenzeit der Zellstapel ohne eine exakte geometrische Darstellung der Strömungsstrukturen der Einzelzellen abgebildet. Die Einzelzellen sind vereinfacht durch kurze, gerade Kanäle und ein darin eingebettetes Druckverlustmodell dargestellt. Das Druckverlustmodell ist in Form einer quer zur Hauptströmungsrichtung stehenden Fläche („porous jump“) in der Mitte der geraden Kanäle integriert. Der „porous jump“ versteht sich als dünne Membran mit bekannter Geschwindigkeits-Druckverlust-Charakteristik. Für das in den Zellen vorliegende laminare Strömungsregime berechnet sich dieser Druckverlust nach dem Gesetz von Darcy

$$\Delta p = \frac{\mu}{\beta} \cdot u \cdot L \quad \text{Gl. 5.13}$$

bezeichnet die Strömungsgeschwindigkeit normal zu der porösen Fläche, die virtuelle Länge der Fläche. Der als Permeabilität bezeichnete Proportionalitätsfaktor berechnet sich unter Verwendung der Strömungsleitfähigkeit (Gleichung 5.10) zu

$$\beta = \frac{Leit_z \cdot \mu \cdot L}{A_z} \quad \text{Gl. 5.14}$$

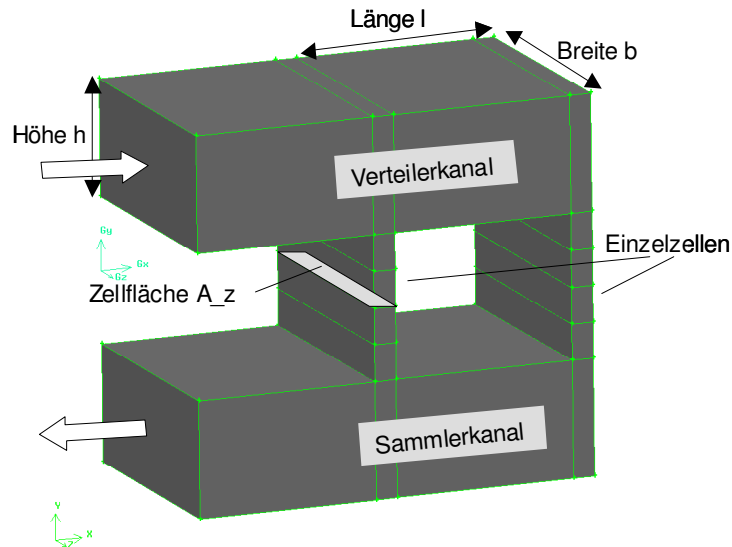


Bild 5.3: Dreidimensionales Modell eines aus zwei Zellen bestehenden Zellstapels

Strömungsverluste durch die Ein- und Ausströmung in den Zellstapel werden nicht berücksichtigt. Die dem Stapel vorgelagerten Ein- und Auslaufbereiche sind nicht in Bild 5.3 gezeigt. Zu Beginn der Berechnungen wird die Anzahl der Kontrollvolumina im Rechengitter sukzessive so weit erhöht, bis eine weitere Erhöhung der Anzahl nur noch eine vernachlässigbare Änderung der Volumenstromverteilung im Zellstapel bewirkt. Die so identifizierte Anzahl der Kontrollvolumina liegt in Abhängigkeit der untersuchten Stapelgeometrie zwischen 200000 und 800000. Der dimensionslose Wandabstand y^+ der wand nächsten Gitterpunkte ist so gewählt, dass die Grenzschichten hinreichend genau aufgelöst werden [94]. Das verwendete Turbulenzmodell wird als „renormalization group“ (RNG) $k-\varepsilon$ -Modell [94] bezeichnet. Die Bewertung der Konvergenz erfolgt durch Auswertung der Residuen.

Eine charakteristische Strömungsverteilung für einen U-förmig durchströmten Zellstapel ist in Bild 5.4 gezeigt. Abgebildet ist der Geschwindigkeitsbetrag in dem Längsschnitt durch einen aus 50 Zellen bestehenden Stapel. Die der Rechnung zugrunde liegenden Geometrie- und Betriebsparameter sind im Anhang in Tabelle 13.1 (Nr. 1) aufgeführt. Die jeweils vergrößert dargestellten Detailbetrachtungen zeigen Bahnlinien einzelner Fluidelemente beim Übergang vom Verteilerkanal in die Zellen beziehungsweise von den Zellen in den Sammlerkanal. Die durch

die starke Strömungsumlenkung an den scharfkantigen Ecken entstehenden und unter anderem für die Verzweigungsverluste verantwortlichen Totwassergebiete sind deutlich zu erkennen. Die Auflösung dieser Strömungsphänomene zeigt, dass für die vorliegende Fragestellung ein hinreichend feines Gitter vorliegt.

Die Strömungsverteilung für einen unter den gleichen Geometrie- und Betriebsparametern Z-förmig durchströmten Stapel sind im Anhang in Bild 13.1 zu sehen. Ein Vergleich verdeutlicht, dass das Schema der Bahnlinien einzelner Fluidelemente bei U- und Z-förmiger Strömungsführung unterschiedlich ist. Während bei der U-Strömung der Verlauf der Bahnlinien grob als symmetrisch zu der Mittelebene bezeichnet werden kann, liegt bei der Z-Strömung grob eine Punktsymmetrie um den Stapelmittelpunkt vor.

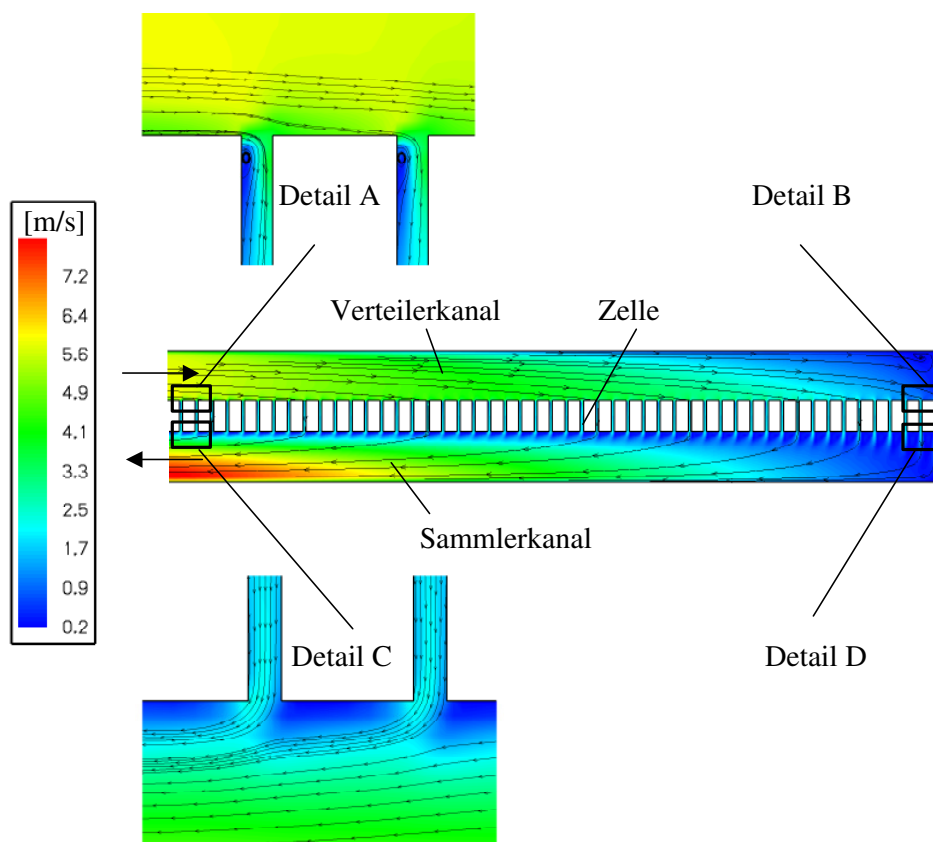


Bild 5.4: Charakteristische Verteilung des Geschwindigkeitsbetrags im Längsschnitt eines U-förmig durchströmten Zellstapels (50 Zellen)

5.1.3 Vergleich der 1D- und 3D-Rechnergebnisse

Im Folgenden werden Berechnungsergebnisse des 1D-Ansatzes mit denen der fluidodynamischen Simulation verglichen. Zum Vergleich werden ausgewählte Anwendungsbeispiele für U- und Z-förmig durchströmte Zellstapel untersucht. Die gewählten Beispiele repräsentieren Brennstoffzellenanwendungen unter realistischen Auslegungsgeometrien und Betriebsführungen. Der Bereich, in dem die Geometrie- und Betriebsparameter variieren, ist in Tabelle 5.1 aufgetragen. Die im einzelnen untersuchten Parameterkombinationen sind im Anhang (Kapitel 13.2) in Tabelle 13.1 und Tabelle 13.2 aufgeführt. Bei allen Berechnungen sind jeweils die Verteiler- und Sammlergeometrie identisch.

Tabelle 5.1: Bereich der untersuchten Parametervariation

Zellenanzahl	:	30 – 100	[-]
Gesamtmassenstrom	:	$3,48 \cdot 10^{-3} - 1,16 \cdot 10^{-2}$	[kg/s]
Dichte	:	0,95 – 1,9	[kg/m³]
Dyn. Viskosität	:	$1,9 \cdot 10^{-6} - 1,9 \cdot 10^{-4}$	[kg/(m*s)]
Strömungsleitfähigkeit	:	$5,4 \cdot 10^{-9} - 5,4 \cdot 10^{-7}$	[s*m⁴/kg]
Manifoldbreite	:	20 – 48	[mm]
Manifoldhöhe	:	12 – 23	[mm]
Zellenabstand	:	4,8 – 5,2	[mm]
Durchströmte Zellfläche	:	$2 \cdot 10^{-5} - 4,8 \cdot 10^{-5}$	[m²]

Zur Bewertung der Berechnungsergebnisse wird der Verlauf des statischen Drucks am Eintritt und Austritt der einzelnen Zellen verglichen. Dies entspricht einer Betrachtung des Volumenstromverlaufs über die einzelnen Zellen (Gleichung 5.10). Als Maß für die Medienverteilung in dem Zellstapel wird der Grad der Ungleichverteilung V^* folgendermaßen definiert:

$$\dot{V}^* = \frac{\dot{V}_{Z,\max} - \dot{V}_{Z,\min}}{\dot{V}_{Z,\max}} \cdot 100\% \quad \text{Gl. 5.15}$$

Der Grad der Ungleichverteilung setzt die Differenz aus dem maximalen und minimalen Volumenstrom der Zellen ins Verhältnis zu dem maximalen Volumenstrom. Beträgt der Wert von V^* null, werden alle Zellen des Stapels mit dem gleichen Reaktandenstrom versorgt.

Bei den numerischen Simulationsergebnissen variiert der Grad der Ungleichverteilung für die ausgewählten Berechnungsbeispiele zwischen 1 % und 23 % für die U-förmige Strömungsführung und zwischen 8 % und 54 % für die Z-förmige Strömungsführung. Werden in dem 1D-Ansatz die Verzweigungsverluste vernachlässigt, so dass ausschließlich die Rohrreibungsverluste in den Manifolds Berücksichtigung finden, wird für beide Strömungsführungen V^* im Mittel um mehr als 90 % kleiner berechnet als bei dem numerischen Ansatz. Werden dem 1D-Ansatz die Verzweigungswiderstandsbeiwerte nach [91] zugrunde gelegt, sind im Vergleich zu den numerischen Berechnungen die Grade der Ungleichverteilung bei der U-Strömung im Mittel um circa 40 % größer und bei der Z-Strömung um circa 21 % kleiner. Dies unterstreicht den großen Einfluss der Verzweigungsverluste auf die Medienverteilung. Der Grund für die verblei-

benden Unterschiede ist, dass die angesetzten Widerstandsbeiwerte zur Berechnung der Verzweigungsverluste nach [91] für kreisförmige Rohre ermittelt worden sind. Da die Querschnitte des Haupt- und Abzweigrohres in [91] identisch waren, sind die Widerstandsbeiwerte ausschließlich eine Funktion des Verhältnisses aus zu- oder abströmendem zu ankommendem Volumenstrom. In einem Brennstoffzellenstapel ändert sich dieses Verhältnis über eine große Zellenanzahl im Stapel nur geringfügig. Um die Druckverläufe in den Manifolds zwischen den beiden Rechenansätzen aufeinander anzupassen, werden daher die Funktionen der Verzweigungswiderstandsbeiwerte (siehe Kapitel 13.2, Gleichungen 13.1 bis 13.4) mit einem konstanten Faktor multipliziert. Bei der U- und Z-förmigen Strömung werden diese Faktoren jeweils so ermittelt, dass die Übereinstimmung der Druckverläufe in den Manifolds für die Berechnungsbeispiele mit 50 Zellen am besten ist. Im Fall der U-Strömung ergibt sich ein Faktor von 0,63, mit dem die Widerstandsbeiwerte für die Durchtrittsverluste im Verteiler und Sammler ($\zeta_{V,durch}, \zeta_{S,durch}$) multipliziert werden. Dies verringert die Differenz des Grades der Ungleichverteilung zwischen beiden Berechnungsansätzen auf maximal 0,8 Prozentpunkte. Für alle untersuchten Beispiele mit U-förmiger Strömungsführung beträgt die Differenz maximal 3 Prozentpunkte. Die größte Abweichung tritt bei dem Zellstapel mit 100 Zellen auf. Im Fall der Z-Strömung werden die Widerstandsbeiwerte für die Durchtrittsverluste ($\zeta_{V,durch}, \zeta_{S,durch}$) mit einem Faktor von 0,4 und die Widerstandsbeiwerte für die Abzweig- und Sammelverluste ($\zeta_{V,ab}, \zeta_{S,zu}$) mit einem Faktor von 1,6 multipliziert. Dies führt für alle untersuchten Parameterkombinationen zu einer maximalen Abweichung des Grades der Ungleichverteilung zwischen den 1D- und 3D-Rechnungen von einem Prozentpunkt.

Wie bereits in Kapitel 5.1.2 erwähnt, ist das Schema der Bahnlinien einzelner Fluidelemente bei U- und Z-förmiger Strömungsführung unterschiedlich (vergleiche Bild 5.4 und Bild 13.1). In Verbindung mit einer teilweise deutlichen Abweichung der Geschwindigkeitsprofile in den Manifoldquerschnitten von den bei dem 1D-Ansatz verwendeten gemittelten Geschwindigkeiten, ist dies eine mögliche Erklärung für die unterschiedlichen Korrekturfaktoren zur Berechnung der Widerstandsbeiwerte beider Strömungsführungen.

Exemplarisch sind in Bild 5.5 die Druckverläufe in den Manifolds für einen aus 50 Zellen bestehenden, U-förmig durchströmten Zellstapel (Beispiel Nr. 1, Tabelle 13.1) für die 1D- und die 3D-Rechnung gegenübergestellt. Die Abweichung des Grades der Ungleichverteilung beträgt 0,2 Prozentpunkte.

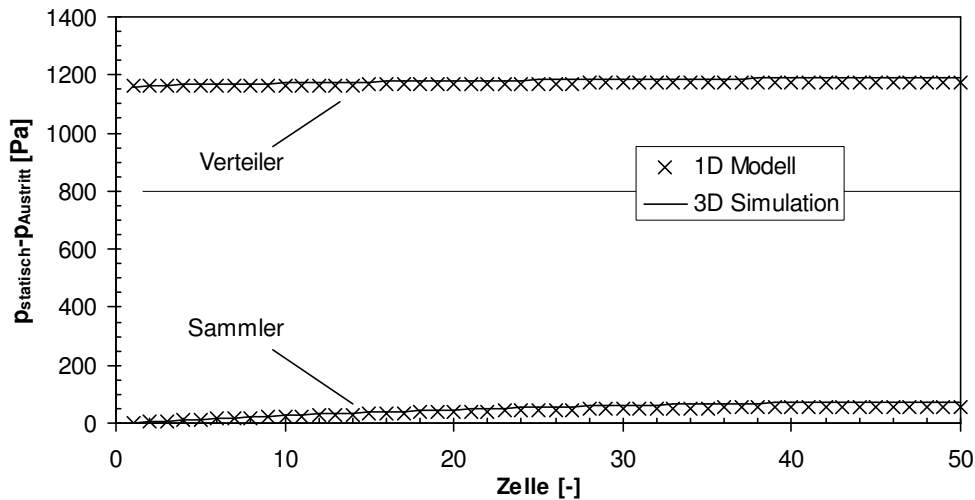


Bild 5.5: Exemplarische Gegenüberstellung der Druckverläufe in den Manifolds zwischen 1D und 3D (U- Strömung, Stapel mit 50 Zellen)

Wie Tabelle 5.1 zu entnehmen ist, variiert bei den Berechnungsbeispielen neben der Geometrie der Manifolds auch das Verhältnis zwischen Manifoldsfläche und durchströmter Zellfläche. Die Rechenergebnisse zeigen (vergleiche Tabelle 13.1, Tabelle 13.2), dass der Einfluss dieses Flächenverhältnisses auf die Medienverteilung für brennstoffzellenspezifische Geometrien gering ist. Somit erweist sich der ausschließlich vom Volumenstrom abhängige Ansatz der Verzweigungswiderstandsbeiwerte als geeignet.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass bereits durch Multiplikation der Verzweigungswiderstandsbeiwerte mit einem konstanten Faktor eine über einen weiten Parameterbereich gute Übereinstimmung zwischen den beiden Rechenansätzen erzielt wird. Für die im Weiteren durchgeführten Analysen wird daher ausschließlich mit dem eindimensionalen Ansatz unter Verwendung der angepassten Widerstandsbeiwerte gerechnet.

5.2 Einfluss der Stackgeometrie und der Betriebsparameter auf die Medienverteilung

Im Folgenden wird anhand einer Sensitivitätsanalyse der Einfluss einer Variation der Stackgeometrie und der Betriebsparameter auf die Volumenstromverteilung untersucht. Am Beispiel eines Basisfalls wird die Auslegung der Manifolds bezüglich der Medienverteilung und der benötigten Manifoldsfläche optimiert. Zuvor wird der Einfluss einer ungleichmäßigen Volumenstromverteilung auf die flächenspezifische Leistung eines Brennstoffzellenstapels diskutiert.

Wie in Kapitel 2.3.3 erläutert, ist die Leistung einer Brennstoffzelle abhängig von dem Sauerstoffumsatz. Zur Bewertung der Auswirkungen eines ungleichmäßig verteilten Luftvolumenstroms wird daher die mittlere flächenspezifische Zelleistung für einen Brennstoffzellenstack mit

beliebiger Zellenanzahl untersucht. Die mittlere Zelleistung ist definiert als das Produkt aus der für alle Zellen konstanten Stromdichte und der mittleren Zellspannung. Die mittlere Zellspannung ergibt sich aus der Summe der Einzelzellspannungen dividiert durch die Zellenanzahl. Die Berechnungen erfolgen mit Hilfe des quasi eindimensionalen Ansatzes zur Modellierung einer PEFC (Q1D, Kapitel 2.2) für die beiden Betriebspunkte des in Kapitel 2.3.1 definierten Basisfalls. Für Betriebspunkt (1) und Betriebspunkt (2) werden unter konstanter Stromdichte und konstantem mittleren Stöchiometrikoeffizienten die Abhängigkeit der mittleren Zelleistung von dem Grad der Ungleichverteilung ermittelt. Die Berechnungen erfolgen unter der Annahme, dass der Volumenstrom linear vom Stapelein- zum Stapelaustritt über die einzelnen Zellen abfällt.

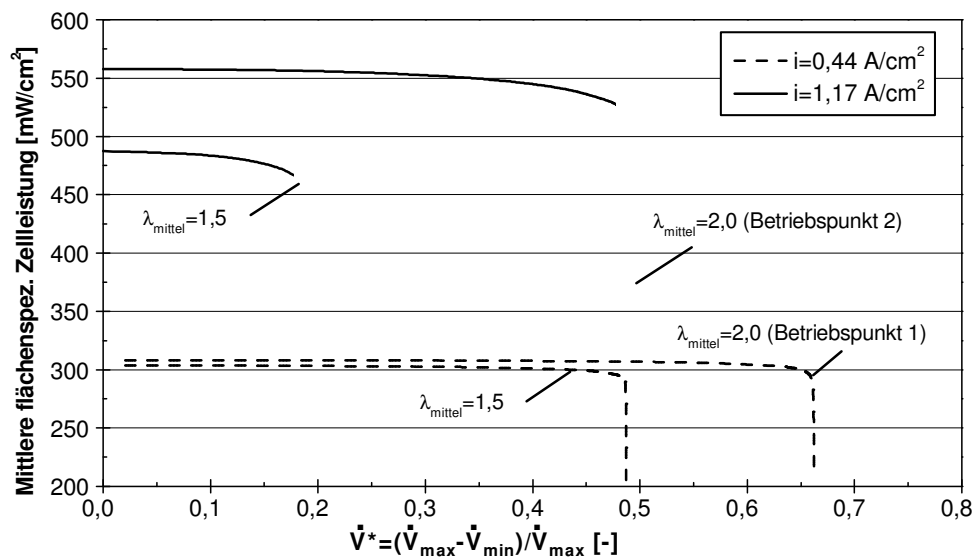


Bild 5.6: Flächenspezifische Zelleistung als Funktion des Grades der Ungleichverteilung für unterschiedliche Stromdichten und Sauerstoffstöchiometriekoeffizienten

Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Bild 5.6 dargestellt. Ebenfalls aufgetragen ist die Abhängigkeit der Zelleistung für einen über alle Zellen gemittelten Stöchiometrikoeffizienten von $\lambda_{\text{mittel}} = 1,5$. Über einen weiten Bereich von $\dot{V}^*$ wird die verringerte Leistung der unterversorgten Zellen durch die erhöhte Leistung der übertersorgten Zellen nahezu kompensiert. Da die Zellspannung mit steigendem Sauerstoffumsatz progressiv abfällt (siehe Kapitel 2.3.3), ist der Leistungsverlust des Zellstapels bei großen $\dot{V}^*$ stärker bemerkbar. Sobald die ersten Zellen im diffusionskontrollierten Bereich nahe der effektiven Grenzstromdichte arbeiten, fällt die Leistung des Zellstapels schlagartig ab. Wie zu erwarten ist, erfolgt dieser rapide Leistungsabfall bei kleinen Stromdichten später (bei stärkerer Ungleichverteilung), dafür aber abrupter als bei großen Stromdichten. Während im Betriebspunkt (1) der rapide Leistungsabfall bei circa $\dot{V}^* = 66\%$ liegt, kann schon ab einem Grad der Ungleichverteilung von $\dot{V}^* > 50\%$ die Stromdichte von $1,17 \text{ A/cm}^2$ des Betriebspunkts (2) nicht mehr erreicht werden. Für einen auf $\lambda_{\text{mittel}} = 1,5$ verringerten Stöchiometrikoeffizienten verschiebt sich diese Grenze zu $\dot{V}^* = 20\%$.

Bis zur Hälfte des maximal möglichen Grades der Ungleichverteilung ist in allen untersuchten Betriebspunkten der Leistungsverlust kleiner als 1 %.

Als Richtwert bei der Auslegung eines Zellstapels wird ein maximaler Grad der Ungleichverteilung von 5 % empfohlen. Wird der Zellstapel nicht unter extremen Betriebsbedingungen betrieben, ist für $V^* \leq 5\%$ im Auslegungspunkt davon auszugehen, dass in jedem Betriebspunkt der Leistungsverlust durch ungleichmäßig verteilte Medien weniger als 1 % beträgt. Außerdem lässt $V^* \leq 5\%$ erwarten, dass in jedem Betriebspunkt der Grad der Ungleichverteilung ausreichend weit von dem maximal möglichen Grad entfernt ist. Dies gilt auch, wenn sich die in den Berechnungen nicht berücksichtigten fertigungstechnischen Strömungsunterschiede zwischen den einzelnen Zellen (beziehungsweise zwischen den einzelnen Kanälen der Zellströmungsstruktur) zusätzlich negativ auf die Medienverteilung auswirken. Eine Medienverteilung mit $V^* \leq 5\%$ wird im Folgenden als homogene Verteilung bezeichnet.

Für die folgenden Betrachtungen wird ein aus 50 Einzelzellen bestehender Stapel als Referenz definiert. Die Referenzstromdichte beträgt $0,6 \text{ A/cm}^2$. Das Zelldesign entspricht dem in Kapitel 3.1 vorgestellten Mäanderdesign. Die für die Berechnungen der kathodenseitigen Medienverteilung relevanten Geometriedaten und Betriebsparameter sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. Die aufgelisteten Größen werden im Weiteren als Referenzwerte bezeichnet.

Tabelle 5.2: Geometriedaten und Betriebsparameter des Referenzstapels

Zellenanzahl	:	50	[-]
Betriebstemperatur	:	70	[°C]
Betriebsdruck	:	2	[bar]
Medium	:	gesättigte Luft	[-]
Gesamtmassenstrom	:	$5,8 \cdot 10^{-3}$ ($i=0,6 \text{ A/cm}^2$, $A_{Z, \text{aktiv}}=244 \text{ cm}^2$)	[kg/s]
Dichte	:	1,9	[kg/m ³]
Dyn. Viskosität	:	$1,9 \cdot 10^{-5}$	[kg/(m*s)]
Strömungsleitfähigkeit	:	$5,4 \cdot 10^{-8}$	[s*m ⁴ /kg]
Manifoldbreite	:	34	[mm]
Manifoldhöhe	:	16	[mm]
Zellenabstand	:	5	[mm]

Die in Tabelle 5.2 angegebene Strömungsleitfähigkeit ergibt sich aus der experimentell für das Mäanderdesign ermittelten Abhängigkeit des Druckverlusts vom Volumenstrom der befeuchteten Luft. Diese Abhängigkeit ist in Bild 5.7 dargestellt. Das Strömungsregime in den Zellen ist für den betrachteten Volumenstrombereich laminar. Aufgrund der zu dem quadrierten Volumenstrom proportionalen Druckverluste bei Strömungsumlenkungen ist der Verlauf der gezeigten Abhängigkeit nicht linear. Der Fehler bei der Druckverlustberechnung durch den linearen Ansatz nach Gleichung 5.10 ist bei einer Abweichung des Volumenstroms vom Referenzwert um $\pm 10\%$ kleiner als 4 %. Der Referenzwert der Strömungsleitfähigkeit von $Leit_z = 5,4 \cdot 10^{-8} \text{ s} \cdot \text{m}^4 / \text{kg}$ entspricht einem Zelldruckverlust von ungefähr 11 mbar.

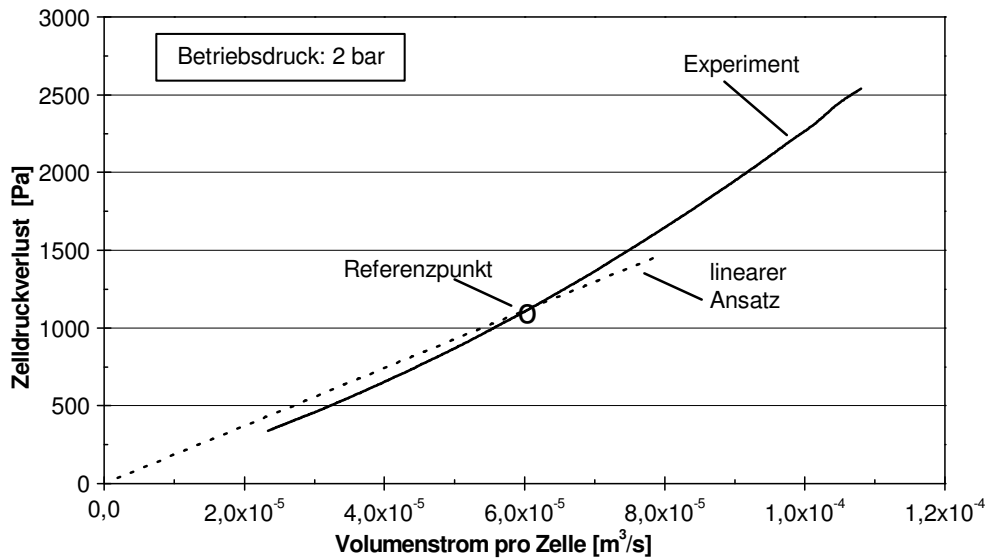


Bild 5.7: Druckverlust in einer Zelle als Funktion des Luftvolumenstroms (Dichte=1,9 kg/m³)

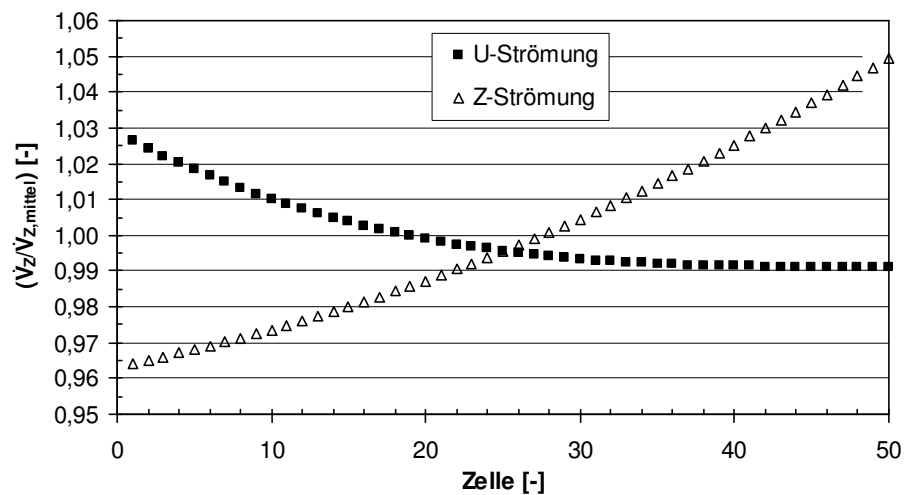


Bild 5.8: Vergleich des Verlaufs des normierten Volumenstroms über die Zellen für U- und Z-Strömung

In Bild 5.8 ist die Volumenstromverteilung im Referenzzellstapel für eine U- und Z-förmige Strömungsführung gegenübergestellt. Aufgetragen ist der normierte Volumenstrom ($V_Z / V_{Z, \text{mittel}}$) der einzelnen Zellen. Mit $V_{Z, \text{mittel}}$ ist der bei homogener Verteilung vorliegende Zellvolumenstrom bezeichnet. Bei Zelle 1 befindet sich der Eintritt des Luftstroms in den Stapel. Im Fall der U-förmigen Strömungsführung wird die erste Zelle am besten und die letzte Zelle am schlechtesten mit Reaktanden versorgt. Der Volumenstromunterschied zwischen diesen beiden Zellen beträgt 3,5 %. Der nach Gleichung 5.15 berechnete Grad der Ungleichverteilung beträgt $V^* = 3,4$ %. Damit liegt die Medienverteilung im Referenzdesign bei U-förmiger Strömungs-

führung unterhalb des geforderten Grenzwertes von $V^* = 5\%$. Bei der Z-Strömung liegt die Zelle mit dem geringsten Volumenstrom am Stapeleintritt. Der Grad der Ungleichverteilung beträgt $V^* = 8,1\%$. Unter den vorliegenden Betriebsbedingungen ist die maximale Volumenstromdifferenz im Zellstapel im Fall der Z-förmigen Strömung mehr als doppelt so groß wie bei der U-Strömung. Aufgrund der gleichmäßigeren Medienverteilung wird für die weiteren Untersuchungen die U-förmige Strömungsführung im Stapel ausgewählt.

Die folgende Sensitivitätsanalyse untersucht den Einfluss der Variation der Betriebsparameter und der Stackgeometrie auf die Volumenstromverteilung. Bei allen Untersuchungen entspricht die Geometrie des Verteilerkanals der des Sammlerkanals. Der Zellstapel wird U-förmig durchströmt. Analysiert werden die Einflüsse der Änderungen der Zellenanzahl, des Gesamtmassenstroms, der Strömungsleitfähigkeit, der dynamischen Viskosität, der Manifoldbreite und -höhe, des Kanalseitenverhältnisses, der Manifoldfläche und des Abstandes zwischen zwei Zellen. Die Parameter variieren jeweils einzeln um $\pm \frac{1}{3}$ des Wertes des Referenzstapels (siehe Tabelle 5.2). Die Ergebnisse der Analyse sind graphisch in Bild 5.9 zusammengestellt. Die Berechnung unter Referenzbedingungen ist durch die gestrichelte Linie in den Diagrammen gekennzeichnet. In diesem Punkt beträgt der Grad der Ungleichverteilung 3,4 %.

Eine Erhöhung der Zellenanzahl im Stapel behindert ebenso wie ein erhöhter Massenstrom die Medienverteilung. Die Abhängigkeit des Grades der Ungleichverteilung von dem Massenstrom kann in dem betrachteten Bereich als linear angesehen werden. Eine Verdoppelung des Massenstroms führt überschlägig zu einem verdoppelten V^* .

Eine verringerte Strömungsleitfähigkeit bedingt einen erhöhten Druckabfall in den Zellen. Da der Gesamtmassenstrom konstant bleibt, wird das Verhältnis der Druckverluste in den Zellen zu denen in den Manifolds zugunsten der Zelldruckverluste verschoben. Dies schlägt sich in einer gleichmäßigeren Medienverteilung nieder. Der Verlauf der Abhängigkeit lässt sich durch eine Regressionsgerade der Steigung 0,6 beschreiben.

Der Einfluss der dynamischen Viskosität auf die Verteilung ist in dem variierten Bereich vernachlässigbar.

Der Verlauf des Grades der Ungleichverteilung verhält sich bei der Änderung der Manifoldbreite und -höhe ähnlich. Eine um 66 % des Referenzwertes verringerte Kanalseitenabmessung lässt die Ungleichmäßigkeit der Medienverteilung auf einen Wert von $V^* \approx 25\%$ ansteigen.

Bei der Variation des Seitenverhältnisses von Kanalbreite zu Kanalhöhe ist die Manifoldfläche konstant. Entspricht die Kanalbreite der Kanalhöhe wird der Grad der Ungleichverteilung minimal. Dem Diagramm kann entnommen werden, dass das Seitenverhältnis der Kanäle einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Verteilung hat. Dies kommt der Zellenauslegung zugute, da durch die freie Wahl der Manifoldgeometrie der Bauraum der Bipolarplatten optimal genutzt werden kann.

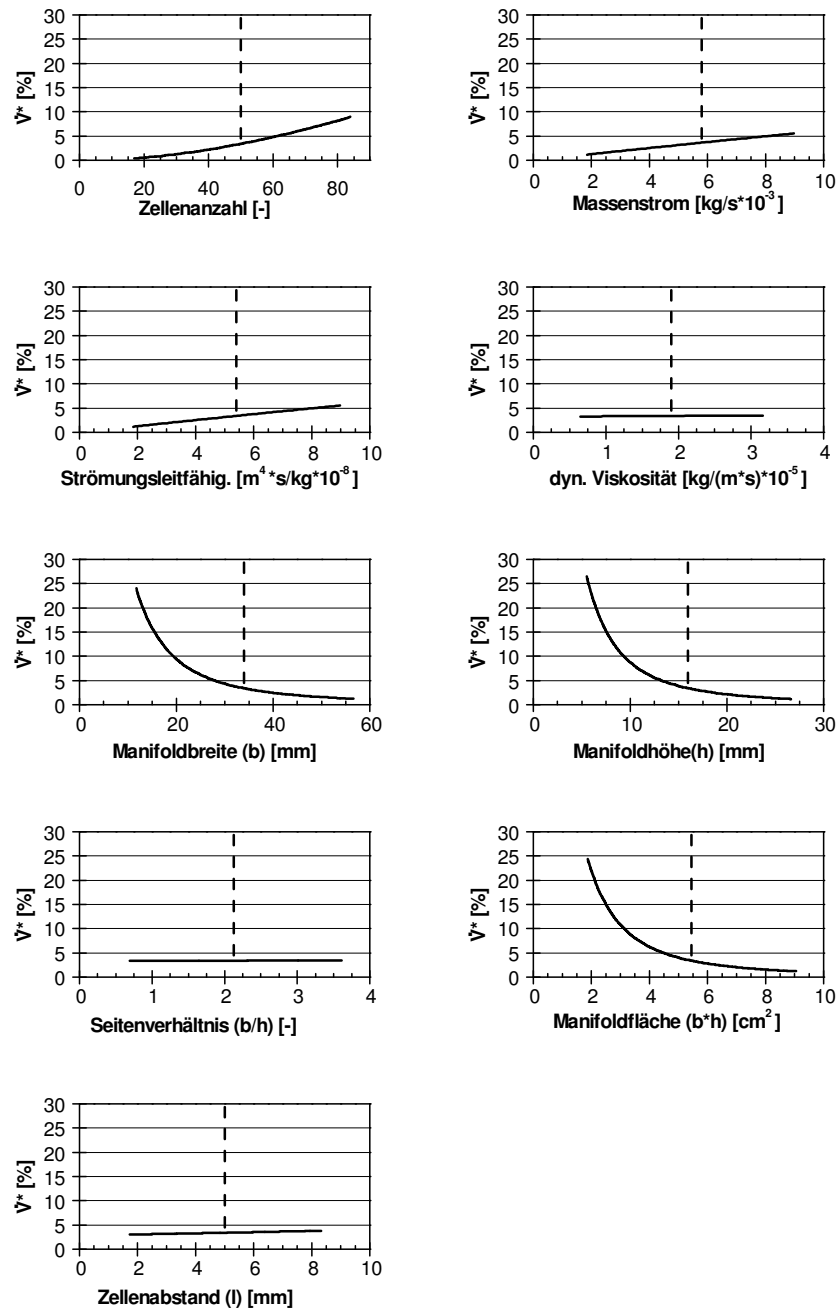


Bild 5.9: Sensitivitätsanalyse der Einflussgrößen auf die Medienverteilung im Zellstapel

Wie die Ergebnisse der Variation von Kanalbreite und -höhe vermuten lassen, hat die Änderung der Manifoldfläche einen vergleichbar großen Einfluss auf die Medienverteilung. Bei der Berechnung ist das Seitenverhältnis entsprechend dem des Referenzdesigns konstant. Bei einer Verringerung der Kanalfächen des Referenzdesigns um 66 % steigt V^* um 21 Prozentpunkte auf 24,4 %, während eine 66 %-ige Vergrößerung zu einer Verbesserung um 2 Prozentpunkte führt.

Der Abstand zwischen zwei Zellen hat einen unwesentlichen Einfluss auf die Medienverteilung. In dem betrachteten Variationsbereich beträgt die Änderung des Grades der Ungleichverteilung weniger als 1 Prozentpunkt.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass ein im Vergleich zu den Druckverlusten in den Manifolds hoher Zelldruckverlust eine gleichmäßige Medienverteilung im Stack bewirkt. Somit kann die Medienverteilung effektiv entweder durch eine geringe Strömungsleitfähigkeit in den Zellen oder durch eine große Manifoldfläche homogenisiert werden. Da die Strömungsleitfähigkeit gewöhnlich durch eine Optimierung der Zellströmungsstruktur vorgegeben ist und bezüglich des Gesamtsystemwirkungsgrades möglichst gering sein sollte, erfolgt die Bestimmung der Medienverteilung durch die Wahl der Manifoldgeometrie.

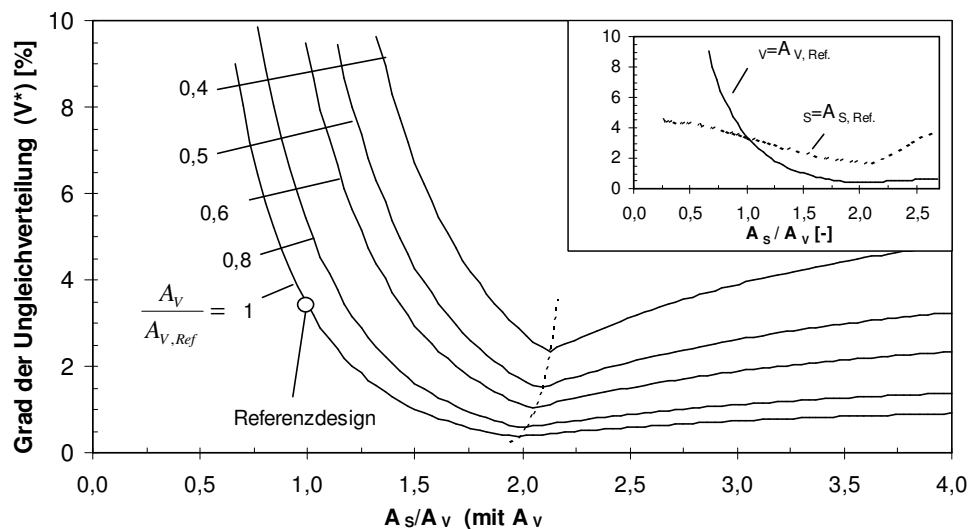


Bild 5.10: Grad der Ungleichverteilung als Funktion des Manifoldflächenverhältnisses

Alle bisherigen Betrachtungen gehen von einer identischen Verteiler- und Sammlerkanalgeometrie aus. Die Medienverteilung kann neben den in der Sensitivitätsanalyse identifizierten Parametern auch stark durch das Flächenverhältnis der beiden Manifolds zueinander beeinflusst werden. Das in Bild 5.10 eingefügte Diagramm zeigt, wie die Medienverteilung in dem U-förmig durchströmten Zellstapel von dem Flächenverhältnis abhängt. Das Flächenverhältnis wird variiert, während entweder die Verteiler- oder die Sammlerkanalgeometrie der des Referenzmanifolds entspricht. Das Referenzdesign befindet sich bei dem Kanalfächenverhältnis

von 1. Auffällig ist, dass der Grad der Ungleichverteilung im Wesentlichen durch die Fläche des Sammlerkanales bestimmt wird. Dies bestätigt auch eine theoretische Betrachtung in [83]. Das Flächenverhältnis wird daher bei konstanter Verteilerkanalfläche variiert. Im großen Diagramm in Bild 5.10 sind zusätzlich die Abhängigkeiten für unterschiedliche Verteilerkanalflächen aufgetragen. Bei der U-Strömung wird für gleich große Manifolds die erste Zelle im Stapel am besten mit Reaktanden versorgt. Verschiebt sich das Verhältnis der Manifoldflächen zugunsten einer größeren Sammlerkanalfläche liegt am Stapelende der höchste Zellvolumenstrom vor. Der Punkt des geringsten V^* zeichnet sich dadurch aus, dass der Zellvolumenstrom für die erste und letzte Zelle des Stapels gleich ist und im Mittelbereich des Stapels der minimale Zellvolumenstrom auftritt. Dieser Punkt des minimalen Grades der Ungleichverteilung liegt bei den aufgetragenen Verläufen bei einem Flächenverhältnis von $A_s / A_v = 2$. Die Minima der einzelnen Verläufe in Bild 5.10 lassen sich durch eine potentielle Regressionsfunktion (strichpunktierte Linie) beschreiben. Es zeigt sich, dass sich der minimale Grad der Ungleichverteilung mit geringer werdender Manifoldfläche zu einem geringfügig größeren Manifoldflächenverhältnis verschiebt. Diese Ergebnisse bestätigen den Richtwert, die Fläche des Verteilerkanals halb so groß wie die des Sammlerkanaals auszuführen, um die gleichmäßigste Verteilung zu erhalten [85, 95]. Am Beispiel des Referenzdesigns zeigt sich, dass ein verändertes Manifoldflächenverhältnis eine Verringerung des Grades der Ungleichverteilung um bis zu 90 % ermöglicht. Dies geht allerdings mit einer Vergrößerung der Summe aus Verteiler- und Sammlerkanalfläche um circa 50 % einher.

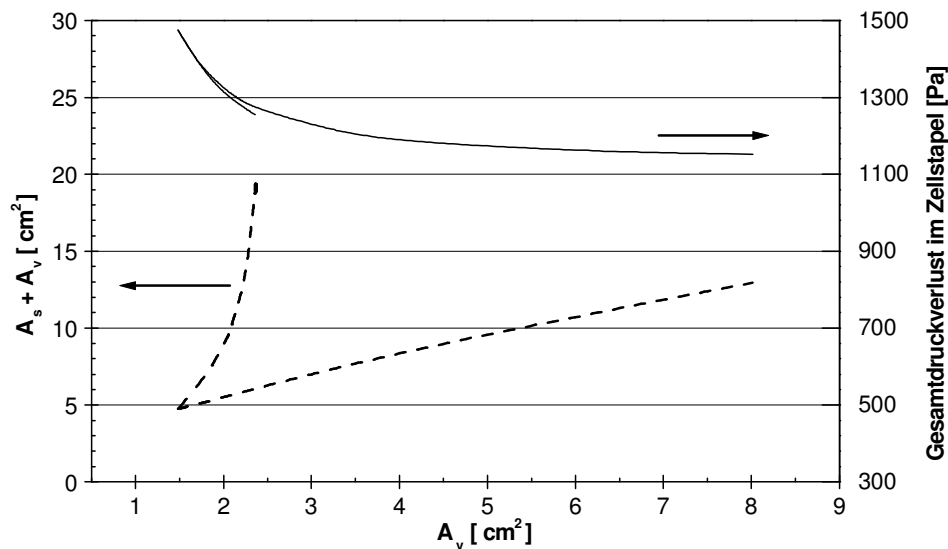


Bild 5.11: Bestimmung der minimalen Manifoldfläche für $V^* = 5\%$

Eine Brennstoffzelle beziehungsweise eine Bipolarplatte unterteilt sich in eine elektrochemisch aktive Fläche, eine Dichtfläche und eine Querschnittfläche der Manifolds. Ein optimiertes Leistungsvolumen erfordert eine minimierte Dicht- und Manifoldfläche. Für einen geforderten maximalen Grad der Ungleichverteilung von $V^* = 5\%$ wird in Bild 5.11 die minimale Manifoldfläche

unter Referenzbedingungen ermittelt. Die Manifoldfläche versteht sich in diesem Fall als die Summe der Flächen eines Verteiler- und eines Sammlerkanals. Der Verlauf der Abhängigkeit entsteht unter Variation der Verteiler- und Sammlerkanalfläche. Das Seitenverhältnis aus Breite und Höhe der Kanäle ist konstant und entspricht dem des Referenzdesigns. Der Einfluss eines variierenden Seitenverhältnisses auf die Ergebnisse kann als vernachlässigbar angesehen werden. Ebenfalls ist in Bild 5.11 der Gesamtdruckverlust in dem Zellstapel aufgetragen. Wie in Bild 5.10 gezeigt, kann durch unterschiedliche Flächenverhältnisse (A_s / A_v) der gleiche Grad der Ungleichverteilung erzielt werden. Dies erklärt die beiden Äste des Verlaufs in Bild 5.11. Beide Äste treffen sich in dem Punkt, in dem der Verlauf des Grades der Ungleichverteilung in Abhängigkeit des Flächenverhältnisses sein Minimum bei $V^* = 5\%$ erreicht. Dieser Punkt kann ebenfalls durch Extrapolation der potentiellen Regressionsfunktion der Minima aus Bild 5.10 ermittelt werden. Bezogen auf das Referenzdesign kann in diesem Auslegungspunkt die Manifoldfläche um mehr als 50 % verringert werden. Bedingt durch die kleineren Manifolds erhöht sich der Gesamtdruckverlust in dem Zellstapel um 3 mbar auf knapp 15 mbar. Da sich diese Zunahme des Druckverlustes um ungefähr 30 % auf einem geringen Absolutniveau vollzieht, überwiegen die Vorteile der geringeren Manifoldfläche bei Weitem. Sollte bei der Konstruktion nicht der Punkt der minimalen Manifoldfläche gewählt werden, so ist bei gleicher Gesamtfläche der untere Ast aus Bild 5.11 vorzuziehen. Dort reagiert der Zellstapel bei Änderung des Massenstroms bezüglich V^* weniger sensibel.

5.3 Kennzahlenbasierte Beschreibung der Medienverteilung

Im Folgenden wird ein Werkzeug entwickelt, welches bereits in der Grobauslegungsphase eines Brennstoffzellenstapels mit geringem Rechenaufwand Aussagen über die zu erwartende Medienverteilung zulässt. Dazu werden die Berechnungsvorschriften des 1D-Ansatzes in eine dimensionslose Form überführt. Die dimensionslose Formulierung erlaubt, den Grad der Ungleichverteilung in einem Zellstapel in verallgemeinerter Form mittels dimensionsloser Kennzahlen zu bestimmen. Diese Kennzahlen ergeben sich aus den Betriebsparametern und Geometriedaten des entsprechenden Anwendungsfalls. Die allgemeingültigen Ergebnisse werden für ausgewählte Anwendungsfälle in graphischer Form in Abhängigkeit dieser Kennzahlen präsentiert. Am Ende des Kapitels wird eine analytische Formel vorgestellt, die über einen weiten Bereich der Einflussgrößen Aufschluss darüber gibt, ob der Grad der Ungleichverteilung in einem Zellstapel über oder unter dem Grenzwert $V^* = 5\%$ liegt.

5.3.1 Definition dimensionsloser Kennzahlen

Zur Verallgemeinerung der Berechnung der Medienverteilung werden die in Kapitel 5.1.1 beschriebenen Gleichungen in dimensionsloser Form formuliert. Die kennzahlenbasierte Beschreibung ist im Weiteren auf den Fall identischer Verteiler- und Sammlerkanalgeometrie ($A_v = A_s$) beschränkt. Die Betrachtung kann prinzipiell auf eine zwischen Verteiler- und Samm-

lerkanal unterschiedliche Geometrie ausgeweitet werden. Allerdings erschwert die steigende Anzahl an Kennzahlen eine graphische Aufbereitung der Ergebnisse.

Folgende dimensionslose Variablen werden eingeführt:

$$\hat{V}_i = \frac{u_i \cdot A_j}{\dot{V}_0} \quad \text{mit} \quad \dot{V}_0 = \frac{\dot{m}_{ges}}{\rho} = u_0 \cdot A_V; \quad i = 1 \dots (4 \cdot N_Z + 2); \quad j = \text{Manifold, Zelle} \quad \text{Gl. 5.16}$$

$$\hat{p}_{ges,i} = \frac{p_i + \frac{\rho}{2} \cdot u_i^2}{\frac{\rho}{2} \cdot \frac{\dot{V}_0^2}{A_V^2}} \quad \text{Gl. 5.17}$$

Die Gleichungen 5.16 und 5.17 beschreiben den dimensionslosen Volumenstrom beziehungsweise den dimensionslosen Gesamtdruck an einem Knotenpunkt (siehe Bild 5.2). Der Referenzvolumenstrom $\dot{V}_0$ entspricht dem Volumenstrom am Stapeleintritt. N_Z bezeichnet die Anzahl der Einzelzellen im Zellstapel. Der Referenzdruck im Nenner der Gleichung 5.17 entspricht dem dynamischen Druck am Stapeleintritt. Mit Hilfe der beiden dimensionslosen Variablen wird das gesamte Gleichungssystem in eine dimensionslose Form überführt. Exemplarisch sind die Gleichungen 5.2, 5.5 und 5.10 in dimensionsloser Form angegeben.

$$\hat{V}_1 - \hat{V}_3 - \hat{V}_5 = 0 \quad \text{Gl. 5.18}$$

Gleichung 5.18 zeigt die dimensionslose Kontinuitätsgleichung. Außer den dimensionslosen Variablen sind keine weiteren Einflussgrößen enthalten. Die erweiterte Bernoullische Gleichung (Gleichung 5.5) lautet in dimensionsloser Schreibweise

$$\hat{p}_{ges,1} - \hat{p}_{ges,3} - \hat{V}_1^2 \cdot \left[\left(\varphi \cdot \frac{64 \cdot l}{\text{Re}_0 \cdot d_{hyd,V}} \right)^4 \cdot \left(\frac{1}{\hat{V}_1} \right)^4 + \frac{0,3164^4}{\text{Re}_0} \cdot \left(\frac{l}{d_{hyd,V}} \right)^4 \cdot \left(\frac{1}{\hat{V}_1} \right)^{0,25} \right] - \hat{V}_1^2 \left[f_{V,ab} \left(\frac{\hat{V}_3}{\hat{V}_1} \right) \right] = 0 \quad \text{mit} \quad \text{Re}_0 = \frac{\dot{m}_{ges} \cdot d_{hyd,V}}{A_V \cdot \mu} \quad \text{Gl. 5.19}$$

Die Berechnung des Druckverlusts in den Einzelzellen nach Gleichung 5.10 wird umgeformt zu

$$(\hat{p}_{ges,3} - \hat{p}_{ges,4}) \cdot \left[\text{Leit}_Z \cdot \frac{\dot{m}_{ges}}{2 \cdot A_V^2} \right] - \hat{V}_3 = 0 \quad \text{Gl. 5.20}$$

Die Gleichungen des gesamten Gleichungssystems beinhalten drei unterschiedliche dimensionslose Kennzahlen. In den Gleichungen 5.19 und 5.20 sind diese Kennzahlen mit einer gestrichelten Linie umrandet. Unter Vernachlässigung der konstanten Faktoren lauten die Kennzahlen Π_i :

$$\text{Kennzahl 1: } \Pi_1 := \frac{A_V^2}{\dot{m}_{ges} \cdot \text{Leit}_Z} = \frac{\dot{V}_0}{\rho \cdot u_0^2 \cdot \text{Leit}_Z} \quad \text{Gl. 5.21}$$

$$\text{Kennzahl 2: } \Pi_2 := \text{Re}_0 \cdot \frac{d_{\text{hyd}}}{l} \cdot \frac{1}{\varphi} \quad \text{Gl. 5.22}$$

$$\text{Kennzahl 3: } \Pi_3 := \text{Re}_0 \cdot \left(\frac{d_{\text{hyd}}}{l} \right)^4 = \left(\sqrt[4]{\text{Re}_0} \cdot \frac{d_{\text{hyd}}}{l} \right)^4 \quad \text{Gl. 5.23}$$

In diesen Kennzahlen sind folgende Einflussgrößen enthalten: Gesamtmassenstrom (m_{ges}), Strömungsleitfähigkeit der Zelle (Leit_z), dynamische Viskosität (η), Manifoldbreite und -höhe (b, h), Zellabstand (l). Die Wahl der dimensionslosen Variablen (Gleichung 5.16, 5.17) offenbart, dass die durchströmte Querschnittsfläche einer Einzelzelle (A_z) keine Einflussgröße bei der Berechnung der Volumenstromverteilung darstellt.

Eine verallgemeinerte Berechnung der Medienverteilung in einem Zellstapel ist nur möglich, wenn die geometrische Ähnlichkeit der untersuchten Stapel gewährleistet ist [96]. Die geometrische Ähnlichkeit erfordert, dass die zu vergleichenden Stapel dieselbe Anzahl an Einzelzellen besitzen. Als vierte Kennzahl wird daher eingeführt:

$$\text{Kennzahl 4: } \Pi_4 := N_z \quad \text{Gl. 5.24}$$

Die Bedeutung der vier Kennzahlen ist im Folgenden noch einmal zusammengefasst:

- 1 beschreibt das Verhältnis aus Volumenstrom und Druckverlust in einer Zelle und ist somit ein Maß für die bei der Durchströmung der Zelle auftretenden Druckverluste. Eine
 führen zu einem höheren Zellvolumenstrom bei geringerem Druckverlust, während ein höherer Gesamtvolumenstrom im Stapel dieses Verhältnis verschlechtert.
- 2 leitet sich aus dem Anteil der durch laminare Reibungseffekte verursachten Druckverluste
 zur „Streckung“ der Strömungsleitung zwischen zwei Zellen (d_{hyd}/l) und direkt proportional zum Beiwert, der den nicht-kreisförmigen Mani
 Große Reynoldszahlen, insbesondere eine geringe Viskosität des Fluids, und kurze Zellabstände bei großen Manifoldquerschnittsflächen verringern die Druckverluste
- 3 beschreibt den Anteil der durch turbulente Effekte verursachten Druckverluste. Wieder
 sind die Verluste umgekehrt proportional zum Verhältnis der Manifoldquerschnittsfläche zum Zellabstand. Gemäß der Theorie turbulenter Rohrströmungen sind die turbulenten Druckverluste umgekehrt proportional zur vierten Wurzel der Reynoldszahl.
- 4 gewährleistet die geometrische Ähnlichkeit der Zellstapel

Ähnlichkeit unterschiedlicher Systeme liegt vor, wenn alle vier ermittelten dimensionslosen Kennzahlen identisch sind. Für den Grad der Ungleichverteilung ergibt sich

$$\dot{V}^* = \frac{\dot{V}_{\text{max}} - \dot{V}_{\text{min}}}{\dot{V}_{\text{max}}} = \frac{\hat{V}_{\text{max}} - \hat{V}_{\text{min}}}{\hat{V}_{\text{max}}} \quad \text{mit} \quad \hat{V}_{\text{max/min}} = f(\Pi_1, \Pi_2, \Pi_3, \Pi_4) \quad \text{Gl. 5.25}$$

5.3.2 Ergebnisse der kennzahlenbasierten Betrachtung

Das Gleichungssystem in dimensionsloser Form wird für verschiedene Kombinationen der Einflussgrößen über einen weiten Bereich der Kennzahlen gelöst. Die verallgemeinerten Ergebnisse für den Grad der Ungleichverteilung werden als Funktion der Kennzahlen Π_1 und Π_2 aufgetragen. Die Kennzahlen Π_3 und Π_4 sind in den Darstellungen entsprechend konstant. Bei Kenntnis der zur Bildung der Kennzahlen benötigten Einflussparameter kann mit Hilfe der Diagramme direkt auf den zu erwartenden Grad der Ungleichverteilung in einem beliebigen Zellstapel geschlossen werden.

Für einen aus 50 Zellen bestehenden Stapel ($\Pi_4=50$) sind in Bild 5.12 die Verläufe für unterschiedliche Ungleichverteilungen V^* abgebildet. Wie in der Literatur üblich, ist die implizit die Euler-Zahl enthaltende Kennzahl Π_1 über der von der Reynolds-Zahl abhängigen Kennzahl Π_2 aufgetragen. Die den Rechnungen zugrunde liegende Kennzahl Π_3 hat den für Brennstoffzellenanwendungen realistischen Wert von $\Pi_3=10^7$. Nach Gleichung 5.23 ergibt sich der Wert $\Pi_3=10^7$ beispielsweise für einen Zellstapel mit einem hydraulischen Manifolddurchmesser von $d_{hyd}=20$ mm, einem Zellenabstand von $l=4$ mm und einer Reynoldszahl am Stapeleintritt von $Re_0=16000$.

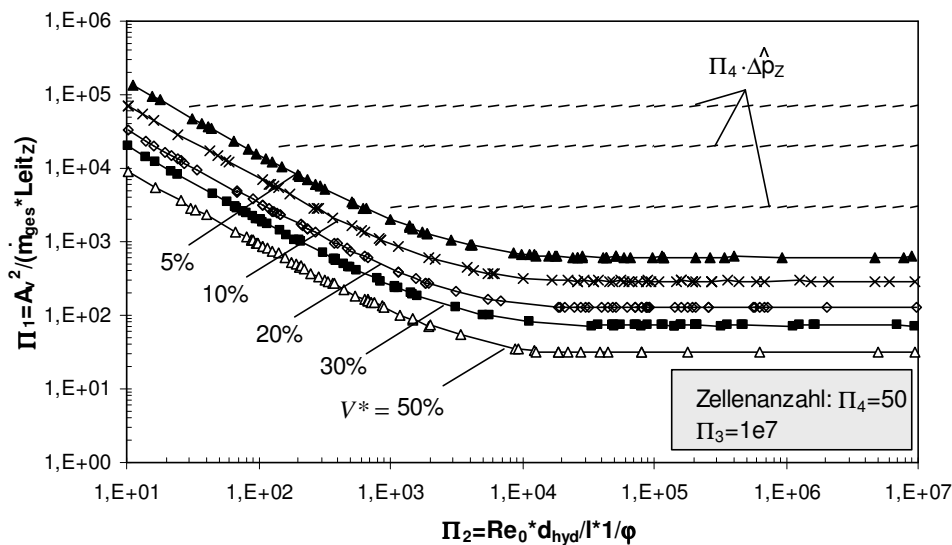


Bild 5.12: Kurven konstanter Ungleichverteilung im Π_1 - Π_2 -Diagramm für einen aus 50 Zellen bestehenden Stapel (Kennzahl $\Pi_3 = 10^7$)

Der hyperbelförmige Verlauf der Kurven zeigt, dass die Medienverteilung ungleichmäßiger wird, wenn bei konstanter Kennzahl Π_2 die Kennzahl Π_1 verringert wird. Oberhalb der Kurve $V^*=5\%$ liegt das Gebiet der homogenen Reaktandenverteilung ($V_z = m_{ges} / (\rho \cdot N_z)$).

Der dimensionslose Druckverlust in den Zellen ist definiert als:

$$\Delta \hat{p}_z = \frac{\Delta p_z}{\rho \cdot \frac{\dot{V}_0^2}{A_v^2}} \quad \text{Gl. 5.26}$$

Unter Verwendung von Gleichung 5.10 zeigt sich, dass der dimensionslose Druckverlust bei homogener Verteilung proportional zu der Kennzahl Π_1 ist:

$$\Delta \hat{p}_z = \frac{\Delta p_z}{\rho \cdot \frac{\dot{V}_0^2}{A_v^2}} = \frac{\frac{m_{ges}}{(\rho \cdot N_z) \cdot Leit_z}}{\rho \cdot \frac{\dot{V}_0^2}{A_v^2}} = \frac{A_v^2}{N_z \cdot \dot{m}_{ges} \cdot Leit_z} = \frac{1}{N_z} \cdot \Pi_1 \quad \text{Gl. 5.27}$$

In dem Gebiet der homogenen Reaktandenverteilung ist der dimensionslose Druckverlust in den Zellen $\hat{p}_z$ für alle Zellen gleich groß. In Bild 5.12 sind in diesem Gebiet Kurven gleichen Zelldruckverlustes durch gestrichelte Linien dargestellt.

Neben dem Druckverlust in den Zellen ist bei der Auslegung eines Zellstapels der zu erwartende Gesamtdruckverlust von Interesse. Für den dimensionslosen Gesamtdruckverlust gilt

$$\Delta \hat{p}_{ges} = \frac{p_{ges}}{\rho \cdot \frac{\dot{V}_0^2}{A_v^2}} \quad \text{Gl. 5.28}$$

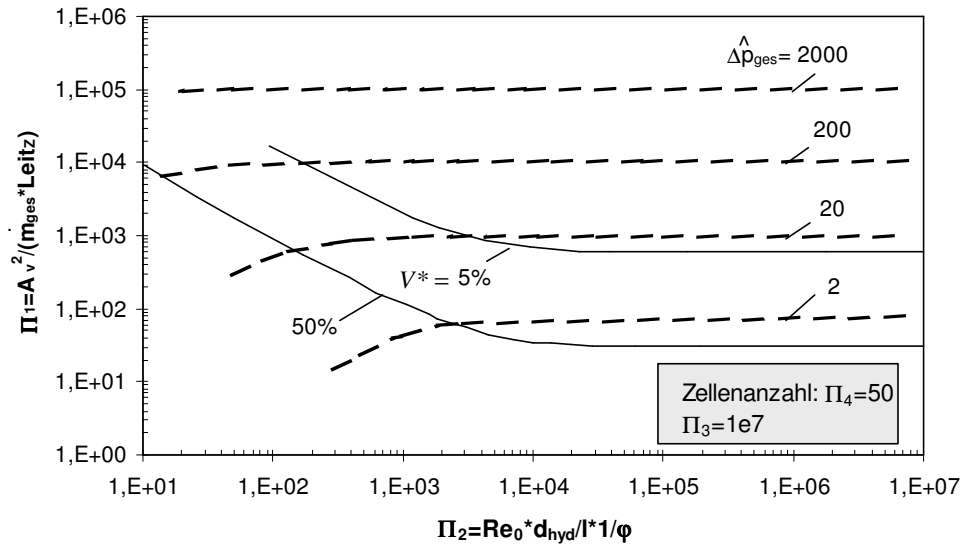


Bild 5.13: Dimensionsloser Gesamtdruckverlust im Π_1 - Π_2 -Diagramm

Der Gesamtdruckverlust p_{ges} in dem Zellstapel ergibt sich aus der Differenz des Drucks am Stapeleintritt und -austritt. In Bild 5.13 ist der dimensionslose Gesamtdruckverlust für U-förmig durchströmte Zellstapel im Π_1 - Π_2 -Diagramm dargestellt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit werden die einzelnen Berechnungspunkte nicht mehr dargestellt, sondern nur die sie verbindenden Linien gezeigt.

In Kapitel 5.2, Seite 97, ist definiert worden, dass eine homogene Medienverteilung vorliegt, wenn $V^* \leq 5\%$ ist. Die Auslegung eines Brennstoffzellenstapels sollte daher in der Nähe des Verlaufs der Kurve $V^* = 5\%$ erfolgen. Um einen geringen Gesamtdruckverlust in dem Zellstapel zu realisieren, sollte die Kennzahl Π_1 so klein wie möglich sein. Eine kleine Manifoldfläche stellt sich bei kleinen Werten der Kennzahl Π_2 ein. Aus diesen Überlegungen folgt, dass sich der optimale Auslegungspunkt an der Stelle befindet, an der die Kurve $V^* = 5\%$ in den horizontalen Verlauf übergeht.

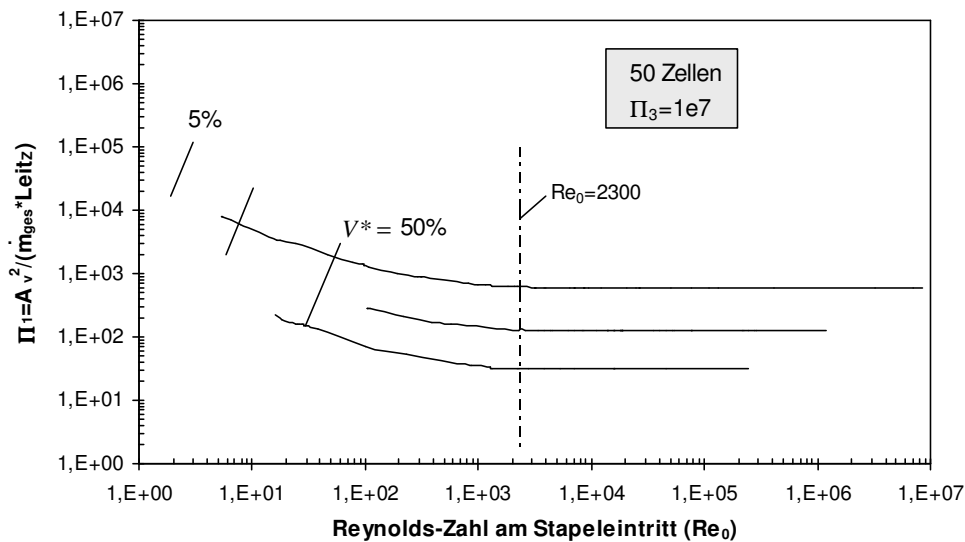


Bild 5.14: Abhängigkeit der Kennzahl Π_1 von der Reynolds-Zahl für verschiedene Grade der Ungleichverteilungen V^*

Dem Kurvenverlauf in Bild 5.13 ist zu entnehmen, dass bei konstantem Grad der Ungleichverteilung die die Euler-Zahl enthaltende Kennzahl Π_1 ab einem bestimmten Wert von Π_2 keine Funktion mehr von Π_2 ist. Der Verlauf legt die Vermutung nahe, dass das beschriebene Verhalten mit der Reynolds-Zahl, insbesondere dem Übergang von laminarer zu turbulenter Strömung im Eintrittsbereich des Stapels, zusammenhängt. In Bild 5.14 ist die Kennzahl Π_1 als Funktion der Reynolds-Zahl bei konstantem Grad der Ungleichverteilung aufgetragen. Die obige Vermutung wird durch Bild 5.14 bestätigt. Das von Kennzahl Π_2 entkoppelte Verhalten tritt im Übergangsbereich von dem laminaren in das turbulente Strömungsregime am Stapeleintritt auf ($Re_0 \approx 2300$). Zu erkennen ist, dass sich mit steigendem Grad der Ungleichverteilung der Beginn der Entkopplung zu einer geringeren Reynolds-Zahl verschiebt.

Bei konstanter Kennzahl Π_3 ($\Pi_3 = 10^7$) ist in Bild 5.15 die Abhängigkeit der Kurven konstanter Ungleichverteilung mit $V^* = 5\%$ von der Anzahl der Zellen im Stapel aufgetragen. Die Verläufe dieser Kurven verschieben sich mit größer werdender Zellenanzahl nahezu parallel zu höheren Werten der Kennzahl Π_1 . Dies bedeutet, dass bei identischen Kennzahlen Π_1 und Π_2 der Stack mit der größeren Zellenanzahl eine ungleichmäßigere Medienverteilung aufweist. Dieser Einfluss ist bereits in der Sensitivitätsanalyse in Kapitel 5.2 identifiziert worden.

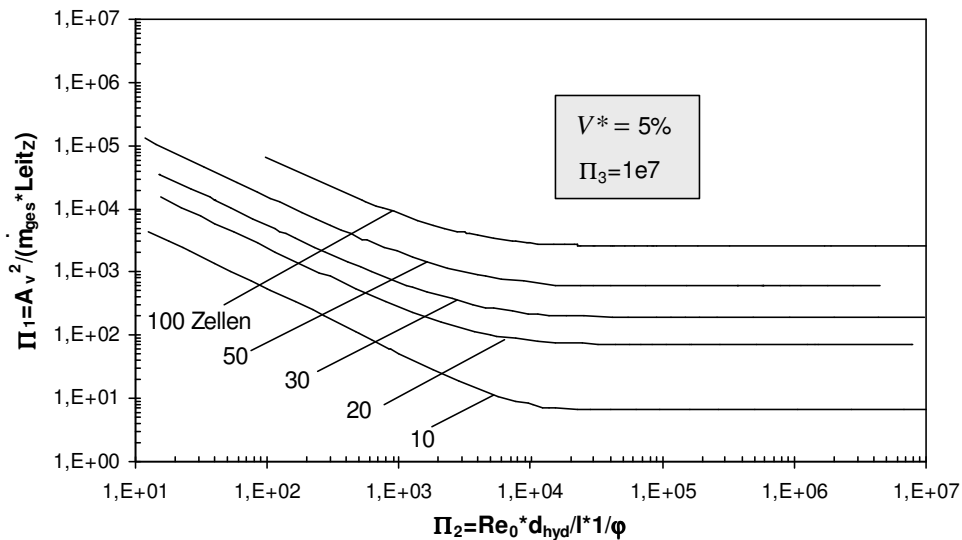


Bild 5.15: Kurven konstanter Ungleichverteilung ($V^* = 5\%$) im Π_1 - Π_2 -Diagramm für Stapel mit unterschiedlicher Zellenanzahl

Für zwei ausgewählte Zellenanzahlen, 20 und 50 Zellen, sind in Bild 5.16 Kurven konstanter Ungleichverteilung mit $V^* = 5\%$ für unterschiedliche Werte der Kennzahl Π_3 dargestellt. Die Kennzahl Π_3 wird in dem für Brennstoffzellenanwendungen realistischen Bereich $\Pi_3 = 10^5 - 10^9$ variiert. Der linear abfallende Teil der Kurven stellt sich als unabhängig von der Kennzahl Π_3 heraus. Der Punkt, an dem die Kurven gleicher Ungleichverteilung in den horizontalen Verlauf übergehen, verschiebt sich mit steigender Kennzahl Π_3 zu größeren Werten der Kennzahl Π_1 . Insgesamt kann die Abhängigkeit der Kurvenverläufe von der Kennzahl Π_3 als gering eingestuft werden.

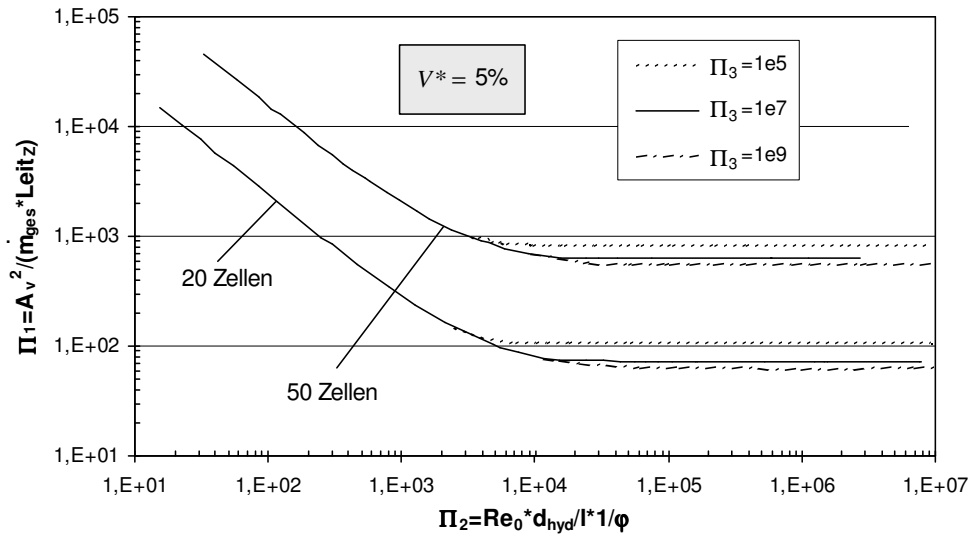


Bild 5.16: Verlauf der Kurven konstanter Ungleichverteilung mit $V^* = 5\%$ in Abhängigkeit der Kennzahl Π_3 für zwei verschiedene Zellenanzahlen

Bezüglich der Z-förmigen Strömungsführung stellt sich ein zu der U-Strömung qualitativ ähnlicher Verlauf der Abhängigkeiten von V^* ein. Im Anhang ist in Bild 13.2 für einen aus 50 Zellen bestehenden Stapel der Verlauf unterschiedlicher Grade der Ungleichverteilung gezeigt. Bei der Z-Strömung ist die Abhängigkeit des Grades der Ungleichverteilung von der Kennzahl Π_3 vernachlässigbar. Ebenso ist die Abhängigkeit des Verlaufes von V^* von der Zellenanzahl N_Z vernachlässigbar, wenn Π_1 / N_Z über Π_2 / N_Z aufgetragen wird. Bild 13.3 zeigt für die Z-förmige Strömungsführung den Verlauf des dimensionslosen Gesamtdruckverlustes im Π_1 - Π_2 -Diagramm.

In Bild 5.17 sind die Verläufe von $V^* = 5\%$ im Π_1 - Π_2 -Diagramm für den U- und Z-förmig durchströmten Zellstapel mit 50 Zellen gegenübergestellt. Der Vergleich zeigt, dass die Kurven zwar zueinander verschoben, in ihrem Verlauf ansonsten aber nahezu deckungsgleich sind. Der Verlauf der Kurve ist bei der Z-Strömung parallel zu einem größeren Wert der Kennzahl Π_1 und einem kleineren Wert der Kennzahl Π_2 im Vergleich zur U-Strömung verschoben. Dies erklärt den Unterschied im Grad der Verteilung zwischen den beiden Strömungsführungen bei gleichen Kennzahlen. In Bild 5.17 kennzeichnet die strichpunktierte Linie den Wert der Kennzahl Π_2 ($\Pi_2 = 1500$), bei dem sich die Verläufe der Kurven für beide Strömungsführungen schneiden. Sind alle Kennzahlen identisch, ist in dem Gebiet links der Linie der Grad der Ungleichverteilung für einen Z-förmig durchströmten Zellstapel geringer als für einen U-förmig durchströmten. In dem Gebiet rechts der Linie ist entsprechend die U-förmige Strömungsführung aufgrund der besseren Medienverteilung zu bevorzugen.

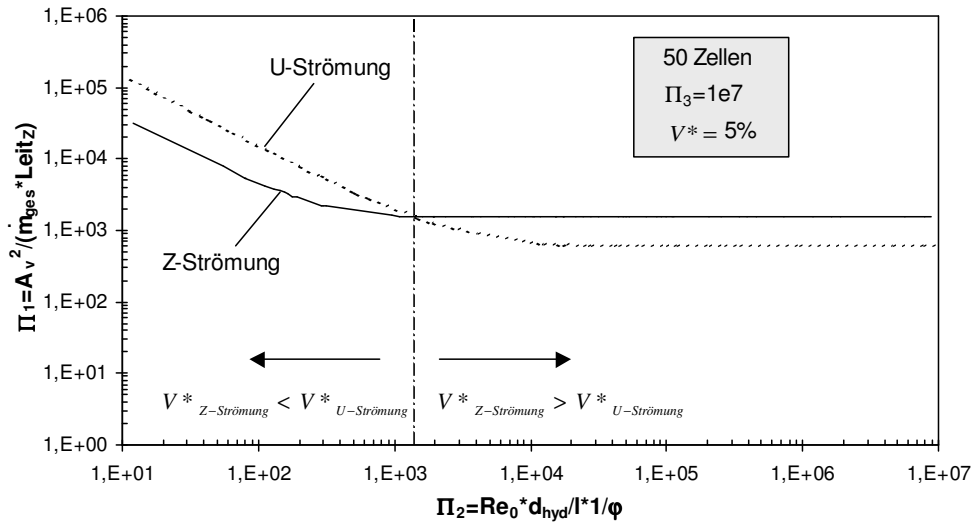


Bild 5.17: Vergleich der Kurven konstanter Ungleichverteilung ($V^* = 5\%$) für den U- und Z-förmig durchströmten Zellstapel

5.3.3 Formel zur Bewertung der Medienverteilung im Zellstapel

In Kapitel 5.3.1 sind vier Kennzahlen identifiziert worden, die für die Bestimmung des Grades der Ungleichverteilung relevant sind. Eine graphische Präsentation der verallgemeinerten Berechnungsergebnisse in Abhängigkeit dieser Kennzahlen ist nur für ausgewählte Kennzahlkombinationen möglich. In diesem Kapitel wird daher eine analytische Formel angegeben, die über einen weiten Bereich der Einflussgrößen Aufschluss darüber gibt, ob der Grad der Ungleichverteilung in einem Zellstapel über oder unter einem bestimmten Grenzwert liegt. Als Grenzwert wird wiederum ein Grad der Ungleichverteilung von maximal 5 % ausgewählt.

Liegen bei der Auslegung eines Zellstapels die Geometriedaten und die Betriebsparameter fest, können daraus die Kennzahlen Π_1 bis Π_4 gebildet werden. Die von den Kennzahlen abhängigen Ungleichungen 5.29 und 5.30 erlauben eine direkte Bewertung, ob die zu erwartende Medienverteilung im Zellstapel homogen ($V^* \leq 5\%$) sein wird oder die Auslegung des Zellstapels noch entsprechend zu modifizieren ist.

$$\log \Pi_1 - \log \Pi_1|_{V^*=5\%} \geq 0 \quad \Rightarrow \quad V^* \leq 5\% \quad \text{Gl. 5.29}$$

$$\log \Pi_1 - \log \Pi_1|_{V^*=5\%} < 0 \quad \Rightarrow \quad V^* > 5\% \quad \text{Gl. 5.30}$$

Der Term $\log \Pi_1|_{V^*=5\%}$ beschreibt in Abhängigkeit der Kennzahlen Π_2 bis Π_4 die Berechnungsergebnisse des 1D-Ansatzes für einen Grad der Ungleichverteilung von $V^* = 5\%$. Die logarithmische Formulierung ist aufgrund der im vorherigen Kapitel verwendeten doppelt-

logarithmischen Achsenskalierung der Diagramme (Bild 5.12 bis Bild 5.17) gewählt. Die in diesen Diagrammen abgebildeten Kurven konstanter Ungleichverteilung können mathematisch durch Hyperbeln der Form

$$y = \frac{a_1}{\left(\sqrt{(x - a_2)^2 + a_3} - x\right)} + \frac{a_1 \cdot a_2}{a_4} + a_4 \quad ; \quad a_1, a_2, a_3, a_4 : \text{Konstanten} \quad \text{Gl. 5.31}$$

beschrieben werden. Diese hyperbolische Ausgleichfunktion wird zur Beschreibung des Terms $\log \Pi_1|_{\dot{V}^*=5\%}$ verwendet. Die von den Kennzahlen Π_2 Π_4 abhängige Ausgleichfunktion für einen U-förmig durchströmten Zellstapel lautet:

$$\log(\Pi_1|_{\dot{V}^*=5\%}) = 0,5 \cdot \left(\sqrt{(\log(\Pi_2) - 3,45)^2 + 0,27} - \log(\Pi_2) \right) + 1,725 + a$$

Gl. 5.32

mit

$$a = (-2,76 + 3,845 \cdot \log(\Pi_4))^{0,761} - 0,05 \cdot \log(\Pi_3) + 0,37$$

Die Ausgleichsfunktion ist in den folgenden Kennzahlbereichen gültig:

- Π_1 : $1e1 - 1e7$
- Π_2 : $1e1 - 1e7$
- Π_3 : $1e5 - 1e9$
- Π_4 : $20-100$

In diesen Bereichen variiert die Abweichung der Ausgleichsfunktion (Gleichung 5.32) von den Berechnungsergebnissen des 1D-Ansatzes um weniger als ± 1 Prozentpunkt um den Grad der Ungleichverteilung von $\dot{V}^*=5\%$. Werden die Bereichsgrenzen überschritten, sind geringfügig größere Abweichungen zu erwarten.

Für die Z-förmige Strömungsführung ist die entsprechende analytische Formel im Anhang (Gleichung 13.7) aufgeführt. Die Formel ist in dem gleichen Kennzahlenbereich gültig wie die Formel für die U-Strömung.

5.4 Zusammenfassung

Ein optimierter Zellbetrieb erfordert eine homogene Verteilung der Medien auf die Einzelzellen des Stapels. Es wird ein analytischer, eindimensionaler Berechnungsansatz zur Bestimmung der Medienverteilung in einem Zellstapel entwickelt. Dieser Ansatz beschreibt den Zellstapel durch ein hydraulisches Widerstandsnetzwerk. Neben den Rohrreibungsverlusten in den Manifolds werden auch die Verluste berücksichtigt, die aufgrund der Strömungsverzweigung entstehen. Zur Validierung des analytischen Modells wird ein numerisches Verfahren verwendet, das mittels dreidimensionaler Simulation der Strömung in einem Zellstapel die Medienverteilung bestimmt. In beiden Ansätzen findet die in den Zellen stattfindende elektrochemische Reaktion keine Berücksichtigung. Der Gesamtmassenstrom sowie die Stoffwerte sind in dem Zellstapel konstant. Dies erlaubt, die Rechenergebnisse zu verallgemeinern und auf andere technische Verzweigungssysteme, wie beispielsweise Plattenwärmeübertrager, anzuwenden. Der Druck-

verlust in den Einzelzellen ist in beiden Ansätzen als proportional zu dem Volumenstrom angenommen.

Für ausgewählte Brennstoffzellenanwendungen erfolgt ein Vergleich der Berechnungsergebnisse beider Ansätze jeweils für eine U- und Z-förmige Strömungsführung in dem Zellstapel. Eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse beider Rechenmethoden wird über einen weiten Bereich der Einflussgrößen erzielt, indem die im 1D-Modell verwendeten Ansätze zur Bestimmung der Verzweigungswiderstandsbeiwerte mit einem konstanten Faktor multipliziert werden.

Anhand eines definierten Referenzzellstapels wird mittels einer Sensitivitätsanalyse der Einfluss der Geometriegrößen und Betriebsparameter auf die Medienverteilung untersucht. Ein möglichst großes Verhältnis aus Zelldruckverlust zu Druckverlust in den Manifolds garantiert eine gleichmäßige Medienverteilung. Effektiv wird dies durch eine Kombination aus einer geringen Strömungsleitfähigkeit in den Zellen und großen Manifoldquerschnittsflächen erreicht.

Aus der Untersuchung des Einflusses einer ungleichmäßigen Medienverteilung auf die Leistung des Stapels wird ein Richtwert für die maximal empfohlene Ungleichverteilung im Auslegungspunkt abgeleitet. Dieser Wert liegt bei einem maximalen Volumenstromunterschied zwischen den einzelnen Zellen des Stapels von 5 %. Anhand des Richtwertes wird die Manifoldfläche für den Referenzzellstapel optimiert. Dabei zeigt sich, dass die Medienverteilung hauptsächlich durch die Größe der Querschnittsfläche des Sammlerkanals beeinflusst wird. Bei einem Flächenverhältnis zwischen Sammler- und Verteilerkanal von ungefähr 2 liegt die gleichmäßigste Verteilung vor.

Eine Verallgemeinerung der Rechenergebnisse wird erreicht, indem der eindimensionale Ansatz in eine dimensionslose Form überführt wird. Unter der Voraussetzung gleicher Verteiler- und Sammlerkanalgeometrie werden zur kennzahlenbasierten Bestimmung der Medienverteilung in einem beliebigen Zellstapel vier dimensionslose Kennzahlen identifiziert. Diese Kennzahlen sind abhängig von der Zellstapelgeometrie sowie den vorliegenden Betriebsbedingungen. Über einen weiten Bereich der Kennzahlen werden die Ergebnisse der Berechnungen in graphischer Form präsentiert. Aus den Diagrammen wird der empfohlene Auslegungsbereich für beliebige Zellstapel abgeleitet. Ebenfalls wird gezeigt, bei welcher Kennzahlkombination eine U- oder Z-förmige Strömungsführung in dem Stapel zu bevorzugen ist.

Im letzten Kapitel entsteht eine Formel, die die Bewertung der Medienverteilung in Abhängigkeit der dimensionslosen Kennzahlen erlaubt. Der Gültigkeitsbereich der angegebenen Formel erstreckt sich über einen weiten für Brennstoffzellenanwendungen relevanten Bereich der Einflussgrößen.

6 Kühlung

Im Auslegungspunkt einer wasserstoffbetriebenen PEFC liegt bei einer Zellspannung von 700 mV der auf den Brennwert bezogene elektrische Wirkungsgrad bei ungefähr 50 %. Die bei der elektrochemischen Reaktion in der Brennstoffzelle freigesetzte Energie spaltet sich demnach annähernd zu gleichen Teilen in elektrische und thermische Energie. Im stationären Betrieb muss der durch die irreversiblen Zellverluste entstehende Wärmestrom aus der Zelle abgeführt werden. Einen Überblick über Wärmemanagementkonzepte in einem Zellstapel gibt Bild 6.1.

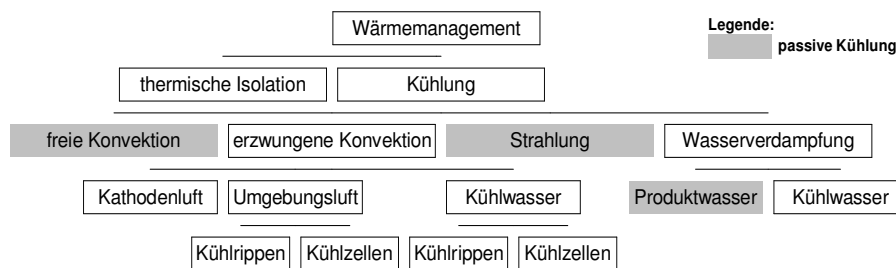


Bild 6.1: Wärmemanagement in PEFC

Die Wahl des Wärmemanagementkonzeptes ist hauptsächlich von der Leistungsklasse der Brennstoffzelle abhängig. Im Folgenden werden die unterschiedlichen Konzepte Brennstoffzellen in einem Leistungsbereich von wenigen Watt bis zu mehreren Kilowatt zugeordnet.

Eine thermische Isolation der Brennstoffzelle wird benötigt, wenn die produzierte Wärme im Zellstapel nicht ausreicht, um die gewünschte Betriebstemperatur sicherzustellen. Dies ist der Fall bei Brennstoffzellen mit einer Leistung im Wattbereich.

Die Wärmeabfuhr über freie Konvektion, Produktwasserverdampfung und Strahlung wird als passive Kühlung bezeichnet, da keine aktiven Bauteile wie beispielsweise Lüfter zum Einsatz kommen. In Brennstoffzellen mit einer Leistung von weniger als 100 W kann die Wärmeabfuhr ausschließlich über passive Kühlung realisiert werden [97].

Ist die Wärmeabfuhr über passive Kühlmechanismen für einen isothermen stationären Betrieb nicht mehr ausreichend, kann die mit Hilfe eines Lüfters im Überschuss zugeführte Kathodenluft zur Kühlung beitragen. Nach [97] ist diese Kühlungsart auf Brennstoffzellen beschränkt, bei denen weniger als $\approx 25\%$ der produzierten Wärme über die Kathodenluft abgeführt werden muss. Somit ist diese Art der Kühlung für Brennstoffzellen bis zu einer Leistung von maximal 200-300 W geeignet. Der in diesem Fall zur Wärmeabfuhr benötigte Luftstöchiometriekoeffizient von 20 erfordert eine spezielle Elektrodentechnik, durch die die Austrocknung der Membran zu verhindern ist [98].

Steigt der aus dem Zellstapel abzuführende Wärmestrom weiter, muss aus oben genanntem Grund ein von der Kathodenluft separiertes Kühlfluid vorgesehen werden. Bis zu einer elektrischen Leistung von circa 2 kW wird der Zellstapel über Kühlrippen oder Kühlzellen ausschließlich mit Umgebungsluft aktiv gekühlt. Nachteilig wirkt sich bei externen Kühlrippen der aufgrund der geringen Bipolarplattendicke geringe laterale Wärmetransport aus, der in großen Temperaturgradienten innerhalb der Zelle resultiert. Zur Verringerung dieser Temperaturgradienten durch lateralen Wärmetransport empfiehlt sich der Einsatz von Kühlzellen, die zwischen den Zellen angeordnet sind. Luft besitzt im Vergleich zu Wasser eine geringe spezifische Wärmekapazität. Sowohl beim Einsatz von Kühlzellen als auch bei externen Kühlrippen zeichnet sich im Allgemeinen die Luftkühlung daher durch verhältnismäßig große Temperaturgradienten aus. Dies erhöht die Gefahr, dass Strömungskanäle oder Bereiche der Diffusionschicht in den Zellen durch auskondensierendes Produktwasser verstopft werden und große Zellflächen nicht im optimalen Temperaturbereich arbeiten.

Im Leistungsbereich zwischen 2 kW und 10 kW sind sowohl luft- als auch wassergekühlte Zellstapel denkbar. Hier ist die Kühlungsart abhängig von der Anwendung der Brennstoffzelle.

Oberhalb von 10 kW erfolgt die Wärmeabfuhr über einen Wasserkreislauf. Wassergekühlte Zellstapel benötigen zusätzlich einen Wärmeübertrager, der die Wärme an die Umgebung abführt. Um parasitäre Ströme und Elektrolyse in dem Zellstapel zu verhindern, muss deionisiertes Wasser mit geringer elektrischer Leitfähigkeit verwendet werden. Dies erfordert den Einsatz von Ionenaustauschern im Brennstoffzellensystem.

Die vorliegende Arbeit ist fokussiert auf Brennstoffzellen der 5 kW Leistungsklasse. In diesem Leistungsbereich können sowohl wasser- also auch luftgekühlte Zellstapel zum Einsatz kommen [99]. Das folgende Kapitel stellt beide Kühlungsarten für einen 5 kW Zellstapel gegenüber und bewertet sie. Zuvor wird der Wärmestrom bestimmt, der im Auslegungspunkt dieses Zellstapels über die Kühlung abzuführen ist. Am Ende des Kapitels entsteht eine Rechenroutine zur optimierten Auslegung der Kühlkanalstruktur. Anhand eines Fallbeispiels ermittelt diese Routine die Kühlkanalstruktur sowie das optimale Verhältnis aus Zellen- zu Kühlzellenanzahl bezüglich der Leistungsverluste und der volumetrischen Leistungsdichte.

6.1 Wärmebilanz eines 5 kW Brennstoffzellenstapels

Beispielhaft wird im Folgenden für einen aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Brennstoffzellenstapel die Wärmebilanz erstellt. Im Auslegungspunkt produzieren die 50 Einzelzellen bei einer Spannung von jeweils 700 mV eine elektrische Leistung von $P_{el}=5$ kW. Dies entspricht einem auf den Brennwert bezogenen Wirkungsgrad von 47 %.

$$I = i \cdot A_{aktiv} = \frac{P_{el}}{N_Z \cdot U_Z} \quad \text{Gl. 6.1}$$

Der produzierte Strom im Auslegungspunkt berechnet sich nach Gleichung 6.1 zu $I = 143$ A. Wird dem Zellstapel das in Kapitel 3.1 vorgestellte Mäander-Design mit einer aktiven Fläche

von $A_{\text{aktiv}} = 244 \text{ cm}^2$ zugrunde gelegt, beträgt die Stromdichte $= 0,585 \text{ A/cm}^2$ beziehungsweise die flächenspezifische Leistung $0,41 \text{ W/cm}^2$.

Der Zellstapel soll bei einem Betriebsdruck von 2 bar und einer Betriebstemperatur von 70 °C arbeiten. Unter diesen Betriebsbedingungen kann die geforderte Zelleistung erzielt werden, wenn der Ohmsche Flächenwiderstand von $0,17 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ (siehe Kapitel 2.3 und 4.2) auf einen realistischen Wert von $0,1 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ gesenkt wird. Dies kann beispielsweise durch einen über die Bipolarplattenfläche homogenen Anpressdruck sowie durch verringerte Übergangswiderstände erreicht werden.

Für den bei der elektrochemischen Reaktion entstehenden Wärmestrom gilt

$$Q_{\text{prod.}} = \Delta m_{\text{H}_2} \cdot H_o - P_{\text{el}} = N_Z \cdot i \cdot A_{\text{aktiv}} \cdot U_{\text{th}} - U_Z \quad \text{Gl. 6.2}$$

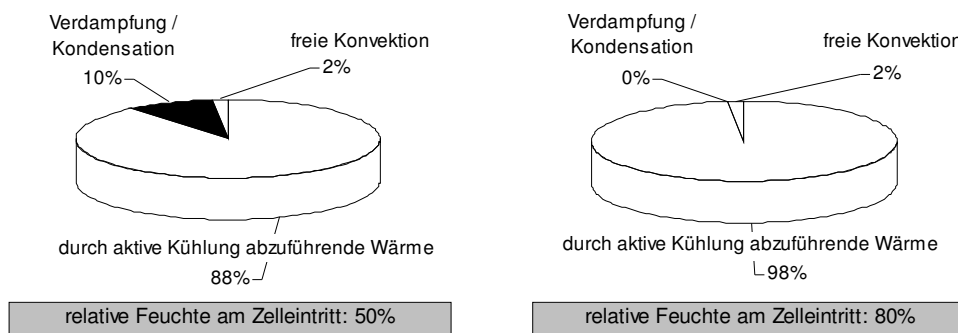


Bild 6.2: Prozentuale Aufteilung der Reaktionswärme ($Q_{\text{prod.}} = 5,57 \text{ kW}$ 100 %)

Unter der Annahme, dass das gesamte produzierte Wasser in flüssiger Form anfällt ($U_{\text{th}} = 1,48 \text{ V}$), beträgt der Wärmestrom im Auslegungspunkt $Q_{\text{prod.}} = 5,57 \text{ kW}$. Dieser Wärmestrom entspricht in den Kreisdiagrammen in Bild 6.2 100 %. Für zwei unterschiedliche relative Feuchten der Reaktanden am Zelleintritt ist in den Diagrammen aufgetragen, in welche Wärmeanteile sich die produzierte Wärme aufspaltet. Der Berechnung liegt die Annahme zugrunde, dass die Reaktandengase beim Eintritt in die Zelle bereits Zelltemperatur haben. Um einer Schädigung der Membran und einer verringerten ionischen Leitfähigkeit besonders am Zelleintritt vorzubeugen, werden die Reaktanden vor dem Eintritt in die Zelle befeuchtet (vergleiche Kapitel 4.3.1). In Bild 6.2 sind die entsprechenden Wärmeanteile für eine relative Feuchte der Gase von 50 % ($T_{\text{Tau}} = 55 \text{ °C}$) und von 80 % ($T_{\text{Tau}} = 65 \text{ °C}$), bezogen auf die Zelltemperatur von 70 °C , quantifiziert. Die Taupunkttemperaturen der Reaktanden sind jeweils auf der Anoden- und Kathodenseite beim Eintritt in den Zellstapel gleich. Wärmeabfuhr durch Strahlung wird aufgrund der geringen Betriebstemperaturen der Brennstoffzelle vernachlässigt. Weitere Annahmen und die für die Berechnung der Wärmeanteile relevanten Gleichungen sind im Anhang, Kapitel 13.3, aufgeführt. Die verwendeten Betriebsparameter und Geometriedaten sind in Tabelle 13.3 aufgelistet. In den Darstellungen in Bild 6.2 ist die durch die Änderung der Wärmekapazitätsströme bedingte Enthalpieänderung nach Gleichung 13.17 vernachlässigt.

Dieser Anteil ist für die vorliegenden Berechnungen kleiner als 1 % des produzierten Wärmestroms.

Im linken Diagramm in Bild 6.2 ist dargestellt, in welche Anteile sich die Reaktionswärme aufteilt, wenn die Reaktandengase der Zelle mit einer relativen Feuchte von 50 % zugeführt werden. Demnach werden 10 % des bei der elektrochemischen Reaktion entstehenden Wärmestroms über das verdampfte Produktwasser aus dem System abgeführt. Im Fall der Eintrittsfeuchte von 80 % (rechtes Diagramm in Bild 6.2) gleichen sich die zur Verdampfung des Produktwassers auf der Kathode aufgenommene Wärme und die bei der Kondensation von Wasser auf der Anode freigesetzte Wärme aus.

Durch freie Konvektion an den Außenwänden des Zellstapels verlassen in beiden betrachteten Beispielen circa 2 % der Reaktionswärme den Brennstoffzellenstapel. Somit ist diese Art der Wärmeabfuhr vernachlässigbar.

Zur Abfuhr der je nach Eintrittsfeuchte der Reaktanden verbleibenden 88 % beziehungsweise 98 % der Reaktionswärme ist eine zusätzliche aktive Kühlung mit angepasstem Kühlzellendesign erforderlich. Bei angenommenen homogenen Verhältnissen in dem Zellstapel entspricht dieser Anteil einem maximalen Wärmestrom von circa 110 W, der aus jeder Einzelzelle durch aktive Kühlung abzuführen ist. Dieser maximale Wärmestrom, der pro Zelle abzuführen ist, wird im Weiteren verwendet, um einen Vergleich zwischen luftgekühlten und wassergekühlten Zellstapeln bezüglich der durch die Kühlung entstehenden Verlustleistung durchzuführen.

6.2 Verlustleistung durch Kühlung

Schematisch ist in Bild 6.3 ein Kühlzellendesign mit einem einzigen Kühlkanal dargestellt. Die im Weiteren verwendeten Geometriebezeichnungen können Bild 6.3 entnommen werden.

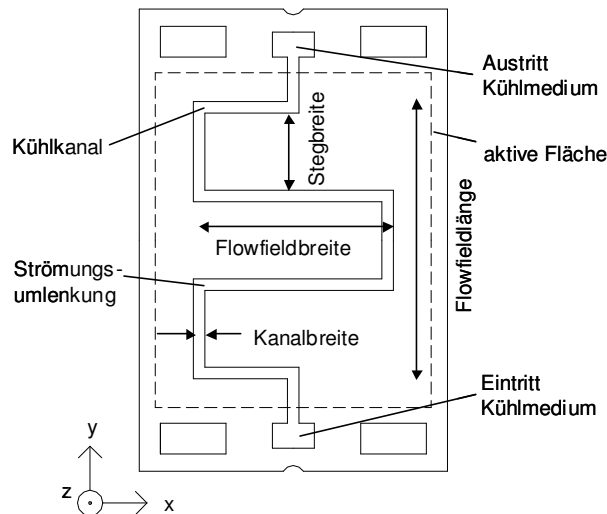


Bild 6.3: Skizze eines Kühlzellendesigns mit *einem* Kühlkanal ($N_{KK}=1$)

Die zur aktiven Kühlung des Zellstapels benötigte Leistung wird als Verlustleistung bezeichnet. Die Verlustleistung setzt sich aus einem Anteil, der durch die Ohmschen Verluste bei der Leitung des Stroms durch die Kühlzellen bedingt ist, sowie einem Anteil, der durch die Förderung des Kühlmediums entsteht, zusammen.

$$P_{\text{Verlust,Kühl.}} + P_{\text{Verlust,Strom}} + P_{\text{Lüfter / Pumpe}} \quad \text{Gl. 6.3}$$

Die Verlustleistung durch Stromleitung in der Kühlzelle $P_{\text{Verlust,Strom}}$ beinhaltet einen Anteil des in und quer zur Hauptstromrichtung fließenden Stroms. Übergangswiderstände bleiben unberücksichtigt.

$$P_{\text{Verlust,Strom}} = P_{\text{Strom,parallel}} + P_{\text{Strom,quer}} \quad \text{Gl. 6.4}$$

Für die Verlustleistung, die durch den in Hauptstromrichtung (z-Richtung) und damit normal zur Bipolarplattenebene fließenden Strom bedingt wird, gilt

$$P_{\text{Strom,parallel}} = \left(\frac{h_{KK}}{(A_{\text{aktiv}} - A_{KK}) \cdot \sigma_z} \right) \cdot (i \cdot A_{\text{aktiv}})^2$$

mit

$$A_{KK} = N_{KK} \cdot l_{KK} \cdot b_{KK} \quad \text{Gl. 6.5}$$

Demnach berechnet sich der Widerstand aus dem Verhältnis aus der Kühlkanalhöhe h_{KK} zu dem Produkt aus der stromdurchflossenen Stegfläche und der elektrischen Leitfähigkeit des Kühlzellenmaterials σ_z . Unter der Annahme, dass der Strom nicht außerhalb der aktiven Fläche fließt, ergibt sich die für die Stromleitung zur Verfügung stehende Stegfläche aus der Differenz der aktiven Fläche A_{aktiv} und der Fläche der Kühlkanalstruktur A_{KK} . Die Fläche der Kühlkanalstruktur berechnet sich aus dem Produkt aus der Anzahl N_{KK} , der Länge l_{KK} und der Breite b_{KK} der Kühlkanäle.

Alle Betrachtungen in diesem Kapitel setzen eine homogene Stromdichteverteilung über der aktiven Fläche voraus. Unter dieser Annahme muss der Strom, der direkt über einem Kühlkanal produziert wird, quer zur Hauptstromrichtung um den Kühlkanal herum fließen, um dann durch einen Steg der Kühlstruktur zur benachbarten Zelle zu gelangen. Im Mittel beträgt die Distanz, die dieser Strom in der Bipolarplattenebene fließt, ein Viertel der Kühlkanalbreite.

Für die Verlustleistung durch den quer zur Hauptstromrichtung fließenden Strom gilt

$$P_{\text{Strom,quer}} = 2 \cdot \left(\frac{b_{KK}}{4} \cdot \frac{1}{h_{BPP,bulk} \cdot N_{KK} \cdot l_{KK} \cdot \sigma_{xy}} \right) \cdot (i \cdot A_{KK})^2 \quad \text{Gl. 6.6}$$

$h_{BPP,bulk}$ bezeichnet die Restwandstärke der Bipolarplatte, die von dem quer fließenden Strom genutzt werden kann. σ_{xy} steht für die elektrische Leitfähigkeit in Bipolarplattenebene. Durch den Vorfaktor 2 in Gleichung 6.6 wird berücksichtigt, dass der Strom ober- und unterhalb der Kühlzelle quer fließen muss, um über die aktive Fläche der Einzelzellen eine homogene Stromdichteverteilung zu garantieren.

Die zur Förderung des Kühlmediums aufzuwendende Leistung ist gegeben durch

$$P_{\text{Lüfter / Pumpe}} = V_{KM} \cdot \Delta p_{KM} \cdot \eta_{\text{Lüfter / Pumpe}} \quad \text{Gl. 6.7}$$

Der Wirkungsgrad des Lüfters beziehungsweise der Pumpe ist mit $\eta_{\text{Lüfter / Pumpe}}$ bezeichnet. Der Volumenstrom des Kühlmediums V_{KM} ergibt sich aus dem aktiv abzuführenden Wärmestrom und der Erwärmung des Kühlmediums ΔT_{KM} .

$$\dot{V}_{KM} = \frac{\dot{Q}_{Kühl.}}{\rho \cdot c_p \cdot \Delta T_{KM}} \quad \text{Gl. 6.8}$$

Der Druckverlust, der entsteht, wenn das Kühlmedium den Zellstapel durchströmt, ist abhängig von dem vorliegenden Strömungsregime. Im laminaren Fall gilt

$$\Delta p_{KM, lam.} = \frac{\rho}{2} \cdot u_{KK}^2 \cdot \left(\varphi \cdot \frac{64}{\text{Re}_{KK}} \cdot \frac{l_{KK}}{d_{hyd, KK}} + \zeta_{Uml.} \cdot N_{Uml.} \right) \quad \text{Gl. 6.9}$$

Im turbulenten Fall gilt

$$\Delta p_{KM, turb.} = \frac{\rho}{2} \cdot u_{KK}^2 \cdot \left(0,3164 \cdot (\text{Re}_{KK})^{-0,25} \cdot \frac{l_{KK}}{d_{hyd, KK}} + \zeta_{Uml.} \cdot N_{Uml.} \right) \quad \text{Gl. 6.10}$$

Der Beiwert φ ist für laminare Rohrströmungen mit Rechteckquerschnitt eine Funktion des Seitenverhältnisses aus Breite und Höhe des Kühlkanalquerschnitts [91, p. Lb7]. $\zeta_{Uml.}$ ist der Widerstandsbeiwert der Strömungsumlenkungen im Kühlkanal. Hier wird der konstante Wert $\zeta_{Uml.} = 2,5$ angesetzt. $N_{Uml.}$ bezeichnet die Anzahl der Strömungsumlenkungen innerhalb der Strömungsstruktur eines Kühlkanals.

Der Umschlag vom laminaren ins turbulente Strömungsregime vollzieht sich bei einer Reynoldszahl von $\text{Re}_{KK} = 2300$.

$$\text{Re}_{KK} = \frac{u_{KK} \cdot d_{hyd, KK}}{\nu} \quad \text{mit} \quad u_{KK} = \frac{V_{KM}}{N_{KK} \cdot b_{KK} \cdot h_{KK}} \quad \text{Gl. 6.11}$$

6.3 Vergleich der Verlustleistung bei Luft- und Wasserkühlung

Im Folgenden wird die Verlustleistung berechnet, die durch die jeweilige Kühlungsart bei unterschiedlichen Kühlströmungsstrukturen bedingt ist. Wiederum wird das in Kapitel 3.1 beschriebene Mäander-Design als Grundlage für die Berechnungen gewählt. Die Länge und Breite der Bipolarplatten beträgt 240 mm x 160 mm, die aktive Fläche 244 cm².

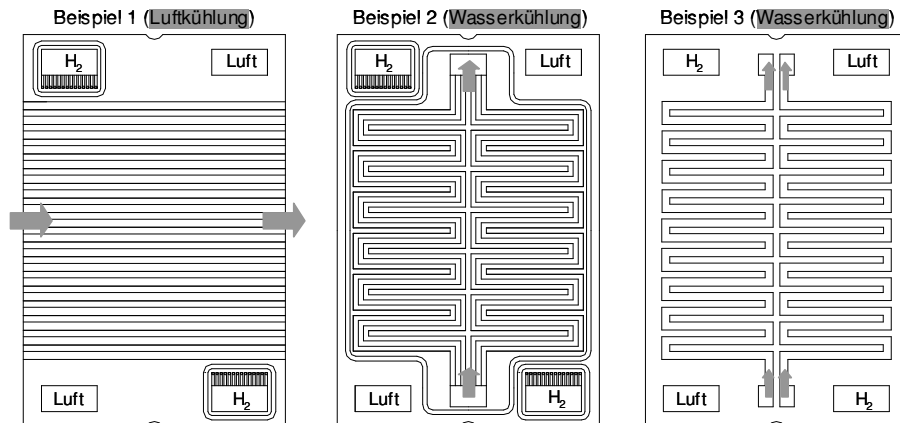


Bild 6.4: Konstruktionszeichnung der drei Auslegungsbeispiele

Gegenübergestellt werden die in Bild 6.4 gezeigten drei unterschiedlichen Kühlkanalgeometrien:

Im ersten Auslegungsbeispiel liegt ein luftgekühlter Zellstapel vor. Der Zellstapel wird quer von der Kühlluft durchströmt. Die Strömungsstruktur in den Kühlzellen besteht aus 18 parallelen geraden Kanälen. Die Höhe der Kühlkanäle beträgt 5 mm, die Länge 160 mm. Die Kühlkanäle sind in die graphitischen Bipolarplattenelemente integriert.

Das zweite Auslegungsbeispiel entspricht dem in Kapitel 3.1 vorgestellten Kühl-Design für Wasserkühlung. Die in die graphitischen Bipolarplattenelemente integrierte Mäander-Kühlstruktur sieht vier serpentinenförmig verlaufende Kanäle vor. Die Kanalbreite beträgt 3 mm, die Kanalhöhe 2 mm.

Im letzten betrachteten Auslegungsentwurf ist die wasserdurchflossene Strömungsstruktur der Kühlzelle nicht mehr in die Bipolarplattenelemente integriert. Zwischen die zwei rückseitig ebenen Bipolarplattenelemente wird eine Folie aus expandiertem Graphit angeordnet (siehe Bild 3.5 in Kapitel 3.1). In die Graphitfolie ist die Kühlkanalstruktur in Form von zwei Mäander-Kanälen eingebracht. Die Kanalbreite beträgt 5 mm, die Kanalhöhe 1 mm.

Weitere Geometriedaten der unterschiedlichen Auslegungsbeispiele sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt.

Tabelle 6.1: Geometriedaten der unterschiedlichen Auslegungsbeispiele

		Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3
Kühlmedium	[-]	Luft	Wasser	Wasser
Kühlkanalanzahl	[-]	18	4	2
Kühlkanallänge	[mm]	160	859	1290
Kühlkanalbreite	[mm]	5	3	5
Kühlkanalhöhe	[mm]	5	2	1
Stegbreite	[mm]	4	3,3	4
Anzahl der Strömungsumlenkungen	[-]	0	24	36

Die Berechnungen gehen davon aus, dass sowohl bei der Luftkühlung als auch bei der Wasserkühlung jede der 50 Einzelzellen des Zellstapels gekühlt wird. Zum besseren Vergleich der Ergebnisse wird angenommen, dass die Materialeigenschaften der Kühlzellen aus expandiertem Graphit denen der aus Graphit-Composit-Material entsprechen.

Im Fall der Luftkühlung wird bei der Berechnung der durch die Stromleitung durch die Kühlzelle entstehenden Ohmschen Leistungsverluste nur die Kühlkanal- und Stegfläche berücksichtigt, die unterhalb der aktiven Fläche liegt. Außerdem werden die in den Gleichungen 6.9 und 6.10 nicht berücksichtigten Ein- und Ausströmverluste der Kühlluft unabhängig von dem Volumenstrom mit 1 mbar angesetzt.

Bei der Wasserkühlung wird das erhitzte Kühlwasser über Rohrleitungen einem Wärmeübertrager zugeführt, der die abzuführende Wärme an die Umgebungsluft abgibt. Diese Umgebungsluft wird mit Hilfe eines Lüfters durch den Wärmeübertrager gefördert. Die Druckverluste in den genannten Bauteilen sowie die benötigte elektrische Leistung des Lüfters sind bei der Betrachtung der Gesamtverlustleistung durch die Kühlung zu berücksichtigen. Vereinfachend werden beide Einflüsse unabhängig von dem Volumenstrom mit jeweils einem Prozent der elektrischen Leistung abgeschätzt.

Weitere Vorgaben für die Berechnungen sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Die Stoffwerte sind bei der mittleren Temperatur des jeweiligen Kühlmediums eingesetzt.

Tabelle 6.2: Vorgaben zur Berechnung der Verlustleistung

Elektrische Leistung pro Zelle (siehe Kapitel 6.1)	:	100	[W]
Stromdichte	:	0,585	[A/cm ²]
Aktive Fläche	:	244	[cm ²]
Aktiv abzuführender Wärmestrom pro Zelle (siehe Kapitel 6.1)	:	110	[W]
Wirkungsgrad Lüfter (Luftkühlung)	:	40	[%]
Wirkungsgrad Pumpe (Wasserkühlung)	:	30	[%]
Elektrische Leitfähigkeit Bipolarplatte / Kühlzelle	:	xy=80; z=40	[S/cm]
Wärmeleitfähigkeit Bipolarplatte / Kühlzelle	:	50	[W/(m*K)]
Betriebstemperatur der Zelle	:	70	[°C]
Restwandstärke Bipolarplatte	:	1	[mm]

Für die drei Auslegungsbeispiele ist in Bild 6.5 die prozentuale Verlustleistung durch die Kühlzellen gemäß Gleichung 6.12 in Abhängigkeit der zulässigen Kühlmediumerwärmung dargestellt. Der auf die produzierte elektrische Leistung bezogene prozentuale Leistungsverlust berechnet sich nach

$$\frac{P_{\text{Verlust, Kühl.}}}{P_{\text{el}}} = \frac{P_{\text{Verlust, Strom}}}{P_{\text{el}}} + \frac{P_{\text{Lüfter / Pumpe}}}{P_{\text{el}}} \quad \text{Gl. 6.12}$$

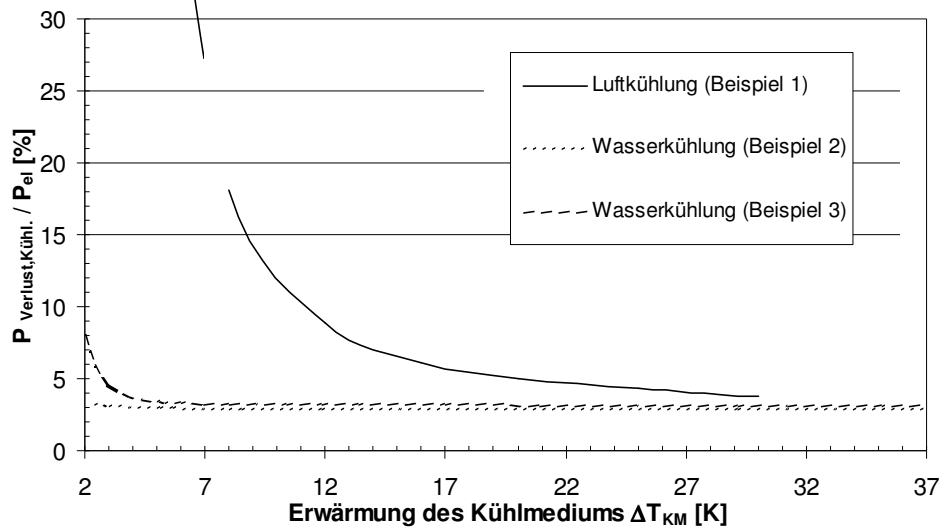


Bild 6.5: Prozentuale Verlustleistung in Abhängigkeit der Erwärmung des Kühlmediums für die unterschiedlichen Auslegungsbeispiele

Aus dem Verlauf der Abhängigkeit für die Luftkühlung wird ersichtlich, dass die entstehende Verlustleistung bei geringer werdender Kühllufterwärmung steil ansteigt. Die Verlustleistung beträgt bei einer zulässigen Erwärmung von 8 K ungefähr 18 % der produzierten elektrischen Leistung, bei einer Erwärmung von 20 K nur noch 5 %. Ist die Temperaturspreizung der Kühlluft größer als 30 K ist die entstehende Verlustleistung vergleichbar mit der der Wasserkühlung. Aufgrund der hohen Leistungsverluste erscheint der Einsatz einer Luftkühlung bei dem betrachteten 5 kW Zellstapel nur sinnvoll, wenn die Kühllufterwärmung größer als 20 K ist.

Bei den Auslegungsbeispielen mit Wasserkühlung ist der Anteil der durch die Druckverluste in der Kühlkanalstruktur bedingten Pumpleistung ab 3 K (Beispiel 1) beziehungsweise ab 6 K (Beispiel 2) vernachlässigbar gering. Die Gesamtverlustleistung ist daher hauptsächlich durch die Ohmsche Verlustleistung in den Kühlzellen und die als konstant angenommene Verlustleistung bedingt durch Rohrleitungen, Wärmeübertrager und Lüfter bestimmt. Abhängig vom vorliegenden Kühlzellendesign scheint eine Kühlwassererwärmung im Bereich von 2 K bis 8 K als geeignet.

In Tabelle 6.3 ist für ausgewählte Erwärmungen der Kühlmedien die Gesamtverlustleistung in die einzelnen Komponenten aufgespalten. Die gewählten Kühlmediumserwärmungen betragen bei der Luftkühlung 30 K, bei den wassergekühlten Zellstapeln 5 K. Bei dem luftgekühlten Zellstapel ist aufgrund der großen Kühlkanalhöhe der größte Anteil der Verlustleistung durch die Stromleitung innerhalb der Kühlkanalstege bedingt. Im Fall der Wasserkühlung zeigt sich in beiden Beispielen, dass aufgrund des geringen Kühlwasservolumenstroms die Druckverluste im Zellstapel den kleinsten Anteil an der Gesamtverlustleistung bedingen. Die maximale Pumpleistung beträgt für diesen Anteil weniger als 0,3 % der produzierten elektrischen Leistung.

Tabelle 6.3: Aufspaltung der Verlustleistung in die einzelnen Komponenten

	T_{KM} [K]	$P_{Strom,quer}$ [% P_{el}]	$P_{Strom,parallel}$ [% P_{el}]	$P_{Verlust,Strom}$ [% P_{el}]	P_{KK} [mbar]	$P_{Lüfter,Pumpe}$ [% P_{el}]	$P_{Verlust,Kühl.}$ [% P_{el}]
Beispiel 1	30	0,67	2,14	2,80	0,25+1	1,03	3,83
Beispiel 2	5	0,2	0,73	0,93	19	0,03+1+1	2,96
Beispiel 3	5	0,69	0,45	1,14	168	0,3+1+1	3,44

Zum Vergleich der benötigten Bauvolumina der unterschiedlichen Kühlstrukturen wird das Auslegungsbeispiel 3 mit der Kühlkanalhöhe von 1 mm als Referenz definiert. Die angenommene Höhe einer Einzelzelle ohne Kühlstruktur beträgt 4 mm. Ohne die Endplatten beträgt die volumetrische Leistungsdichte des Referenzstapel mit 50 gekühlten Einzelzellen 0,52 kW/l. Unter Verwendung des Auslegungsbeispiels 2 verringert sich die volumetrische Leistungsdichte um 17 % auf 0,43 kW/l. Bei dem luftgekühlten Stapel mit einer Kühlkanalhöhe von 5 mm halbiert sich im Vergleich zu der Referenz nahezu die auf das Volumen bezogene Leistungsdichte auf 0,29 kW/l. Trotz der stark verringerten volumetrischen Leistungsdichte des Zellstapels kann die Baugröße des Gesamtsystems eines luftgekühlten Stapels kleiner sein als die der wassergekühlten Variante. Dies liegt darin begründet, dass bei der Wasserkühlung zusätzlich ein Wärmeübertrager vorgesehen werden muss.

Dem Vorteil eines einfacheren und möglicherweise kleineren Systems bei der Luftkühlung steht die große Temperaturspreizung der Kühlluft gegenüber. Die damit einhergehenden großen Temperaturgradienten im Bereich von ungefähr 20 - 30 K in den Einzelzellen bedingen ein aufwendiges Wassermanagement. Nur durch eine optimal aufeinander angepasste Strömungsführung der Reaktandengase und der Kühlluft kann dem Rechnung getragen werden. Für die vorliegende Mäander-Flowfieldstruktur ist ein auf Luftkühlung basierendes Kühlkonzept nicht geeignet. Im Weiteren werden daher ausschließlich wassergekühlte Zellstapel betrachtet.

6.4 Auslegungsroutine für Kühlkanalgeometrien

Den Einfluss von Kühlkanal- und Stegbreite auf die einzelnen Leistungsverlustterme zeigt Bild 6.6 am Beispiel des dritten Auslegungsentwurfs des vorherigen Kapitels. Die Kanalbreite wird so variiert, dass die Summe aus Kanal- und Stegfläche konstant ist. Die Erwärmung des Kühlmediums beträgt konstant 5 K. Die Pumpverluste berücksichtigen ausschließlich die Verluste, die durch den Druckverlust in den Kühlkanälen entstehen.

Bei steigender Kanalbreite sinken die Druckverluste in den Kanälen und somit verringert sich die Pumpleistung stetig. Die Ohmschen Verluste durch den quer zur Hauptstromrichtung fließenden Strom steigen dagegen mit größer werdender Kanalbreite, da die Distanz, die dieser Strom in Bipolarplattenebene fließt, ebenfalls ansteigt. Da die Kühlkanalhöhe konstant ist, ändert sich die Verlustleistung $P_{Strom,parallel}$ nur aufgrund der für die Stromleitung zur Verfügung

stehenden Stegfläche. Die mit abnehmender Stegbreite kleiner werdende Stegfläche bedingt somit einen Anstieg der Verlustleistung.

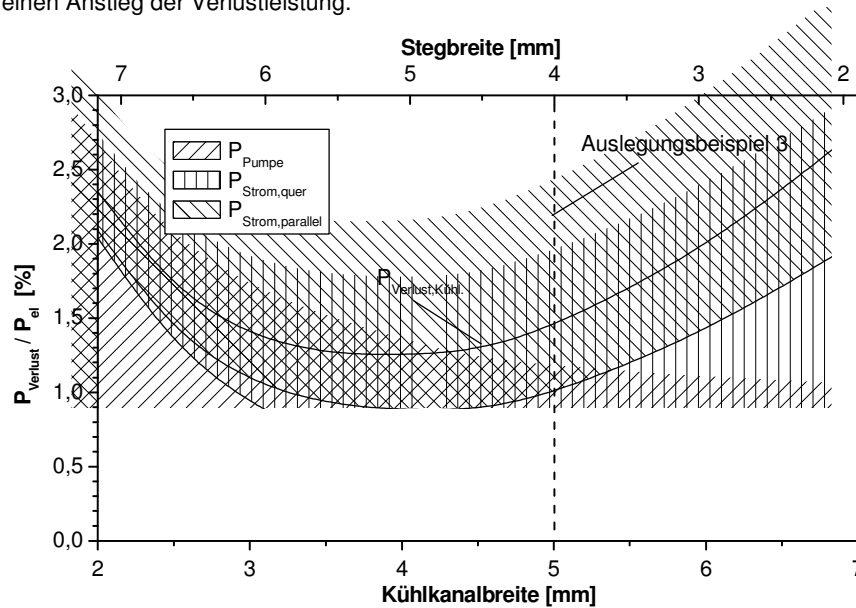


Bild 6.6: Abhängigkeit der einzelnen Verlustleistungsanteile von der Kanalbreite ($\Delta T_{KW} = 5 \text{ K}$)

Die minimale Verlustleistung durch Kühlung stellt sich bei einer Kanalbreite von 3,8 mm ein. Das Minimum im Verlauf des prozentualen Gesamtverlustes zeigt, dass bereits durch eine Betrachtung der strömungsbedingten und Ohmschen Verlustleistung ein optimiertes Kühlzellen-design identifiziert werden kann. Nachfolgend wird eine Auslegungsroutine vorgestellt, die eine Optimierung der Kühlzelligeometrie zusätzlich unter wärmetechnischen Gesichtspunkten erlaubt.

Der abzuführende Wärmestrom (siehe auch Gleichung 6.8 und 13.8) ergibt sich aus dem mittleren Wärmeübergangskoeffizienten $\bar{\alpha}$, der wärmeübertragenden Kühlkanalfläche A_{KKW} und der mittleren Temperaturdifferenz zwischen Kanalwand und Kühlmedium T_m .

$$\dot{Q}_{Kühl.} = \bar{\alpha} \cdot A_{KKW} \cdot \Delta T_m \quad \text{Gl. 6.13}$$

Für die wärmeübertragende Fläche gilt

$$A_{KKW} = N_{KK} \cdot 2 \cdot b_{KK} \cdot h_{KK} \cdot l_{KK} \quad \text{Gl. 6.14}$$

Der mittlere Wärmeübergangskoeffizient ist folgendermaßen definiert

$$\bar{\alpha} = \frac{\overline{Nu} \cdot \lambda}{d_{hyd,KK}} \quad \text{Gl. 6.15}$$

$\overline{Nu}$ bezeichnet die mittlere Nusselt-Zahl, λ die Wärmeleitfähigkeit des Kühlmediums und $d_{hyd,KK}$ den hydraulischen Durchmesser eines Kühlkanals.

In einer Brennstoffzelle kann weder von einer konstanten Wandtemperatur (Index) noch von einer konstanten Wärmestromdichte (Index) ausgegangen werden. Zur Berechnung der mittleren Nusselt-Zahl bei laminarer Kanalströmung wird daher das arithmetische Mittel der beiden Grenzfälle für das vorliegende Aspektenverhältnis angesetzt.

$$\overline{Nu}_{lam}(\chi) = \frac{\overline{Nu}_{lam,\vartheta} \chi + \overline{Nu}_{lam,q} \chi}{2} \quad \text{Gl. 6.16}$$

Die mittlere Nusselt-Zahl wird konservativ abgeschätzt, indem der aufgrund des großen Verhältnisses $l_{KK} / d_{hyd,KK}$ geringe Einfluss des thermischen und hydraulischen Anlaufbereiches des Kanals vernachlässigt wird. Dadurch wird die mittlere Nusselt-Zahl zu klein und somit die wärmeübertragende Fläche zu groß berechnet.

Für die von dem Aspektenverhältnis des Kühlkanals abhängige mittlere Nusselt-Zahl gilt nach [100]

$$\overline{Nu}_{lam,\vartheta} \chi = 7,541 \cdot 1 - 2,61 \cdot \chi + 4,97 \cdot \chi^2 - 5,119 \cdot \chi^3 + 2,702 \cdot \chi^4 - 0,548 \cdot \chi^5 \quad \text{Gl. 6.17}$$

mit $0 \leq \chi \leq 1$

$$\overline{Nu}_{lam,q} \chi = 8,235 \cdot 1 - 2,0421 \cdot \chi + 3,0853 \cdot \chi^2 - 2,4765 \cdot \chi^3 + 1,0578 \cdot \chi^4 - 0,1861 \cdot \chi^5 \quad \text{Gl. 6.18}$$

mit $0 \leq \chi \leq 1$

Bei turbulenter Kanalströmung ergeben sich für die Randbedingungen der konstanten Wandtemperatur und der konstanten Wärmestromdichte nahezu die gleichen mittleren Nusselt-Zahlen [101]. In Abhängigkeit der Prandtl-Zahl gilt für $\overline{Nu}_{turb}$

$$\overline{Nu}_{turb} = 0,0214 \cdot (\text{Re}^{0,8} - 100) \cdot \text{Pr}^{0,4} \cdot \left[1 + \left(\frac{d_{hyd,KK}}{l_{KK}} \right)^{2/3} \right] \quad \text{mit } 0,5 < \text{Pr} < 1,5 \quad \text{Gl. 6.19}$$

$$\overline{Nu}_{turb} = 0,012 \cdot (\text{Re}^{0,87} - 280) \cdot \text{Pr}^{0,4} \cdot \left[1 + \left(\frac{d_{hyd,KK}}{l_{KK}} \right)^{2/3} \right] \quad \text{mit } 1,5 < \text{Pr} < 500 \quad \text{Gl. 6.20}$$

Der Übergang vom laminaren in das turbulente Strömungsregime vollzieht sich bei einer Reynolds-Zahl von $Re=2300$. Die Stoffwerte sind bei einer zwischen Eintritts- und Austritts-temperatur gemittelten Fluidtemperatur ermittelt.

Alle Berechnungen gehen von einer über den Kanalquerschnitt konstanten Wandtemperatur aus. Werden die Stege der Kühlkanäle als ebene Rippen betrachtet, entspricht diese Annahme einem Rippenwirkungsgrad von 100 %. Die Berechnung des Rippenwirkungsgrades ist in Kapitel 13.3 (Gleichung 13.18 - 13.20) erläutert. Überprüft an den drei in Tabelle 6.3 des vorherigen Kapitels aufgeführten Auslegungsbeispielen zeigt sich, dass der Rippenwirkungsgrad in allen Fällen über 99,8 % liegt und somit die Annahme einer über den Kanalquerschnitt konstanten Wandtemperatur zulässig ist.

Die im Folgenden beschriebene Optimierung der Kühlzellenstruktur hat zum Ziel, die durch die Kühlung bedingte Verlustleistung zu minimieren. Für einen wassergekühlten Zellstapel werden

die Berechnungsansätze am Beispiel einer mäanderförmigen Kühlkanalstruktur erläutert. Für andere Kühlkanalstrukturen ist die Auslegungsroutine entsprechend anzupassen. Die Verlustleistung berechnet sich nach Gleichung 6.3. Die in Gleichung 6.3 enthaltene Pumpleistung ist ausschließlich durch die Druckverluste in der Kühlzelle bedingt (Gleichung 6.9 beziehungsweise 6.10). Die Ohmsche Verlustleistung ergibt sich aus den Gleichungen 6.4 bis 6.6.

Die die Verlustleistung bestimmenden Einflussgrößen können in die drei Gruppen Betriebsparameter, Stoffwerte und Geometrieparameter eingeteilt werden.

$$\begin{aligned} P_{\text{Verlust, Kühl.}} \quad P_{\text{Pumpe}} \quad P_{\text{Querstrom}} \quad P_{\text{Längsstrom}} \\ = f(\text{Betriebsparameter, Stoffwerte, Geometrieparameter}) \end{aligned} \quad \text{Gl. 6.21}$$

Als bekannt vorausgesetzt werden die Betriebsparameter, wie beispielsweise die Stromdichte und der Kühlwassermassenstrom, sowie die Stoffwerte, wie beispielsweise die elektrische Leitfähigkeit des Kühlzellenwerkstoffs. Die Verlustleistung ist somit eine reine Funktion der Kühlzellen- beziehungsweise Kühlkanalgeometrie. Zu den Geometrieparametern zählen die aktive Fläche, die Restwandstärke der Bipolarplatte, die Anzahl der Kühlkanäle, die Kühlkanalbreite und -tiefe, die Stegbreite, die Anzahl der Strömungsumlenkungen in einem Kanal und die Flowfeldbreite. In Bild 6.3 sind die Geometrieparameter am Beispiel einer Kühlkanalstruktur mit einem Kanal bezeichnet. Alle weiteren Geometriegrößen, die für die Berechnung der Verlustleistung benötigt werden, lassen sich aus den oben aufgeführten Geometrieparametern ableiten. Für eine Kühlstruktur mit einer geraden Anzahl an mäanderförmigen Kanälen ergibt sich beispielsweise die Kühlkanallänge zu

$$l_{KK} = \frac{N_{Uml.}}{2} \cdot [2 \cdot (b_{FF} - b_{KK}) + N_{KK} \cdot (b_{Steg} + b_{KK})] - b_{Steg} \quad \text{Gl. 6.22}$$

Für die Gesamtlänge der von den Kühlkanälen abgedeckten Fläche gilt

$$l_{FF} = \frac{N_{Uml.}}{2} \cdot N_{KK} \cdot (b_{Steg} + b_{KK}) - b_{Steg} \quad \text{Gl. 6.23}$$

Bei der Berechnung der Kühlkanallänge l_{KK} und der Länge des Kühlflowfields l_{FF} wird jeweils die Strecke von den Kühlwassermanifolds bis zu der ersten Strömungsumlenkung vernachlässigt.

Gleichung 6.21 ist nun mit einem geeigneten mathematischen Algorithmus (beispielsweise bietet MS-Excel mit der Funktion *Solver* einen solchen Optimierungsalgorithmus) zu minimieren. Die Gewichtung der einzelnen Verlustanteile kann je nach Anwendungsfall durch Faktoren vor den entsprechenden Termen beliebig gewählt werden.

Bei der Optimierung sind die folgenden Nebenbedingungen einzuhalten:

- $l_{FF, \min} \quad l_{FF} \quad l_{FF, \max}$
- $b_{FF} \quad b_{FF, \max}$
- $b_{KK} \quad b_{KK, \max}$
- $h_{KK} \quad b_{KK}$
- $T_m \quad T_{m, \max}$

Die maximale Kühlflowfeldlänge und -breite ist durch die Bipolarplattengeometrie limitiert. Um eine gleichmäßige Verteilung der Kühlkanäle über der aktiven Fläche zu gewährleisten, ist die Kühlflowfeldlänge zusätzlich durch einen unteren Wert begrenzt. Bei der betrachteten Bipolarplatte beträgt die maximale Flowfeldlänge 160 mm, die minimale Länge wird mit 80 % der maximalen angesetzt. Die Flowfeldbreite ist begrenzt auf 132 mm. Um die Wegstrecke des quer fließenden Stroms gering zu halten und somit einer möglicherweise verringerten Stromproduktion an der über den Kanälen liegenden aktiven Fläche vorzubeugen, wird die Breite der Kühlkanäle auf einen oberen Wert ($b_{KK,max}=5$ mm) begrenzt. Im Hinblick auf einen möglichst kompakten Zellstapel mit hoher volumetrischer Leistungsdichte wird gefordert, dass die Kühlkanalbreite nicht kleiner als die Kühlkanalhöhe ist.

Die wärmetechnische Auslegung erfolgt über die letzte Nebenbedingung. Die mittlere Temperaturdifferenz zwischen Kühlwasser und Kanalwand berechnet sich nach den Gleichungen 6.13 - 6.20. Eine geringe Temperaturdifferenz im Bereich von wenigen Kelvin erhöht die treibende Temperaturdifferenz zwischen dem Kühlwasser und der Umgebung und führt somit zu einer kleineren Bauteilgröße des Wärmeübertragers. Wird über das Kühlwasser die kathoden-seitig zugeführte Luft vorgewärmt und befeuchtet, ist ebenfalls ein hohes Temperaturniveau des Kühlwassers vorteilhaft. Für die Berechnungen wird gefordert, dass die Differenz zwischen Kühlwasser- und Kanalwandtemperatur kleiner als 3 K ist.

Die Nebenbedingung der maximal zulässigen Kühlwassererwärmung von 5 K findet bereits in dem Betriebsparameter Kühlwassermassenstrom Berücksichtigung.

Eine weitere Nebenbedingung, die bei den hier vorgestellten Rechnungen nicht verwendet ist, könnte beispielsweise sein, dass der Druckverlust des Kühlwassers in einem vorgegebenen Bereich liegen muss. Dabei richtet sich der maximale Wert beispielsweise nach der Leistung der gewählten Pumpenart. Die Beschränkung auf einen minimalen Wert erfolgt, um bei vorgegebener Fläche der Kühlwassermanifolds eine homogene Verteilung des Kühlwassers auf die einzelnen Kühlzellen zu garantieren (siehe Kapitel 5).

Bei den Berechnungen werden die aktive Fläche sowie die Restwandstärke der Bipolarplatten als bekannt vorausgesetzt. Sie entsprechen den Werten aus Tabelle 6.2 in Kapitel 6.3. Die Kanalanzahl und die Kanaltiefe werden zum besseren Vergleich mit den Ergebnissen aus dem vorherigen Kapitel entsprechend den Auslegungsbeispielen 2 und 3 festgelegt. Für die Optimierung werden variiert: Kanalbreite, Stegbreite und Flowfeldbreite. Um die Kanäle möglichst gleichmäßig über die gesamte Fläche verteilen zu können, ist gefordert, dass mindestens 3 Kanalschleifen, entsprechend 12 Strömungsumlenkungen, vorliegen müssen.

Die Rechenergebnisse für die optimierten Kühlkanalstrukturen sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst. Im zweiten Auslegungsbeispiel muss die Länge der vier Kühlkanäle verlängert werden, damit alle geforderten Nebenbedingungen eingehalten werden können. Bei einer Kanaltiefe und -breite von 2 mm und einer Stegbreite von 3,9 mm sieht das neue Design eine zusätzliche Kanalschleife vor. Im Vergleich zu dem Ausgangsdesign verringert sich die Verlustleistung um 18 % auf 0,79 % der produzierten elektrischen Leistung.

Im Fall des Auslegungsbeispiels 3 zeigt die Auslegungsroutine, dass die Anzahl der Strömungsumlenkungen von 36 auf 12 reduziert werden kann. Für das optimierte Design beträgt die Ver-

lustleistung 0,52 % der produzierten elektrischen Leistung. Dies ist im Vergleich zu dem Ausgangsdesign eine Verringerung um 64 %.

Tabelle 6.4: Optimierte Geometrien für die wassergekühlten Auslegungsbeispiele aus Kapitel 6.3

	b_{KK} [mm]	b_{Steg} [mm]	$N_{Uml.}$ [-]	$P_{Verlust,Strom}$ [% P_{el}]	P_{KK} [mbar]	P_{Pumpe} [% P_{el}]	$P_{Verlust,Kühl.}$ [% P_{el}]
Auslegungsbeispiel 2	2	3,9	28	0,70	49	0,09	0,79
Auslegungsbeispiel 3	3,7	25,7	12	0,33	106	0,19	0,52

Damit zeigt die Designvariante mit zwei Kanälen und einer Kanaltiefe von 1 mm sowohl bezüglich der volumetrischen Leistungsdichte als auch bezüglich der durch die Kühlung hervorgerufenen Verlustleistung Vorteile. Ein weiterer Vorteil wird ersichtlich, wenn die benötigte Fläche der Kühlwassermanifolds verglichen wird, die einen Grad der Ungleichverteilung von 5 % (Definition siehe Kapitel 5.1.3) gewährleistet. Ist die Fläche des Verteilermanifolds halb so groß wie die des Sammlermanifolds, stellt sich bei einer Gesamtmanifoldfläche von 3,24 cm² für das optimierte Auslegungsbeispiel 3 die geforderte homogene Medienverteilung auf die Einzelzellen des Stapels ein. Unter den gleichen Bedingungen benötigt Auslegungsbeispiel 2 eine 40 % größere Manifoldfläche.

6.5 Berechnung der optimalen Kühlzellenanzahl in einem Zellstapel

Bei den bisherigen Betrachtungen ist jede Zelle des Stapels gekühlt worden. Im Folgenden wird überprüft, ob die Verlustleistung durch die Kühlung verringert werden kann, wenn die Kühlzellenanzahl kleiner als die Zellenanzahl ausgeführt wird. Schematisch ist in Bild 6.7 an zwei Beispielen die mögliche Positionierung der Kühlzellen in dem Zellstapel gezeigt.

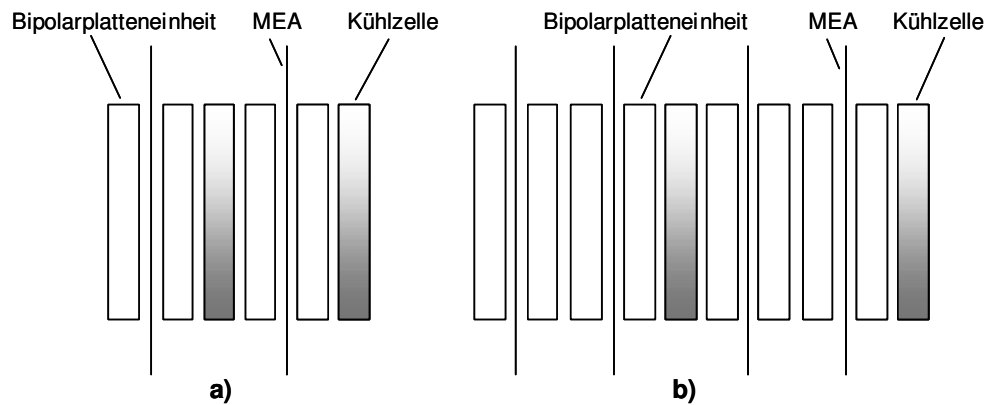


Bild 6.7: Anordnung der Kühlzellen in einem Zellstapel bei Kühlung:
a) jeder Zelle, b) jeder zweiten Zelle

Die Bestimmung der optimalen Kühlzellenanzahl erfolgt mit der im vorherigen Kapitel vorgestellten Auslegungsroutine für eine Kühlkanalstruktur mit zwei Kühlkanälen. Der von einer Kühlzelle abzuführende Wärmestrom erhöht sich entsprechend der Anzahl der pro Kühlzelle gekühlten Einzelzellen. Die produzierte Wärme fällt auf der Anoden- und Kathodenseite zu gleichen Teilen an. Die Betriebs- und Nebenbedingungen sind mit denen aus Kapitel 6.3, 6.4 identisch. Die zulässige Kühlwassererwärmung beträgt 5 K. Die treibende Temperaturdifferenz zwischen Kühlwasser und Kanalwand soll 3 K betragen. Die Kühlkanaltiefe ist variabel.

Aufgrund der ohnehin schon geringen Verlustleistung durch die Kühlung ist das Kühlen von mehr als einer Zelle pro Kühlzelle nur sinnvoll, wenn dadurch die volumetrische Leistungsdichte des Zellstapels erhöht wird. Als weitere Nebenbedingung wird daher eingeführt, dass die Gesamtlänge des Zellstapels nicht größer sein soll als die Länge des Stapels, bei dem hinter jeder Zelle eine 1 mm dicke Kühlzelle angeordnet ist (Auslegungsbeispiel 3, Kapitel 6.3). Unter der Annahme, dass die Dicke der 50 Einzelzellen konstant $h_{EZ}=4$ mm beträgt, ergeben sich die Unterschiede in der Gesamtlänge des Stapels ausschließlich durch die Summe der Kühlzellendicke. Diese konservative Berechnung berücksichtigt nicht, dass die anodischen und kathodischen Bipolarplattenelemente aus einem Bauteil gefertigt werden können, wenn zwischen den benachbarten Zellen keine Kühlstruktur integriert ist. Bei gleicher Restwandstärke ist diese einzelne Bipolarplatte dünner.

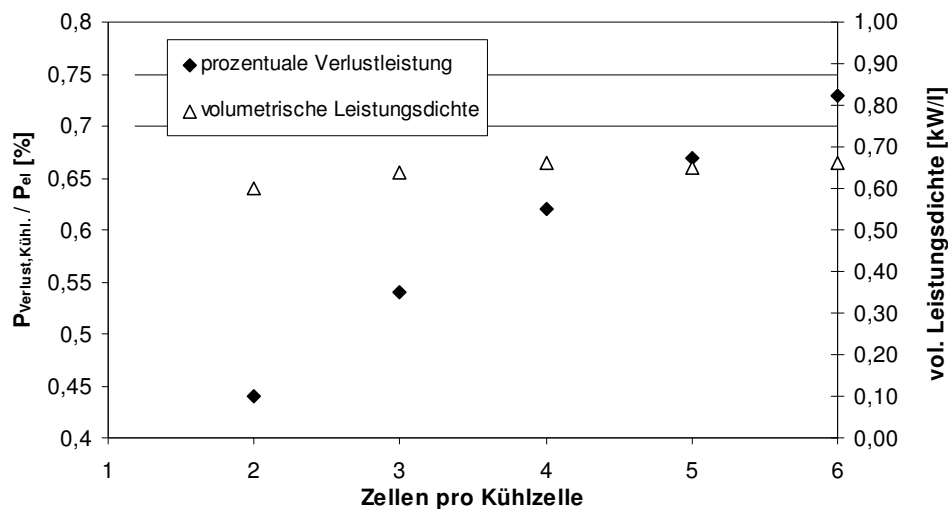


Bild 6.8: Prozentuale Verlustleistung und volumetrische Leistungsdichte als Funktion der pro Kühlzelle gekühlten Einzelzellen

In Bild 6.8 ist die prozentuale Verlustleistung durch die Kühlung über der Anzahl der pro Kühlzelle gekühlten Einzelzellen aufgetragen. Die geringste Verlustleistung liegt vor, wenn je zwei Zellen von einer Kühlzelle gekühlt werden. In den aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Brennstoffzellenstapel sind demnach 25 Kühlzellen integriert. Im Vergleich zu dem Stapel, bei dem jede Zelle von einer 1 mm dicken Kühlzelle gekühlt wird, kann die Verlustleistung um 15 % auf

0,44 P_{el} verringert werden. Gleichfalls steigt die volumetrische Leistungsdichte des Stapels von 0,52 kW/l auf 0,6 kW/l. Unter den betrachteten Fällen erzielt der Stapel, in dem jede sechste Zelle gekühlt wird, die größte volumetrische Leistungsdichte. Im Vergleich zu der Referenz ist die Gesamtlänge dieses Zellstapels um 22 % kürzer, die Verlustleistung allerdings um 40 % höher.

Die Ergebnisse aus Bild 6.8 verdeutlichen, dass die Wärmeabfuhr auch dann gewährleistet ist, wenn von einer Kühlzelle mehr als eine Einzelzelle gekühlt wird. Zu beachten ist allerdings, dass die Temperaturunterschiede zwischen der Membran und der Kühlkanalwand beziehungsweise zwischen den einzelnen Zellen möglichst gering sind.

Mittels eines vereinfachenden Ansatzes wird die maximale Temperaturdifferenz zwischen der Kühlkanalwand und der am weitesten von der entsprechenden Kühlzelle entfernten Membran abgeschätzt. Der Ansatz basiert auf der Annahme einer eindimensionalen, normal zu der Membranebene gerichteten Wärmeleitung in ebenen Wänden mit Wärmequellen. Der Einfluss unterschiedlicher Zelltemperaturen auf das Wassermanagement und die Stromproduktion in den Zellen bleibt unberücksichtigt. Die abzuführende Wärmemenge ist für alle Zellen gleich groß.

Für die maximale Temperaturdifferenz findet sich folgende Gleichung

$$\Delta T_{Mem,max-KKW} = \begin{cases} \frac{\dot{Q}_{Kühl.}}{2} \cdot \frac{h_{EZ}}{A_{aktiv} \cdot \lambda_{eff}} \cdot \left(\frac{(N_{EZ/KZ})^2}{4} + 0,25 \right) & \text{mit } N_{EZ/KZ} = 1, 3, 5, \dots \\ \frac{\dot{Q}_{Kühl.}}{2} \cdot \frac{h_{EZ}}{A_{aktiv} \cdot \lambda_{eff}} \cdot \left(\frac{(N_{EZ/KZ})^2}{4} \right) & \text{mit } N_{EZ/KZ} = 2, 4, 6, \dots \end{cases} \quad \text{Gl. 6.24}$$

h_{EZ} beschreibt die Höhe einer Einzelzelle, die sich aus der Summe der Bipolarplatten-, Diffusionsschicht- und Membrandicke ergibt. $N_{EZ/KZ}$ bezeichnet die Anzahl der von einer Kühlzelle gekühlten Einzelzellen. Als wärmeübertragende Fläche wird die Hälfte der durch das Flowfield strukturierten aktiven Fläche angesetzt. Für die effektive Wärmeleitfähigkeit λ_{eff} gilt

$$\frac{h_{EZ}}{\lambda_{eff}} = \frac{2 \cdot h_{BPP}}{\lambda_{BPP}} + \frac{2 \cdot h_{Diff}}{\lambda_{Diff}} + \frac{h_{Mem}}{\lambda_{Mem}} \quad \text{Gl. 6.25}$$

In Tabelle 6.5 sind die den Rechnungen zugrunde liegenden Materialstärken und Wärmeleitfähigkeiten der Zellkomponenten aufgelistet. Für die Wärmeleitfähigkeit der vollständig gesättigten Membran wird ein gemittelter Wert aus den Wärmeleitfähigkeiten von Wasser und PTFE angesetzt. Da in der Literatur keine belastbaren Werte für die Wärmeleitfähigkeit der vorliegenden Diffusions- und Katalysatorschicht vorhanden sind, wird nach [102] ein realistischer Wert von $\lambda_{Diff} = 1,3 \text{ W/(m} \cdot \text{K)}$ abgeschätzt.

Tabelle 6.5: Materialstärken und Wärmeleitfähigkeiten der Zellkomponenten

		Materialstärke [mm]	Wärmeleitfähigkeit [W/(m*K)]
Bipolarplattenelement	:	1,8	50
Diffusions- + Katalysatorschicht	:	0,18	1,3
Membran	:	0,04	0,5

Unter Verwendung der in Tabelle 6.5 aufgeführten Werte ergibt sich eine Einzelzellhöhe von $h_{EZ}=4$ mm und eine effektive Wärmeleitfähigkeit der Zelle von $\lambda_{eff}=9,3$ W/(m*K). Bei Kühlung jeder Zelle beträgt der Temperaturunterschied zwischen Membran- und Kühlkanalwandtemperatur (Rippenfußtemperatur) circa 1 K. Der Temperaturunterschied steigt auf circa 17 K an, wenn nur nach jeder sechsten Zelle eine Kühlzelle angeordnet ist. Die Abhängigkeit der maximalen Temperatur (Gleichung 6.24) von der Kühlzellenanzahl im Stapel ist in Bild 6.9 aufgetragen.

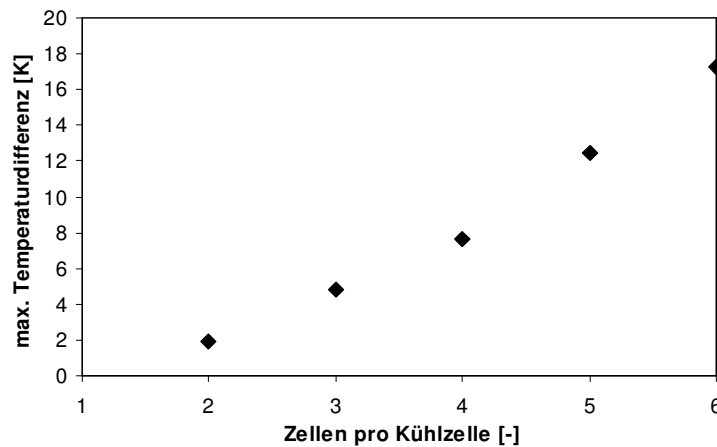


Bild 6.9: Maximale Temperaturdifferenz in Abhängigkeit der pro Kühlzelle gekühlten Einzelzellen

Bild 6.9 bestätigt, dass aufgrund der hohen effektiven Wärmeleitfähigkeit der Zellkomponenten die Kühlzellenanzahl kleiner als die Zellenanzahl ausgeführt werden kann. Im stationären Betrieb sind bei einer Betriebstemperatur von 70 °C die maximalen Temperaturen ausreichend weit von den zulässigen Materialgrenztemperaturen entfernt. Bei abrupten Lastwechseln besteht allerdings die Gefahr, dass unzulässig hohe Temperaturspitzen auftreten, wenn mehrere Zellen von einer Kühlzelle gekühlt werden. Temperaturdifferenzen zwischen den einzelnen Zellen von mehr als 4 K lassen erwarten, dass aufgrund der Unterschiede im Wassermanagement einzelne Zellen nicht im optimalen Betriebsbereich arbeiten.

Auch im Hinblick auf die Verlustleistung wird daher unter den vorliegenden Betriebsbedingungen ein Zellaufbau empfohlen, bei dem nach jeder zweiten Zelle eine Kühlzelle angeordnet ist.

6.6 Zusammenfassung

Die bei der elektrochemischen Reaktion entstehende Wärmemenge kann in einem Brennstoffzellenstapel der 5 kW Klasse nicht alleine durch freie Konvektion und Enthalpieänderung der Reaktandenströme aus dem Zellstapel abgeführt werden. Eine aktive Kühlung des Stapels ist notwendig.

Aus der Literatur bekannte Brennstoffzellen dieser Leistungsklasse zeigen sowohl luft- als auch wassergekühlte Zellstapelkonstruktionen. Bezüglich der durch die Kühlung bedingten Verlustleistung werden drei unterschiedliche Auslegungsbeispiele miteinander verglichen. Ein Auslegungsbeispiel sieht Luftkühlung vor, die anderen beiden Wasserkühlung. Die Verlustleistung setzt sich aus einem Anteil, der durch die Ohmschen Verluste bei der Leitung des Stroms durch die Kühlzellen bedingt ist, sowie einem Anteil, der durch die Förderung des Kühlmediums entsteht, zusammen. Bei vergleichbarer Verlustleistung zeigt sich, dass dem Vorteil eines einfacheren und möglicherweise kleineren Systems bei der Luftkühlung die große Temperaturspreizung der Kühlluft gegenübersteht. Die damit einhergehenden großen Temperaturgradienten in den Einzelzellen bedingen ein aufwendiges Wassermanagement. Nur durch eine optimal aufeinander angepasste Strömungsführung der Reaktandengase und der Kühlluft kann dem Rechnung getragen werden. Da die den Betrachtungen zugrunde liegende Mäander-Flowfieldstruktur der Reaktandengase diesen Ansprüchen nicht genügt, werden die wasserbasierten Kühlkonzepte favorisiert.

Eine entwickelte Auslegungsroutine optimiert die Kühlzelligeometrie bezüglich der durch die Kühlung bedingten Verlustleistung. Diese Routine erlaubt neben der Betrachtung der strömungsbedingten und Ohmschen Verlustleistung auch eine Berücksichtigung wärmetechnischer Gesichtspunkte. Die Berechnungsansätze der Auslegungsroutine werden am Beispiel einer mäanderförmigen Kühlkanalstruktur erläutert. Für andere Kühlkanalstrukturen sind die Berechnungsansätze entsprechend anzupassen. Angewendet auf die obigen wassergekühlten Auslegungsbeispiele, kann die Verlustleistung unter den getroffenen Annahmen mit Hilfe der Auslegungsroutine um bis zu 64 % gesenkt werden.

Ebenfalls kann mit der Auslegungsroutine die optimale Anzahl an Kühlzellen in einem Brennstoffzellenstapel ermittelt werden. Für den untersuchten 5 kW Zellstapel ergibt sich die geringste Verlustleistung, wenn nach jeder zweiten Einzelzelle eine Kühlzelle angeordnet ist. Eine Abschätzung lässt vermuten, dass die maximale Temperaturdifferenz von 2 K in diesem Zellstapel unkritisch für den optimalen Betrieb ist.

Die Berechnungen zeigen, dass die durch die Kühlung entstehende Verlustleistung in einem wassergekühlten Zellstapel bezogen auf die produzierte elektrische Leistung mit <1 % gering ist. Zur merklichen Steigerung der Leistung sollte daher das Hauptaugenmerk bei der Brennstoffzellenoptimierung auf andere Verlustquellen, wie zum Beispiel die Aktivierungs- und Konzentrationsüberspannungen (siehe Kapitel 2.3.2), gelegt werden.

Die in diesem Kapitel getroffenen Annahmen sollten in weiterführenden Arbeiten durch experimentelle Untersuchungen sowie numerische Strömungssimulationsrechnungen untermauert werden.

7 Befeuchtung

Die in dieser Arbeit verwendeten Membranen basieren auf dem perfluorierten sulfonierten Ionomer Nafion®. Die ionische Leitfähigkeit dieser Membranen hängt stark von ihrem Wassergehalt ab. Bevorzugt in den Zellbereichen, in denen die Reaktanden zugeführt werden, kann es zur lokalen Austrocknung der Membran kommen (siehe Kapitel 4.3.1). Um den dadurch bedingten erhöhten Widerständen und einer möglichen Membranschädigung vorzubeugen, müssen die Reaktanden vor dem Eintritt in die Zelle befeuchtet werden.

7.1 Befeuchtungskonzepte

Einen Überblick über unterschiedliche Befeuchtungskonzepte gibt Bild 7.1.

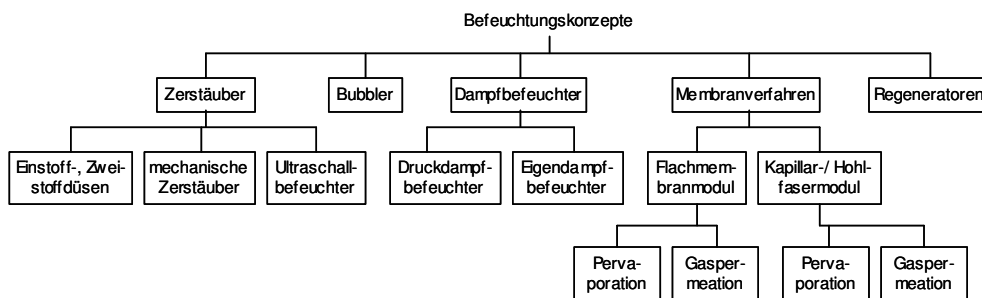


Bild 7.1: Befeuchtungskonzepte

Bei Zerstäubern wird mit Hilfe von Einstoff- und Zweistoffdüsen oder mechanischen Zerstäubern flüssiges Wasser zerstäubt und dem zu befeuchtenden Medium zugeführt. Die für die Verdampfung der Wassertropfen benötigte Verdampfungsenthalpie wird dem Medium entzogen. Aufgrund der geringen Wärmekapazitätsströme der Reaktandengase sind hohe Gastemperaturen notwendig, um die Verdampfungsenthalpie bereitstellen zu können. Der Einsatz von Zerstäubern ist daher nur in Kombination mit einem vorgeschalteten Kompressor in druckaufgeladenen Systemen sinnvoll. Dabei können Kompression und Befeuchtung in einem gemeinsamen Bauteil realisiert werden [103]. Die Befeuchtung dient gleichzeitig zur Kühlung der bei der Kompression erwärmten Gase vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle. Die ebenfalls zu den Zerstäubern zählenden Ultraschallbefeuchter scheinen wegen der geringen Durchsätze nicht für den Einsatz in Brennstoffzellen geeignet.

Ähnlich dem Prinzip einer Waschflasche wird in Bubbler das zu befeuchtende Medium durch einen mit Wasser gefüllten Behälter geleitet. Aufgrund der Lageabhängigkeit, dem begrenzten

Reaktandendurchsatz sowie der Abhängigkeit von der Füllstandshöhe beschränkt sich der Einsatz von Bubbler in Brennstoffzellen auf Laboranwendungen.

Die Dampf-befeuchter unterteilen sich in Druckdampf- und Eigendampf-befeuchter. Da der Dampf aufgrund der geringen Betriebstemperaturen nicht mit Hilfe des aus der Brennstoffzelle abgeführten Wärmestroms in ausreichendem Maße erzeugt werden kann, ist diese Art der Befeuchtung für Niedertemperaturbrennstoffzellen ungeeignet.

Membranverfahren zur Befeuchtung der Reaktanden gliedern sich in Prozesse der Pervaporation und Gaspermeation. In beiden Prozessen kommen Lösungs-Diffusions-Membranen zum Einsatz. Bei der Pervaporation trennt die Membran flüssiges Wasser von dem gasförmigen Reaktandenstrom. Der Partialdruck des durch die Membran permeierenden Wassers ist kleiner als der zugehörige Sattdampfdruck, so dass das Wasser auf der Reaktandengasseite verdampft. Die hierzu notwendige Enthalpie wird dem flüssigen Wasser auf der anderen Membranseite entzogen. Bei der Gaspermeation liegen auf beiden Seiten der Membran gasförmige Medien vor. In einem solchen Befeuchter findet ein Wasser- und Wärmeaustausch zwischen dem trockenen in die Brennstoffzelle strömenden und dem feuchten aus der Brennstoffzelle strömenden Reaktandengas statt. Im Gegensatz zu den bisher vorgestellten Befeuchtungsarten kann bei der Gaspermeation das in dem Abgas enthaltene gasförmige Wasser zurück gewonnen werden, ohne dass es in einem Kondensator zuvor in den flüssigen Zustand überführt werden muss. Bei beiden Membranprozessen können die Befeuchter als Kapillar- oder Hohlfasermodule oder als Plattenmodule mit Flachmembran ausgeführt werden. Plattenmodule können direkt in die Brennstoffzellenstapel integriert werden, besitzen allerdings mit $< 400 \text{ m}^2/\text{m}^3$ eine geringe Packungsdichte. Kapillar- und Hohlfasermodule zeichnen sich mit $< 1000 \text{ m}^2/\text{m}^3$ beziehungsweise $< 10000 \text{ m}^2/\text{m}^3$ durch eine deutlich höhere Packungsdichte aus [104, pp. 69]. Auch bei Regeneratoren kann Wasser und Wärme direkt aus den Abgasströmen zurück gewonnen werden. Das in den Abgasströmen enthaltene Wasser adsorbiert an einer auf dem Rotor des Regenerators aufgetragenen Beschichtung aus beispielsweise Silcagel oder Zeolith und wird von dem trockenen Reaktandengas desorbiert [105]. Im Fall von druckaufgeladenen Systemen kann der Regenerator auch als Zwischenkühler für das komprimierte Gas dienen. Nachteilig an dieser Art der Befeuchtung ist, dass elektrische Energie für den Antrieb des Rotors benötigt wird. Ebenfalls muss die Langzeitstabilität der rotierenden Teile sowie der Rotorbeschichtung unter den in Brennstoffzellensystemen vorherrschenden Bedingungen nachgewiesen werden.

Im Folgenden wird ein Befeuchtermodul mit Flachmembran experimentell charakterisiert. Das Modul wird sowohl als Pervaporations- als auch als Gaspermeationsbefeuchter betrieben. Die Ergebnisse der Charakterisierung dienen der Dimensionierung der Befeuchtereinheiten für einen 5 kW Brennstoffzellenstapel.

7.2 Membranverfahren

Bei den zur Befeuchtung der Reaktandengase in Brennstoffzellen eingesetzten Membranen handelt es sich um Lösungs-Diffusions-Membranen. In Lösungs-Diffusions-Membranen findet ein diffusionskontrollierter Stoffaustauschvorgang statt. Die Triebkraft des Transportmechanismus ist die Differenz des elektrochemischen Potentials zwischen beiden Seiten der Membran. Eine Beschreibung des Stofftransports in den Membranen erfolgt mit Hilfe des Lösungs-Diffusions-Modells [104, pp. 40], [106]. Das vorliegende Kapitel beschränkt sich auf die rein experimentelle Charakterisierung der Befeuchter. Aufbau und Geometrie des untersuchten Befeuchtermoduls entsprechen dem in Kapitel 3.1 beschriebenen Aufbau einer einzelnen Brennstoffzelle mit Mäanderströmungsstruktur. Anstelle der katalysatorbeschichteten Membran tritt eine unbeschichtete, 90 μm dicke Nafion[®]-Membran. Die für den Wasseraustausch zur Verfügung stehende Membranfläche beträgt 244 cm^2 .

7.2.1 Experimentelle Charakterisierung des Pervaporationsbefeuchters

In dem Pervaporationsbefeuchter trennt die quellfähige Polymermembran den zu befeuchtenden Gasraum von einem temperierten flüssigen Wasserkreislauf ab. Der Reaktandengasstrom ist im Folgenden als Permeat, das flüssige Wasser als Feed bezeichnet. Feed und Permeat werden im Gegenstrom zueinander zugeführt. Die Versuche beschränken sich auf Luft als Permeat. Luft wird dem Befeuchter getrocknet ($T_{\text{Tau}} < -40\text{ °C}$) bei Umgebungstemperatur zugeführt. Die Taupunkttemperatur des befeuchteten Permeats wird am Austritt des Befeuchters mit Hilfe eines Taupunktmessgerätes ermittelt. Der Messfehler der gemessenen Taupunkttemperatur der befeuchteten Luft wird mit $\pm 1\text{ K}$ abgeschätzt. Der Volumenstrom des flüssigen Wassers beträgt rund 1 l/min. Um Wärmeverluste an die Umgebung zu verringern, ist der Befeuchter thermisch isoliert. Eine detaillierte Beschreibung des Versuchsaufbaus findet sich in [107].

In Bild 7.2 ist die Taupunkttemperatur des Permeats am Befeuchteraustritt in Abhängigkeit der Befeuchtertemperatur für unterschiedliche Gasvolumenströme und Betriebsdrücke dargestellt. Alle in diesem Kapitel bezeichneten Permeatvolumenströme sind auf trockene Luft unter Standardbedingungen (1 bar, 273 K) bezogen. Als Befeuchtertemperatur ist der Mittelwert aus Feedeintritts- und Feedaustrittstemperatur bezeichnet. Die Permeataustrittstemperatur liegt im Mittel um weniger als 2 K unter der Befeuchtertemperatur. Der maximale Temperaturunterschied zwischen Permeataustritts- und Befeuchtertemperatur tritt im Fall des größten Gasvolumenstroms bei der höchsten Befeuchtertemperatur auf und beträgt 6 K. Mit steigender Befeuchtertemperatur steigt der durch die Membran permeierte Wassermassenstrom und somit die am Austritt des Permeats gemessene Taupunkttemperatur. Obwohl die erreichte Taupunkttemperatur des Permeats mit größer werdendem Gasvolumenstrom sinkt, steigt die übertragene Wassermenge. Der Grund dafür liegt in dem triebkraftverstärkenden Effekt eines geringeren mittleren permeatseitigen Wasserpartialdrucks. Des Weiteren bewirkt die höhere Strömungsgeschwindigkeit eine Verringerung der Konzentrationspolarisation. Eine permeatseitige Drucksteigerung führt zu deutlich erhöhten Permeattaupunkttemperaturen. Beispielsweise liegt bei einem Volumenstrom von 20 l/min und einer Befeuchtertemperatur von 70 °C die Taupunkttem-

peratur des Permeats bei einem Betriebsdruck von 2 bar um 5 K über der bei Umgebungsdruck. Aufgrund der geringeren Strömungsgeschwindigkeit sowie einem höheren mittleren Wasserpartialdruck ist die übertragene Wassermenge allerdings bei gleichem Volumenstrom unter Standardbedingungen bei dem höheren Druck geringer.

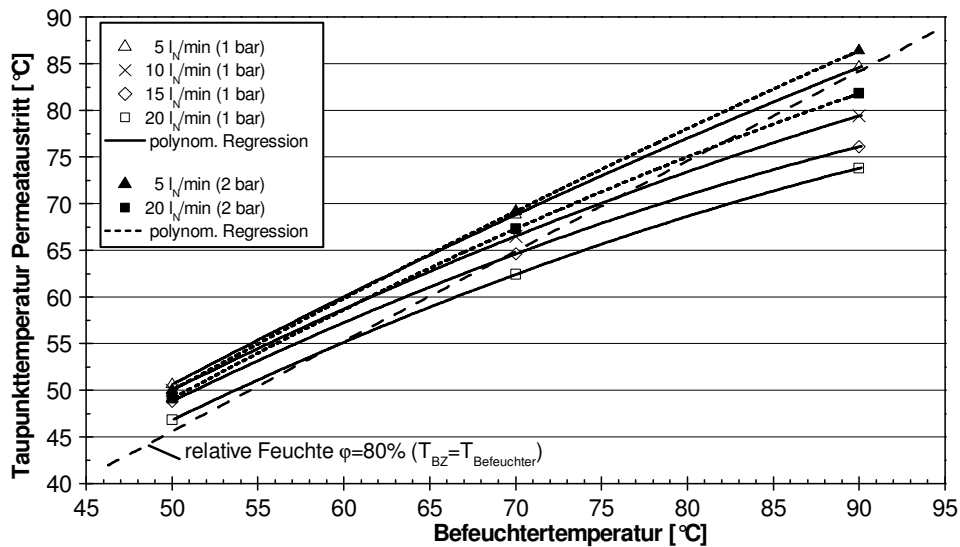


Bild 7.2: Abhängigkeit der Taupunkttemperatur des Permeats am Befeuchteraustritt als Funktion der Befeuchtertemperatur für unterschiedliche Permeatvolumenströme und Betriebsdrücke

Der hohe Wärmekapazitätsstrom des flüssigen Wassers führt zu einer gleichmäßigen Temperaturverteilung in dem Befeuchtermodul. Die für den Phasenwechsel des permeierenden Wassers benötigte Verdampfungsenthalpie wird dem flüssigen Wasser entzogen und führt zu einer Temperatursenkung. Bei hohen Massenströmen permeierenden Wassers kann die Bereitstellung der Verdampfungsenthalpie eine Temperaturdifferenz des flüssigen Wasser zwischen Feedeeintritt und –austritt von bis zu 5 K bewirken. Dies erklärt den degressiven Verlauf der Kurven in Bild 7.2, der besonders bei hohen Volumenströmen und Befeuchtertemperaturen zu beobachten ist. Dieser Effekt wird zusätzlich durch höhere Wärmeverluste an die Umgebung verstärkt.

Die in Kapitel 4.3.1 auf Seite 74 geforderte minimale relative Feuchte der Reaktandengase beträgt $\phi \geq 80\%$. Bild 7.2 zeigt den Verlauf der dieser relativen Feuchte entsprechenden Taupunkttemperatur des Permeats in Abhängigkeit der Befeuchtertemperatur. Der Darstellung liegt die Annahme zugrunde, dass die Befeuchtertemperatur der Brennstoffzellentemperatur entspricht. Es zeigt sich, dass mit einer einzelnen Befeuchterzelle bei einem Volumenstrom von beispielsweise 20 l/min und einem Betriebsdruck von 2 bar die Brennstoffzellentemperatur maximal 81 °C betragen darf. Wird der Befeuchter beziehungsweise die Brennstoffzelle unter Umgebungsdruck betrieben, liegt bei gleichem Gasmassenstrom die zulässige Zelltemperatur bei nur 60 °C.

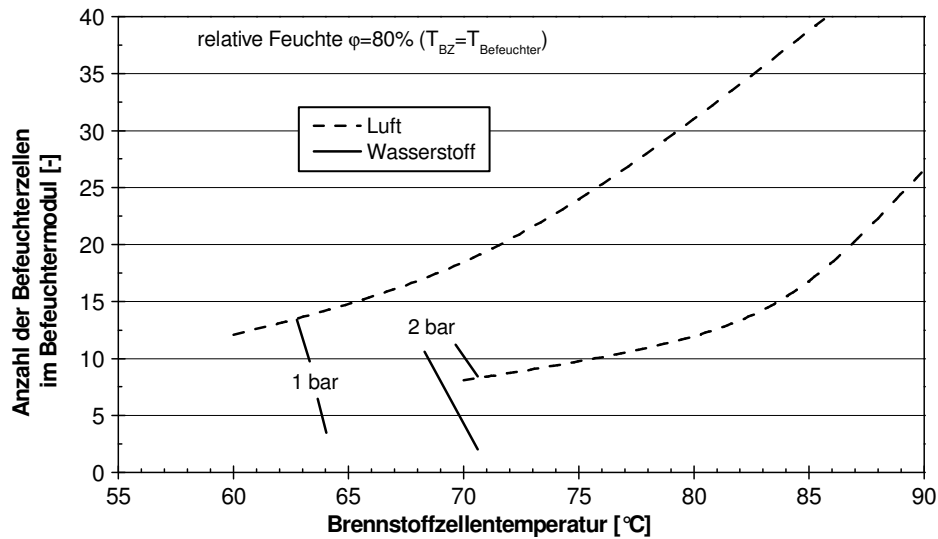


Bild 7.3: Anzahl der Befeuchterzellen für einen 5 kW Stapel in Abhängigkeit der Betriebstemperatur

Der vorliegende Flachmembranbefeuchter ist modular aufgebaut, so dass mehrere Befeuchterzellen zu einem Befeuchtermodul verschaltet werden können. Der Aufbau des Moduls ist dem der Brennstoffzelle ähnlich. Die einzelnen Befeuchterzellen werden parallel durchströmt. Am Beispiel des in Kapitel 6.1 beschriebenen 5 kW Zellstapels erfolgt für den Auslegungspunkt die Bestimmung der benötigten Anzahl an Befeuchterzellen in Abhängigkeit der Brennstoffzellentemperatur. Die Berechnungen erfolgen für einen Luft- und Wasserstoffstöchiometriekoeffizienten von 2 beziehungsweise 1,1. Unter Standardbedingungen entspricht dies Volumenströmen von 240 l/min beziehungsweise 56 l/min. Unter der Annahme, dass die Befeuchtercharakteristik für Luft und Wasserstoff gleich ist, ergibt sich Bild 7.3. Beispielweise werden bei einer Brennstoffzellentemperatur von 70 °C und einem Betriebsdruck von 1 bar 18 Befeuchterzellen mit einer Fläche von jeweils 244 cm² zur Befeuchtung der Luft benötigt. Die Anzahl der Befeuchterzellen verringert sich auf 9, wenn der Betriebsdruck auf 2 bar erhöht wird.

Der zur Brennstoffzellenkühlung eingesetzte Kühlwasserkreislauf kann als Feedstrom in dem Befeuchtermodul dienen. Für das obige Beispiel liegt die zur Verdampfung des permeierenden Wassers benötigte Verdampfungsenthalpie von maximal 2,6 kW deutlich unter dem vom Kühlwasser aus der Brennstoffzelle abgeführten Wärmestrom von rund 5,5 kW.

7.2.2 Experimentelle Charakterisierung des Gaspermeationsbefeuchters

Der Aufbau des Gaspermeationsbefeuchters entspricht dem des Pervaporationsbefeuchters. Anstelle des flüssigen Wasserkreislaufs kommt bei der Gaspermeation gesättigte Luft als Feed zum Einsatz. Bei den Versuchen entspricht der Volumenstrom der trockenen Luft des Feeds dem des Permeats. Die Taupunkttemperatur des befeuchteten Permeats wird am Austritt des Befeuchters mit Hilfe eines Taupunktmessgerätes ermittelt. Der Messfehler der gemessenen

Taupunkttemperatur der befeuchteten Luft wird mit ± 2 K abgeschätzt. Aus apparatetechnischen Gründen sind ausschließlich Messungen bei Umgebungsdruck möglich. Der nur begrenzt zur Verfügung stehende Volumenstrom gesättigter Luft beschränkt die Experimente im Punkt maximalen Luftvolumenstroms auf eine Feedeintrittstemperatur von circa 63 °C. [107] gibt eine detaillierte Beschreibung des Versuchsaufbaus.

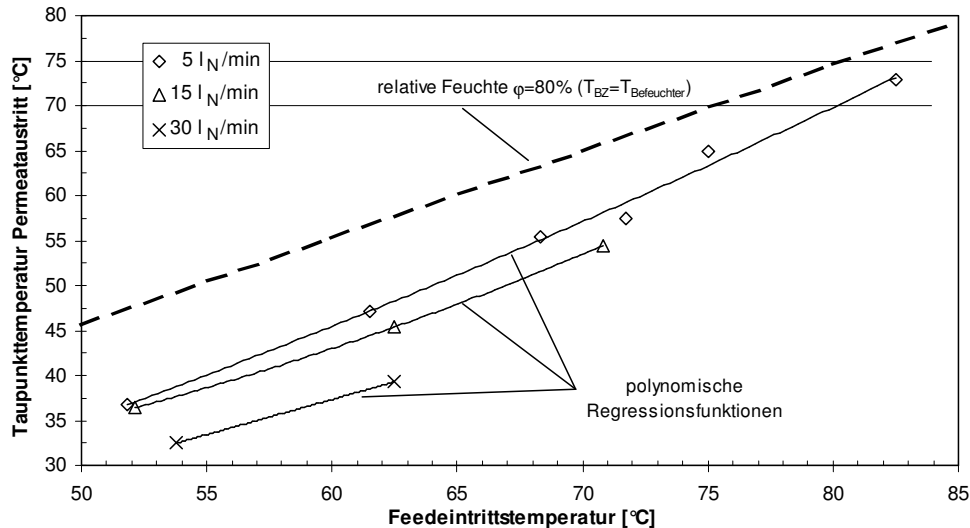


Bild 7.4: Abhängigkeit der Taupunkttemperatur des Permeats am Befeuchteraustritt als Funktion der Feedeintrittstemperatur für unterschiedliche Permeatvolumenströme

In Bild 7.4 ist die gemessene Taupunkttemperatur am Permeataustritt in Abhängigkeit der Feedeintrittstemperatur aufgetragen. Ähnlich der Pervaporation steigt mit steigender Befeuchtertemperatur die Taupunkttemperatur des Permeats. Mit größer werdendem Gasvolumenstrom sinkt die erreichte Taupunkttemperatur. Ein Vergleich zwischen Pervaporation und Gaspermeation zeigt, dass bei der Gaspermeation die Permeattaupunkttemperaturen bei gleichem Volumenstrom und gleicher Feedtemperatur deutlich niedriger liegen. Beispielsweise liegt bei einem Volumenstrom von 5 l/min und einer Feedeintrittstemperatur von 70 °C die Taupunkttemperatur bei der Gaspermeation um über 10 K unter der der Pervaporation.

Im betrachteten Feedtemperaturbereich ist der progressive Verlauf der Abhängigkeit der Taupunkttemperatur bei konstantem Volumenstrom auf zunehmende Wärmeverluste an die Umgebung zurückzuführen. Dies bedingt eine verstärkte Kondensation des gasförmigen Wassers im Feedgas. Somit liegt eine Mischform aus Gaspermeation und Pervaporation vor, die durch einen höheren übertragenen Wassermassenstrom zu einer gesteigerten Befeuchterleistung führt. Wird die Kathodenabluft zur Wasser- und Wärmerückgewinnung als Feed verwendet, wird nicht die auf die Brennstoffzellentemperatur bezogene minimale relative Feuchte der Reaktanden von 80 % erreicht. Um am Brennstoffzelleneintritt dennoch die geforderte Feuchte der Reaktanden zu erreichen, müssen diese demnach bei einer Temperatur zugeführt werden, die unterhalb der Brennstoffzellentemperatur liegt. Dies führt zu einer inhomogenen Temperaturverteilung in der Brennstoffzelle.

7.3 Zusammenfassung

Die ionische Leitfähigkeit der in den Brennstoffzellen verwendeten Membranen hängt stark von ihrem Wassergehalt ab. Um erhöhten ohmschen Verlusten und einer möglichen Membranschädigung vorzubeugen, müssen die Reaktanden vor dem Eintritt in die Zelle befeuchtet werden. Eine experimentelle Charakterisierung eines Membranbefeuchtermoduls zeigt, dass sich Membranverfahren zur Befeuchtung der Reaktandengase in PEFCs als besonders geeignet erweisen. Das Befeuchtermodul wird sowohl als Pervaporations- als auch als Gaspermeationsbefeuchter betrieben. Aufbau und Geometrie des untersuchten Moduls entsprechen dem in Kapitel 3.1 beschriebenen Aufbau einer einzelnen Brennstoffzelle mit Mäander-Strömungsstruktur. Anstelle der katalysatorbeschichteten Membran tritt eine unbeschichtete, 90 µm dicke Nafion®-Membran. Die für den Wasseraustausch zur Verfügung stehende Membranfläche beträgt 244 cm².

Wird das Modul als Pervaporationsbefeuchter betrieben, zeigt sich, dass die Austrittstemperatur des befeuchteten Reaktandengases ungefähr der Befeuchtertemperatur entspricht. Die permeierte Wassermenge nimmt mit größer werdendem Gasvolumenstrom und steigender Befeuchtertemperatur zu. Eine Drucksteigerung führt zu deutlich erhöhten Taupunkttemperaturen der Reaktanden am Austritt des Befeuchters. Am Beispiel des in Kapitel 6.1 beschriebenen 5 kW Zellstapels wird für zwei unterschiedliche Betriebsdrücke die Anzahl der benötigten Befeuchterzellen in Abhängigkeit von der Brennstoffzellentemperatur präsentiert. Beispielweise werden bei einer Brennstoffzellentemperatur von 70 °C und einem Betriebsdruck von 1 bar 5 Befeuchterzellen mit einer Fläche von jeweils 244 cm² zur Befeuchtung des Wasserstoffs benötigt. Die Anzahl der Befeuchterzellen verringert sich auf 3, wenn der Betriebsdruck auf 2 bar erhöht wird. Da die Befeuchterzellen und die Brennstoffzellen baugleich sind, wird empfohlen, die anodenseitigen Befeuchterzellen in den Brennstoffzellenstapel zu integrieren. Die Speisung der Befeuchterzellen erfolgt über das nach dem Durchfluss durch den Zellstapel erwärmte Kühlmedium. Ein positiver Nebeneffekt dieser verfahrenstechnischen Verschaltung ist, dass die Erwärmung und Befeuchtung des Wasserstoffs dem Kühlmedium Wärme entzieht. Aus diesem Grund kann der Wärmeübertrager zur Abfuhr der Reaktionswärme an die Umgebung kleiner ausgeführt werden.

Eine Möglichkeit, die Befeuchtung der Reaktanden ohne Kreislauf mit flüssigem Wasser zu realisieren, bietet die Gaspermeation. Hier findet ein Wasser- und Wärmeaustausch zwischen dem trockenen in die Brennstoffzelle strömenden und dem feuchten aus der Brennstoffzelle strömenden Reaktandengas statt. Die Charakterisierung des Gaspermeationsbefeuchtermoduls zeigt, dass die geforderte Wassermenge nicht mit dem vorliegenden Flachmembranmodul übertragen werden kann. Zur Befeuchtung des Oxidans wird daher die Verwendung eines Kapillar- oder Hohlfaserbefeuchtermoduls empfohlen. Diese Module besitzen im Vergleich zu Flachmembranbefeuchtern eine um ungefähr eine Größenordnung größere Packungsdichte. Des Weiteren besteht die Möglichkeit, auch das Oxidans mit Hilfe eines über den Kühlwasserkreislauf gespeisten Pervaporationsbefeuchters zu befeuchten.

8 Betrachtung eines PEFC-Systems der 5 kW-Klasse

Aufbauend auf den Ergebnissen der vorherigen Kapitel werden nachfolgend weitere Auslegungsaspekte aus einer Systembetrachtung abgeleitet. Die rein theoretische Betrachtung eines PEFC-Systems der 5 kW Klasse beschränkt sich auf die Untersuchung des Einflusses einer Änderung des Betriebsdrucks auf die Systemleistung. Eine Kostenanalyse und Untersuchungen zum Bauteilvolumen und –gewicht sowie der Verfügbarkeit der beschriebenen Komponenten sind nicht Gegenstand der Betrachtung.

8.1 Betrachtete Systemkonzepte

Als Anwendung für das PEFC-System wird der Einsatz als Hilfsstromaggregat ausgewählt. Der aus dem System abgeführte Wärmestrom wird ungenutzt an die Umgebung abgegeben. Laut Vorgabe soll das Hilfsstromaggregat wasserautark arbeiten. Aus diesem Grund muss das für die Befeuchtung der Reaktandengase vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle benötigte Wasser mit Hilfe geeigneter Systemkomponenten aus den Abgasen zurück gewonnen werden. Bild 8.1 zeigt die Systemfließbilder der untersuchten Systemkonzepte.

Bei allen untersuchten Systemkonzepten ist der Wasserstoff in einem Drucktank gespeichert. Der für die elektrochemische Reaktion benötigte Sauerstoff wird der Umgebungsluft entzogen. Ein Verdichter verdichtet die Luft auf den geforderten Systemdruck. Um die erforderliche elektrische Antriebsleistung des Verdichters zu verringern, kann optional ein Expander im Abgasstrang integriert werden. Die Brennstoffzellenstacks werden über einen Kühlwasserkreislauf gekühlt. Entsprechend der Empfehlung aus Kapitel 7.3 kommt zur Befeuchtung des Wasserstoffs ein über das Kühlwasser gespeister Pervaporationsbefeuchter zum Einsatz. Die Befeuchtung der verdichteten Luft kann entweder mittels Pervaporation, Gaspermeation oder Wassereinspritzung realisiert werden. Aufgrund ihrer hohen Packungsdichte finden bei den beiden membranbasierten Befeuchterkonzepten Hohlfasermodule Verwendung. Um die Membranbefeuchter sowie die Brennstoffzelle vor zu hohen Gaseintrittstemperaturen zu schützen, kann optional ein Zwischenkühler zwischen Verdichter und Befeuchter angeordnet werden.

Erfolgt die Befeuchtung mittels Pervaporation oder Wassereinspritzung wird das dazu benötigte Wasser ausschließlich mit Hilfe von Kondensatabscheidern aus dem anoden- und kathoden-seitigen Abgasstrom zurück gewonnen. Im Fall der Gaspermeation findet ein Wasser- und Wärmeaustausch zwischen dem trockenen in die Brennstoffzelle strömenden und dem feuchten aus der Brennstoffzelle austretenden Reaktandengas statt.

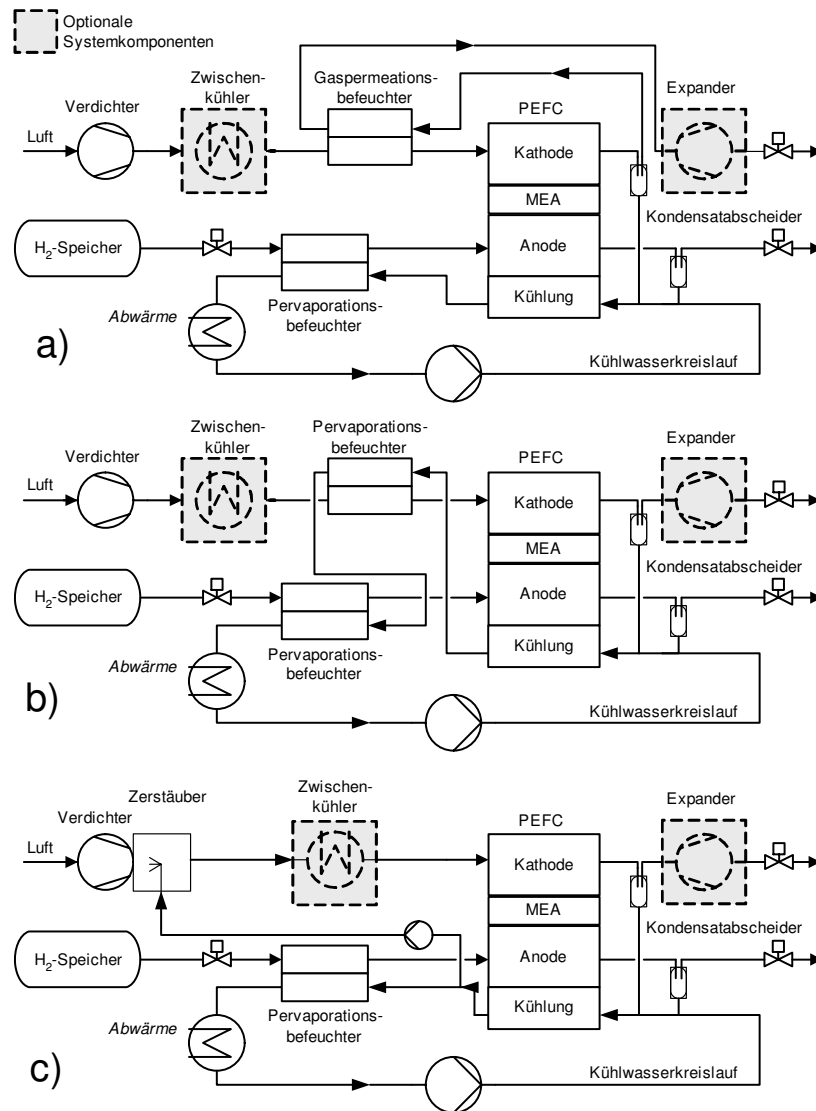


Bild 8.1: Prozessfließbilder der untersuchten Systemvarianten mit unterschiedlichen kathodenseitigen Befeuchtungskonzepten: a) Gaspermeation, b) Pervaporation, c) Wassereinspritzung

8.2 Modellannahmen

Das vorliegende Kapitel beschreibt Modellannahmen und vereinfachende Abschätzungen, die den Berechnungen zugrunde liegen.

In das betrachtete Hilfsstromaggregat ist ein aus 50 Zellen bestehender Brennstoffzellenstapel integriert. Aufbau und Geometrie der Einzelzellen entsprechen den in Kapitel 3.1 beschriebenen

Zellen mit Mäander-Strömungsstruktur. Bei einer aktiven Fläche von 244 cm² pro Zelle beträgt im Nennlastpunkt von 5 kW die flächenspezifische Leistung 0,41 W/cm². Die untersuchten Betriebsbedingungen lauten:

- Betriebsdruck (Druck am Brennstoffzelleneintritt): =1,1 – 3,8 bar
- Brennstoffzellentemperatur: $T_{BZ}=70\text{ °C}$
- Stöchiometrikoeffizienten: $\lambda_{Luft}=2$, $\lambda_{H_2}=1,1$
- Stromdichte: 0,64 A/cm²

Als Referenzbetriebsdruck wird ein Druck am Eintritt in die Brennstoffzelle von 2 bar ausgewählt. Die Zellcharakterisierung in Kapitel 4.2.2 hat gezeigt, dass die vorliegenden Einzelzellen bei diesem Druck die geforderte flächenspezifische Leistung bei einer Zellspannung von rund 640 mV erreichen. Die Änderung der Zellspannung beziehungsweise der Leistung bei Variation des Betriebsdrucks wird mit Hilfe des Q1D-Ansatzes aus Kapitel 2.2.2 ermittelt. Die benötigten Modellparameter werden aus den in Kapitel 4.2.2 vorgestellten Experimenten gewonnen.

Für die Verdichterleitung gilt

$$P_{Verd.} = \dot{m}_{Luft} \cdot c_{p, Luft} \cdot \frac{T_1}{\eta_{Verd.,is} \cdot \eta_{Verd.,T}} \cdot \left[\left(\frac{p_2}{p_1} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] \quad \text{Gl. 8.1}$$

Mit 1 ist der Zustand vor dem Verdichter, mit 2 der Zustand nach dem Verdichter bezeichnet. Zustand 1 entspricht dem Umgebungszustand bei 1 bar und 15 °C. γ bezeichnet den Isentropenexponent, $\eta_{Verd.,is}$ den isentropen Wirkungsgrad. $\eta_{Verd.,T}$ umfasst den mechanischen Wirkungsgrad und den Motorwirkungsgrad des Verdichters. Über den gesamten betrachteten Druckbereich ist der Verdichterwirkungsgrad konstant. Es erfolgt keine Unterscheidung zwischen verschiedenen Verdichterbauarten. Bei den Berechnungen beträgt $\eta_{Verd.,is}=0,7$ und $\eta_{Verd.,T}=0,7$.

Die mit Hilfe des Expanders aus dem Kathodenabgas zurück gewonnene Leistung ist gegeben durch

$$P_{Exp} = -(\dot{m} \cdot c_p)_1 \cdot T_1 \cdot \eta_{Exp.,is} \cdot \eta_{Exp.,T} \cdot \left[\left(\frac{p_2}{p_1} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] \quad \text{Gl. 8.2}$$

$\eta_{Exp.,T}$ umfasst neben dem mechanischen Wirkungsgrad alle weiteren äußeren Verluste. Die Expanderwirkungsgrade werden angenommen als $\eta_{Exp.,is}=0,7$ und $\eta_{Exp.,T}=0,9$.

Wasserabscheider sind anoden- und kathodenseitig hinter dem Brennstoffzellenstapel angeordnet. Vereinfachend wird angenommen, dass unabhängig vom Volumenstrom 90 % des in den Gasströmen enthaltenen flüssigen Wassers abgeschieden wird. Abhängig vom gewählten Befeuchtungskonzept wird das abgeschiedene flüssige Wasser dem Kühlwasserkreislauf oder einem Zerstäuber zugeführt.

Die Reaktandengase werden der Brennstoffzelle bei Betriebstemperatur des Zellstapels zugeführt. Die Betriebstemperatur entspricht zugleich der Reaktandenaustrittstemperatur. Die relative Feuchte der Reaktandengase beträgt entsprechend der Forderung aus Kapitel 4.3.1 am Zelleneintritt 80 %. Die zur Befeuchtung der Reaktandengase eingesetzten unterschiedlichen Befeuchtungsmodule werden nicht hinsichtlich der Baugröße ausgelegt. Es wird angenommen, dass die Befeuchter so dimensioniert sind, dass die Befeuchtung in gewünschtem Maße erfolgen kann.

Die kathodenseitigen Druckverluste in dem betrachteten System setzen sich aus Druckverlusten im Brennstoffzellenstapel, Befeuchter, Kondensatabscheider und Rohrleitungssystem zusammen. Die Druckverluste im Brennstoffzellenstapel sind in Abhängigkeit des Volumenstroms für unterschiedliche Betriebsdrücke experimentell ermittelt worden (vergleiche Bild 5.7). In den Hohlfasermodulebefeuchtern wird der Druckverlust nach [108] abgeschätzt. Vereinfachend wird für die Druckverluste im Kondensatabscheider und im Rohrleitungssystem angenommen, dass diese zusammen genau so groß sind wie die in der Brennstoffzelle.

Bei einer nach Kapitel 6.4 und 6.5 optimierten Auslegung der Kühlzellen für den 5 kW Zellstapel ist die durch die Kühlung bedingte Verlustleistung kleiner als 1 % der elektrischen Leistung des Stapels. Die Pumpleistung der Kühlwasserpumpe wird daher bei der Systembetrachtung vernachlässigt. Die über den Kühlwasserkreislauf aus dem Zellstapel ausgetragene Wärme wird über einen Wärmeübertrager an die Umgebung abgeführt. Die benötigte Lüfterleistung zur Förderung des Kühlluftvolumenstroms wird mit weniger als 1 % der elektrischen Stapelleistung abgeschätzt und bleibt daher ebenfalls bei der Systembetrachtung unberücksichtigt.

8.3 Ergebnisse der Systembetrachtung

Unter den in Kapitel 8.2 getroffenen Modellannahmen wird für die drei in Bild 8.1 gezeigten Systemkonzepte die Abhängigkeit der Systemleistung vom Betriebsdruck untersucht. Die Ergebnisse sind in Bild 8.2 dargestellt. Aufgetragen ist die prozentuale Änderung der Systemleistung als Funktion des Betriebsdrucks. Die Leistungsänderung ist auf ein System ohne Expander bezogen, dass bei Referenzbetriebsdruck von 2 bar mit einem isentropen Verdichterswirkungsgrad von $\eta_{\text{Verd.,is}} = 0,7$ arbeitet. Die drei Systeme unterscheiden sich trotz unterschiedlicher kathodenseitiger Befeuchtungskonzepte bezüglich der Systemdruckverluste und somit der Systemleistung nur geringfügig. Aus diesem Grund ist in Bild 8.2 nur eine Abhängigkeit gezeigt, die für alle drei Konzepte gültig ist.

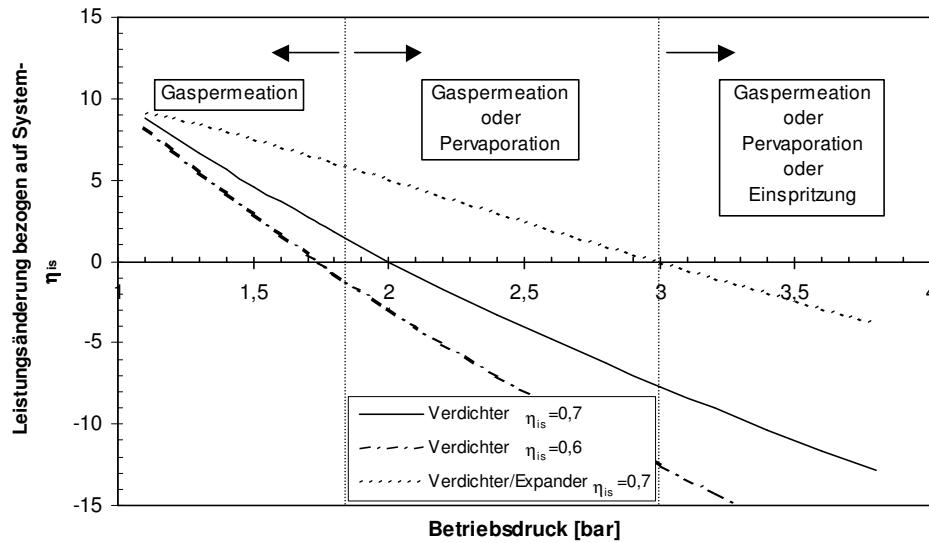


Bild 8.2: Änderung der Systemleistung als Funktion des Betriebsdrucks

Definitionsgemäß ist die Leistungsänderung bei 2 bar Referenzbetriebsdruck gleich null. In diesem Punkt liefert der Zellstapel eine elektrische Leistung von 5 kW. Der Verdichter benötigt eine Leistung von rund 750 W, um die trockene Kathodenluft zu verdichten. Die Systemleistung beträgt demnach rund 4,25 kW. Die kathodenseitigen Druckverluste im Gesamtsystem sind kleiner als 50 mbar. Die stetig über den betrachteten Betriebsdruckbereich abfallende Kurve zeigt, dass mit steigendem Druck die aufzuwendende Verdichterleistung stärker zunimmt als die Brennstoffzellenleistung. Die maximale Systemleistung liegt bei einem Betriebsdruck von 1,1 bar vor. In diesem Punkt betragen die elektrische Leistung des Zellstapels knapp 4,8 kW und die Systemdruckverluste rund 100 mbar. Im Vergleich zu dem Referenzpunkt ist die Systemleistung mit 4,6 kW um rund 9 % höher.

Den großen Einfluss des isentropen Verdichterwirkungsgrades auf die Systemleistung verdeutlicht die dargestellte Abhängigkeit für $\eta_{\text{Verd.,is}} = 0,6$. Bereits bei 2 bar Betriebsdruck liegt die Systemleistung um 3 % unter der Referenzsystemleistung mit $\eta_{\text{Verd.,is}} = 0,7$.

Derzeit sind Expander für die vorliegende Leistungsklasse nur als Sonderanfertigungen verfügbar. Um dennoch das Leistungspotential eines Systems mit Verdichter-Expander-Einheit aufzuzeigen, ist in Bild 8.2 die Leistungsabhängigkeit eines solchen Systems vom Betriebsdruck dargestellt. Der Einsatz eines Expanders zeigt bezüglich der Systemleistung besonders bei hohen Betriebsdrücken Vorteile. Beispielsweise kann die Systemleistung im Referenzpunkt durch den Einsatz eines Expanders um 5 % erhöht werden.

Die geforderte relative Feuchte der Reaktandengase am Eintritt in den Zellstapel beträgt 80 %. Laut Vorgabe soll das betrachtete Brennstoffzellensystem wasserautark arbeiten. In Bild 8.2 sind für das System mit isentropem Verdichterwirkungsgrad von $\eta_{\text{Verd.,is}} = 0,7$ die Gebiete gekennzeichnet, die mit dem vorliegenden kathodenseitigen Befeuchtungskonzept einen wasser-

autarken Systembetrieb erlauben. Ohne Einsatz eines zusätzlichen Kondensators ist ein wasserautarker Betrieb bis zu einem Betriebsdruck von ungefähr 1,8 bar nur durch die Verwendung eines Gaspermeationsbefeuchters zu erzielen. Oberhalb von 1,8 bar ist die von den Wasserabscheidern aus den Abgasen abgeschiedene Wassermenge größer als die zur Befeuchtung der Reaktandengase benötigte Wassermenge. Ab diesem Betriebsdruck ist somit eine auf Pervaporation basierende Befeuchtung möglich. Ein Vorteil dieser Variante ist, dass dem Kühlwasser bei der Befeuchtung Wärme entzogen wird, so dass der Wärmeübertrager zur Umgebung entsprechend kleiner dimensioniert werden kann. Kommen oberhalb eines Betriebsdruck von rund 2,2 bar Membranbefeuchter zum Einsatz, ist nach dem Verdichter eine Zwischenkühlung vorzusehen. Die Kühlung der verdichteten Luft ist notwendig, da ab diesem Druck die Lufttemperatur die für Membranbefeuchter zulässige Temperatur von rund 120 °C überschreitet [108]. Ab einem Betriebsdruck von rund 3 bar ist die Enthalpie des trockenen Luftmassenstroms theoretisch groß genug, um die Verdampfungsenthalpie zur Befeuchtung der Luft bereit zu stellen. Oberhalb dieses Drucks kann mittels eines Zerstäubers die zur kathodenseitigen Befeuchtung benötigte Wassermenge in den Luftmassenstrom eingespritzt werden.

8.4 Zusammenfassung

Die vorliegende Systembetrachtung untersucht für unterschiedliche Systemkonzepte den Einfluss einer Änderung des Betriebsdrucks auf die Systemleistung. Die Systemkonzepte unterscheiden sich in der kathodenseitigen Befeuchtungsart. Unterschieden wird zwischen Pervaporation, Gaspermeation und Wassereinspritzung.

Es zeigt sich, dass mit steigendem Betriebsdruck die aufzuwendende Verdichterleistung stärker zunimmt als die Brennstoffzellenleistung. Aus diesem Grund sinkt die Systemleistung mit steigendem Betriebsdruck. Die maximale Systemleistung liegt bei einem Betriebsdruck von 1,1 bar vor. Sie beträgt in diesem Punkt rund 4,6 kW und liegt um rund 9 % über der Leistung eines Systems mit 2 bar Betriebsdruck.

Die geforderte relative Feuchte der Reaktandengase am Eintritt in den Zellstapel beträgt 80 %. Für die unterschiedlichen Befeutzungskonzepte werden Betriebsdruckbereiche identifiziert, in denen unter dem jeweils vorliegenden Systemaufbau ein wasserautarker Betrieb möglich ist. Unter den getroffenen Annahmen ist unterhalb eines Betriebsdrucks von 1,8 bar ein wasserautarker Betrieb nur durch die Verwendung eines Gaspermeationsbefeuchters zu erzielen. Ab einem Betriebsdruck von 1,8 bar kann die Befeuchtung mittels Pervaporation realisiert werden. Oberhalb eines Betriebsdrucks von rund 3 bar kann die Befeuchtung unter Verwendung eines Zerstäubers erfolgen, der flüssiges Wasser in das trockene Kathodengas einspritzt. Die Systemvariante mit einer über Zerstäuber realisierten Befeuchtung erscheint allerdings aufgrund der großen Verlustleistung durch den Verdichter als ungeeignet.

9 Konstruktive Bauteiloptimierung

9.1 Endplattendesign

Einzelzellen sowie Zellstapel werden von Endplatten umfasst (Bild 9.1). Die Aufgabe der Endplatten besteht darin, die benötigte Anpresskraft für die Dichtungen aufzubringen und die Zellen so zu verpressen, dass ein guter elektrischer Kontakt bei gleichzeitig geringen Übergangswiderständen zwischen den Komponenten der Zelle besteht. Die über die Endplatten eingeleitete Kraft soll dabei zu einer möglichst gleichmäßigen Anpressdruckverteilung in den Zellen führen. Über die Endplatten kann des Weiteren die Medienzufuhr und –abfuhr und der Stromabgriff realisiert werden.

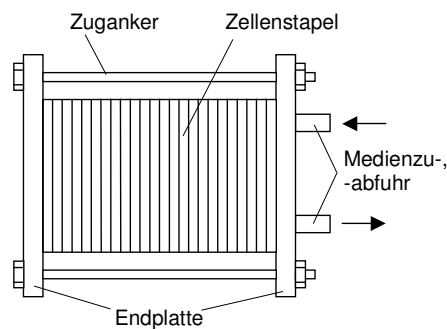


Bild 9.1: Schematische Darstellung eines Brennstoffzellenstacks

Einen Überblick über unterschiedliche Endplattenkonzepte gibt [29]. Bevorzugt kommen in Brennstoffzellen ebene unverrippte oder verrippte, metallische Endplatten zum Einsatz. Endplatten werden mittels Zugankern (siehe Bild 9.1), Spanngurten oder Klammersystemen verspannt. Um thermale und hygroskopische Lasten im Stackbetrieb auszugleichen, wird die Verspannung entsprechend elastisch ausgeführt. Dies kann zum Beispiel durch den Einsatz von Federpaketen oder besonders dehnfähigen Materialien geschehen.

Stehen die Endplatten in Kontakt mit den Reaktanden, ist sicherzustellen, dass die Endplatten nicht korrodieren und dass keine die Zelle schädigenden Metallionen in den Stack gelangen. Werden die Endplatten zur Stromableitung aus dem Stack genutzt, muss der Endplattenwerkstoff gut elektrisch leitend sein und einen geringen elektrischen Übergangswiderstand zu dem angrenzenden Zellstapel aufweisen.

In diesem Kapitel werden verschiedene Endplattenwerkstoffe und -geometrien hinsichtlich ihres Bauvolumens und Bauteilgewichtes bewertet. Zunächst wird in einem ersten Schritt geklärt, wie sich eine Wölbung der Endplatten auf die Anpressdruckverteilung im Zellstapel und damit auf die Stackleistung auswirkt. Die Berechnungen entstanden in Zusammenarbeit mit der Zentralabteilung für Technik, Forschungszentrum Jülich GmbH ([109, 110]).

9.1.1 Einfluss der Endplattenwölbung auf die Druckverteilung im Zellstapel

Bei den in diesem Kapitel untersuchten Zellstapeln wird die Kraft durch unter den Zugankern befindliche Unterlegscheiben in die Endplatten eingeleitet. Die Zuganker verlaufen außerhalb oder durch den Randbereich der Bipolarplatten (siehe Bild 9.1). Aufgrund der Flächenpressung zwischen den Endplatten und den darunter liegenden Zellen wölben sich die Endplatten nach außen. Die Durchbiegung der Endplatte ist in der Plattenmitte am größten. Dort ist dementsprechend der Anpressdruck am geringsten. Bild 9.2 zeigt qualitativ die Druckverteilung in einem Zellstapel bei unterschiedlicher Endplattenwölbung.

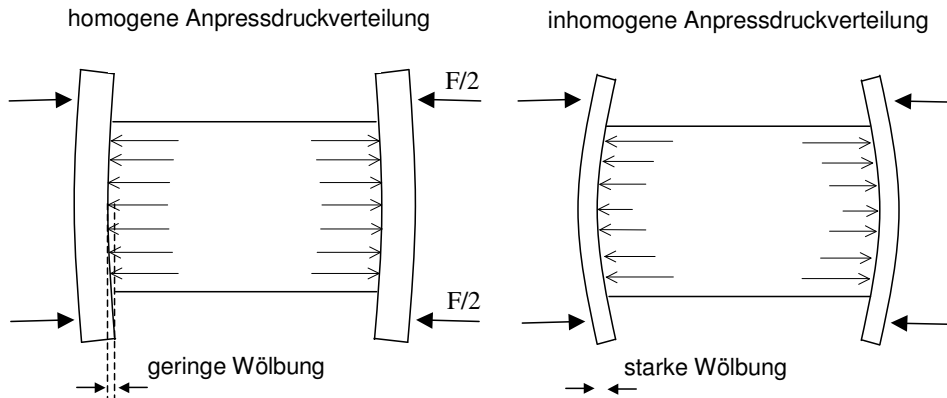


Bild 9.2: Anpressdruckverteilung in einem Zellstapel bei unterschiedlicher Endplattenwölbung

Eine ungleichmäßige Anpressdruckverteilung bewirkt, dass die Ohmschen Widerstände im Zellstapel ansteigen. Der Anstieg der Ohmschen Widerstände ist durch die erhöhten Übergangswiderstände in den Gebieten geringen Anpressdrucks bedingt. Diese lokal erhöhten Übergangswiderstände führen zu Querströmen in den Bipolarplatten und Diffusionsschichten und können weiterhin für eine inhomogene Stromproduktion an der aktiven Fläche verantwortlich sein. Eine Verringerung der Stapelleistung erfolgt zusätzlich, wenn durch die ungleichmäßige Anpressdruckverteilung die Diffusionseigenschaften der Diffusionsschicht negativ beeinflusst werden.

Ausgehend von einem Referenzdesign wird im Folgenden für Zellstapel mit unterschiedlichen Zellenanzahlen der Einfluss der Endplattendurchbiegung auf die Druckverteilung im Zellstapel numerisch ermittelt. Als Referenzdesign werden die Endplatten und Zellkomponenten aus den Experimenten in Kapitel 4 definiert. Den Aufbau der untersuchten Zellstapel zeigt Bild 9.3. Aus Symmetriegründen ist nur ein Achtel des Stapelvolumens abgebildet. Die beiden mit 20 Zugankern verspannten Endplatten übertragen die Kraft auf die Einzelzellen. Eine Einzelzelle besteht aus zwei Bipolarplattenelementen der Höhe 1,8 mm sowie zwei dazwischen befindlichen Flachdichtungen mit einer Dicke von jeweils 0,3 mm. Eine Flachdichtung umrandet jeweils eine Diffusionsschicht der Dicke 0,4 mm. Bei den angestrebten Verformungsanalysen wird die zwischen den Diffusionsschichten liegende Membran aufgrund ihrer geringen Dicke vernachlässigt.

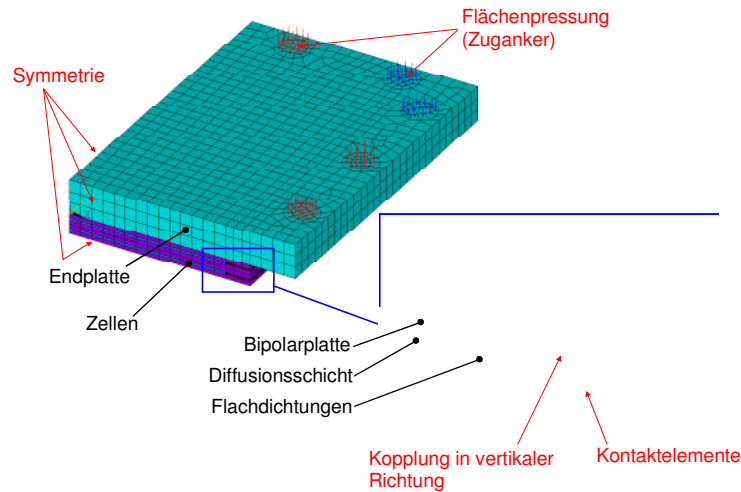


Bild 9.3: FE-Modell einer Endplatte mit zwei Zellen [110]

Die Bipolarplatten sind entsprechend einer konservativen Abschätzung durch ebene Platten ohne Manifoldkanäle und Strömungsstrukturen (Flowfield) abgebildet. Bei den Endplatten bleiben die Kanäle zur Reaktandenzufuhr und -abfuhr ebenso wie die Zugankerbohrungen unberücksichtigt. An den Positionen der Zuganker erfolgt die Krafteinleitung in die Endplatten in Form einer Flächenpressung über eine Kreisfläche mit dem Durchmesser der Unterlegscheiben. Bei den acht an den Eckbereichen der Endplatte liegenden Zugankern beträgt die Vorspannkraft aufgrund des Anzugsmomentes von 3 Nm circa 2,9 kN. Die zwölf restlichen Zuganker sind mit 4 Nm angezogen. Dies entspricht einer Vorspannung von circa 3,9 kN. Die Vorspannkraft des gesamten Zellstapels beträgt 70 kN. Die Anzugsmomente entsprechen der Zugankerverspannung bei den Experimenten aus Kapitel 4.

Die für die Berechnungen relevanten Geometriedaten und Werkstoffkennwerte sind in Tabelle 9.1 aufgeführt. Das den Berechnungen zugrunde liegende FE-Modell sieht für die Werkstoffe der Endplatten, der Bipolarplatten und der Diffusionsschichten ein isotropes, linear-elastisches Materialmodell vor. Dem nicht-linearen Verlauf der Spannungs-Dehnungskurve der Flachdichtungen wird mittels des hyperelastischen Neo-Hooke Modells Rechnung getragen.

Tabelle 9.1: Verwendete Geometriedaten und Werkstoffkennwerte

	Endplatte	Bipolarplatte		Diffusionsschicht	Flachdichtung
Werkstoff	Stahl	Graphit	Titan	Kohlenstoffgewebe	NBR
Länge [mm]	280	240	240	177	240
Breite [mm]	200	160	160	138	160
Höhe [mm]	15	1,8	1,8	0,4	0,3
Elastizitätsmodul [N/mm ²]	196000	9000	116000	2,54	9
Querkontraktionszahl [-]	0,3	0,3	0,32	0,01	0,4995
Schubmodul [N/mm ²]	75385	3462	44615	1,26	3
Kompressibilität [mm ² /N]	-	-	-	-	$6,7 \times 10^{-4}$

Die im unverpressten Zustand nicht in Kontakt stehenden benachbarten Flachdichtungen sind durch Kontaktelemente miteinander verbunden (siehe Bild 9.3). Der Reibungskoeffizient der Kontaktelemente beträgt 0,2. Die Kopplung übereinander liegender Gitterknoten des FEGitters in vertikaler Richtung zwischen den Bipolarplatten verhindert in der Simulation ein Durchdringen der Platten beim Verpressen des Stapels. Durch diesen Modellansatz wird die Reibung zwischen den Bipolarplatten vernachlässigt. Die Dichtungen und die Diffusionsschichten sind fest mit den Bipolarplatten verbunden. Somit wird unterstellt, dass die durch Querdehnungen entstehenden Schubkräfte an den Kontaktflächen durch Reibung aufgenommen werden können, wenn die Diffusionsschicht und die Flachdichtungen verpresst werden.

Aus Symmetriegründen ist die Betrachtung eines Achtels des Brennstoffzellenstapels ausreichend. Die Vernetzung des Zellstapels ist so gewählt, dass bei weiterer Steigerung der Gitterpunktanzahl das Ergebnis konstant bleibt.

Aufgrund der Endplattenwölbung ist in einem verspannten Zellstapel die Anpresskraft im mittleren Bereich der Bipolarplatten am geringsten. Somit werden die Diffusionsschichten im Randbereich stärker verpresst als im mittleren Bereich. Mit steigender Zellenanzahl in einem Stapel wird die Wölbung der Endplatte von immer mehr Zellen kompensiert. Durch den so kleiner werdenden Anteil der Endplattendeformation, den eine einzelne Zelle ausgleichen muss, wird die Druckverteilung in den Zellen gleichmäßiger. Aufgrund der gleichmäßigeren Druckverteilung verschiebt sich die effektive Belastung der Endplatte zur Plattenmitte. Dies führt wiederum zu einer stärkeren Endplattendurchbiegung. Bild 9.4 zeigt die berechnete Abhängigkeit der Endplattendurchbiegung von der Anzahl der Zellen im Stapel. Die nach der Plattentheorie abgeschätzte zulässige maximale Durchbiegung der Bipolarplatten ist mindestens um den Faktor 3 größer als die in den Berechnungen auftretende maximale Endplattendurchbiegung. Bei allen untersuchten Zellstapeln ist ein vollständiger Kontakt der Bipolarplattenfläche mit den Endplatten gewährleistet.

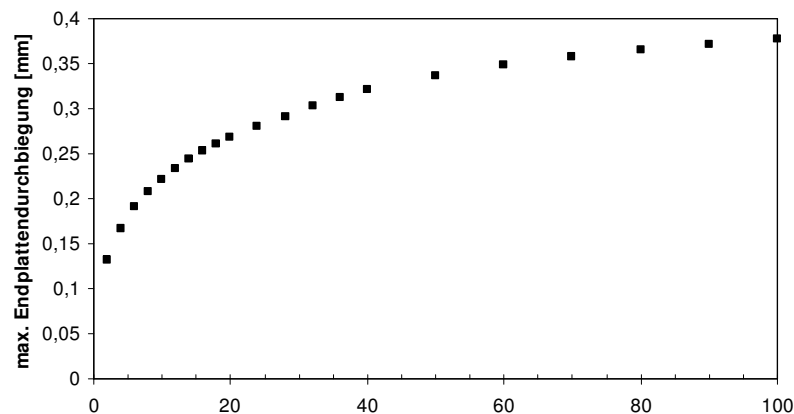


Bild 9.4: Maximale Endplattendurchbiegung in Abhängigkeit der Zellenanzahl (konstante Zugankerbelastung, graphitische Bipolarplatten)

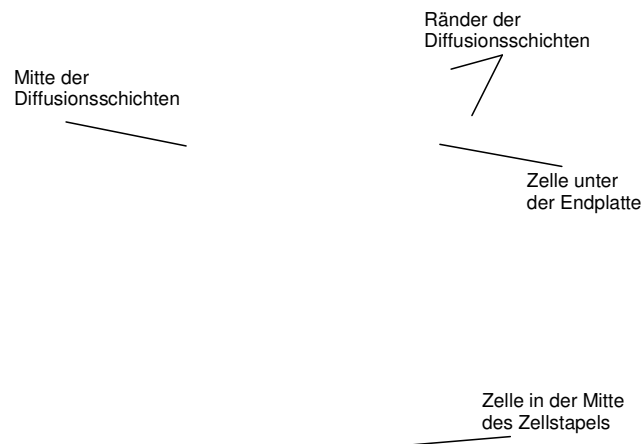


Bild 9.5: Anpressdruckverteilung der Diffusionsschichten des aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Zellstapels (Achtel-Modell) [MPa]

Exemplarisch ist in Bild 9.5 für den aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Zellstapel (siehe Kapitel 6.1) die Anpressdruckverteilung der Diffusionsschichten dargestellt. Aufgrund der kegelförmigen Ausbreitung der Kraft werden die Zellen des Stapels nicht in gleicher Weise verpresst. Dies führt dazu, dass die Druckverteilung in den Diffusionsschichten der mittleren Zellen im Stapel gleichmäßiger ist als die der äußeren Zellen. Der minimale Anpressdruck tritt in der Mitte der Endplatten-nächsten Diffusionsschicht auf. Der Punkt des maximalen Anpressdrucks befindet sich im Eckbereich der Diffusionsschichten. Für den aus 50 Zellen bestehenden Stapel beträgt der Unterschied zwischen minimalem und maximalem Anpressdruck rund 5 %.

In Bild 9.6 sind der minimale und maximale Anpressdruck in den Diffusionsschichten für Zellstapel mit unterschiedlichen Zellenanzahlen bei konstanter Zugankerverspannung aufgetragen. Der maximale Druck in den Eckbereichen der Diffusionsschichten steigt mit zunehmender Zellenanzahl nur geringfügig an. Der minimale Druck tritt bei allen Zellstapeln in der Mitte der Diffusionsschicht der zur Endplatte benachbarten Zelle auf. Der minimale Druck nähert sich mit zunehmender Zellenanzahl dem maximalen Druck an und verdoppelt sich nahezu, wenn die Zellenanzahl von zwei Zellen auf 100 Zellen ansteigt. Aus Bild 9.6 geht hervor, dass bei konstanter Vorspannkraft mit zunehmender Zellenanzahl die Dichtfläche weniger und die Diffusionsschicht stärker verpresst wird. Der mit steigender Zellenanzahl erhöhte Anpressdruck im Mittelbereich der Diffusionsschichten führt zu einer stärkeren Deformation der Endplatte (vergleiche Bild 9.4).

Nach Herstellerangaben liegt der optimale Anpressdruck der Diffusionsschicht bei circa 10 bar. Selbst bei einem aus 100 Zellen bestehenden Stapel beträgt der mittlere Anpressdruck der GDL nur rund 7,4 bar. Dies verdeutlicht, dass bei einer Gesamtkraft von 70 kN ungefähr dreiviertel der Vorspannkraft durch die Flachdichtung geleitet wird. Aufgrund der hohen Steifigkeit

des Dichtungsmaterials steigert eine erhöhte Anpresskraft die Kompression der Diffusionsschicht nur unwesentlich. Um den geforderten Anpressdruck der Diffusionsschicht zu erreichen, muss daher entweder eine dünnere Dichtung oder eine dickere Diffusionsschicht verwendet werden.

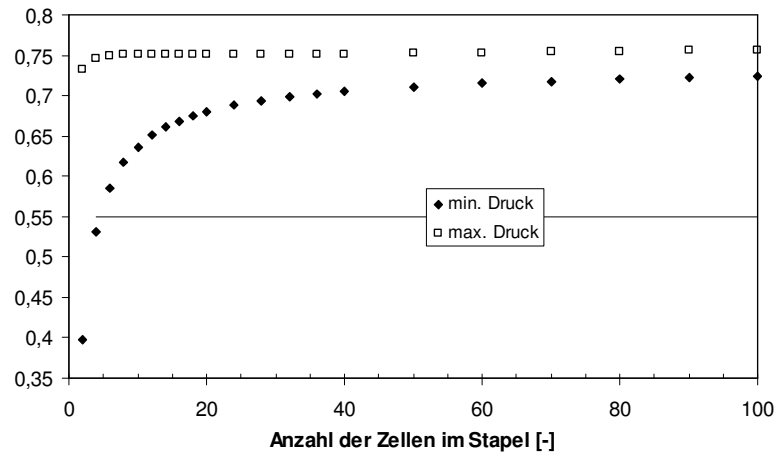


Bild 9.6: Minimaler und maximaler Anpressdruck der Diffusionsschichten (graphitische Bipolarplatten)

Als Maß für die Gleichmäßigkeit der Anpressdruckverteilung wird das Verhältnis aus minimalem und maximalem Anpressdruck der Diffusionsschichten in einem Zellstapel herangezogen.

$$x = \frac{p_{\min}}{p_{\max}} \quad \text{Gl. 9.1}$$

Das Verhältnis x liegt im Wertebereich zwischen 0 und 1. $x = 0$ bedeutet, dass der Mittelbereich der äußeren Diffusionsschicht beziehungsweise Bipolarplatte nicht in Kontakt zur Endplatte steht und somit nicht verpresst wird. $x = 1$ liegt vor, wenn alle Zellen absolut gleichmäßig verpresst sind. Der Verlauf des Druckverhältnisses ist in Bild 9.7 für die beiden untersuchten Bipolarplattenwerkstoffe Graphit und Titan abgebildet. Mit zunehmender Zellenanzahl vergrößert sich das Verhältnis x . Dies ist gleichbedeutend mit einer zunehmend gleichmäßigeren Anpressdruckverteilung im Zellstapel. Da bevorzugt die äußeren Zellen des Stapels die Endplattendeformation kompensieren, konvergiert das Anpressdruckverhältnis gegen einen Wert $x = 1$. Im Fall der graphitischen Bipolarplatten liegt dieser Wert bei $x = 0,97$, bei den Titanplatten bei $x = 0,91$ [110]. Der Zellstapel mit graphitischen Bipolarplatten ist weicher als der mit Bipolarplatten aus Titan. Da die Deformation der Endplatten in dem weicheren System von einer größeren Anzahl an Zellen kompensiert wird, ist das maximal erreichbare Anpressdruckverhältnis x größer als bei dem steiferen System. Bei gleicher Zellenanzahl ist allerdings die Endplattenwölbung bei dem weicheren Zellstapel mit graphitischen Bipolarplatten größer. Besteht der Zellstapel aus wenigen Zellen, ist der Unterschied in der Anzahl der Zellen, die die Deformation ausgleichen, zwischen den beiden Bipolarplattenwerkstoffen gering. In diesem Fall ist das Anpressdruckverhältnis x hauptsächlich durch die Endplattenwölbung bestimmt. Ist die

Zellenanzahl im Stapel gering (<12 Zellen), liegt also in dem Stapel mit den steifen Titanplatten die gleichmäßigere Anpressdruckverteilung vor.

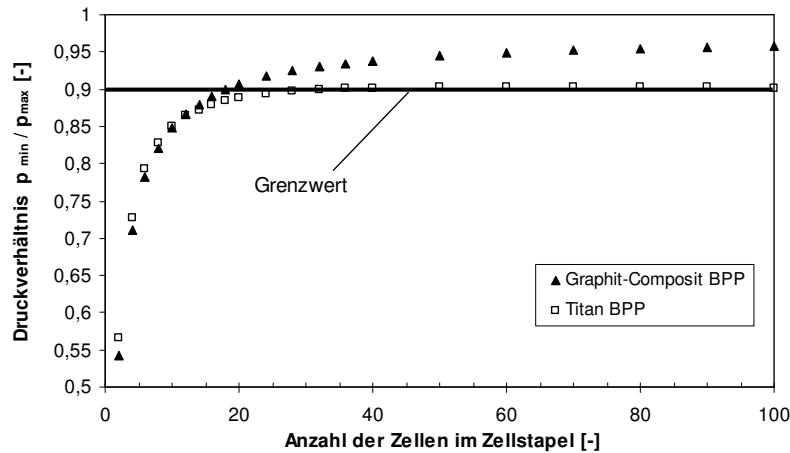


Bild 9.7: Verhältnis zwischen minimalem und maximalem Anpressdruck im Rand- und Mittelbereich der Zelle als Funktion der Zellenanzahl im Stack

Zur Definition eines gleichmäßig verpressten Zellstapels wird für das Anpressdruckverhältnis ein Grenzwert festgelegt. Vierpunktmessungen an den Diffusionsschichten haben gezeigt, dass bei den vorliegenden absoluten Anpressdrücken bei $x = 0,9$ die Unterschiede in den Leitfähigkeiten und Übergangswiderständen zwischen den Gebieten hohen und geringen Anpressdrucks kleiner als 5 % sind. Daher wird für Werte $x = 0,9$ die Druckverteilung als homogen bezeichnet. Aus Bild 9.7 ist ersichtlich, dass unter den vorliegenden Randbedingungen die Druckverteilung homogen ist, sobald der Zellstapel aus mehr als 18 Zellen und graphitischen Bipolarplatten besteht. Der maximale Wert des Anpressdruckverhältnisses für Zellstapel mit Bipolarplatten aus Titan liegt knapp oberhalb des Grenzwertes. In diesem Fall sind Zellstapel mit mehr als 28 Zellen gleichmäßig verpresst.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass mit der verwendeten Kombination aus Flachdichtung und Diffusionsschicht nicht die vom Hersteller angegebene optimale Diffusionsschichtverpressung erreicht wird. Eine dickere Diffusionsschicht oder eine dünnere Dichtung kann ebenso wie ein angepasstes Dichtungskonzept (siehe Kapitel 9.2) die geforderte Verpressung bewirken.

Die vorliegende Endplattenauslegung ist bezüglich der Durchbiegung und der dadurch bedingten Anpressdruckverteilung für die Verwendung in dem aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Brennstoffzellenstapel geeignet. Da das Anpressdruckverhältnis (Gleichung 9.1) oberhalb des definierten Grenzwertes liegt, eröffnet sich die Möglichkeit, das Gewicht der Endplatten zu verringern. Die Endplattendicke kann so weit reduziert werden, bis das Anpressdruckverhältnis unter der vorliegenden Bauteilbelastung den Grenzwert erreicht. Des Weiteren verdeutlichen die Berechnungen, dass in den mittleren Zellen des aus graphitischen Bipolarplatten bestehen-

den Stapels der Anpressdruck nahezu konstant ist (Bild 9.5). Bezogen auf eine einzelne Diffusionsschicht ist das Anpressdruckverhältnis bereits ab der sechsten Zelle des Stapels größer als 95 %. Somit werden nur die äußeren Zellen einen geringfügig erhöhten Ohmschen Widerstand aufweisen, so dass die Leistung des gesamten Zellstapels aufgrund der vorliegenden Anpressdruckverteilung voraussichtlich nur im Promillebereich verringert ist.

Bei Versuchen an Einzelzellen und Short-Stacks kann dagegen die Stapelleistung maßgeblich durch die Anpressdruckverteilung beeinflusst werden. Zum Ausgleich der Endplattenwölbung ist hierbei der Einsatz einer elastischen Zwischenschicht zwischen Endplatte und Bipolarplatte empfehlenswert. Eine solche Zwischenschicht kann beispielsweise aus expandiertem Graphit bestehen.

9.1.2 Gewichtsreduktionspotential der Endplatten

Die prozentualen Gewichtsanteile der Komponenten des aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Zellstapels sind in Bild 9.8 dargestellt. Als Grundlage für die Berechnung dienen die Zellkomponenten des Referenzdesigns aus dem vorherigen Kapitel (Tabelle 9.1). Aus der Gesamtmasse des Stapels von circa 27 kg ergibt sich eine gravimetrische Leistungsdichte von 0,19 kW/kg. Der Anteil der Endplatten am Gewicht des Zellstapels beträgt 43 %. Dies verdeutlicht, dass die Gewichtsoptimierung der Endplatten ein großes Potential zur Steigerung der gravimetrischen Leistungsdichte birgt.

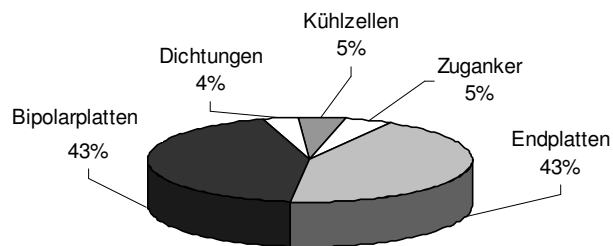


Bild 9.8: Prozentuale Gewichtsanteile im 5 kW Zellstapel (Gesamtmasse circa 27 kg)

In Kapitel 9.1.1 ist gezeigt worden, dass die als Referenzdesign bezeichnete Endplatte bezüglich der Durchbiegung für den Einsatz in dem 5 kW Zellstapel geeignet ist. Ausgehend von diesem Referenzdesign wird im Folgenden untersucht, ob durch Variation des Endplattenwerkstoffs und der Endplattengeometrie das Gewicht der Endplatten reduziert werden kann. Für das Referenzdesign wird bei vorgegebener Bauteilbelastung die maximale Durchbiegung der Endplatte berechnet. Bei konstanter Bauteilbelastung wird unter Variation der Werkstoffe und Geometrien die Endplattendicke so bestimmt, dass die resultierende maximale Durchbiegung der des Referenzdesigns entspricht. Aus der Plattengeometrie und der Dichte des untersuchten

Materials wird die Gewichtseinsparung im Vergleich zu dem Referenzdesign berechnet. Die Gewichtsreduktion ist definiert als

$$\text{Gewichtsreduktion} = \left(1 - \frac{\text{Gewicht Endplatte}}{\text{Gewicht Referenzdesign}} \right) \cdot 100\% \quad \text{Gl. 9.2}$$

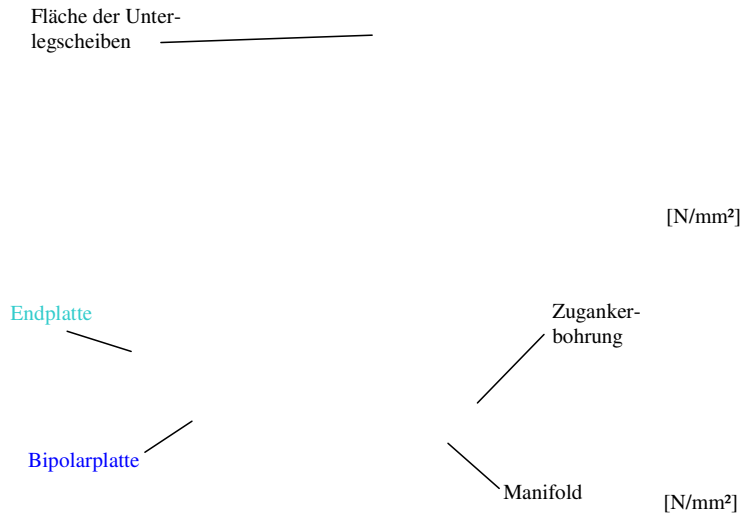


Bild 9.9: FE-Modell der unverrippten Endplatte mit aufgeprägter Flächenlast (Viertel-Modell)

Das für die numerischen Berechnungen verwendete FE-Modell ist in Bild 9.9 zu sehen. Aus Symmetriegründen ist die Abbildung eines Viertels der Endplatte ausreichend. Die Kraft wird über Unterlegscheiben, die sich unter den Zugankern befinden, in die Endplatte eingebracht. Die Durchbrüche der Manifolds und Zuganker sind in der Berechnung berücksichtigt.

Die untersuchten Werkstoffe sind:

- Stahl (Referenzmaterial)
- Aluminium
- Titan
- glasfaserverstärkter Kunststoff (GFK)
- kohlenstofffaserverstärkter Kunststoff (CFK)
- Kunststoff Polyetheretherketon (PEEK)

Die verwendeten Kennwerte der untersuchten Werkstoffe sind im Anhang in Tabelle 13.4 und Tabelle 13.5 aufgeführt. Für die Werkstoffe Stahl, Aluminium, Titan und PEEK wird ein isotropes, linear-elastisches Materialmodell verwendet. Für die faserverstärkten Kunststoffe wird ein orthotropes Materialmodell angesetzt. Der Faservolumenanteil beträgt 60 %. Bezüglich der Faserorientierung werden zwei Fälle betrachtet. Im ersten Fall weisen die in der Plattenebene schichtweise um 90° versetzten Fasern in Längs- beziehungsweise Querrichtung der Platte. Im

zweiten Fall verlaufen die Fasern der Lagen in einem Winkel von $\pm 22,5^\circ$ bezogen auf die kurze Seite der Platte. In beiden Fällen wirken in Richtung der Plattendicke keine Fasern.

Einige der untersuchten Endplattenwerkstoffe sind nicht elektrisch leitend oder haben hohe Übergangswiderstände. Diesen Platten müssen zusätzliche Stromabnehmerplatten vorgeschaltet werden. Unter der Vorgabe, dass die Endplatten des Zellstapels potentialfrei zu sein haben, werden vor allen Endplatten die gleichen Stromabnehmerplatten angeordnet. Die Gewichtsunterschiede in den Zellstapeln resultieren daher ausschließlich aus den unterschiedlichen Endplatten.

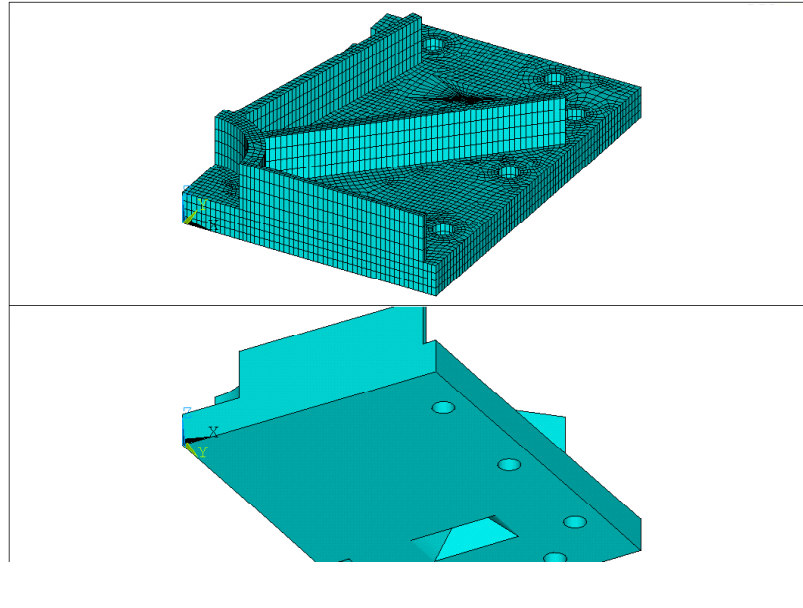


Bild 9.10: FE-Modell der verrippten Endplatten (Viertel-Modell)

Neben den ebenen Endplatten werden folgende Variationen der Endplattengeometrie betrachtet:

- Verrippte Endplatten: Auf den ebenen Endplatten werden Rippen angebracht. Zu Gunsten der besseren Vergleichbarkeit der Ergebnisse ist die Rippenanordnung für alle Werkstoff- und Geometrievariationen identisch. Es wird in Kauf genommen, dass die aus strukturellemechanischer Sicht zweckmäßige Rippenanordnung für die unterschiedlichen Werkstoffe nicht abschließend optimiert ist. Angeschlossen an einen zentralen Ring in der Plattenmitte, verlaufen zehn Rippen radial zum Plattenrand. Das entsprechende FE-Modell ist in Bild 9.10 dargestellt (siehe auch Bild 13.5: Verformung der verrippten Stahlplatte [mm]). Die Rippenhöhe beträgt den 1,5-fachen Wert der Grundplattenhöhe h_{EP} . Die Gesamtdicke der verrippten Endplatte beträgt somit $2,5 h_{EP}$. Die Rippenbreite beträgt $\frac{1}{3}h_{EP}$ und die Wandstärke des Zentralrings $\frac{1}{2}h_{EP}$. Im Fall der orthotropen Materialien wird unterstellt, dass in den Rippen alle Fasern in Längsrichtung der Rippen verlaufen.

- Versetzte Zuganker: Die Zugankerbohrungen werden um 10 mm zur Plattenmitte hin versetzt, so dass die Mittelpunkte der Bohrungen über dem Rand der Bipolarplatte liegen. Dadurch, dass die Anpresskräfte näher zur Plattenmitte eingeleitet werden, verringert sich das Biegemoment am Rand der Bipolarplatte. Auch bei den versetzten Zugankern beträgt der Abstand zwischen den Zugankerbohrungen und dem Rand der Endplatte 10 mm. Die Grundfläche der Endplatten verringert sich auf 260 mm x 180 mm.

Ebenfalls wird untersucht, ob durch eine Verringerung der Anpresskraft eine Gewichtsreduktion erzielt werden kann.

Im Fall der vollen, nicht verringerten Anpresskraft werden die acht in Nähe der Plattenecke befindlichen Zuganker mit einem Drehmoment von 3 Nm, die restlichen mit 4 Nm angezogen. Dies entspricht einer Vorspannkraft von 2,9 kN beziehungsweise 3,9 kN. Die Gesamtvorspannkraft beträgt 70 kN. Für die Berechnungen unter verringerter Anpresskraft ist die Vorspannkraft der einzelnen Schrauben halbiert. Die Kraft wird über Unterlegscheiben von den Zugankern auf die Endplatten übertragen. Der Außen- und Innendurchmesser der Unterlegscheiben beträgt 15,8 mm beziehungsweise 6,1 mm.

Die Flächenpressung zwischen Bipolarplatte und Endplatte wird in der Simulation als konstant über die gesamte Kontaktfläche angenommen. Sie beträgt 10 bar. Der Anpressdruck entspricht der vom Hersteller empfohlenen Kompression der Diffusionsschicht um 40 % des unverpressten Zustandes. Um ein Kräftegleichgewicht zu erzielen, wird der Rand der Bipolarplatte bei den Berechnungen senkrecht zur Plattenebene fixiert. Der fest eingespannte Rand kann demnach Reaktionskräfte in Form einer Linienkraft aufnehmen. Die Verformung des fixierten Randes ist definitionsgemäß null.

Unter den oben vorgestellten Annahmen und Randbedingungen berechnet sich die maximale Durchbiegung für das Referenzdesign zu 0,11 mm (siehe Bild 13.4, Kapitel 13.4). Diese Durchbiegung bildet den Referenzwert für alle weiteren Rechnungen.

Das Potential zur Gewichtsreduktion der untersuchten Werkstoffe kann vereinfacht mit Hilfe der Platten Theorie abgeschätzt werden. Für dünne ebene Platten gilt für die Plattensteifigkeit [111]

$$C = \frac{E \cdot h^3}{12 \cdot (1 - \nu^2)} \quad \text{Gl. 9.3}$$

Nach Gleichung 9.3 ist die Plattensteifigkeit C eine Funktion der Plattendicke h , des Elastizitätsmoduls und der Querkontraktionszahl. Sollen die Endplatten aus unterschiedlichen Werkstoffen bei gleicher Belastung die gleiche Durchbiegung aufweisen, ergibt sich, dass die Steifigkeit für alle Platten gleich sein muss. Gemäß Gleichung 9.3 muss deshalb aufgrund der unterschiedlichen Werkstoffkennwerte und die Dicke der Platten h unterschiedlich sein. Bei gleicher Länge und Breite der Endplatten folgt daraus eine Änderung ihres Volumens.

Basierend auf den unterschiedlichen Volumina ergibt sich die Gewichtsreduktion gemäß Gleichung 9.2

$$P_G = \left(1 - \frac{m_i}{m_{Ref}}\right) \cdot 100\% = \left(1 - \frac{\rho_i \cdot V_i}{\rho_{Ref} \cdot V_{Ref}}\right) \cdot 100\% = \left(1 - \frac{\rho_i \cdot h_i}{\rho_{Ref} \cdot h_{Ref}}\right) \cdot 100\% \quad \text{Gl. 9.4}$$

$$= \left(1 - \frac{\rho_i}{\rho_{Ref}} \cdot \sqrt[3]{\frac{E_{Ref} \cdot (1 - \nu_i^2)}{E_i \cdot (1 - \nu_{Ref}^2)}}\right) \cdot 100\%$$

Für die metallischen Werkstoffe ergibt sich für das Reduktionspotential ein Unterschied zwischen der nach der Plattentheorie und der mit der FE-Methode berechneten Ergebnisse von weniger als 3 %. Die Abweichung von 30 % für den Kunststoff PEEK ist durch die große Plattendicke und lokale Effekte im Bereich der Krafteinleitung bedingt. Da das nach der Plattentheorie berechnete Gewichtseinsparpotential für die orthotropen Werkstoffe mit einer Genauigkeit von ungefähr $\pm 25\%$ nur grob nach der Plattentheorie abgeschätzt werden kann, basieren alle im Folgenden vorgestellten Ergebnisse auf Berechnungen mit der FE-Methode.

Bei konstanter Bauteilbelastung wird unter Variation der Werkstoffe und Geometrien die Endplattendicke so bestimmt, dass die resultierende maximale Durchbiegung der des Referenzdesigns entspricht

In Bild 9.11 sind die Ergebnisse der untersuchten Werkstoff- und Geometrievariationen dargestellt. Aufgetragen ist die auf das Referenzdesign bezogene prozentuale Gewichtsreduktion für die unterschiedlichen Werkstoffe bei einer Gesamtvorspannkraft von 70 kN. Alle Endplattenvariationen besitzen die gleiche maximale Durchbiegung. Die entsprechenden Dicken der Endplatten sind im Anhang in Bild 13.6 zu sehen.

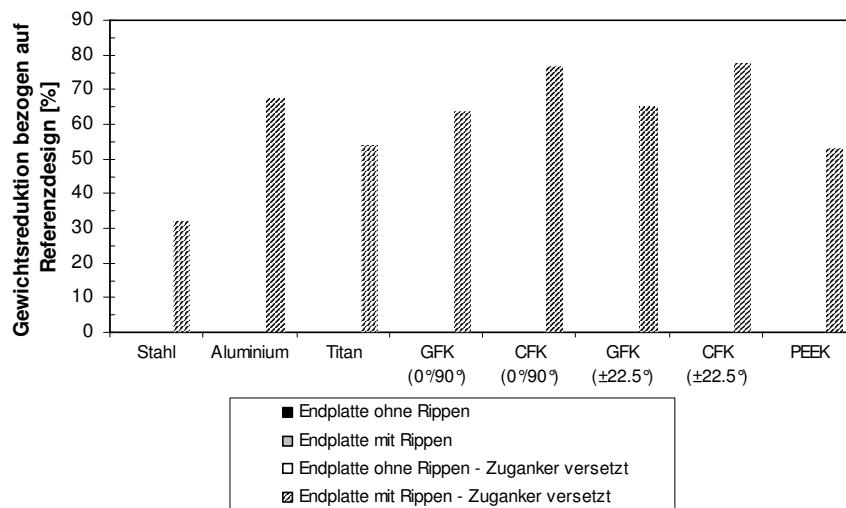


Bild 9.11: Gewichtsreduktion bezogen auf das Referenzdesign [%] (Anpresskraft 70 kN)

Entspricht die Bauteilgeometrie der des Referenzdesigns, besitzt von den metallischen Werkstoffen Aluminium das größte Potential zur Reduktion des Gewichts. Aufgrund der geringen Dichte und des vergleichsweise hohen Elastizitätsmoduls kann das Endplattengewicht um mehr als die Hälfte reduziert werden. Das Einsparpotential von Titan liegt mit 32 % deutlich niedriger. Die Kombination aus geringer Dichte und geringem Elastizitätsmodul ergibt für den Werkstoff PEEK eine Gewichtsreduktion von 30 %. Bei diesem Werkstoff bewirkt die Vorspannung der Zuganker unterhalb der Unterlegscheiben eine Verformung, die größer ist als die Durchbiegung in der Plattenmitte.

Die orthotropen Materialien zeigen abhängig von der Faserausrichtung ein Einsparpotential von 42 % beziehungsweise 46 % für den glasfaserverstärkten Kunststoff und 63 % beziehungsweise 68 % für den kohlenstofffaserverstärkten Kunststoff. Für beide faserverstärkten Werkstoffe erlaubt die Faserausrichtung von $\pm 22,5^\circ$ gegenüber der orthogonalen Schichtung der Fasern das größere Einsparpotential. Dieses Verhalten zeigt sich auch bei allen weiteren Untersuchungen.

Durch das Versetzen der Zuganker in Richtung der Plattenmitte wird neben der Endplattengröße auch das Biegemoment um den Rand der Bipolarplatten verringert. Bezogen auf das Referenzdesign können im Fall der Stahlplatte alleine 16 % des Gewichts dadurch eingespart werden, dass sich die Endplatte in Längs- und Querrichtung um jeweils 20 mm verkürzt. Weitere 9 % werden durch das verringerte Biegemoment eingespart. Auch für die Werkstoffe Aluminium und Titan reduziert sich das Gewicht der Endplatten um circa 25 %, wenn die Zuganker in Richtung der Plattenmitte versetzt werden. Für die faserverstärkten Werkstoffe ergeben sich knapp 28 % und für den Kunststoff PEEK 31 %. Bezogen auf das Referenzdesign lässt sich für unverrippte Endplatten das größte Reduktionspotential von 77 % unter Verwendung von CFK mit um $\pm 22,5^\circ$ bezüglich der kurzen Seite der Platte versetzten Faserschichten erzielen. Mit Aluminium-Endplatten ergibt sich eine Gewichtsreduktion von 64 %.

Werden die Endplatten mit Rippen versehen, zeigt sich für alle Metalle eine zusätzliche Gewichtseinsparung von circa 9 % gegenüber dem Gewicht der ebenen Endplatten mit gleicher Position der Zuganker. Bei den Faserverbundwerkstoffen hängt die Gewichtsreduktion durch Verwendung von Rippen stark von der Faserorientierung in der Platte ab. Bezogen auf das Gewicht der unverriptionen Platte ergibt sich bei gleicher Position der Zuganker für den Werkstoff GFK mit um 90° versetzter Faseranordnung eine zusätzliche Gewichtseinsparung von circa 14 %. Bei der Faserausrichtung von $\pm 22,5^\circ$ ergibt sich durch die Verrippung eine zusätzliche Einsparung von 10 %. Für CFK ist die zusätzliche prozentuale Gewichtsreduktion durch den Einsatz von Rippen geringer. Wiederum bezogen auf die ebene Platte mit gleicher Zugankerposition beträgt die Reduktion für die um 90° versetzt angeordneten Fasern 11 %, für die Anordnung von $\pm 22,5^\circ$ weniger als 5 %. Bei allen untersuchten Variationen erzielt trotzdem der Werkstoff CFK mit Rippen und versetzten Zugankern das geringste Endplattengewicht. Diese Endplatte wiegt nur 22 % des Gewichts der Endplatte mit Referenzdesign.

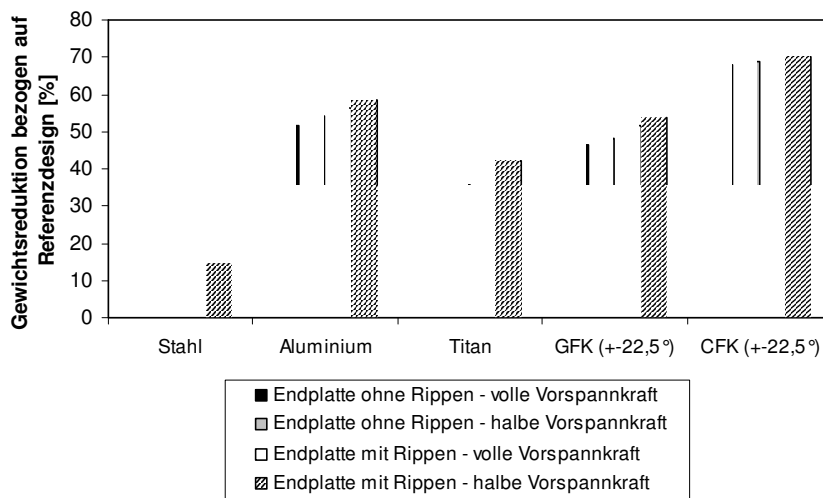


Bild 9.12: Gewichtsreduktion bezogen auf das Referenzdesign [%] für verschiedene Vorspannkraft

Bei den Berechnungen mit verringertem Anzugsmoment summiert sich die Vorspannkraft der 20 Zuganker auf insgesamt 35 kN. Die auf die Bipolarplatte wirkende Flächenpressung beträgt weiterhin 10 bar. Reaktionskräfte werden über die Linienlast am Bipolarplattenrand ausgeglichen. In Bild 9.12 ist für ausgewählte Werkstoffe die Gewichtsreduktion bezogen auf das Referenzdesign bei voller Vorspannung (70 kN) abgebildet. Für die einzelnen Werkstoffe sind die Gewichtsreduktionspotentiale durch verringerte Anzugskraft denen mit voller Anzugskraft gegenübergestellt. In Bild 9.12 sind ausschließlich die Geometrien mit außenliegenden Zugankern aufgetragen. Bei der Endplattengeometrie mit nach innen versetzten Zugankern ist die Durchbiegung der Endplatten hauptsächlich durch den konstanten Anpressdruck der Bipolarplatte bestimmt. In diesem Fall ist der Einfluss der Anzugskraft der Zuganker vernachlässigbar gering. Die Einsparpotentiale der Variationen mit innenliegenden Zugankern und verringerter Anzugskraft entsprechen daher den in Bild 9.11 dargestellten Ergebnissen. Bezogen auf das Gewicht der Endplatten mit entsprechender Geometrie und vollem Anzugsmoment, beträgt die zusätzliche Gewichtsverringerung durch die Verringerung der Zugankerverspannung für die unterschiedlichen Werkstoffe 3-6 %. Die kleinste zusätzliche Gewichtsverringerung von 3 % ergibt sich für die CFK-Endplatte mit um $\pm 22,5^\circ$ versetzten Faserschichten. Trotzdem erzielt diese verrippte CFK-Endplatte die auf das Referenzdesign bezogene größte Gewichtsreduktion von 70 %.

Zur Endplattenmitte hin versetzte Zuganker erfordern Bohrungen oder zumindest Aussparungen in den Bipolarplatten. Dies führt zu einem erhöhten Fertigungsaufwand der Bipolarplatten und zu einem erhöhten Dichtungsbedarf. Hier birgt die Verwendung von Spanngurten anstelle der Zuganker in mehrfacher Hinsicht Vorteile:

- ein größerer Teil der Bipolarplatte steht als aktive Fläche zur Verfügung, da keine Bohrungen in die Platten eingebracht werden müssen
- die Dichtungstechnik ist unabhängig von dem Verspannsystem
- die Grundfläche der Endplatten kann auf die Fläche der Bipolarplatten verringert werden, da die Spanngurte dicht an den Bipolarplatten vorbeigeführt werden können

Ein Vergleich zeigt, dass das Gewicht des mit Spanngurten verpressten Zellstapels im Vergleich zu dem Gewicht des mit versetzten Zugankern verpressten alleine durch die kleinere Endplattengrundfläche um weitere 18 % verringert werden kann. Diese Abschätzung geht von der konservativen Annahme aus, dass das Gewicht der Zuganker dem der Spanngurte entspricht und die Endplattenwölbung unabhängig von dem Spannsystem ist.

9.1.3 Bauteilkosten ausgewählter Endplattenvarianten

Die Wahl des Endplattenwerkstoffs und -designs ist neben dem Bauteilgewicht und –volumen maßgeblich und in wesentlich stärkerem Maß als bei anderen Bauteilen durch die Bauteilkosten bestimmt. Im Folgenden werden ausgewählte der im vorherigen Kapitel vorgestellten Endplattenvarianten bezüglich ihrer Herstellkosten miteinander verglichen und bewertet. Eine Plankostenrechnung auf Vollkostenbasis ermittelt abschließend denkbare resultierende Nettoverkaufspreise. Da gerade das Design der verrippten Endplatten nicht optimal an die verschiedenen betrachteten Fertigungsprozesse angepasst ist, können die Ergebnisse der Kostenbetrachtung nur eine erste Abschätzung darstellen.

Die Herstellkosten eines Bauteils ergeben sich aus der Summe der Material- und Fertigungskosten. Die Materialkosten bilden die Summe der Materialeinzel- und Materialgemeinkosten. Wählt man zur Bestimmung der Fertigungskosten den Ansatz der Stundensatzrechnung, so setzen sich diese additiv aus den Produkten aus den kalkulierten Arbeitsstunden und den entsprechenden Stundensätzen der einzelnen Arbeitsschritte zusammen. Die Stundensätze gliedern sich in Maschinen- und Mitarbeiterstundensätze. Getrennt davon werden indirekte Gemeinkosten wie Verwaltungs- oder Versicherungskosten über geeignete Umlageschlüssel als Zuschläge berücksichtigt. Werden zur Summe der aufgezählten Anteile, den sogenannten Selbstkosten, der geplante Gewinn sowie eventuell gewährte Rabatte addiert, ergibt sich der kalkulierte Nettoverkaufspreis.

Ein Maschinenstundensatz errechnet sich aus der Umlage der entstehenden Kosten auf die Produktionsstunden. Zur Ermittlung der fixen und der von den Maschinenlaufzeiten abhängigen variablen Kosten werden unter anderem folgende Daten benötigt:

- Anschaffungswert der Maschine
- Technische und wirtschaftliche Nutzungsdauer
- Sollstundenzahl
- Instandhaltungs- und Versicherungskosten
- Raumbedarf und –kosten
- Durchschnittlicher Strom- und Wärmebedarf sowie Energiekosten

In die Produktionsstunden gehen neben den Produktionszeiten auch Rüst- und Maschinenstillstandszeiten ein.

In die Ermittlung des Mitarbeiterstundensatzes fließen alle Lohn- und Lohnnebenkosten sowie die Summe der verrechenbaren Arbeitsstunden ein.

Für die Kostenanalyse werden die ebenen und verrippten Endplatten aus Stahl und Aluminium ausgewählt. Des Weiteren wird der faserverstärkte Kunststoff CFK mit um $\pm 22,5^\circ$ versetzten Faserschichten aufgrund seines geringen Bauteilgewichtes betrachtet. Eine Verrippung der CFK-Platte ist wegen der geringen zusätzlichen Gewichtseinsparung (siehe Bild 9.11) weder technisch noch wirtschaftlich sinnvoll. Wie bereits im vorherigen Kapitel gezeigt, ist der Kunststoff PEEK aufgrund der vorliegenden Bauteilbelastungen nicht zweckmäßig. Ebenfalls erscheint der Werkstoff Titan aufgrund seines vergleichsweise hohen Materialpreises und der schwierigen Verarbeitbarkeit als ungeeignet.

Die Designs der betrachteten ebenen und verrippten Endplatten (EP) orientieren sich an denen in den Bildern 13.4 und 13.5. Die Zugankerbohrungen der Endplatten sind nach innen versetzt (siehe Kapitel 9.1.2). In eine Endplatte sind 20 Zuganker- und 3 Manifoldbohrungen eingebracht. Die Berechnungen gehen von einer Jahresproduktion von 10.000 Endplatten aus. Zur Fertigung der verrippten Endplatten werden drei unterschiedliche Fertigungsprozesse betrachtet. Untersucht werden die Kosten für eine Endplatte, bei der

- die Rippen aus dem Vollmaterial gefräst werden
- die Rippen angeschweißt werden
- das gesamte Bauteil bei einem Gießprozess entsteht

Die Ermittlung der massenspezifischen Materialeinzelkosten erfolgt auf Basis einer Datensammlung des europäischen statistischen Amtes EUROSTAT in Luxemburg. Die dort geführte Datenbank EUROPROMS (Europäische Produktions- und Marktstatistiken) beinhaltet Angaben zu Mengen und Werten kategorisierter produzierter Güter, die im europäischen Wirtschaftsraum gehandelt werden. Die ausgewerteten Daten beziehen sich auf den Zeitraum zwischen den Jahren 1994 und 2000 und setzten sich zu Wahrscheinlichkeitsverteilungen für die Materialeinzelkosten zusammen. Die Auswertung der Daten erfolgt, indem für die vorhandenen Datenpunkte einer bestimmten Gütergruppe die Summenfunktion über die geographischen und zeitlichen Bilanzräume hinweg gebildet wird. Der Verlauf der entsprechenden Summenfunktion gibt Auskunft über die Streuung der aufgeführten massenbezogenen Materialeinzelkosten. Eine genaue Beschreibung der Auswertung findet sich in [15]. Exemplarisch ist im Anhang in Bild 13.7 ein Histogramm der EUROPROMS-Daten für die Gütergruppe „kaltfertiggestellte Stäbe, Flachstahl und Profilstäbe aus nichtrostendem Stahl“ mit den entsprechenden Wahrscheinlichkeitswerten abgebildet.

Aufgrund der hier betrachteten geringen Jahresproduktion erscheint es nicht sinnvoll, den Medianwert der Summenfunktion (S_{50}) als charakteristischen Wert für die Materialkosten heranzuziehen. Die Kalkulation gewinnt an Sicherheit, wenn für die einzelnen Gütergruppen jeweils der Summenfunktionswert S_{95} angesetzt wird. Dieser Wert indiziert, dass 95 % der ausgewerteten Materialeinzelkosten unter diesem Wert liegen. S_{95} berücksichtigt somit nicht die als wenig

wahrscheinlich einzustufenden Extremwerte, stellt aber bezüglich der Materialeinzelkosten trotzdem einen konservativen, realistischen Wert dar.

Tabelle 9.2: massenspezifische Preise der ausgewählten Gütergruppen [€/kg]

Gütergruppe	massenspez. Preis [€/kg]
Stäbe, Flachstahl und Profilstäbe kaltfertiggestellt, aus nichtrostendem Stahl	$S_{95} = 5,4$
Stangen (Stäbe) und Profile, aus nichtlegiertem Aluminium	$S_{95} = 7,8$

Es sei angenommen, dass für alle Fertigungsprozesse, mit Ausnahme des Gießprozesses, Bleche der benötigten Dicke als Ausgangsmaterialien vorliegen. Tabelle 9.2 listet die als Ausgangsmaterialien für die Endplattenfertigung ausgewählten Gütergruppen mit den entsprechenden massenbezogenen Materialkosten auf. Auf Basis der EUROSTAT-Daten betragen die massenbezogenen Materialkosten mit über 95 %-iger Wahrscheinlichkeit weniger als die aufgeführten Summenfunktionswerte S_{95} . Für die CFK-Werkstoffe lassen sich keine belastbaren Materialkosten aus den in der Datenbank enthaltenen Gütergruppen ableiten. Der aus Angeboten verschiedener Hersteller gemittelte Wert von 100 €/kg wird daher als massenbezogener Preis für CFK-Platten angenommen. Für die im Gießprozess hergestellten verrippten Endplatten aus Stahl und Aluminium wird ebenfalls ein aus mehreren Angeboten gemittelter Wert angesetzt. Der massenspezifische Preis für die gegossene Endplatte aus Stahl beträgt 9 €/kg, für die Platte aus Aluminium 10,5 €/kg. Dieser Preis steht in sehr guter Übereinstimmung zu dem EUROSTAT-Wert $S_{95}=10,8$ €/kg für die Gütergruppe „Waren aus Aluminium, gegossen“.

Tabelle 9.3: fertigungsprozessspezifische Bearbeitungsschritte

Bearbeitungsschritt	Stahl				Aluminium				CFK
	eben	verrippt			eben	verrippt			eben
		fräsen	schweißen	gießen		fräsen	schweißen	gießen	
Außenkonturen sägen	x	x	x		x	x	x		x
Außenkonturen fasen	x	x	x		x	x	x		x
Bohrungen zentrieren / senken	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Zugankerbohrungen bohren	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Manifoldbohrungen bohren	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Bohrungen entgraten (Rückseitig)	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Gewinde schneiden (Manifold)	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Manifoldtaschen fräsen	x	x	x		x	x	x		x
Endplattenunterseite fräsen	x	x	x	x	x	x	x	x	x
Rippen aus Vollmaterial fräsen		x				x			
Einzelne Rippen zuschneiden			x				x		
Rippen aneinander heften			x				x		
Rippen schweißen			x				x		
verrippte Endplatte gießen				x				x	

Tabelle 9.3 führt die vom Fertigungsprozess abhängigen Bearbeitungsschritte auf. Sowohl bei den ebenen als auch den verrippten Endplatten haben alle Fertigungsprozesse einige Bearbeitungsschritte gemein. Außer bei den im Gießprozess hergestellten Endplatten müssen die

Platten auf ihre äußeren Abmaße zugesägt werden. Bei allen Platten müssen die Zugankerbohrungen eingebracht und Gewinde zur Befestigung der Rohrleitungen an den Endplatten geschnitten werden. Der Übergang von den runden Rohrleitungen auf die rechteckigen Manifoldflächen erfolgt durch in die Endplatte gefräste Taschen. Eine gleichmäßige Anpressdruckverteilung erfordert eine ebene Plattenunterseite mit einer Toleranz von wenigen Hundertstel-millimetern. Dies ist in einem abschließenden Arbeitsschritt mit einem speziellen Fräswerkzeug zu realisieren.

Im Fall der angeschweißten Rippen erfolgt zunächst ein Zuschnitt der Einzelrippen auf Maß. Die Rippen werden in einer Vorrichtung positioniert und an den zentralen Ring angeheftet. Anschließend werden sie mit der Grundplatte verschweißt. Als Schweißverfahren eignet sich das Metall-Inertgas-Schweißen (MIG). Die Gewichtszunahme, die aus dem aufgetragenen Schweißgut resultiert, bleibt unberücksichtigt. Die Kostenabschätzung geht davon aus, dass keine Nachbearbeitung der Platten durch einen Glühprozess erforderlich ist.

Die im Gießprozess erzeugten Endplatten erfordern Vorarbeiten in der Formerei, dem Schmelzbetrieb und der Putzerei. Nicht weiter aufgeschlüsselte Arbeitsschritte beinhalten beispielsweise den Hohlformenbau, das Schmelzen und Gießen der Materialien und das Abtrennen der Trichter und Steiger von dem gegossenen Bauteil. Aufgrund des stark erhöhten Fertigungsaufwands werden die Zugankerbohrungen nicht während des Gießprozesses in das Bauteil eingebracht. In Verbindung mit den großen Fertigungstoleranzen beim Gießprozess ist es somit notwendig, die Platten nachträglich noch wie oben beschrieben spanend zu bearbeiten.

Tabelle 9.4: kalkulierte Arbeitszeit der einzelnen Bearbeitungsschritte pro Endplatte [min]

Bearbeitungsschritt / Kostenstelle	kalkulierte Arbeitszeit
Außenkonturen sägen	: 2 min
Außenkonturen fassen	: 1 min
Bohrungen zentrieren / senken	: 23 x 0,08 min = 1,8 min
Zugankerbohrungen bohren	: 20 x 0,15 min = 3,0 min
Manifoldbohrungen bohren	: 3 x 0,15 min = 0,5 min
Bohrungen entgraten (Rückseitig)	: 20 x 0,08 min = 1,6 min
Gewinde schneiden (Manifold)	: 3 x 0,25 min = 0,8 min
Manifoldtaschen fräsen	: 3 x 0,3 min = 0,9 min
Endplattenunterseite fräsen	: 2,0 min
Rippen aus Vollmaterial fräsen	: 20,0 min
Einzelne Rippen zuschneiden	: 11 x 0,2 min = 2,2 min
Rippen aneinander heften	: 10 x 0,3 min = 3 min
Rippen schweißen	: 10 x 0,25 m x 7,5 min/m = 12,5 min
Spanende Bearbeitung: Rüstzeiten, Vor- und Nacharbeiten, Prüfen	: 5,0 min
Schweißen: Rüstzeiten, Vor- und Nacharbeiten, Prüfen	: 6,0 min

Aufgrund der Kürze der einzelnen Bearbeitungsschritte ist ein hoher Personalaufwand nötig. Die Rüst- und Spannzeiten sowie weitere Maschinenstillstandszeiten verursachen daher einen großen Teil der anzusetzenden Arbeitszeiten. Diese unproduktiven Arbeitszeiten können ebenso wie die produktiven aufgrund unterschiedlicher Optimierungsgrade der Prozessabläufe von Firma zu Firma individuell differieren. Die in Tabelle 9.4 angegebenen Zeiten können somit nur

einen Anhaltswert liefern. Sie orientieren sich an den durchschnittlichen Bearbeitungszeiten eines mittelständischen metallverarbeitenden Betriebs. Vereinfachend wird angenommen, dass die angesetzten Arbeitszeiten der Bearbeitungsschritte für alle Werkstoffe identisch sind.

Ohne diese einzelnen Kostenstellen detaillierter aufzuschlüsseln, werden die in Tabelle 9.5 aufgeführten Stundensätze für die jeweiligen Fertigungsverfahren verwendet. Fertigungsgemeinkosten sind in den Stundensätzen bereits enthalten. Aufgrund des erhöhten Fertigungsaufwands bei der Bearbeitung des CFK-Werkstoffs wird ein um 10 % erhöhter Stundensatz beim Fräsen und Bohren angesetzt. Der Stundensatz für das MIG-Schweißen der Rippen ist für die beiden Werkstoffe Stahl und Aluminium gleich groß angenommen. Schweißzusatzkosten sind in dem Stundensatz entsprechend berücksichtigt.

Tabelle 9.5: Stundensätze für die jeweiligen Fertigungsverfahren [€/h]

		Stundensatz [€/h]	Quelle
Sägen	:	47	[112]
Fräsen und Bohren	:	50	[112, 113]
Schweißen	:	52	[114]

In Bild 9.13 ist repräsentativ für die aus Stahl gefertigten Endplatten gezeigt, wie stark die Herstellkosten von dem jeweiligen Fertigungsverfahren abhängen. Die aufgeführten Materialkosten setzen sich aus Materialeinzel- und Materialgemeinkosten zusammen. Im Fall gegossener Endplatten beziehen sich die Materialkosten auf das gegossene, aber noch nicht spanend bearbeitete Bauteil. Als Richtwert für den Materialgemeinkostenzuschlag bei der Zuschlagskalkulation in Metallhandwerksbetrieben werden 20 % der Materialeinzelkosten angesetzt [114, p. 14]. Hier zeigt sich, dass die Materialkosten in einem Bereich von 40 % bis 80 % der Herstellkosten für die unterschiedlichen Fertigungsverfahren variieren.

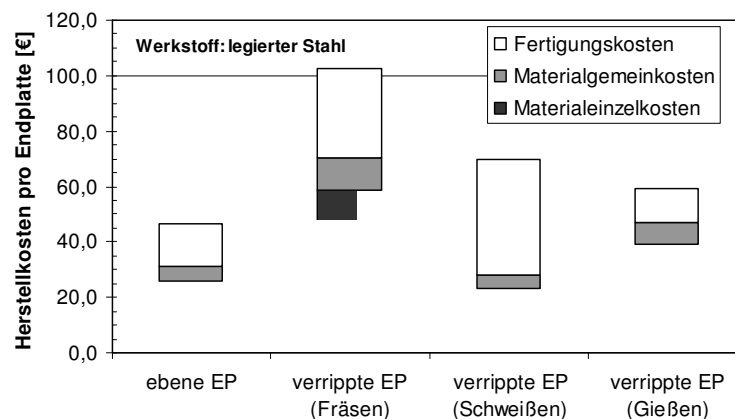


Bild 9.13: Herstellkosten von Endplatten aus Stahl in Abhängigkeit des Fertigungsverfahrens

Der Vergleich der drei Fertigungsverfahren zur Herstellung verrippter Endplatten zeigt, dass bei der angenommenen Jahresproduktion die im Gießprozess gefertigten Endplatten die gering-

sten Kosten erwarten lassen. Werden die Rippen aus Vollmaterial gefräst oder angeschweißt, sind die Herstellkosten der Endplatten um 73 % beziehungsweise um 17 % höher als die der gegossenen Bauteile. Die Herstellkosten gegossener Endplatten liegen mit Produktionsstückkosten von 59 € allerdings noch um 27 % über denen einer ebenen Endplatte.

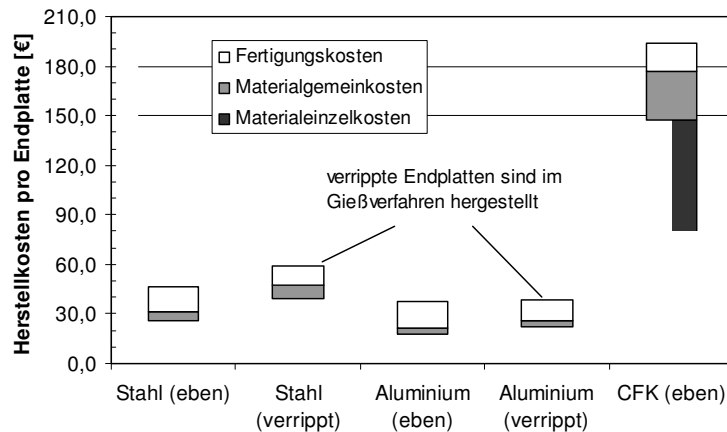


Bild 9.14: Vergleich der Herstellkosten für Endplatten aus unterschiedlichen Werkstoffen

Einen Vergleich der Herstellkosten für die aus unterschiedlichen Werkstoffen hergestellten Endplatten zeigt Bild 9.14. Die verrippten Endplatten aus Stahl und Aluminium sind im Gießprozess hergestellt. Die Fertigungskosten bewegen sich für alle Varianten im Bereich zwischen 12 € und 17 €. Die großen Unterschiede in den Herstellkosten von über 150 € pro Endplatte sind demnach durch die Materialkosten bedingt. Die Herstellkosten der ebenen Standardplatte aus Stahl liegen bei knapp 50 € pro Bauteil. Im Vergleich dazu werden bei den Aluminium-Endplatten die höheren spezifischen Materialkosten durch das geringere Bauteilgewicht überkompensiert. Dies resultiert in um circa 20 % reduzierten Herstellkosten für die ebenen und verrippten Aluminium-Platten. Bei den Endplatten aus Stahl besteht zwischen den ebenen und verrippten Platten ein Unterschied in den Herstellkosten von 27 %. Dieser Unterschied beträgt bei den Aluminium-Bauteilen aufgrund der vergleichsweise geringen Kosten für das gegossene Bauteil nur 4 %. Die hohen massenspezifischen Materialkosten des CFK-Werkstoffs bedingen Herstellkosten von fast 200 € für eine kohlefaserverstärkte Endplatte.

Die folgende differenzierende Zuschlagkalkulation erlaubt eine Orientierung im Hinblick auf zu erwartende Nettoverkaufspreise der Endplatten aus Bild 9.14. Die Kalkulation nutzt durchschnittliche Zuschläge, wie sie aus der Kostenstruktur für das deutsche produzierende Gewerbe im Bereich Maschinenbau im Jahr 2001 hervorgehen [115]. Neben den bereits bei den Material- und Fertigungskosten einkalkulierten Gemeinkosten wird ein Zuschlag auf die Herstellkosten von 10 % für Verwaltung, Vertrieb und Recht, von 5 % für produzierte Ausschussware sowie von 6 % für sonstige Kosten berücksichtigt. Ferner werden zu den Selbstkosten Zuschläge von 10 % für den Gewinn und 3 % für gewährte Rabatte und Skonto hinzuaddiert. Kosten für den Entwicklungsaufwand bleiben unberücksichtigt. In Tabelle 9.6 sind die pro Endplatte ermittelten Nettoverkaufspreise in Euro zusammengefasst. Unter den betrachteten Varianten sind die

ebenen CFK-Endplatten mit einem Stückpreis von ≈ 260 € am teuersten. Der niedrigste Verkaufspreis von gut 50 € pro Platte ergibt sich für die ebenen und verrippten Endplatten aus Aluminium.

Tabelle 9.6: differenzierende Zuschlagskalkulation zur Bestimmung der Nettoverkaufspreise [€]

	Stahl		Aluminium		CFK	
	eben	verrippt	eben	verrippt	eben	
Materialeinzelkosten (MEK)	26,0	39,3	18,1	22,0	147	[€/EP]
Materialgemeinkosten (20 % der MEK)	5,2	7,9	3,6	4,4	29,4	[€/EP]
Fertigungskosten (FK)	15,5	12,2	15,5	12,2	17,0	[€/EP]
Herstellkosten (HK)	46,6	59,3	37,2	38,5	193	[€/EP]
Verwaltung, Vertrieb, Recht (10 % der HK)	4,7	5,9	3,7	3,9	19,4	[€/EP]
Ausschuss (5 % der HK)	2,3	3,0	1,9	1,9	9,7	[€/EP]
Sonstige Gemeinkosten (6 % der HK)	2,8	3,6	2,2	2,3	11,6	[€/EP]
Selbstkosten (SK)	56,4	71,8	45,0	46,6	234	[€/EP]
Gewinn (10 % der SK)	5,6	7,2	4,5	4,7	23,4	[€/EP]
Skonto und Rabatte (3 % der SK)	1,7	2,2	1,4	1,4	7,0	[€/EP]
Nettoverkaufspreis	63,8	81,1	50,9	52,7	264	[€/EP]

Die Kostenanalyse zeigt, dass die CFK-Platten aufgrund des hohen Preises nur in Spezialanwendungen mit höchsten Anforderungen an das Bauteilgewicht eingesetzt werden würden. Der Einsatz verrippter Endplatten aus Stahl erscheint aufgrund der geringen zusätzlichen Gewichtsersparnis im Vergleich zu den stark erhöhten Fertigungskosten nicht gerechtfertigt. Die zusätzliche Gewichtseinsparung von circa 9 % der verrippten Endplatten gegenüber dem Gewicht ebener Endplatten wird durch 27 % höhere Herstellkosten erkaufte. Die gleiche prozentuale Gewichtsreduktion kann dagegen bei den Aluminiumplatten durch einen nur um 4 % höheren Preis erzielt werden.

Für den Einsatz in dem Brennstoffzellenstapel werden daher bei einer Jahresproduktion von 10.000 Stück die im Gießprozess hergestellten verrippten Endplatten aus Aluminium empfohlen. Diese Endplatten sind 57 % leichter und gleichzeitig 17 % günstiger als ebene Platten aus Stahl.

Zur merklichen Reduktion der Herstellkosten ist es von entscheidender Bedeutung, die Arbeitsschritte und somit die Bearbeitungszeit des jeweiligen Fertigungsverfahrens durch ein optimiertes Design zu verringern. Beispielsweise zeigt sich hier ein weiterer Vorteil der mit Spanngurten verspannten Zellstapelkonstruktion, die keine Zugankerbohrungen in den Endplatten benötigt. Im Fall der ebenen Aluminiumplatte können bereits allein durch eine derartige Konstruktion die Herstellkosten der Endplatte um circa 25 % verringert werden.

9.2 Dichtung

In Kapitel 4.4.1 sind Flachdichtungen aus unterschiedlichen Werkstoffen bezüglich ihrer Dichtwirkung in Brennstoffzellen experimentell untersucht worden. Um die geforderte Dichtwirkung in den Zellen zu erzielen, sind Schraubenkräfte von über 50 kN notwendig. Die durch die großen

Kräfte bewirkte Wölbung der Endplatten resultiert in einer inhomogenen Anpressdruckverteilung in den Einzelzellen und Short-Stacks (siehe Bild 4.16, Kapitel 4.4.2). Neben einer verringerten Leistung kann dies zur Bauteilschädigung und -zerstörung führen. Trotz der großen Anpresskräfte, die die Flachdichtungen aufnehmen, werden sie aufgrund der großen Kontaktfläche nur um rund 5 % ihrer Ausgangsdicke im unverpressten Zustand komprimiert. Die geringe Verpressung erschwert, Toleranzen der Dichtungspartner auszugleichen.

Fortschrittliche Dichtungstechniken gehen dazu über, die Hauptkraft über die Diffusionsschicht zu leiten und die Dichtung nahezu „kraftfrei“ zu gestalten. Dies ermöglicht, die Anpresskraft zu minimieren und dadurch die Bauteilbeanspruchungen zu reduzieren, die Durchbiegung der Endplatten zu verringern und Bauteiltoleranzen effektiver ausgleichen zu können. Zu diesem Zweck werden hauptsächlich zwei Entwicklungsansätze verfolgt. Zum einen können durch die Verwendung eines weichen Materials Bauteiltoleranzen der Dichtflächen besser ausgeglichen werden. Zum anderen kann ein geometrischer Lösungsansatz die Kontaktfläche der Dichtung und damit die benötigte Anpresskraft verringern. Ein solcher geometrischer Ansatz sieht beispielsweise eine profilierte Dichtung mit Dichtlippe vor. Dichtlippen können große Toleranzen bei gleichzeitig geringer Anpresskraft ausgleichen, da im Vergleich zu Flachdichtungen bei der Verpressung deutlich geringere Dehnungen im Elastomer auftreten. Profilierte Dichtungen können ein- oder beidseitig sowohl auf Bipolarplatten als auch auf MEAs oder Gasdiffusionsschichten in einem Spritzgießprozess appliziert werden [24, 25, 26]. Die Dichtungsintegration trägt zusätzlich dem Prinzip der Teilereduktion Rechnung und verringert Montagezeiten sowie die Anzahl der potentiellen Fehlerquellen.

Im Vergleich zu der in den Experimenten verwendeten NBR-Flachdichtung werden im Folgenden zwei Dichtungsgeometrien bezüglich der Anpresskraft und Bauteilbeanspruchung unter unterschiedlichen Lastzuständen bewertet. Bei der ersten Geometrie handelt es sich um eine profilierte Dichtung mit Dichtlippe, bei der zweiten um eine schmale Flachdichtung. Beide Geometrien werden im Folgenden näher vorgestellt. Die theoretischen Betrachtungen beschränken sich auf die mechanische Dichtungslegung. Alterung oder Kosten der Dichtungen werden nicht untersucht. Die vorgestellten Berechnungen entstanden in Zusammenarbeit mit der Firma Freudenberg Forschungsdienste KG [116].

Die Dichtungsapplikation erfolgt auf der aktiven Seite des Bipolarplattenelements (BPE). Die Dichtung umfasst die aktive Fläche und die Manifolds auf einer Länge von ungefähr 1100 mm. Die Höhe der Flachdichtung entspricht im verpressten Zustand der GDL-Dicke. Der im Randbereich der MEA aufgetragene Schutzfilm besitzt bei einem E-Modul von circa 2-4 MPa eine hohe Steifigkeit (siehe Kapitel 3.1). Dies erlaubt, auf korrespondierenden Bipolarplatten die gleiche Lippengeometrie zu verwenden, ohne dass die Dichtungsprofile unter Belastung aufeinander abgleiten. Die im Spritzgießverfahren aufgetragenen Dichtungen benötigen eine umlaufend circa 1 mm breite Anlagefläche für das formgebende Werkzeug.

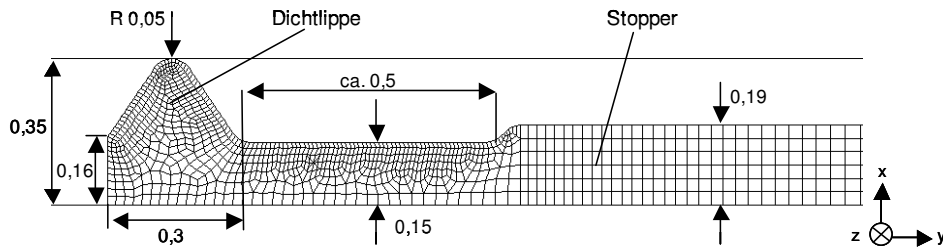


Bild 9.15: FE-Modell der profilierten Dichtung mit Dichtlippe und Stopper [mm] [116]

Das Design der profilierten Dichtung ist in Bild 9.15 mit den relevanten Geometriedaten gezeigt. Die dreiecksförmige Dichtlippe presst sich unter Belastung in den angrenzenden verjüngten Mittelbereich ein. Um die Dichtlippe vor Überbeanspruchung zu schützen, ist eine Anschlagsfunktion, ein sogenannter Stopper, in die Dichtung integriert. Der Stopper begrenzt die maximale Verpressung der Dichtlippe und kann des Weiteren auch in gewissem Maße die Diffusionschicht vor übermäßiger Kompression schützen.

Die Geometrie der untersuchten Flachdichtung ist in Bild 9.16 zu sehen.

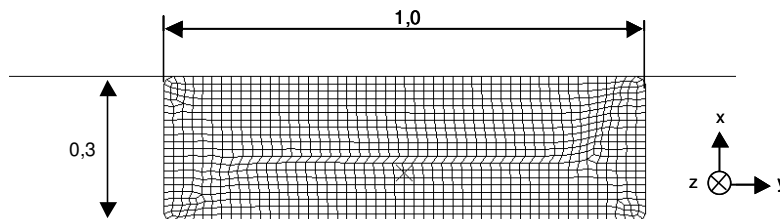


Bild 9.16: FE-Modell der Flachdichtung [mm] [116]

Als Dichtungswerkstoff wird ein Silikon-Kautschuk gewählt. Der Werkstoff ist durch die Kennwerte Schubmodul $0,7 \text{ N/mm}^2$ und Kompressibilität $0,001 \text{ mm}^2/\text{N}$ charakterisiert. Den nicht-linearen Verlauf der Spannungs-Dehnungskurve des Materials beschreibt das hyperelastische Neo-Hooke Modell. Der Reibkoeffizient zwischen Elastomer und Membran wird mit $0,3$ angesetzt. Die Dehnung der Dichtung in Längsrichtung (z-Richtung) wird vernachlässigt. Diese Annahme stellt bezüglich der maximalen Bauteilbelastung eine konservative Abschätzung dar. Die Reißdehnung des Materials liegt bezogen auf die Ausgangslänge bei circa 500% . Zum Schutz vor übermäßiger Bauteilbeanspruchung soll die zulässige Dehnung der Dichtung im Auslegungspunkt maximal 130% betragen.

Die Nominaldicke des verwendeten Gasdiffusionsgewebes beträgt im unverpressten Zustand $0,4 \text{ mm}$. Bei der empfohlenen Flächenpressung von 10 bar verringert sich die Dicke auf $0,24 \text{ mm}$. Laut Herstellerangaben liegen die Toleranzen im unverpressten Zustand bei $+25 \mu\text{m}$ und $-75 \mu\text{m}$. Unter der Annahme, dass die Toleranzfelder der verpressten GDL prozentual denen der unverpressten entsprechen, ergibt sich für die verpresste GDL eine Dicke von $0,24 \text{ mm} + 15 / -45 \mu\text{m}$. Toleranzen der Bipolarplatte, der Membran sowie der Dichtung bleiben bei den Berechnungen unberücksichtigt.

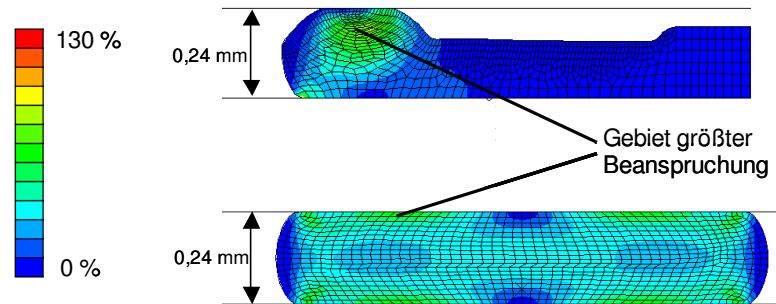


Bild 9.17: 1. Hauptdehnung der Dichtungsprofile bei Verpressung der nominellen GDL mit 10 bar [116]

Exemplarisch für den Fall, dass die GDL Nominaldicke besitzt und mit 10 bar verpresst ist, zeigt Bild 9.17 die unter Belastung verformten Konturen der Dichtungsprofile. Die dargestellte erste Hauptdehnung gibt Aufschluss über die Bauteilbeanspruchungen in den Elastomeren. Bezogen auf die Ausgangslänge ist die Legende entsprechend der maximal zulässigen Dehnung von 130 % skaliert. Die maximal auftretende Dehnung beträgt in beiden Dichtungsprofilen circa 60 %. Liegt eine GDL mit maximaler Minustoleranz vor, steigt die Bauteilbelastung in der profilierten Dichtung mit Dichtlippe auf rund 120 %. Die Bauteilbeanspruchung liegt somit noch unterhalb des definierten Grenzwertes. Unter gleichen Bedingungen treten in der Flachdichtung dagegen Dehnungen von über 200 % auf. Diese hohe Bauteilbeanspruchung kann zu einer beschleunigten Alterung der Dichtung führen. Die Bauteilbelastung kann durch eine dünnere Flachdichtung verringert werden, allerdings besteht dann die Gefahr, dass die Dichtigkeit im Fall einer Diffusionsschicht mit Plustoleranz nicht gewährleistet ist. Hier gilt in erster Näherung, dass Dichtigkeit besteht, wenn die Kontaktspannung des Dichtungsprofils größer als der Innendruck ist. Bei den vorliegenden Dichtungsgeometrien liegt die Kontaktspannung für die größte GDL (0,24 mm +15 µm) oberhalb von 14 bar, so dass über das gesamte Toleranzfeld die Dichtigkeit in jedem Fall gewährleistet ist.

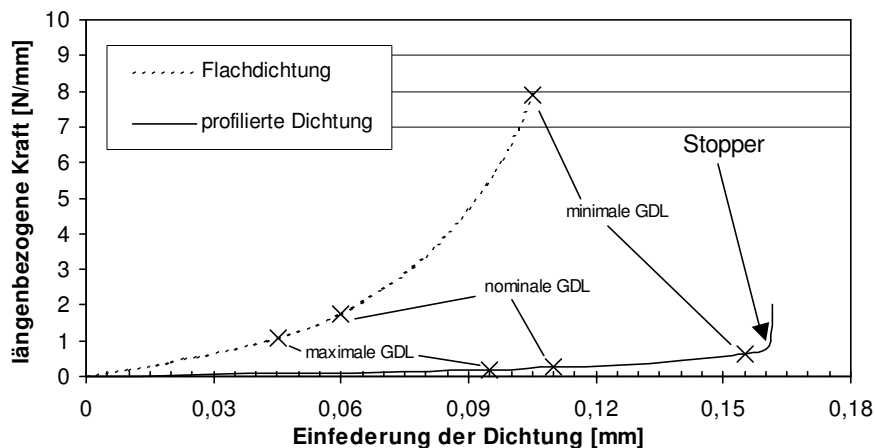


Bild 9.18: Kraft-Weg-Verlauf

Bild 9.18 zeigt die ermittelten Kraft-Weg-Verläufe für die beiden Dichtungsprofile. Die Anpresskraft ist auf eine Dichtungslänge von 1 mm bezogen. Deutlich zu erkennen ist, wie die Wirkung des Stoppers bei der profilierten Dichtung ab einer Einfederung von circa 0,16 mm einsetzt. Die bezeichneten Verpressungszustände entsprechen den unterschiedlichen Toleranzlagen der mit 10 bar verpressten GDL. Aufgeführt sind jeweils die drei Fälle maximaler, minimaler und nominaler GDL-Dicke. Aufgrund der unterschiedlichen Ausgangsdicken der Dichtungen liegen gleiche Toleranzlagen der GDL bei unterschiedlichen Einfederungslängen der beiden Dichtungen. Um die gleiche GDL-Verpressung zu erreichen, erfordert die Flachdichtung circa 6- bis 12-fach höhere Anpresskräfte als die profilierte Dichtung. Die Vorspannkraft des gesamten Zellstapels ergibt sich aus der Summe der Kräfte, die durch die GDL und die Dichtung geleitet werden. Bei einer GDL-Fläche von 244 cm² und einem Anpressdruck der GDL von 10 bar sowie einer Dichtungslänge von rund 1100 mm liegt für die untersuchten Fälle in Abhängigkeit der GDL-Dicke die Gesamtkraft zwischen 25 und 33 kN. Bei nominaler GDL-Dicke wird rund 1 % der Gesamtkraft in die profilierte Dichtung, beziehungsweise 8 % in die Flachdichtung eingeleitet. Die größte Kraft wird bei minimaler GDL-Dicke durch die Dichtungen geleitet, so dass hier die Anteile 3 % beziehungsweise 27 % der Gesamtkraft betragen.

Bei den in Kapitel 4 beschriebenen Experimenten sind Flachdichtungen aus dem Werkstoff NBR zum Einsatz gekommen. Die Dichtungsgeometrie ist in den Bildern 3.1 und 3.5 zu sehen. Im unverpressten Zustand sind die Dichtungen 0,3 mm dick. Die Kontaktfläche zwischen Dichtung und Membran ist um den Faktor 10 größer als die der oben beschriebenen Flachdichtung aus Silikon-Kautschuk. Den Ergebnissen der experimentell ermittelten Anpressdruckverteilung sowie den Berechnungen aus Kapitel 9.1.1 zufolge, liegt in den Zellen ein Anpressdruck in der Diffusionsschicht von ungefähr 6-7 bar vor. Bei nominaler GDL-Dicke entspricht dieser Druck einer Einfederung der NBR-Dichtung von circa 0,01 mm. Die resultierende längenbezogene Kraft ist bereits bei dieser geringen Einfederung um mehr als zwei Größenordnungen größer als bei den beiden untersuchten Dichtungsprofilen aus Silikon-Kautschuk. Trotz der geringen GDL-Verpressung liegt der Anteil der durch die Dichtung geleiteten Kraft mit 75 % der Gesamtkraft deutlich über dem Anteil der Kraft, der durch die GDL fließt. Aufgrund der Kombination aus großer Kontaktfläche und hoher Materialsteifigkeit kann demnach nicht die gewünschte GDL-Verpressung von 10 bar mit den verwendeten NBR-Dichtungen erreicht werden. Dies bestätigt die Aussage aus Kapitel 9.1.1.

Bedingt durch den geringeren Bauraum der beiden untersuchten Dichtungsprofile kann die aktive Fläche beziehungsweise der Flächennutzungsgrad der Bipolarplatten um rund 15 % im Vergleich zur Konstruktion mit NBR-Flachdichtungen erhöht werden.

9.3 Zusammenfassung

In Kapitel 9.1 erfolgt eine konstruktive Optimierung der Endplatten und Dichtungen des Brennstoffzellenstapels. Verschiedene Endplattenwerkstoffe und -geometrien werden hinsichtlich ihres Bauvolumens und Bauteilgewichts sowie der Herstellkosten bewertet. In einem ersten Schritt wird geklärt, wie sich eine Wölbung der Endplatten auf die Anpressdruckverteilung im

Zellstapel und damit auf die Stackleistung auswirkt. Die bei den Experimenten in Kapitel 4 verwendeten Endplatten aus Edelstahl werden bei den Betrachtungen als Referenzdesign definiert.

Aufgrund der Flächenpressung zwischen den Endplatten und den darunter liegenden Zellen wölben sich die Endplatten nach außen. Die Berechnungen zeigen, dass die Endplattendeformation in einem Zellstapel mit graphitischen Bipolarplatten größer ist als in einem mit Bipolarplatten aus Titan. Eine gleichmäßigere Anpressdruckverteilung über die Fläche der Diffusionsschichten kann allerdings in dem Zellstapel mit graphitischen Bipolarplatten erreicht werden. Darüber hinaus wird unter der vorliegenden Zellstapelgeometrie eine homogene Anpressdruckverteilung in einem Zellstapel mit graphitischen Bipolarplatten bei einer geringeren Zellenanzahl erreicht als in einem Zellstapel mit Bipolarplatten aus Titan. Eine homogene Anpressdruckverteilung liegt vor, wenn ein Grenzwert für das Verhältnis aus minimalem zu maximalem Anpressdruck in dem Zellstapel überschritten wird.

In dem aus 50 Zellen bestehenden 5 kW Brennstoffzellenstapel liegt bei Verwendung der Referenzendplatten eine homogene Anpressdruckverteilung vor. Dieses Design ist somit bezüglich der auftretenden Wölbung für den Einsatz im Zellstapel geeignet. Die Leistung des gesamten Zellstapels wird aufgrund der vorliegenden Anpressdruckverteilung voraussichtlich nur im Promillebereich verringert sein. Da das Anpressdruckverhältnis oberhalb des definierten Grenzwertes liegt, eröffnet sich die Möglichkeit, die Endplattendicke und damit das Gewicht der Platten zu verringern.

Ferner zeigen die Berechnungen, dass bei Versuchen an Einzelzellen und Short-Stacks die Stapelleistung maßgeblich durch die Anpressdruckverteilung beeinflusst werden kann. Zum Ausgleich der Endplattenwölbung ist hierbei der Einsatz einer elastischen Zwischenschicht zwischen Endplatte und Bipolarplatte empfehlenswert.

Mit der verwendeten Kombination aus Flachdichtung und Diffusionsschicht wird nicht die vom Hersteller angegebene optimale Diffusionsschichtverpressung erreicht. Eine dickere Diffusionsschicht oder eine dünnere Dichtung kann ebenso wie ein angepasstes Dichtungskonzept die geforderte Verpressung bewirken.

Der Gewichtsanteil der Referenzendplatten in dem betrachteten 5 kW Zellstapel beträgt 43 %. Die numerischen Berechnungen zeigen, dass die Endplatten ein großes Gewichtsreduktionspotential besitzen. Bei konstanter Bauteilbelastung wird unter Variation der Werkstoffe und Geometrien die Endplattendicke so bestimmt, dass die resultierende maximale Durchbiegung der des Referenzdesigns entspricht. Für die untersuchten Varianten eröffnet der kohlefaserverstärkte Kunststoff (CFK) das größte Potential zur Gewichtsreduktion. Verlaufen die Fasern der Lagen in einem Winkel von $\pm 22,5^\circ$ bezogen auf die kurze Seite der Platte und sind die Zuganker zur Plattenmitte hin versetzt, beträgt das Gewicht der verrippten CFK-Endplatten nur 22 % von dem des Referenzdesigns. Bei den untersuchten metallischen Werkstoffen erreicht die Aluminium-Endplatte mit 33 % des Referenzgewichtes die größte Gewichtseinsparung. Der Kunststoff PEEK scheint für die Anwendung in Brennstoffzellen aufgrund des geringen Elastizitätsmoduls nicht geeignet. Allein die Vorspannung der Zuganker bewirkt im Bereich der Krafteinleitung eine Verformung, die größer als die Durchbiegung in der Plattenmitte ist.

Als effektive Maßnahme zur Gewichtsreduktion der Endplatten erweist sich, die Krafteinleitung in Richtung der Plattenmitte zu verschieben. Mindestens 25 % des Gewichts werden eingespart, wenn die Zuganker nicht außerhalb, sondern durch den Rand der Bipolarplatten geführt werden. Werden Spanngurte anstelle der Zuganker verwendet, kann das Gewicht um weitere 18 % reduziert werden. Durch eine verrippte Konstruktion werden im Durchschnitt nur 10 % des Gewichtes der ebenen Platten eingespart. Ein verringerter Anpressdruck erlaubt keine weitere Gewichtsreduktion, wenn die Zuganker durch den Rand der Bipolarplatten geführt werden.

Eine Betrachtung der Herstellkosten zeigt, dass bei einer angenommenen Jahresproduktion von 10.000 Stück verrippte Endplatten am kostengünstigsten durch einen Gießprozess zu fertigen sind. Aufgrund der notwendigen spanenden Nachbearbeitung dieser Platten, sind sie teurer als ebene Platten des gleichen Werkstoffs. Während der Einsatz von CFK-Endplatten aufgrund der hohen Materialkosten fraglich erscheint, zeigen die Aluminiumplatten neben einer Gewichts- auch eine Kostenreduktion im Vergleich zu den Referenzplatten aus Stahl. Eine exemplarische Plankostenrechnung auf Vollkostenbasis zeigt, dass der Verkaufspreis einer ebenen Endplatte aus Aluminium bei ungefähr 50 € pro Bauteil liegt. Der Preis für die verrippte Aluminium-Endplatte übersteigt diesen Wert nur um circa 5 % bei einem gleichzeitig um 9 % verringerten Bauteilgewicht.

Für den Einsatz in dem betrachteten 5 kW Brennstoffzellenstapel werden daher bei der angestrebten Jahresproduktion die im Gießprozess hergestellten verrippten Endplatten aus Aluminium empfohlen. Im Vergleich zu dem Referenzdesign erhöht sich unter Verwendung dieser Aluminium-Endplatten die gravimetrische Leistungsdichte um mehr als 35 % auf 0,26 kW/kg. Eine weitere Steigerung der Leistungsdichte kann erreicht werden, wenn anstelle der Zuganker und Flachdichtungen Spanngurte und weiche, in die Bipolarplatte eingespritzte Dichtungen verwendet werden. Da die maximal zulässige Durchbiegung der Endplatte bei der vorliegenden Bauteilbelastung noch nicht erreicht ist, eröffnet sich hierdurch ein zusätzliches Potential zur Gewichtsreduktion.

Die bei den Experimenten verwendeten NBR-Flachdichtungen erscheinen trotz ihrer guten Dichtungseigenschaften alleine aus mechanischer Sicht nicht für den Einsatz in den Zellen geeignet. Im Vergleich zu Flachdichtungen weisen profilierte Dichtungen mit Dichtlippe aus Silikon-Kautschuk bezüglich der Bauteilbeanspruchung, der benötigten Anpresskraft und dem Federweg klare Vorteile auf. Diese Vorteile kommen um so mehr zum Tragen, wenn neben den Toleranzen der Gasdiffusionsschicht auch die Toleranzen von Bipolarplatte, Membran und Dichtung bei der Auslegung der Dichtung Berücksichtigung finden.

Im Vergleich zu der NBR-Dichtung erlaubt die Verwendung der untersuchten profilierten Dichtung eine Steigerung der Verpressung der Diffusionsschicht von 7 bar auf die angestrebten 10 bar bei gleichzeitiger Reduktion der Anpresskraft von derzeit circa 70 kN auf 25 kN. Wie in Kapitel 9.1.2 gezeigt wurde, kann bei verringerter Anpresskraft eine Gewichtsreduktion der Endplatte von ungefähr 5 % erzielt werden. Der erhöhte Flächennutzungsgrad bei einer Zellkonstruktion mit profilierter Dichtung ermöglicht darüber hinaus bei gleichem Bauvolumen eine Leistungssteigerung von rund 15 %.

10 Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel der 5 kW Klasse

In diesem Kapitel erfolgt eine erste Leistungscharakterisierung des im Rahmen der hier vorgestellten Arbeit gebauten und in Betrieb genommenen Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels. Der Zellstapel ist Gegenstand des vom Ministerium für Wissenschaft und Forschung des Landes Nordrhein-Westfalen geförderten Projektes „Auslegung eines kompakten PEFC-Stacks der 5 kW Klasse“. Die Auslegung des Zellstapels basiert auf den in den vorangehenden Kapiteln vorgestellten Ergebnissen. Da die Auslegung und die theoretischen Betrachtungen aufgrund des Projektplans zeitlich parallel verliefen, wurden nicht alle erarbeiteten konstruktiven und betriebstechnischen Optimierungsvorschläge technisch umgesetzt.

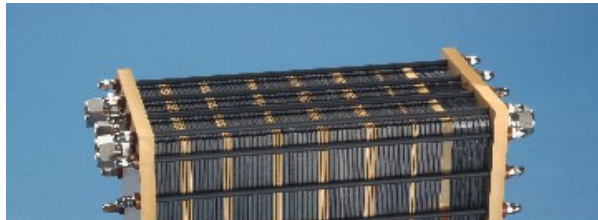


Bild 10.1: Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel der 5 kW Klasse

Bild 10.1 zeigt den aus 55 Zellen bestehenden Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel. Zellaufbau und -geometrie entsprechen den in Kapitel 3.1 beschriebenen Zellen mit Mäander-Strömungsstruktur. Um Wechselwirkungen unterschiedlicher Materialkombinationen untersuchen zu können, sind die einzelnen Zellen des Stapels aus Kombinationen unterschiedlicher Membran-Elektroden-Einheiten (MEAs) und Bipolarplattenmaterialien aufgebaut. Die 55 eingebauten MEAs teilen sich auf in 18 kommerzielle MEAs sowie 37 im Institut für Energieverfahrenstechnik der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ) gefertigte MEAs. Die kommerziellen MEAs entsprechen den bei den Versuchen in Kapitel 4 verwendeten MEAs. Die im Forschungszentrum Jülich hergestellten MEAs basieren auf eigengefertigten Gasdiffusionselektroden, die mit kommerziellen Membranen heißverpresst sind. Die Platinkatalysatorbeladung dieser MEAs liegt auf der Anoden- und Kathodenseite bei jeweils rund $0,8 \text{ mg/cm}^2$. Von den 55 Zellen bestehen 45 Zellen aus Graphit-Composit-Bipolarplatten und 10 Zellen aus vergoldeten Titan-Bipolarplatten. Um unterschiedliche Strömungsverhältnisse innerhalb der Zellen zu vermeiden, ist die Geometrie der Bipolarplatten und der darin integrierten Strömungsstrukturen bei beiden Materialien

identisch. Die Zellen mit Titan-Bipolarplatten sind gleichmäßig innerhalb des Stapels verteilt, um Referenzmessungen an verschiedenen Stapelpositionen bereitstellen zu können. Dadurch soll ein möglicher Einfluss der Positionierung der Zellen im Zellstapel berücksichtigt werden.

Jede der 55 einzelnen Zellen wird über einen zentralen Wasserkreislauf gekühlt. Das Flowfield der Kühlzellen ist mit Hilfe der in Kapitel 6.4 vorgestellten Auslegungsroutine optimiert worden. Die Wasserstoffbefeuchtung erfolgt mittels Pervaporation. Die über den Kühlwasserkreislauf gespeisten Flachmembranbefeuchterzellen sind am rechten Ende des in Bild 10.1 abgebildeten Zellstapels in den Stapel integriert. Die kathodenseitige Reaktandenbefeuchtung erfolgt über einen externen Pervaporationsbefeuchter. Durch diese Anordnung kann der Feuchtegrad der zugeführten Luft unabhängig von der Temperatur des Kühlwasserkreislaufes gewählt werden.

In Bild 10.2 ist die Leistungscharakteristik des Zellstapels dargestellt. Die Leistung von 5 kW wird bei einem Gesamtstrom von rund 170 A erreicht. Es zeigt sich, dass die kommerziellen MEAs erst ab einem Strom von ungefähr 110 A eine bessere Leistungscharakteristik aufweisen als die am Forschungszentrum Jülich auf Basis von kommerziellen Membranen hergestellten MEAs. Bei einer Stromdichte von 700 mA/cm^2 , entsprechend einem Gesamtstrom von rund 170 A, liegt die mittlere Leistung der kommerziellen MEAs um rund 10 % über der mittleren Leistung der eigengefertigten MEAs. Bei der Stromdichte von 700 mA/cm^2 liegt die mittlere Leistung der Zellen mit Titan-Bipolarplatten um rund 5 % über der der Zellen mit Graphit-Bipolarplatten.

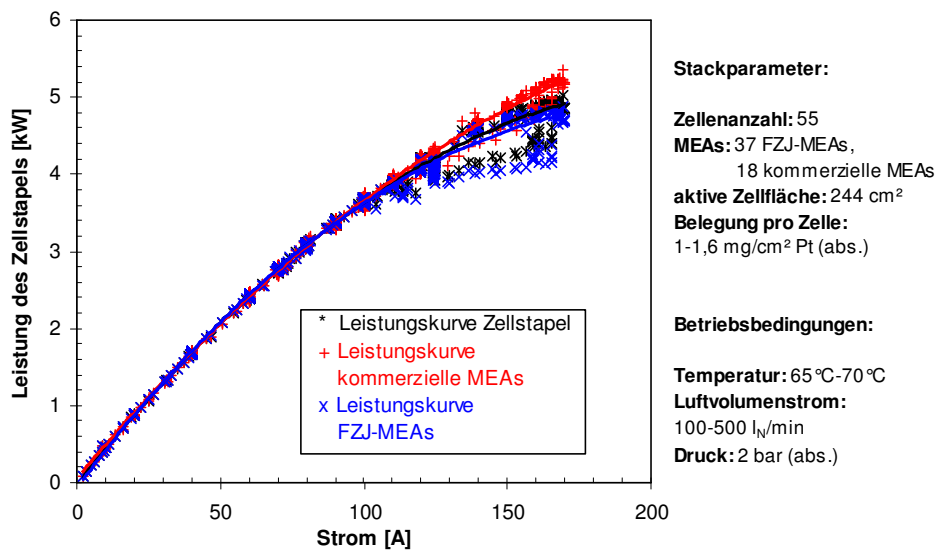


Bild 10.2: Leistungscharakteristik des Zellstapels

In Tabelle 10.1 ist die extrapolierte Leistung bei einem Gesamtstrom von 170 A aufgeführt, die sich ergeben würde, wenn der Zellstapel jeweils nur aus einem Typ von Bipolarplatten und MEAs bestehen würde. Die höchste Stapelleistung von 5,4 kW ergibt sich demnach für einen

Zellstapel mit Titan-Bipolarplatten und kommerziellen MEAs. Die Leistung dieses Zellstapels liegt um rund 15 % über der Leistung eines Zellstapels mit Graphit-Bipolarplatten und eigengefertigten MEAs.

Tabelle 10.1: Extrapolierte Stapelleistung für unterschiedliche Materialkombinationen
(Betriebsbedingungen entsprechend Bild 10.2, Gesamtstrom 170 A)

	Membran-Elektroden-Einheiten	
	kommerziell	eigengefertigt (FZJ)
Graphit-Bipolarplatten	5,15 kW	4,75 kW
Titan-Bipolarplatten	5,40 kW	4,90 kW

Eine umfangreiche Charakterisierung des Zellstapels findet sich in [117]. Anhand von Widerstandsmessungen (siehe Kapitel 3.6) wurde gezeigt, dass innerhalb einzelner Graphitplatten laterale Querströme auftreten. Dies betraf sowohl Zellen mit eigengefertigten als auch mit kommerziellen MEAs. Die Ursache dieser Querströme liegt vermutlich in der Verstopfung einzelner Strömungsstrukturen durch flüssiges Wasser. Dies resultiert in erhöhten Ohmschen Leistungsverlusten und erhöhten Diffusionsüberspannungen. In [117] aufgezeigte Optimierungspotentiale betreffen eine Verbesserung des Tropfenaustrages sowie die Verwendung profilierter Dichtungen.

11 Zusammenfassung und Ausblick

Um die Konkurrenzfähigkeit von Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen (PEFCs) zu bereits am Markt etablierten Technologien zu erreichen, besteht ein erheblicher Optimierungsbedarf der Brennstoffzellentechnologie. Die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Ansätze sollen dazu beitragen, die Auslegung von PEFC-Stacks der 5 kW Klasse hinsichtlich unterschiedlicher Auslegungskriterien wissenschaftlich fundiert zu optimieren. Bei der Auslegung und Optimierung derartiger Zellstapel erfordert die Vielzahl an Einflussgrößen einen breiten Ansatz. Das vorrangige Ziel dieser Arbeit besteht darin, einen solchen breiten Ansatz zu verfolgen, um Wechselwirkungen der Einzelkomponenten des Stacks untereinander zu erfassen und diese auf eine neue Modell-Grundlage zu stellen. Dabei können die abstrahierten Lösungswege und Ergebnisse zu einem hilfreichen Werkzeug bei der Auslegung und Optimierung zukünftiger Brennstoffzellenstapel auch anderer Leistungsklassen werden.

Ein neuartiger, quasi eindimensionaler (Q1D) Modellansatz zur Leistungscharakterisierung von PEFCs in Form von Spannungs-Stromdichte-Kennlinien wird hergeleitet. Der Q1D-Ansatz berücksichtigt, dass sich die in Experimenten gemessene Spannungs-Stromdichte-Kennlinie (U-i-Kennlinie) einer Brennstoffzelle aufgrund verschiedener Einflussfaktoren aus unterschiedlichen lokalen U-i-Kennlinien zusammensetzt. Die systematische Applikation des Modellansatzes auf einen aus mehreren U-i-Kennlinien bestehenden Messdatensatz erlaubt, funktionale Abhängigkeiten der Modellparameter abzuleiten. Diese Abhängigkeiten ermöglichen es, die Leistungscharakteristik der betrachteten Brennstoffzelle unter variierenden Betriebsparametern mit hoher Genauigkeit vorherzusagen. Unter Verwendung des Q1D-Modellansatzes kann demnach die Anzahl der zur Leistungscharakterisierung einer Zelle benötigten Experimente deutlich verringert werden. Anhand des für den 5 kW Zellstapel ausgewählten Zelldesigns werden die Auswirkungen auf das Leistungsverhalten bei Variation der Modellparameter mittels einer Sensitivitätsanalyse bewertet. Die Ergebnisse zeigen, dass eine effektive Steigerung der Leistung durch Vergrößerung der Katalysatoroberfläche und Steigerung der Katalysatoraktivität erreicht werden kann. Für unterschiedliche Stromdichten und Betriebsdrücke wird die spezifische Zelleistung in Abhängigkeit des kathodenseitigen Reaktandenumsatzes ermittelt. Der empfohlene maximale Umsatz verschiebt sich mit abnehmendem Betriebsdruck und steigender Stromdichte hin zu einem höheren Sauerstoffstöchiometrikoeffizienten.

Als Grundlage für die Auslegung des 5 kW Zellstapels dienen experimentelle Untersuchungen an Einzelzellen und Short-Stacks. Untersucht werden unter anderem die Einflüsse unterschiedlicher Strömungsstrukturen und Bipolarplattenmaterialien sowie variierender Betriebsparameter auf die Zelleistung. Die Auswertung der Ergebnisse führt zur Auswahl von Bipolarplatten auf Basis von Graphit-Composit-Material mit Mäander-Strömungsstruktur für den Einsatz im 5 kW Zellstapel. Zur Bestimmung der durch die Betriebsparametervariationen hervorgerufenen loka-

len Änderungen in der Zelleistung erfolgen Messungen der Stromdichteverteilung. Es kommen zwei innovative Verfahren zur Bestimmung der Stromdichteverteilung zur Anwendung. Das erste Verfahren basiert auf lokalen in-situ Widerstandsmessungen an einem passiven Widerstandsnetzwerk. Das zweite Verfahren ist als Magnetotomographie bezeichnet.

Das neu entwickelte passive Widerstandsnetzwerk bietet durch seine einfachen und kostengünstigen Aufbau und die hohe Integrationsfähigkeit deutliche Vorteile gegenüber herkömmlichen Ansätzen. Mit dieser Methode gemessene Stromdichteverteilungen zeigen, dass Betriebsparametervariationen deutliche lokale Änderungen der Stromdichte hervorrufen können. Um einer Membranschädigung vorzubeugen, wird daher für den Betrieb des 5 kW Zellstapels eine auf die Betriebstemperatur von 70 °C bezogene Reaktandenbefeuchtung von H_2 80 % und $Luft$ 80 % empfohlen. Für den Luftstöchiometriekoeffizienten gilt $Luft$ 2.

Die Magnetotomographie stellt das derzeit einzige bekannte Verfahren zur nicht-invasiven Bestimmung der Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen dar. Das Verfahren erlaubt, durch Messung der magnetischen Flussdichte außerhalb eines Zellstapels auf die Stromdichteverteilung innerhalb des Zellstapels zu schließen. Die Stromdichterekonstruktionen mittels Magnetotomographie zeigen bereits in dem frühen Entwicklungsstadium der Methode vielversprechende Ergebnisse. Nachdem die prinzipielle Eignung des Verfahrens in dieser Arbeit anhand von Differenzrekonstruktionen an Einzelzellen gezeigt wurde, müssen in nächsten Schritten Versuche an Short-Stacks sowie Absolutrekonstruktionen der Stromdichteverteilung folgen.

Im Gegensatz zu dem Betrieb von Einzelzellen stellt in einem Zellstapel beispielsweise die gleichmäßige Medienverteilung auf die einzelnen Zellen eine große Herausforderung dar. Eine gleichmäßige Verteilung der Medien auf die einzelnen Zellen ist Voraussetzung für eine hohe Leistung. Die Verteilung der Medien ist neben verschiedenen Geometrie- und Betriebsparametern von der Art der Strömungsführung in dem Zellstapel abhängig. Zur Bestimmung der Medienverteilung in einem Zellstapel wird ein analytischer, eindimensionaler Berechnungsansatz vorgestellt. Dieser Ansatz beschreibt den Zellstapel durch ein hydraulisches Widerstandsnetzwerk. Zur Validierung des analytischen Modells wird ein numerisches Verfahren verwendet, das mittels dreidimensionaler Simulation der Strömung die Medienverteilung in Zellstapeln bestimmt. Aus der Untersuchung des Einflusses einer ungleichmäßigen Medienverteilung auf die Leistung des Stapels wird ein Richtwert für die maximal empfohlene Ungleichverteilung im Auslegungspunkt abgeleitet. Anhand dieses Richtwertes erfolgt für den 5 kW Stapel eine auf die ausgewählte Mäander-Strömungsstruktur der Zellen abgestimmte Auslegung der Versorgungskanäle.

In einem weiteren Schritt erfolgt die Verallgemeinerung des eindimensionalen Ansatzes, indem die Einflussgrößen zu geeigneten dimensionslosen Kennzahlen zusammengefasst werden. Für beliebige Zellstapelgeometrien wird die Gleichmäßigkeit der Medienverteilung in Abhängigkeit dieser Kennzahlen für ausgewählte Kennzahlbereiche in graphischer und analytischer Form präsentiert. In weiterführenden Arbeiten sollten die präsentierten Ergebnisse anhand von Experimenten validiert werden.

Um die bei der elektrochemischen Reaktion entstehende Wärmemenge aus dem Brennstoffzellenstapel abzuführen, ist eine aktive Kühlung des Stapels notwendig. Zur Wärmeabfuhr werden luft- und wasserbasierte Kühlkonzepte gegenübergestellt und anhand von Auslegungsbeispielen bewertet. Für die in der Brennstoffzelle vorliegende Mäander-Strömungsstruktur erweist sich die Luftkühlung aufgrund der durch sie hervorgerufenen großen Temperaturspreizung in dem Zellstapel als nicht geeignet. Aus diesem Grund wird ein Wasserkreislauf zur Kühlung des Zellstapels ausgewählt.

Eine entwickelte Auslegungsroutine optimiert die Kühlzelligeometrie und -anzahl bezüglich der durch die Kühlung bedingten Verlustleistung. Die Verlustleistung setzt sich aus einem Anteil, der durch die Ohmschen Verluste bei der Leitung des Stroms durch die Kühlzellen bedingt ist, sowie einem Anteil, der durch die Förderung des Kühlmediums entsteht, zusammen. Die Routine erlaubt außerdem eine Berücksichtigung wärmetechnischer Gesichtspunkte. Die Berechnungsansätze der Auslegungsroutine werden am Beispiel einer mäanderförmigen Kühlkanalstruktur erläutert. Für andere Kühlkanalstrukturen sind die Berechnungsansätze entsprechend anzupassen. Angewendet auf die obigen wassergekühlten Auslegungsbeispiele, kann die Verlustleistung unter den getroffenen Annahmen mit Hilfe der Auslegungsroutine um bis zu 64 % gesenkt werden. Für den untersuchten 5 kW Zellstapel ergibt sich die geringste Verlustleistung, wenn nach jeder zweiten Einzelzelle eine Kühlzelle angeordnet ist. Die Berechnungen zeigen, dass die durch die Kühlung entstehende Verlustleistung in einem wassergekühlten Zellstapel bezogen auf die produzierte elektrische Leistung mit $< 1\%$ gering ist. Die in diesem Kapitel getroffenen Annahmen sollten in weiterführenden Arbeiten durch experimentelle Untersuchungen sowie numerische Strömungssimulationsrechnungen untermauert werden.

Die ionische Leitfähigkeit der in den Brennstoffzellen verwendeten Membranen hängt stark von ihrem Wassergehalt ab. Für einen leistungsoptimierten Betrieb müssen die Reaktanden vor dem Eintritt in die Zelle befeuchtet werden. Eine Bewertung unterschiedlicher Befeuchtungskonzepte zeigt, dass sich Membranverfahren zur Befeuchtung der Reaktandengase in PEFCs als besonders geeignet erweisen. Es erfolgt eine experimentelle Charakterisierung eines Flachmembranbefeuchtermoduls, das sowohl als Pervaporations- als auch als Gaspermeationsbefeuchter betrieben wird. Aufbau und Geometrie des untersuchten Moduls entsprechen dem Aufbau einer einzelnen Brennstoffzelle mit Mäander-Strömungsstruktur.

Anhand der an dem Pervaporationsmodul gemessenen Daten erfolgt die Auslegung der Befeuchtereinheiten für den 5 kW Zellstapel in Abhängigkeit des Betriebsdrucks und der Betriebstemperatur. Die Charakterisierung des Gaspermeationsbefeuchters zeigt, dass die geforderte Wassermenge nicht mit dem vorliegenden Flachmembranmodul übertragen werden kann.

Da die Befeuchterzellen und die Brennstoffzellen baugleich sind, wird empfohlen, die anodenseitigen Befeuchterzellen in den Brennstoffzellenstapel zu integrieren. Die Speisung der Befeuchterzellen erfolgt über das nach dem Durchfluss durch den Zellstapel erwärmte Kühlmedium. Zur Befeuchtung des Oxidans wird die Verwendung eines Kapillar- oder Hohl-faserbefeuchtermoduls empfohlen. Diese Module besitzen im Vergleich zu Flachmembranbefeuchtern eine um ungefähr eine Größenordnung größere Packungsdichte. Kapillar- und Hohl-

faserbefeuchtermodule können kathodenseitig sowohl als Pervaporations- als auch als Gaspermeationsbefeuchter betrieben werden.

Anhand einer Systembetrachtung wird für unterschiedliche Befeuchtungskonzepte der Einfluss einer Änderung des Betriebsdrucks auf die Systemleistung untersucht. Es zeigt sich, dass mit steigendem Betriebsdruck die aufzuwendende Verdichterleistung stärker zunimmt als die Brennstoffzellenleistung. Aus diesem Grund sinkt die Systemleistung mit steigendem Betriebsdruck. Für die unterschiedlichen Befeuchtungskonzepte werden Betriebsdruckbereiche identifiziert, in denen unter dem jeweils vorliegenden Systemaufbau ein wasserautarker Betrieb möglich ist. Unter den getroffenen Annahmen ist unterhalb eines Betriebsdrucks von 1,8 bar ein wasserautarker Betrieb nur durch die Verwendung eines Gaspermeationsbefeuchters zu erzielen. Ab einem Betriebsdruck von 1,8 bar kann die Befeuchtung mittels Pervaporation realisiert werden. Für den Betrieb des 5 kW Zellstapels erscheint ein Auslegungsbereich des Betriebsdrucks von 1,1 bis 2,2 bar als geeignet.

Zur Steigerung der volumetrischen und gravimetrischen Leistungsdichte des Brennstoffzellenstapels werden für die bei den Versuchen verwendeten Endplatten und Dichtungen Optimierungspotentiale aufgezeigt. Verschiedene Endplattenwerkstoffe und -geometrien werden hinsichtlich ihres Bauvolumens und Bauteilgewichts sowie der Herstellkosten bewertet. In einem ersten Schritt wird geklärt, wie sich eine Wölbung der Endplatten auf die Anpressdruckverteilung im Zellstapel und damit auf die Stapelleistung auswirkt. Die Berechnungen zeigen, dass in dem betrachteten 5 kW Zellstapel bei den verwendeten Endplatten eine homogene Anpressdruckverteilung vorliegt. Allerdings wird mit der verwendeten Kombination aus Flachdichtung und Diffusionsschicht nicht die vom Hersteller angegebene optimale Diffusionsschichtverpressung erreicht. Dies bestätigen experimentelle Untersuchungen zur Anpressdruckverteilung. Im Gießprozess hergestellte verrippte Endplatten aus Aluminium zeigen bezüglich der Kombination aus Bauteilgewicht und Herstellkosten die größten Vorteile. Im Vergleich zu den in den Experimenten verwendeten Stahlplatten erhöht sich unter Verwendung dieser Aluminium-Endplatten die gravimetrische Leistungsdichte des betrachteten Zellstapels um mehr als 35 % auf 0,26 kW/kg.

Im Gegensatz zu den in den Experimenten verwendeten Flachdichtungen weisen profilierte Dichtungen mit Dichtlippe bezüglich der Bauteilbeanspruchung, der benötigten Anpresskraft und dem Federweg klare Vorteile auf. Im Vergleich zu der Flachdichtung erlaubt die Verwendung der profilierten Dichtung eine Steigerung der Diffusionsschichtverpressung bei gleichzeitiger Reduktion der Anpresskraft. Durch die verringerte Anpresskraft kann eine Gewichtsreduktion der Endplatte von ungefähr 5 % erzielt werden. Der erhöhte Flächennutzungsgrad bei einer Zellkonstruktion mit profilierter Dichtung ermöglicht darüber hinaus bei gleichem Bauvolumen eine Leistungssteigerung von rund 15 %.

Basierend auf den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit ist ein aus 55 Zellen bestehender Brennstoffzellenstapel gebaut und in Betrieb genommen worden. Eine erste Leistungscharakterisierung verdeutlicht, dass die angestrebte Leistung von 5 kW erreicht werden konnte.

12 Literaturverzeichnis

- [1] Schirrmeister, E., et al. „Auswirkungen des Einsatzes der Brennstoffzelle im Kraftfahrzeug auf die Industrie in Nordrhein-Westfalen“, Bericht an das Ministerium für Wirtschaft und Mittelstand, Energie und Verkehr Nordrhein-Westfalen (2002). Fraunhofer Institut für Systemtechnik und Innovationsforschung
- [2] Menzen, G. „Polymermembran für PEM-Brennstoffzellen - Perspektiven der Weiterentwicklung“, Vortrag im Bundesministerium für Wirtschaft und Arbeit (BMWA) (2004), Berlin, Deutschland
- [3] Geipel, H., Neef, H.J. „Germany's R&D Programme for Fuel Cell and Hydrogen Technologies and Relation to the IPHE“, Vortrag auf dem IPHE Ministerial Meeting (2003), Washington DC, U.S.A.
- [4] Neef, H.J. „IPHE Country Paper: GERMANY“, Bericht des Projektträgers Jülich (PTJ), Forschungszentrum Jülich (2004), Jülich, Deutschland
- [5] Stolten, D. „Grundlagen und Technik der Brennstoffzellen“, Skriptum zur Vorlesung an der RWTH Aachen (WS 2003/2004), Aachen, Deutschland
- [6] „Fuel Cell Handbook“, 6th Edition, DOE/NETL-2002/1179, EG&G Technical Services, Inc. Science Applications International Corporation (2002), U.S. Department of Energy, Morgantown, U.S.A.
- [7] Ledjeff-Hey, K., Mahlendorf, F., Roess, J. „Brennstoffzellen: Entwicklung, Technologie, Anwendung“, C. F. Müller Verlag, 2. Auflage (2001), Heidelberg, Deutschland
- [8] Hamann, C.H., Vielstich, W. „Elektrochemie“, Wiley-VCH, 3. Auflage (2003), Weinheim, Deutschland
- [9] Chalk, S. et al. „FY 2001 - Progress Report for Fuel Cells for Transportation“, p. 197, U.S. Department of Energy, Office of Advanced Automotive Technologies (2001), Washington, U.S.A.
- [10] Mepsted, G. O., Moore, J. M. „Performance and durability of bipolar plate materials“, in: Handbook of Fuel Cells Volume 3, pp. 286-293, Wiley Verlag (2003), West Sussex, England
- [11] Roßberg, K., Trapp, V. „Graphite-based bipolar plates“, in: Handbook of Fuel Cells Volume 3, pp. 308-314, Wiley Verlag (2003), West Sussex, England
- [12] Wind, J., et al. „Metal bipolar plates and coatings“, in: Handbook of Fuel Cells Volume 3, pp. 294-307, Wiley Verlag (2003), West Sussex, England
- [13] Bahar, B., et al. „Advanced Power Assemblies for Polymer Electrolyte Fuel Cells: Portable Power“, in: Felix N. Buechi: „Proceedings of PORTABLE FUEL CELLS, European Fuel Cell Forum, Switzerland 1999“
- [14] Li, Q., et al. „Water uptake and acid doping of polybenzimidazoles as electrolyte membranes for fuel cells“, Solid State Ionics 168 (2004), pp. 177–185

-
- [15] Gebert, M. „Benchmarking-Methodik für Komponenten in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen“, Dissertation RWTH Aachen (2004), Aachen, Deutschland
 - [16] Uribe, F.A., Zawodzinski, Jr., T. A. „A study of polymer electrolyte fuel cell performance at high voltages. Dependence on cathode catalyst layer composition and on voltage conditioning“, *Electrochimica Acta* 47 (2002), pp. 3799-3806
 - [17] Ralph, T.R., Hogarth, M. P. „Catalysis for Low Temperature Fuel Cells, Part I: The Cathode Challenges“, *Platinum Metals Rev.* 46 (1) (2002), pp. 3-14
 - [18] Wilson, M.S., et al. „Electrocatalysis, Issues in Polymer Electrolyte Fuel Cells“, in: *Proceedings of the 28th IECEC*, 1993, pp. 1.1203–1.1208.
 - [19] De Castro E.S., et al. „Integrated Manufacturing for Advanced Membrane Electrode Assemblies“, in: *FY 2003 Progress Report*, U.S. Department of Energy (2003), Washington, U.S.A.
 - [20] Prabhuram, J., et al. „Synthesis and physical/electrochemical characterization of Pt/C nanocatalyst for polymer electrolyte fuel cells“, *Journal of Power Sources* 134 (2004), pp. 1–6
 - [21] Mathias, F.M. et al. „Diffusion media materials and characterisation“, in: *Handbook of Fuel Cells Volume 3*, pp. 517-537, Wiley Verlag (2003), West Sussex, England
 - [22] Schulze, M., et al. „Degradation of sealings for PEFC test cells during fuel cell operation“, *Journal of Power Sources* 127 (2004), pp. 222–229
 - [23] Persönliche Mitteilung Dr. J. Wolf, Firma Freudenberg FCCT oHG, 2004
 - [24] Geiß, S. „Brennstoffzelle - eine Herausforderung für innovative Dichtungslösungen“, Vortrag auf der Brennstoffzellentagung Mobilität und Energie (2003), Steyr, Deutschland
 - [25] Banhardt, V., Rinn, G., Neuweiger, H. „Development of mass production technologies for advanced graphite-composite bipolar plates“, in: *Courtesy Assoc., Washington D.C. „2002 Fuel Cell Seminar Abstracts“*, pp. 66-69, Palm Springs, U.S.A.
 - [26] Galli, S., et al. „Performance evaluation of a fuel cell with membrane electrode gasket assembly (MEGA) technology“, in: *Courtesy Assoc., Washington D.C. „2002 Fuel Cell Seminar Abstracts“*, pp. 200-202, Palm Springs, U.S.A.
 - [27] Ohara, H., et al. „Development of 5 kW PEFC system“, in: *Proceedings of the ICOPE-03, International Conference on Power Engineering* (2003), Kobe, Japan
 - [28] Produktinformation Firma Plug Power, 968 Albany-Shaker Road, 12110 New York, U.S.A., www.plugpower.com
 - [29] Ruge, M.D. „Entwicklung eines flüssigkeitsgekühlten Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellenstapels mit einer Leistung von 6,5 kW“ Dissertation ETH Zürich (2003), Diss. ETH Nr. 14901, Zürich, Schweiz
 - [30] Barbir, B., et al. „Fuel cell stack and system development: matching markets to technology“, in: *Courtesy Assoc., Washington D.C. „2002 Fuel Cell Seminar Abstracts“*, pp. 948-951, Palm Springs, U.S.A.
 - [31] Mitchell, W.L. „Progress in small-scale stationary fuel cell development and commercialization“, in: *Courtesy Assoc., Washington D.C. „2002 Fuel Cell Seminar Abstracts“*, pp. 952-955, Palm Springs, U.S.A.
 - [32] Produktinformation IdaTech, 63160 Britta Street, 97701 Bend, U.S.A., www.idatech.com

- [33] Yang, T., et al. „Design and Performance of a Residential PEMFC System“, in: Stolten, D., Emonts, B., Peters, R. „Proceedings of the international conference with exhibition, 2nd European PEFC Forum Lucerne 2003“, pp. 813-820
- [34] Produktinformation Firma Palcan Fuel Cells Ltd., 8658 Commerce Court Burnaby, B.C. Kanada, www.palcan.com
- [35] Rodatz, P., et al. „Operational aspects of a large PEFC stack under practical conditions“, *Journal of Power Sources* 128 (2004), pp. 208–217
- [36] Springer, T.E., Zawodzinski, T.A., Gottesfeld, S. „Polymer electrolyte fuel cell model“, *Journal of The Electrochemical Society* 138 (8) (1991), pp. 2334-2342
- [37] Bernardi, D.M., Verbrugge, M.W. „Mathematical model of a gas diffusion electrode bonded to polymer electrolyte“, *American Institute of Chemical Engineers Journal* 37 (8) (1991), pp. 1151-1163
- [38] Bernardi, D.M., Verbrugge, M.W. „A mathematical model of the solid-polymer-electrolyte fuel cell“, *Journal of The Electrochemical Society* 139 (9) (1992), pp. 2477-2491
- [39] Fuller, F.T., Newman, J. „Water and thermal management in solid-polymer-electrolyte fuel cells“, *Journal of The Electrochemical Society* 140 (5) (1993), pp. 1218-1225
- [40] Nguyen, T.V., White, R.E. „A water and heat management model for proton-exchange-membrane fuel cells“, *Journal of The Electrochemical Society* 140 (8) (1993), pp. 2178-2186
- [41] Yi, J.S., Nguyen, T.V. „An along-the-channel model for proton exchange membrane fuel cells“, *Journal of The Electrochemical Society* 145 (4) (1998), pp. 1149-1159
- [42] Dannenberg, K., Ekdunge, P., Lindbergh, G. „Mathematical model of the PEMFC“, *Journal of Applied Electrochemistry* 30 (12) (2000), pp. 1377-1387
- [43] You, L., Liu, H. „A two-phase flow and transport model for the cathode of PEM fuel cells“, *Int. Journal of Heat and Mass Transfer* 45 (2002), pp. 2277-2287
- [44] Siegel, N.P., et al. „A two-dimensional computational model of a PEMFC with liquid water transport“, *Journal of Power Sources* 128 (2004), pp. 173-184
- [45] Chen, F., et al. „Convenient two-dimensional model for design of fuel channels for proton exchange membrane fuel cells“, *Journal of Power Sources* 128 (2004), pp. 125-134
- [46] Dutta, S., Shimpalee, S., Van Zee, J.W. „Three-dimensional numerical simulation of straight channel PEM fuel cells“, *Journal of Applied Electrochemistry* 30 (2000), pp. 135-146
- [47] Shimpalee, S., Dutta, S. „Numerical prediction of temperature distribution in PEM fuel cells“, *Journal of The Electrochemical Society* 150 (3) (2003), pp. A341-A348
- [48] Zhou, T., Liu, H.T. „A general three-dimensional model for proton exchange membrane fuel cells“, *Int. Journal of Transport Phenomena* 3 (2001), pp. 177-198
- [49] Haraldsson, K., Wipke, K. „Evaluating PEM fuel cell system models“, *Journal of Power Sources* 126 (2004), pp. 88-97
- [50] Kim, J., et al. „Modeling of proton exchange membrane fuel cell performance with an empirical equation“, *Journal of The Electrochemical Society* 142 (8) (1995), pp. 2670-2674

-
- [51] Bevers, D., Wöhr, M. „Simulations of a polymer electrolyte fuel cell electrode”, *Journal of Applied Electrochemistry* 27 (1997), pp. 1254-1264
- [52] Lee, J.H., Lalk, T.R., Appleby, A.J. „Modeling electrochemical performance in large scale proton exchange membrane fuel cell stacks”, *Journal of Power Sources* 70 (1998), pp. 258-268
- [53] Squadrito, G., et al. „An empirical equation for polymer electrolyte fuel cell (PEFC) behaviour”, *Journal of Applied Electrochemistry* 29 (1999), pp. 1449-1455
- [54] Mann, R.F., et al. „Development and application of a generalized steady-state electrochemical model for a PEM fuel cell”, *Journal of Power Sources* 86 (2000), pp. 173-180
- [55] Pisani, L., et al. „A new semi-empirical approach to performance curves of polymer electrolyte fuel cells”, *Journal of Power Sources* 108 (2002), pp. 192-203
- [56] Jeng, K.T., Kuo, C.P., Lee, S.F. „Modeling the catalyst layer of a PEM fuel cell cathode using a dimensionless approach”, *Journal of Power Sources* 128 (2004), pp. 145-151
- [57] Hsuen, H.-K. „Performance equations of polymer electrolyte fuel cells”, *Journal of Power Sources* 126 (2004), pp. 46-57
- [58] Kulikovsky, A.A. „The voltage-current curve of a polymer electrolyte fuel cell: „exact” and fitting equations”, *Electrochemistry Communications* 4 (2002), pp. 845-852
- [59] Markovic, N.M., et al. „Oxygen Reduction Reaction on Pt and Pt Bimetallic Surfaces: A Selective Review”, *Fuel Cells* 1 (2001), pp. 104-116
- [60] Kulikovsky, A.A. „The effect of stoichiometric ratio λ on the performance of a polymer electrolyte fuel cell”, *Electrochimica Acta* 49 (2004), pp. 617-625
- [61] Kornyshev, A.A., Kulikovsky, A.A. „Characteristic length of fuel and oxygen consumption in feed channels of polymer electrolyte fuel cells”, *Electrochimica Acta* 46 (2001), pp. 4389-4395
- [62] Taniguchi, A., et al. „Analysis of electrocatalyst degradation in PEMFC caused by cell reversal during fuel starvation”, *Journal of Power Sources* 130 (2004), pp. 42-49
- [63] Knights, S.D., et al. „Aging mechanisms and lifetime of PEFC and DMFC”, *Journal of Power Sources* 127 (2004), pp. 127-134
- [64] Stumper, J., et al. „In-situ methods for the determination of current distributions on PEM fuel cells”, *Electrochimica Acta* 43 (24) (1998), pp. 3773-3783
- [65] Mench, M.M., Wang, C.Y. „An In Situ Method for Determination of Current Distribution in PEM Fuel Cells Applied to a Direct Methanol Fuel Cell”, *Journal of The Electrochemical Society* 150 (1) (2003), pp. A79-A85
- [66] Mench, M.M., Wang, C.Y., Ishikawa, M. „In Situ Current Distribution Measurements in Polymer Electrolyte Fuel Cells”, *Journal of The Electrochemical Society* 150 (8) (2003), pp. A1052-A1059
- [67] Noponen, M., et al. „Measurement of current distribution in a free-breathing PEMFC”, *Journal of Power Sources* 106 (2002), pp. 304-312
- [68] Cleghorn, S.J.C., et al. „A printed circuit board approach to measuring current distribution in a fuel cell”, *Journal of Applied Electrochemistry* 28 (7) (1998), pp. 663-672
- [69] Brett, D.L.J., et al. „Measurement of the current distribution along a single flow channel of a solid polymer fuel cell”, *Electrochemistry Communications* 3 (2001), pp. 628-632

- [70] Schönbauer, S., et al. „Segmented Bipolar Plate for the Determination of Current Distribution in Polymer Electrolyte Fuel Cells“, in: Stolten, D., Emonts, B., Peters, R. „Proceedings of the international conference with exhibition, 2nd European PEFC Forum Lucerne 2003“, pp. 231-238
- [71] Wieser, C., Helmbold, A. „Verfahren zur Bestimmung des Stoffumsatzes bei elektrochemischen Reaktionen und elektrochemische Einheit“, Patent DE 19750738 C1
- [72] Wieser, C., Helmbold, A., Gülzow, E. „A new technique for two-dimensional current distribution measurements in electrochemical cells“, Journal of Applied Electrochemistry 30 (2000), pp. 803-807
- [73] Yoon, Y.G., et al. „Current distribution in a single cell of PEMFC“, Journal of Power Sources 118 (2003), pp. 193–199
- [74] Hauer, K.H. „Method for determining the current density distribution in a fuel cell stack“, Patent PCT 09154
- [75] Persönliche Mitteilung B. Fricke, Institut für Stromrichtertechnik und Elektrische Antriebe (IESA), RWTH Aachen, 2004
- [76] Kirsch, A. „An Introduction to the Mathematical Theory of Inverse Problems“, Springer-Verlag (1996), New York, U.S.A.
- [77] Kreß, R., Kühn, L., Potthast, R. „Reconstruction of a current distribution from its magnetic fields“, Inverse Problems 18 (2002), pp. 1127-1146
- [78] Potthast, R., Kühn, L. „Entwicklung eines bildgebenden Messsystems, das es erlaubt, die räumliche Stromdichteverteilung in Brennstoffzellen nicht-invasiv zu erfassen“, Auftraggeber: Europäische Union und Bezirksregierung Braunschweig, Projektabschlußbericht (2003), Göttingen, Deutschland
- [79] Kühn, L. „Magnetic Tomography“, Dissertation Universität Göttingen (eingereicht 2005), Göttingen, Deutschland
- [80] Hauer, K.H., Potthast, R., Kühn, L. „Magnetotomographie für Brennstoffzellen“, interner Bericht Forschungszentrum Jülich GmbH (2004), Jülich, Deutschland
- [81] Bewer, T. „Massenströme und Stromdichteverteilung in flüssig gespeisten Direkt-Methanol-Brennstoffzellen“, Dissertation RWTH Aachen (2003), Aachen, Deutschland
- [82] Yang, C., et al. „Approaches and technical challenges to high temperature operation of proton exchange membrane fuel cells“, Journal of Power Sources 103 (2001), pp. 1-9
- [83] Reichardt, H., Tollmien, W. „Die Verteilung der Durchflussmenge in einem ebenen Verzweigungssystem“, Mitteilungen aus dem Max-Planck-Institut für Strömungsforschung Nr. 7 (1952)
- [84] Koh, J.-H., et al. „Pressure and flow distribution in internal gas manifolds of a fuel-cell stack“, Journal of Power Sources 115 (2003), pp. 54-65
- [85] Reus, U. „Mathematische Simulation einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle“, Dissertation RWTH Aachen (1996), Aachen, Deutschland
- [86] Boersma, R.J. „Distribution of gas flow in internally manifolded solid oxide fuel-cell stacks“, Journal of Power Sources 66 (1997), pp. 41-45
- [87] Kee, R.J., et al. „A generalized model of the flow distribution in channel networks of planar fuel cells“, Journal of Power Sources 109 (2002), pp.148-159

-
- [88] Pawlik, V. „Numerische Optimierung der Gasverteilung auf der Anodenseite einer Brennstoffzelle“, Fluent CFD Konferenz (2003), Bingen, Deutschland
 - [89] Truckenbrodt, E. „Fluidmechanik Band 1: Grundlagen und elementare Strömungsvorgänge dichtebeständiger Fluide“, Springer Verlag, 4. Auflage (1996), pp. 272-279, Berlin, Deutschland
 - [90] Idel'chik, I.E. „Handbook of hydraulic resistance, coefficients of local resistance and of friction“ (1960), Leningrad, Russland, Übersetzt aus dem Russischen durch Israel Program for Scientific Translations (1966), Jerusalem, Israel
 - [91] Verein Deutscher Ingenieure (Hrsg.) „VDI-Wärmeatlas“, VDI-Verlag, 4. Auflage (1984), Düsseldorf, Deutschland
 - [92] LAPACK-Linear Algebra PACKage, <http://www.netlib.org/lapack>, Zugriff: 29.4.2003
 - [93] Fluent Inc., Centerra Resource Park, 10 Cavendish Court, Lebanon, NH 03766, U.S.A.
 - [94] Fluent Inc. „Fluent 6.1 User's Guide“ (2003) Lebanon, U.S.A., Kapitel 10.4.2, 10.9
 - [95] Wagner, W. „Strömung und Druckverlust“, Vogel Fachbuch (Kamprath-Reihe) (2001), p. 169, Würzburg, Deutschland
 - [96] Zlokarnik, M. „Scale up: Modellübertragung in der Verfahrenstechnik“, Wiley-VCH (2000) Weinheim, Deutschland
 - [97] Larminie, J., Dicks, A. „Fuel Cell Systems Explained“, Wiley Verlag (2000), West Sussex, England
 - [98] Büchi, F.N. „Small-size PEM systems for special applications“, in: Handbook of Fuel Cells Volume 4, pp. 1152-1161, Wiley Verlag (2003), West Sussex, England
 - [99] Firmeninformation Proton Motor GmbH, <http://www.proton-motor.de/greihe.html>, <http://www.proton-motor.de/hreihe.html>, Zugriff: 2.7.2004
 - [100] Shah, R.K., London, A.L. „Laminar Flow Forced Convection in Ducts“, in: Advances in Heat Transfer, Academic Press (1978), New York, U.S.A.
 - [101] Verein Deutscher Ingenieure (Hrsg.) „VDI-Wärmeatlas“, VDI-Verlag, 7. Auflage (1994), pp. Gb1-Gb8, Düsseldorf, Deutschland
 - [102] Nguyen, P., Berning, T., Djilali, N. „A Three-Dimensional Model of PEM Fuel Cells with Serpentine Flow Channels“, Hydrogen and Fuel Cells Conference and Trade Show (2003), Vancouver, Kanada
 - [103] „Air Supply System for Hy.Power Fuel Cell Demonstrator“, Firmeninformation FEV, Aachen, Deutschland, www.fev.com
 - [104] Rautenbach, R. „Membranverfahren: Grundlagen der Modul- und Anlagenauslegung“, Springer Verlag (1997), Berlin, Deutschland
 - [105] DuBose, R. A. „Enthalpy Wheel Humidifiers“, in: Courtesy Assoc., Washington D.C. „2002 Fuel Cell Seminar Abstracts“, pp. 902-905, Palm Springs, U.S.A.
 - [106] Wijmans, J.G., Baker, R.W. „The solution-diffusion model: a review“, Journal of Membrane Science 107 (1995), pp. 1-21
 - [107] Ebbecke, C. „Charakterisierung eines Membranbefeuchters und Untersuchung des Einflusses der Reaktandenbefeuchtung auf die Leistung einer Polymer Elektrolyt Membran (PEM) – Brennstoffzelle“, Diplomarbeit Technische Fachhochschule Wildau (2004), Wildau, Deutschland

- [108] „Perma Pure NAFION® Befeuchter für Brennstoffzellen“, Produktinformation der Firma ansyco, Ostring 4, 76131 Karlsruhe, Deutschland, www.ansyco.de
- [109] Wolters, J. „Optimierung von Brennstoffzellen-Endplatten“, interner Bericht Forschungszentrum Jülich GmbH (2003), Jülich, Deutschland
- [110] Wolters, J. „Numerische Berechnungen zur Verpressung der Diffusionsschichten eines Brennstoffzellenpaketes“, interner Bericht Forschungszentrum Jülich GmbH (2004), Jülich, Deutschland
- [111] Young, W., Budynas, R. „Roark's Formulas for Stress and Strain“, McGraw-Hill, 7. Auflage (2002), New York, U.S.A.
- [112] Hesselbach, J., Tikal, F. „Fertigungstechnik I“, Skriptum zur Vorlesung an der Universität Kassel, Institut für Produktionstechnik und Logistik (IPL) (2003), Kassel, Deutschland
- [113] Zwicker, R. „Kosten- und Leistungsrechnung im Werkzeug- und Formenbau“, in: „VDWF aktuell“ Fach- und Informationsmagazin des Verbandes Deutscher Werkzeug- und Formenbauer e.V. (2001), Leonberg, Deutschland
- [114] Bouse, D. „Schweißkosteneinsparungen in kleinen und mittleren Betrieben“, Vortrag auf der 2. Fachtagung der Erl GmbH SCHWEISSEN + SCHNEIDEN und MIG WELD GmbH Deutschland (2004), Landau, Deutschland
- [115] Statistisches Bundesamt der Bundesrepublik Deutschland „Kostenstruktur im Produzierenden Gewerbe“, Statistisches Jahrbuch 2002, Kapitel 9.3
- [116] Persönliche Mitteilung Dr. O. Häusler, Firma Freudenberg Forschungsdienste KG, 2003
- [117] Bauer, A. „Analyse eines PEFC-Stacks der 5 kW Klasse“, Diplomarbeit RWTH Aachen (2004), Aachen, Deutschland
- [118] Renz, U. „Wärme-und Stoffübertragung“, Skriptum zur Vorlesung an der RWTH Aachen (WS 2002/2003), p. 46, Aachen, Deutschland

13 Anhang

13.1 Nomenklatur

Lateinische Formelzeichen:

a	Parameter	[-]
A	Fläche	[m ²]
$A_{\text{au\ss en}}$	Mantelfläche des Zellstapels	[m ²]
A_z	Strömungsquerschnitt der Zelle	[m ²]
b	Tafel-Steigung	[V]
b	Breite	[m]
B	Magnetische Flussdichte	[T]
c	Sauerstoffkonzentration	[mol/m ³]
c_p	Wärmekapazität	[J/(kg*K)]
C	Plattensteifigkeit	[N*m]
d_{hyd}	hydraulischer Durchmesser	[m]
D	effektiver Diffusionskoeffizient	[m ² /s]
E	Elastizitätsmodul	[N/m ²]
$=$	Einheitsmatrix	[-]
Eu	Euler-Zahl	[-]
f	Funktion	[-]
f_λ	Abhängigkeit der Überspannungen von dem Sauerstoffstöchiometriekoeffizienten	[-]
F	Faraday-Konstante	[A s/mol]
G	freie Reaktionsenthalpie	[J/mol]
h	Höhe	[m]
H	Magnetische Feld	[A/m]
H_0	Brennwert	[J/kg]
H	Enthalpieänderung	[J/mol]
	Enthalpiestrom	[W]
i	Stromdichte	[A/m ²]
i_{ex}	Austauschstromdichte	[A/m ²]
i_G	Grenzstromdichte	[A/m ²]
i^P	lokale Protonenstromdichte	[A/m ²]
i^P	Protonenstromdichte an Grenzfläche Membran / Katalysatorschicht	[A/m ²]
i_*	charakteristische Stromdichte	[A/m ²]
l	(Zellen-) Abstand / Länge	[m]
L	virtuelle Länge	[m]
$Leit_z$	Strömungsleitfähigkeit	[s*m ⁴ /kg]
m	Masse	[kg]

m	Massenstrom	[kg/s]
$\dot{m}$	Massenstromänderung	[kg/s]
M	Molmasse	[kg/kmol]
n	Anzahl der pro Molekül ausgetauschten Elektronen	[-]
$\dot{n}$	Molenstrom	[mol/s]
N_Z	Anzahl der Zellen in einem Zellstapel	[-]
Nu	Nusselt-Zahl	[-]
p	statischer Druck	[Pa]
$\hat{p}_{ges}$	dimensionsloser Gesamtdruck	[-]
p	Druckverlust	[Pa]
$\hat{p}$	dimensionsloser Druckverlust	[-]
P	Leistung	[W]
P_G	Gewichtsreduktionspotential	[%]
Pr	Prandtl-Zahl	[-]
Q	Umsatzrate	[A/m²]
$\dot{Q}$	Produzierter Wärmestrom	[W]
r	Abstand	[m]
R	allgemeine Gaskonstante	[J/(mol·K)]
R	elektrischer Widerstand	[Ω]
$\equiv$	Flächenwiderstand	[Ωm²]
$\equiv$	Tikhonov-Inverse	[1/m]
Re	Reynolds-Zahl	[-]
s	Wegkoordinate	[m]
S	Summenfunktionswert	[-]
S	Entropieänderung	[J/(mol·K)]
t	Zeit	[s]
T	Temperatur	[K]
u	Geschwindigkeit	[m/s]
U	Spannung	[V]
U	Umfang	[m]
U_{th}	Thermoneutrale Zellspannung	[V]
U_{UV}	Zeitlich unverzögerter Spannungssprung bei Abschaltmessung	[V]
U	Potentialdifferenz	[V]
V	Volumen	[m³]
$\dot{V}$	Volumenstrom	[m³/s]
V^*	Grad der Ungleichverteilung	[%]
w	Massenanteil	[-]
$\equiv$	Biot-Savart-Integraloperator	[m]
x, y, z	Raumkoordinaten	[-]
x	Verhältnis aus minimalem zu maximalem Anpressdruck	[mol/mol]
x_i	Molenbruch der Komponente i	[-]
y	Funktion	[-]
y_+	dimensionsloser Wandabstand	[-]

Griechische Formelzeichen:

α	Transferkoeffizient	[-]
α	Wärmeübergangskoeffizient	[W/(m ² *K)]
β	Permeabilität	[m ²]
γ	Reaktionsordnung der Sauerstoffreduktion	[-]
Δ	Differenz	[-]
ξ	Widerstandsbeiwert	[-]
η	Überspannung	[V]
η	Wirkungsgrad	[-]
η_{th}	thermodynamischer Wirkungsgrad	[-]
ϑ	Temperatur	[K]
λ	Stöchiometrikoeffizient	[-]
μ	dynamische Viskosität	[kg/(m*s)]
μ_R	Materialabhängige Permeabilitätszahl	[-]
μ_0	Permeabilitätskonstante	[V*s/(A*m)]
ν	Querkontraktionszahl	[-]
Π	dimensionslose Kennzahl	[-]
ρ	Dichte	[kg/m ³]
σ	Leitfähigkeit	[S/m]
φ	Relative Feuchte	[-]
φ	Beiwert	[-]
	Funktion	[-]
Ω	Stromdurchflossenes Raumgebiet	[-]

Indizes:

<i>0</i>	Bedingung/Zustand am Zell- oder Stapeleintritt
<i>A</i>	Anode
<i>ab</i>	abzweigender Volumenstrom
<i>aktiv</i>	Katalysatorbeschichtete Membranfläche
<i>bulk</i>	Material
<i>BPP</i>	Bipolarplatte
<i>BZ</i>	Brennstoffzelle
<i>BZ/NZ</i>	Anzahl der von einer Kühlzelle gekühlten Einzelzellen
<i>Diff</i>	Diffusionsschicht
<i>durch</i>	durchtretender Volumenstrom
<i>eff.</i>	effektiv
<i>el</i>	elektrisch
<i>EP</i>	Endplatte
<i>EZ</i>	Einzelzelle
<i>fl</i>	flüssig
<i>FF</i>	Flowfield
<i>g</i>	gasförmig
<i>ges</i>	Gesamt
<i>hohe Übersp.</i>	Gebiet hoher Überspannungen
<i>i,j</i>	Knotenbezeichnung, Zählvariablen
<i>K</i>	Kathode

<i>K</i>	Strömungskanal
<i>Kal</i>	Kalibrierung
<i>Kat</i>	Katalysatorschicht
<i>KK</i>	Kühlkanal
<i>KKW</i>	Wärmeübertragende Kühlkanalfläche
<i>KM</i>	Kühlmedium
<i>Konv.</i>	Konvektion
<i>KSB</i>	Kurzschlussbrücke
<i>Kühl.</i>	Kühlung
<i>lam.</i>	laminar
<i>max</i>	Maximum
<i>Mem</i>	Membran
<i>min</i>	Minimum
<i>mittel</i>	gemittelter Wert
<i>n</i>	Messpunkt
<i>N</i>	Norm- / Standardzustand (1 bar, 298 K)
<i>niedrige Übersp.</i>	Gebiet niedriger Überspannungen
<i>q</i>	Konstante Wärmestromdichte
<i>R</i>	Rohrreibung
<i>Ref.</i>	Referenz
<i>rev</i>	reversibel
<i>S</i>	Sammlerkanal
<i>satt</i>	Gesättigter Zustand
<i>Seg</i>	Segment
<i>Tau</i>	Taupunkt
<i>turb.</i>	turbulent
<i>U</i>	Umgebung
<i>Uml.</i>	Strömungsumlenkung
<i>V</i>	Verteilerkanal
<i>WKS</i>	Wärmekapazitätsstrom
<i>x, y, z</i>	Raumkoordinaten
<i>Z</i>	Zelle
<i>zu</i>	zuströmender Volumenstrom
χ	Aspektenverhältnis (Breite zu Höhe)
ϑ	Konstante Wandtemperatur
$\wedge$	Vektor
$\wedge$	Dimensionslose Größe
-	Gemittelte Größe
=	Matrix
,	Eintrittszustand
„	Austrittszustand

Akronyme:

1D	Eindimensional
3D	Dreidimensional

AFC	Alkalische Brennstoffzelle (Alkaline Fuel Cell)
CFK	kohlenstofffaserverstärkter Kunststoff
CVD	Chemical Vapor Deposition
DMFC	Direktmethanol-Brennstoffzelle (Direct Methanol Fuel Cell)
DoE	Department of Energy
EPDM	Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk
FDM	Finite Differenzen Methode
FE	Finite Elemente
FK	Fertigungskosten
FPM	Fluorelastomer
FZJ	Forschungszentrum Jülich GmbH
GDL	Gasdiffusionsschicht (Gas Diffusion Layer)
GFK	glasfaserverstärkter Kunststoff
HK	Herstellkosten
MCFC	Schmelzkarbonat-Brennstoffzelle (Molten Carbonate Fuel Cell)
MEA	Membran-Elektroden-Einheit (Membrane Electrode Assembly)
MEK	Materialeinzelkosten
MIG	Metall-Inertgas-Schweißen
NBR	Acrylnitril-Butadien-Kautschuk
PAFC	Phosphorsaure Brennstoffzelle (Phosphoric Acid Fuel Cell)
PBI	Polybenzimidazol
PEEK	Polyetheretherketon
PEFC	Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (Polymerelectrolyte Fuel Cell)
PIB	Polyisobutylen
PTFE	Polytetrafluorethylen
PVD	Physical Vapor Deposition
Q1D	Quasi eindimensional
RNG	Renormalization Group (k - ϵ -Turbulenzmodell)
SK	Selbstkosten
SOFC	Oxidkeramische-Brennstoffzelle (Solid Oxide Fuel Cell)
TPE	Thermoplastische Elastomere
ZIP	Zukunftsinvestitionsprogramm

13.2 Ergänzungen zu Kapitel 5 (Medienverteilung im Zellstapel)

Polynomische Regressionsfunktionen der Verzweigungswiderstandsbeiwerte nach [91]:

Die Abhängigkeiten sind für turbulent durchströmte, kreisförmige Rohre ermittelt worden. Der Durchmesser des Hauptrohres entspricht dem des Abzweigrohres.

$$\zeta_{V,ab} = 0,8661 \cdot \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right)^2 - 0,5246 \cdot \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right) + 0,9664 \quad \text{Gl. 13.1}$$

$$\zeta_{V,durch} = -1,2153 \cdot \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right)^3 + 2,7292 \cdot \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right)^2 - 1,2151 \cdot \left(\frac{u_3 \cdot A_Z}{u_1 \cdot A_V} \right) + 0,0681 \quad \text{Gl. 13.2}$$

$$\zeta_{S,zu} = -1,2723 \cdot \left(\frac{u_4 \cdot A_Z}{u_6 \cdot A_S} \right)^2 + 3,1609 \cdot \left(\frac{u_4 \cdot A_Z}{u_6 \cdot A_S} \right) - 0,9939 \quad \text{Gl. 13.3}$$

$$\zeta_{S,durch} = 0,5386 \cdot \left(\frac{u_4 \cdot A_Z}{u_6 \cdot A_S} \right) + 0,0524 \quad \text{Gl. 13.4}$$

Tabelle 13.1: Parameterkombination für U-förmig durchströmte Anwendungsbeispiele

Nr.	Zellen- anzahl	Massen- strom	Dichte	Dyn. Viskosität	Manifold- breite	Manifold- höhe	Strömungs- leitfähigkeit	Zell- abstand	durchstr. Zellfläche	γ^*
[-]	[-]	[kg/s]	[kg/m³]	[m²/s]	[mm]	[mm]	[s·m²/kg]	[mm]	[m²]	[%]
1	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0362
2	50	8,70E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0509
3	50	4,35E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0283
4	50	1,16E-02	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0657
5	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	1,08E-07	0,0050	3,4E-05	0,0682
6	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	2,80E-08	0,0050	3,4E-05	0,0193
7	50	5,80E-03	0,95	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0367
8	50	5,80E-03	1,9	1,90E-06	0,034	0,016	5,40E-07	0,0050	3,4E-05	0,2338
9	50	5,80E-03	1,9	1,90E-04	0,034	0,016	5,40E-09	0,0050	3,4E-05	0,0062
10	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0052	4,1E-05	0,0331
11	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0048	2,7E-05	0,0381
12	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,020	0,020	5,40E-08	0,0050	2,0E-05	0,0630
13	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,028	0,013	5,40E-08	0,0050	2,8E-05	0,0747
14	50	5,80E-03	1,9	1,90E-06	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0326
15	30	3,48E-03	1,9	1,90E-05	0,026	0,012	5,40E-08	0,0050	2,6E-05	0,0334
16	30	6,80E-03	1,9	1,90E-05	0,026	0,012	1,08E-07	0,0050	2,6E-05	0,1084
17	30	6,80E-03	1,9	1,90E-05	0,026	0,012	2,70E-08	0,0050	2,6E-05	0,0320
18	60	6,96E-03	1,9	1,90E-05	0,037	0,018	5,40E-08	0,0050	3,7E-05	0,0359
19	60	1,00E-02	1,9	1,90E-05	0,037	0,018	5,40E-08	0,0050	3,7E-05	0,0487
20	100	1,16E-02	1,9	1,90E-05	0,048	0,023	5,40E-08	0,0050	4,8E-05	0,0399

Tabelle 13.2: Parameterkombination für Z-förmig durchströmte Anwendungsbeispiele

Nr.	Zellen- anzahl	Massen- strom	Dichte	Dyn. Viskosität	Manifold- breite	Manifold- höhe	Strömungs- leitfähigkeit	Zell- abstand	durchstr. Zellfläche	V^*
[-]	[-]	[kg/s]	[kg/m ³]	[m ² /s]	[mm]	[mm]	[s*m ⁴ /kg]	[mm]	[m ²]	[%]
1	50	5,80E-03	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,0828
2	50	1,16E-02	1,9	1,90E-05	0,034	0,016	5,40E-08	0,0050	3,4E-05	0,1580
3	50	5,80E-03	1,9	1,90E-06	0,034	0,016	5,40E-07	0,0050	3,4E-05	0,5390
4	30	3,48E-03	1,9	1,90E-05	0,026	0,012	5,40E-08	0,0050	2,6E-05	0,0880
5	30	6,80E-03	1,9	1,90E-05	0,026	0,012	1,08E-07	0,0050	2,6E-05	0,2844
6	60	6,96E-03	1,9	1,90E-05	0,037	0,018	5,40E-08	0,0050	3,7E-05	0,0803
7	100	1,16E-02	1,9	1,90E-05	0,048	0,023	5,40E-08	0,0050	4,8E-05	0,0797

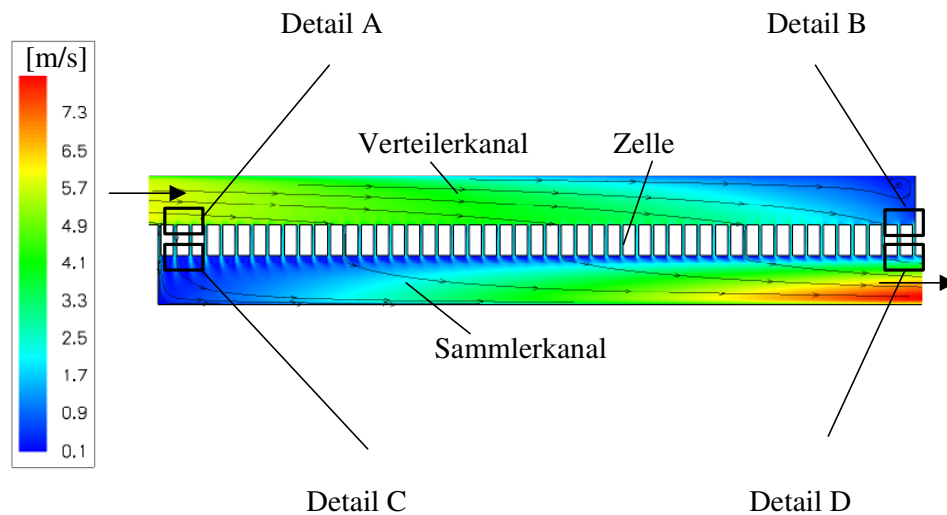


Bild 13.1: Charakteristische Verteilung des Geschwindigkeitsbetrags im Längsschnitt eines Z-förmig durchströmten Zellstapels (50 Zellen)

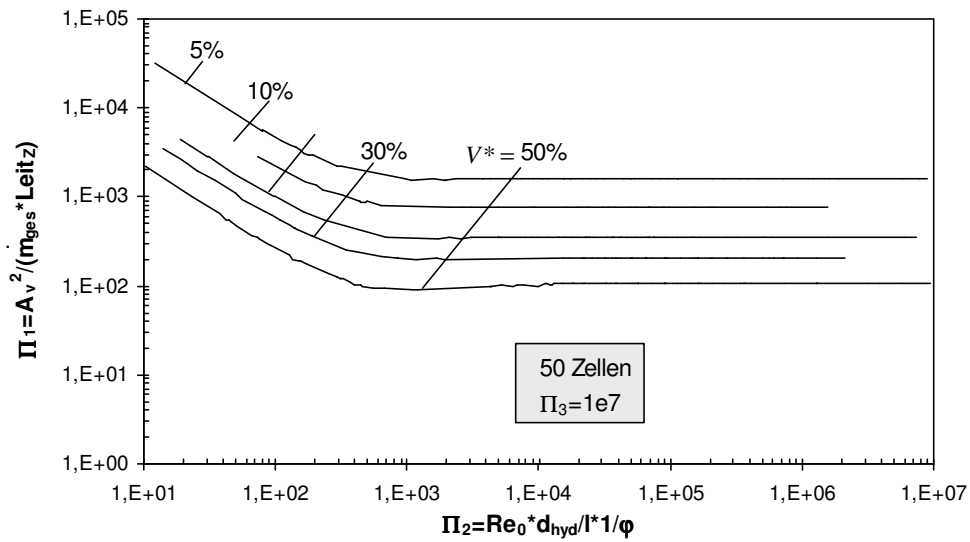


Bild 13.2: Kurven konstanter Ungleichverteilung im Π_1 - Π_2 -Diagramm für einen aus 50 Zellen bestehenden Z-förmig durchströmten Stapel (Kennzahl $\Pi_3 = 10^7$)

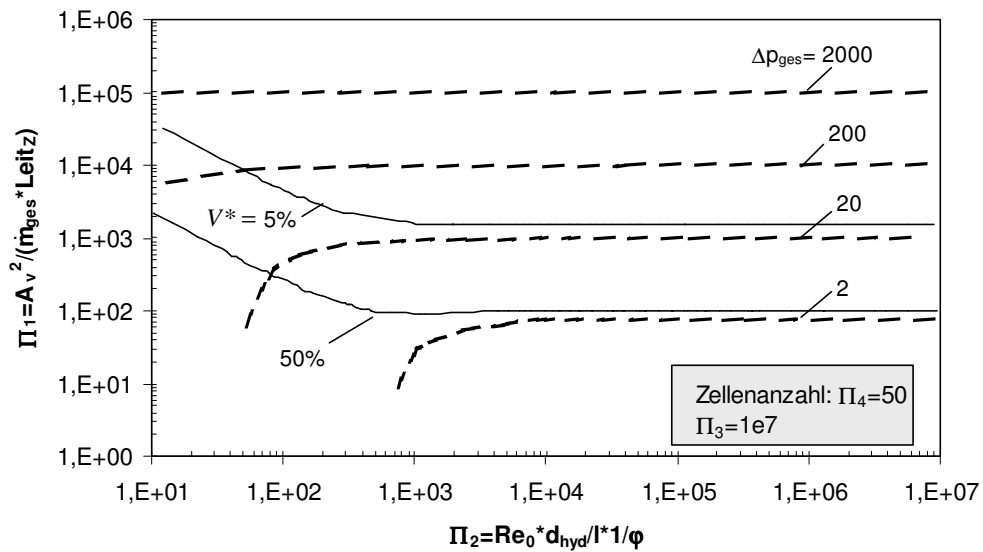


Bild 13.3: Dimensionaler Gesamtdruckverlust im Π_1 - Π_2 -Diagramm (Z-Strömung)

Formel zur Bewertung der Medienverteilung in einem Z-förmig durchströmten Zellstapel (aufgrund des vernachlässigbaren Einflusses bleibt Kennzahl Π_3 unberücksichtigt):

$$\log\left(\frac{\Pi_1}{\Pi_4}\right) - \log\left(\frac{\Pi_1}{\Pi_4}\right)_{\dot{V}^*=5\%} \geq 0 \quad \Rightarrow \quad \dot{V}^* \leq 5\% \quad \text{Gl. 13.5}$$

$$\log\left(\frac{\Pi_1}{\Pi_4}\right) - \log\left(\frac{\Pi_1}{\Pi_4}\right)_{\dot{V}^*=5\%} < 0 \quad \Rightarrow \quad \dot{V}^* > 5\% \quad \text{Gl. 13.6}$$

$$\log\left(\frac{\Pi_1}{\Pi_4}\right)_{\dot{V}^*=5\%} = 0,49 \cdot \left[\sqrt{\left(\log\left(\frac{\Pi_2}{\Pi_4}\right) - 0,71\right)^2} + 0,135 - \log\left(\frac{\Pi_2}{\Pi_4}\right) \right] + 1,82 \quad \text{Gl. 13.7}$$

13.3 Ergänzungen zu Kapitel 6 (Kühlung)

Berechnung des aktiv abzuführenden Wärmestroms $\dot{Q}_{Kühl.}$:

$$\dot{H}' - \dot{H}'' - \dot{Q}_{Konv.} - \dot{Q}_{Kühl.} - \dot{P}_{el} = 0 \quad \text{Gl. 13.8}$$

Der über freie Konvektion abgeführte Wärmestrom ergibt sich aus

$$\dot{Q}_{Konv.} = \bar{\alpha} \cdot A_{außen} \cdot (T''_Z - T_U) \quad \text{Gl. 13.9}$$

— bezeichnet den Wärmeübergangskoeffizienten bei freier Konvektion. Die Austrittstemperatur T''_Z entspricht der Zelltemperatur. Die äußere Fläche des Stapels, über die mittels freier Konvektion Wärme abgeführt werden kann, wird vereinfacht berechnet nach:

$$A_{außen} = 2 \cdot b_{EP} \cdot h_{EP} \cdot N_Z + l \cdot 2 \cdot b_{EP} \cdot h_{EP} \quad \text{Gl. 13.10}$$

l bezeichnet die Dicke einer Einzelzelle.

Der Enthalpienullpunkt wird bei 25 °C definiert. Für den mit einer Temperatur T'_Z in den Zellstapel eintretenden Enthalpiestrom gilt

$$\dot{H}' = \left(\dot{m}'_{H_2} \cdot c_{p_{H_2}} + \frac{\dot{m}'_{O_2}}{w_{O_2}} \cdot c_{p_{Luft}} + \dot{m}'_{H_2O,g} \cdot c_{p_{H_2O,g}} \right) \cdot (T'_Z - 25^\circ\text{C}) + \dot{m}'_{H_2O,g} \cdot h_{f,H_2O,g}$$

mit

$$\dot{m}'_{H_2} = \lambda_{H_2} \cdot N_Z \cdot \frac{i \cdot A_{aktiv}}{2 \cdot F} \cdot M_{H_2} \quad (\text{Faraday-Konstante } F = 96485 \cdot 10^3 \frac{\text{As}}{\text{kmol}}) \quad \text{Gl. 13.11}$$

$$\dot{m}'_{O_2} = \lambda_{O_2} \cdot N_Z \cdot \frac{i \cdot A_{aktiv}}{4 \cdot F} \cdot M_{O_2}$$

$$\dot{m}'_{H_2O,g} = \dot{m}'_{H_2O,g,A} + \dot{m}'_{H_2O,g,K}$$

w_{O_2} ist der Massenanteil des Sauerstoffs in der Luft. c_{p_i} bezeichnet die entsprechenden Wärmekapazitäten. Die Bildungsenthalpie des Wassers ist mit h_{f,H_2O} bezeichnet. Für den anoden- und kathodenseitigen Wassermassenstrom gilt

$$\dot{m}'_{H_2O,g,A} = \frac{\dot{m}'_{H_2}}{M_{H_2}} \cdot \left(\frac{1}{\frac{p}{p_{H_2O,A}} - 1} \right) \cdot M_{H_2O} \quad \text{Gl. 13.12}$$

$$\dot{m}'_{H_2O,g,K} = 0,622 \cdot \left(\frac{1}{\frac{p}{p_{H_2O,K}} - 1} \right) \cdot \frac{\dot{m}'_{O_2}}{w_{O_2}}$$

Bei bekanntem Taupunkt der Reaktandengase am Zelleintritt $T'_{Tau,i}$, berechnet sich der anoden- beziehungsweise kathodenseitige Wasserpartialdruck nach der Antoine-Gleichung:

$$\log p_{H_2O,i} = -2,1794 + 0,02953 \cdot T'_{Tau,i} - 9,1837 \cdot 10^{-5} \cdot T'^2_{Tau,i} + 1,4454 \cdot 10^{-5} \cdot T'^3_{Tau,i} \quad \text{Gl. 13.13}$$

Der Enthalpiestrom am Zellstapelaustritt berechnet sich nach

$$H'' = \dot{m}''_{H_2} \cdot c_{p_{H_2}} + \dot{m}''_{O_2} \cdot c_{p_{Luft}} + \dot{m}''_{H_2O,g} \cdot c_{p_{H_2O,g}} + \dot{m}''_{H_2O,fl} \cdot c_{p_{H_2O,fl}} \cdot T''_Z - 25^\circ C$$

$$+ \dot{m}''_{H_2O,g} \cdot h_{f,H_2O,g} + \dot{m}''_{H_2O,fl} \cdot h_{f,H_2O,fl}$$

mit

$$\dot{m}''_{H_2} = \dot{m}'_{H_2} \left(1 - \frac{1}{\lambda_{H_2}} \right) \quad \text{Gl. 13.14}$$

$$\dot{m}''_{O_2} = \dot{m}'_{O_2} \left(\frac{1}{w_{O_2}} - \frac{1}{\lambda_{O_2}} \right)$$

$$\dot{m}''_{H_2O,g} = \dot{m}''_{H_2O,g,A} + \dot{m}''_{H_2O,g,K}$$

$$\dot{m}''_{H_2O,fl} = \dot{m}''_{H_2O,fl,A} + \dot{m}''_{H_2O,fl,K}$$

Der bei der elektrochemischen Reaktion produzierte Wassermassenstrom berechnet sich nach folgender Gleichung:

$$\dot{m}''_{prod.} = N_Z \cdot \frac{i}{z} \cdot \frac{A_{aktiv}}{M_{H_2O}} \cdot M_{H_2O} = \dot{m}''_{H_2O} - \dot{m}'_{H_2O} \quad \text{Gl. 13.15}$$

Es wird angenommen, dass kein Nettowasseraustausch zwischen Anode und Kathode stattfindet. Die Massenströme flüssigen und gasförmigen Wassers am Zellaustritt der beiden Elektroden werden unter der Annahme berechnet, dass Wasser auskondensiert, sobald der entsprechende Sättigungsdampfdruck überschritten wird.

$$\dot{m}''_{H_2O,satt,A} = \frac{\dot{m}'_{O_2}}{M_{O_2}} \cdot \left(\frac{1}{x_{O_2}} - \frac{1}{\lambda_{O_2}} \right) \cdot \left(\frac{1}{\frac{p}{p_{H_2O,satt}} - 1} \right) \cdot M_{H_2O} \quad \text{Gl. 13.16}$$

$$\dot{m}''_{H_2O,satt,K} = \frac{\dot{m}'_{H_2}}{M_{H_2}} \cdot \left(1 - \frac{1}{\lambda_{H_2}} \right) \cdot \left(\frac{1}{\frac{p}{p_{H_2O,satt}} - 1} \right) \cdot M_{H_2O}$$

Der Sättigungsdampfdruck am Zellaustritt ist auf die Zelltemperatur bezogen. Druckverluste in den Strömungsstrukturen der Zellen bleiben unberücksichtigt.

Für den Anteil der Enthalpieänderung, der durch die Änderung der Wärmekapazitätsströme und die Änderung der Medientemperatur bedingt ist, gilt

$$H_{WKS,\Delta T} = \dot{m}''_{H_2} \cdot c_{p_{H_2}} + \dot{m}''_{O_2} \cdot c_{p_{Luft}} + \dot{m}''_{H_2O,g} \cdot c_{p_{H_2O,g}} + \dot{m}''_{H_2O,fl} \cdot c_{p_{H_2O,fl}} \cdot (T''_Z - 25^\circ C) - \left(\dot{m}'_{H_2} \cdot c_{p_{H_2}} + \frac{\dot{m}'_{O_2}}{w_{O_2}} \cdot c_{p_{Luft}} + \dot{m}'_{H_2O,g} \cdot c_{p_{H_2O,g}} \right) \cdot (T'_Z - 25^\circ C) \quad \text{Gl. 13.17}$$

Tabelle 13.3: Betriebsparameter und Geometriedaten zur Berechnung der abzuführenden Wärme

Thermoneutrale Spannung (Brennwertspannung)	:	1,48	[V]
Einzelzellspannung	:	0,7	[V]
Stromdichte	:	0,585	[A/cm ²]
Zellenanzahl	:	50	[-]
Aktive Fläche	:	244	[cm ²]
Äußere Stapelfläche	:	3520	[cm ²]
Stöchiometriekoeffizient Anode (Wasserstoff)	:	1,1	[-]
Stöchiometriekoeffizient Kathode (Luft)	:	2	[-]
Betriebsdruck	:	2	[bar]
Zelltemperatur (Austrittstemperatur)	:	70	[°C]
Eintrittstemperatur der Reaktanden	:	70	[°C]
Taupunkttemperatur der Reaktanden	:	55, 65 (φ=50 %, 80 %)	[°C]
Umgebungstemperatur	:	20	[°C]
Wärmeübergangskoeffizient (freie Konvektion)	:	5	[W/(m ² *K)]

Die Stege der Kühlkanalstruktur werden als ebene Rippen betrachtet. Der Rippenwirkungsgrad ist definiert als

$$\eta_{\text{Rippe}} \equiv \frac{\text{übertragene Wärmemenge}}{\text{maximal übertragbare Wärmemenge}} \quad \text{Gl. 13.18}$$

Als *maximal übertragbare Wärmemenge* wird die Wärmemenge bezeichnet, die übertragen werden könnte, wenn die gesamte Rippenoberfläche die Rippenfußtemperatur besitzen würde. Die Berechnung erfolgt unter den Annahmen, dass

- die aktiv abzuführende Wärme zu gleichen Teilen über die Anoden- und Kathodenseite abgeführt wird
- der Temperaturverlauf in der Rippe eindimensional ist (das heißt: Temperaturänderungen ausschließlich über die Rippenhöhe, nicht über die Rippenbreite)

Für die Rippentemperatur in der Mittelebene der zwischen Anode und Kathode befindlichen Kühlzelle gilt somit

$$\left(\frac{d\vartheta}{dz} \right)_{z=\frac{l_{KK}}{2}} = 0 \quad \text{Gl. 13.19}$$

Damit berechnet sich der Rippenwirkungsgrad zu [118]:

$$\eta_{\text{Rippe}} = \frac{\tanh\left(a \cdot \frac{h_{KK}}{2}\right)}{a \cdot \frac{h_{KK}}{2}} \quad \text{mit} \quad a = \left(\frac{2 \cdot \alpha}{\lambda \cdot b_{\text{Steg}}} \right) \quad \text{Gl. 13.20}$$

13.4 Ergänzungen zu Kapitel 9 (Konstruktive Bauteiloptimierung)

Tabelle 13.4: Werkstoffkennwerte für Stahl, Aluminium, Titan und PEEK

	Stahl	Aluminium	Titan	PEEK
Elastizitätsmodul [N/mm ²]	196000	70000	116000	3600
Querkontraktionszahl [-]	0,3	0,34	0,32	0,4
Dichte [kg/m ³]	7960	2700	4510	1320

Tabelle 13.5: Orthotrope Werkstoffkennwerte für GFK und CFK (Faseranteil 60 %)

	GFK	CFK
Elastizitätsmodul in Faserrichtung [N/mm ²]	45000	130000
Elastizitätsmodul quer zur Faserrichtung [N/mm ²]	14000	8600
Schubmodul parallel – quer [N/mm ²]	5300	5570
Schubmodul quer – quer [N/mm ²]	4730	4730
Querkontraktionszahl parallel – quer [-]	0,272	0,24
Querkontraktionszahl quer – quer [-]	0,4	0,4
Dichte [kg/m ³]	2020	1600

Bild 13.4: Verformung der ebenen Stahlplatte [mm]

Bild 13.5: Verformung der verrippten Stahlplatte [mm]

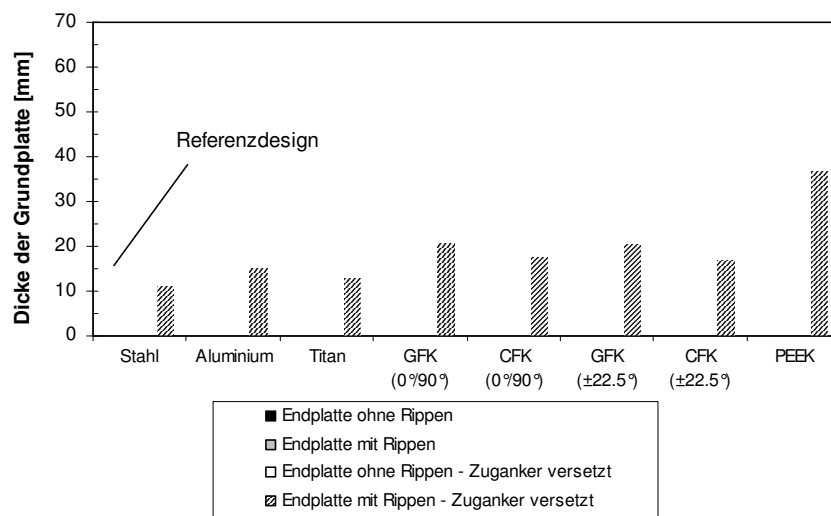


Bild 13.6: Dicke der Grundplatten der verschiedenen Endplattenwerkstoffe und -geometrien [mm]

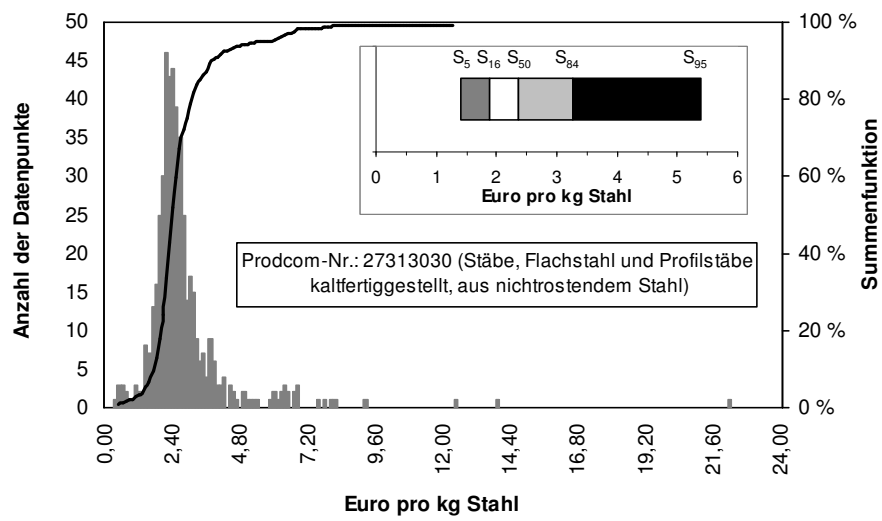


Bild 13.7: Histogramm der EUROPROMS-Daten für kaltfertiggestellte Stäbe, Flachstahl und Profilstäbe aus nichtrostendem Stahl (482 Datenpunkte)

Danksagung:

Die vorliegende Arbeit entstand am Institut für Energieverfahrenstechnik (IWV-3) der Forschungszentrum Jülich GmbH im Rahmen meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Angestellter am Lehrstuhl für Brennstoffzellen der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen. Die hervorragenden Arbeitsbedingungen und das angenehme Betriebsklima am IWV-3 habe ich stets genossen.

Ich danke meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten, Direktor des IWV-3 und Inhaber des Lehrstuhls für Brennstoffzellen, für die stets wohlwollende Förderung und exzellente Betreuung meiner Arbeit.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Kurt Kugeler und Herrn Prof. Dr.-Ing. Thomas Melin von der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen danke ich für die freundliche Übernahme des Korreferats beziehungsweise des Prüfungsvorsitzes.

Bei meinem Betreuer Herrn Dr.-Ing. Hendrik Dohle bedanke ich mich für die wissenschaftliche Begleitung sowie die zahlreichen wertvollen fachlichen Anregungen, die wesentlich zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

Folgenden Personen möchte ich meinen besonderen Dank aussprechen:

Herrn Jürgen Mergel für die organisatorische und fachliche Unterstützung als Leiter der Abteilung „Elektrochemische Wandler Niedertemperatur“. Durch seine unkomplizierte Art hat er maßgeblich zu der äußerst angenehmen Arbeitsatmosphäre in der Abteilung beigetragen.

Frau Rita Jung für die umfangreiche Hilfe bei der Durchführung von Simulationsrechnungen. Ohne Ihre beeindruckende Ausdauer und Geduld wären viele der vorliegenden Ergebnisse nicht zustande gekommen.

Frau Nicola Kimiaie für Ihr persönliches Engagement bei der Vorbereitung und Durchführung der experimentellen Arbeiten. Ihr Organisationstalent und ihre Hilfsbereitschaft waren eine unverzichtbare Unterstützung.

Herrn Dr.-Ing. Prakash Ghosh für seine tatkräftige Mitarbeit bei der Stromdichtemessung.

Meinen Promotionskollegen Thorsten Ackmann, Thomas Bewer, Matthias Finkenrath, Matthias Gebert, Stephan Montel, Thinh Nguyen-Xuan, Marcus Nölke, Jan Stalling, Frank Thom, Christian Wedershoven und Johannes Werhahn für die schöne gemeinsame Zeit.

Meinem Freund Carsten „Heinz“ Braun für seine hilfreichen Anregungen, seine stete Diskussionsbereitschaft und die kritische Durchsicht der Arbeit.

Mein herzlicher Dank gilt außerdem allen hier nicht namentlich erwähnten Mitarbeitern des IWV-3 für ihre Hilfe und Unterstützung, sowie allen beteiligten Studien- und Diplomarbeitern für ihre Beiträge zu dieser Arbeit. Danken möchte ich auch Kooperationspartnern und Mitarbeitern verschiedener Universitäten und Industrieunternehmen für die gute Zusammenarbeit.

Nicht zuletzt danke ich meiner Familie, meinen Freunden und insbesondere meiner Freundin Iris für Ihre Unterstützung und Geduld, die sie mir während der Promotionszeit entgegengebracht haben.

1. **Fusion Theory**
Proceedings of the Seventh European Fusion Theory Conference
edited by A. Rogister (1998); X, 306 pages
ISBN: 3-89336-219-3
2. **Radioactive Waste Products 1997**
Proceedings of the 3rd International Seminar on Radioactive Waste Products
held in Würzburg (Germany) from 23 to 26 June 1997
edited by R. Odoj, J. Baier, P. Brennecke et al. (1998), XXIV, 506 pages
ISBN: 3-89336-225-8
3. **Energieforschung 1998**
Vorlesungsmanuskripte des 4. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 20. bis 26. September 1998 im Congresszentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, K. Kugeler u. a. (1998),
500 Seiten
ISBN: 3-89336-226-6
4. **Materials for Advances Power Engineering 1998**
Abstracts of the 6th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, F. Schubert, P. J. Ennis (1998), 184 pages
ISBN: 3-89336-227-4
5. **Materials for Advances Power Engineering 1998**
Proceedings of the 6th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, F. Schubert, P. J. Ennis (1998),
Part I XXIV, 646, X pages; Part II XXIV, 567, X pages; Part III XXIV, 623, X
pages
ISBN: 3-89336-228-2
6. **Schule und Energie**
1. Seminar Energiesparen, Solarenergie, Windenergie. Jülich, 03. und
04.06.1998
herausgegeben von P. Mann, W. Welz, D. Brandt, B. Holz (1998), 112 Seiten
ISBN: 3-89336-231-2
7. **Energieforschung**
Vorlesungsmanuskripte des 3. Ferienkurses „Energieforschung“
vom 22. bis 30. September 1997 im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, K. Kugeler u. a. (1997),
505 Seiten
ISBN: 3-89336-211-8

8. **Liberalisierung des Energiemarktes**
Vortragsmanuskripte des 5. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 27. September bis 1. Oktober 1999 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, A. Kraft, K. Kugeler u. a. (1999), 350 Seiten
ISBN: 3-89336-248-7
9. **Models and Criteria for Prediction of Deflagration-to-Detonation Transition (DDT) in Hydrogen-Air-Steam-Systems under Severe Accident Conditions**
edited by R. Klein, W. Rehm (2000), 178 pages
ISBN: 3-89336-258-4
10. **High Temperature Materials Chemistry**
Abstracts of the 10th International IUPAC Conference, April 10 - 14 2000, Jülich
edited by K. Hilpert, F. W. Froben, L. Singheiser (2000), 292 pages
ISBN: 3-89336-259-2
11. **Investigation of the Effectiveness of Innovative Passive Safety Systems for Boiling Water Reactors**
edited by E. F. Hicken, K. Verfondern (2000), X, 287 pages
ISBN: 3-89336-263-0
12. **Zukunft unserer Energieversorgung**
Vortragsmanuskripte des 6. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 18. September bis 22. September 2000 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, S. Vögele, K. Kugeler u. a. (2000),
IV, 298 Seiten
ISBN: 3-89336-268-1
13. **Implementing Agreement 026**
For a programme of research, development and demonstration on advances fuel
cells
Fuel Cell Systems for Transportation
Annex X. Final Report 1997 - 1999
edited by B. Höhle; compiled by P. Biedermann (2000), 206 pages
ISBN: 3-89336-275-4
14. **Vorgespannte Guß-Druckbehälter (VGD) als berstsichere Druckbehälter für innovative Anwendungen in der Kerntechnik**
Prestressed Cast Iron Pressure Vessels as Burst-Proof Pressure Vessels for
Innovative Nuclear Applications
von W. Fröhling, D. Bounin, W. Steinwarz u. a. (2000) XIII, 223 Seiten
ISBN: 3-89336-276-2

15. **High Temperature Materials Chemistry**
Proceedings of the 10th International IUPAC Conference
held from 10 to 14 April 2000 at the Forschungszentrum Jülich, Germany
Part I and II
edited by K. Hilpert, F. W. Froben, L. Singheiser (2000), xvi, 778, VII pages
ISBN: 3-89336-259-2
16. **Technische Auslegungskriterien und Kostendeterminanten von SOFC- und PEMFC-Systemen in ausgewählten Wohn- und Hotelobjekten**
von S. König (2001), XII, 194 Seiten
ISBN: 3-89336-284-3
17. **Systemvergleich: Einsatz von Brennstoffzellen in Straßenfahrzeugen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2001), 185 Seiten
ISBN: 3-89336-285-1
18. **Energie und Mobilität**
Vorlesungsmanuskripte des 7. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 24. September bis 28. September 2001 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, J. Linßen, W. Pfaffenberger u. a. (2001),
205 Seiten
ISBN: 3-89336-291-6
19. **Brennstoffzellensysteme für mobile Anwendungen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2002)
PDF-Datei auf CD
ISBN: 3-89336-310-6
20. **Materials for Advances Power Engineering 2002**
Abstracts of the 7th Liège Conference
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2002),
c. 200 pages
ISBN: 3-89336-311-4
21. **Materials for Advances Power Engineering 2002**
Proceedings of the 7th Liège Conference
Part I, II and III
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2002),
XXIV, 1814, XII pages
ISBN: 3-89336-312-2
22. **Erneuerbare Energien: Ein Weg zu einer Nachhaltigen Entwicklung?**
Vorlesungsmanuskripte des 8. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 23. bis 27. September 2002 in der Jakob-Kaiser-Stiftung, Königswinter
herausgegeben von J.-Fr. Hake, R. Eich, W. Pfaffenberger u. a. (2002),
IV, 230 Seiten
ISBN: 3-89336-313-0

23. **Einsparpotenziale bei der Energieversorgung von Wohngebäuden durch Informationstechnologien**
von A. Kraft (2002), XII, 213 Seiten
ISBN: 3-89336-315-7
24. **Energieforschung in Deutschland**
Aktueller Entwicklungsstand und Potentiale ausgewählter nichtnuklearer Energietechniken
herausgegeben von M. Sachse, S. Semke u. a. (2002), II, 158 Seiten,
zahlreiche farb. Abb.
ISBN: 3-89336-317-3
25. **Lebensdaueranalysen von Kraftwerken der deutschen Elektrizitätswirtschaft**
von A. Nollen (2003), ca. 190 Seiten
ISBN: 3-89336-322-X
26. **Technical Session: Fuel Cell Systems of the World Renewable Energy Congress VII**
Proceedings
edited by D. Stolten and B. Emonts (2003), VI, 248 pages
ISBN: 3-89336-332-7
27. **Radioactive Waste Products 2002 (RADWAP 2002)**
Proceedings
edited by R. Odoj, J. Baier, P. Brennecke and K. Kühn (2003), VI, 420 pages
ISBN: 3-89336-335-1
28. **Methanol als Energieträger**
von B. Höhle, T. Grube, P. Biedermann u. a. (2003), XI, 109 Seiten
ISBN: 3-89336-338-6
29. **Hochselektive Extraktionssysteme auf Basis der Dithiophosphinsäuren: Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Actinoiden(III)-Abtrennung**
von S. A. H. Nabet (2004), VI, 198 Seiten
ISBN: 389336-351-3
30. **Benchmarking-Methodik für Komponenten in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**
von Matthias Gebert (2004), 194 Seiten
ISBN: 3-89336-355-6
31. **Katalytische und elektrochemische Eigenschaften von eisen- und kobalthaltigen Perowskiten als Kathoden für die oxidkeramische Brennstoffzelle (SOFC)**
von Andreas Mai (2004), 100 Seiten
ISBN: 3-89336-356-4

32. **Energy Systems Analysis for Political Decision-Making**
edited by J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, R. Eich (2004), 180 pages
ISBN: 3-89336-365-3
33. **Entwicklung neuer oxidischer Wärmedämmschichten für Anwendungen in stationären und Flug-Gasturbinen**
von R. Vaßen (2004), 141 Seiten
ISBN: 3-89336-367-X
34. **Neue Verfahren zur Analyse des Verformungs- und Schädigungsverhaltens von MCrAlY-Schichten im Wärmedämmschichtsystem**
von P. Majerus (2004), 157 Seiten
ISBN: 3-89336-372-6
35. **Einfluss der Oberflächenstrukturierung auf die optischen Eigenschaften der Dünnschichtsolarzellen auf der Basis von a-Si:H und μ c-Si:H**
von N. Senoussaoui (2004), 120 Seiten
ISBN: 3-89336-378-5
36. **Entwicklung und Untersuchung von Katalysatorelementen für innovative Wasserstoff-Rekombinatoren**
von I.M. Tragsdorf (2005), 119 Seiten
ISBN: 3-89336-384-X
37. **Bruchmechanische Untersuchungen an Werkstoffen für Dampfkraftwerke mit Frischdampftemperaturen von 500 bis 650°C**
von L. Mikulová (2005), 149 Seiten
ISBN: 3-89336-391-2
38. **Untersuchungen der Strukturstabilität von Ni-(Fe)-Basislegierungen für Rotorwellen in Dampfturbinen mit Arbeitstemperaturen über 700 °C**
von T. Seliga (2005), 106 Seiten
ISBN: 3-89336-392-0
39. **IWV-3 Report 2005. Zukunft als Herausforderung**
(2005), 115 Seiten
ISBN: 3-89336-393-9
40. **Integrierter Photodetektor zur Längenmessung**
von E. Bunte (2005), XI, 110 Seiten
ISBN: 3-89336-397-1
41. **Microcrystalline Silicon Films and Solar Cells Investigated by Photoluminescence Spectroscopy**
by T. Merdzhanova (2005), X, 137 Seiten
ISBN: 3-89336-401-3

- 42. **IWV-3 Report 2005. Future as a challenge**
(2005), 115 Seiten
ISBN: 3-89336-405-6

- 43. **Electron Spin Resonance and Transient Photocurrent Measurements on Microcrystalline Silicon**
by T. Dylla (2005), X, 138 Seiten
ISBN: 3-89336-410-2

- 44. **Simulation und Analyse des dynamischen Verhaltens von Kraftwerken mit oxidkeramischer Brennstoffzelle (SOFC)**
von M. Finkenrath (2005), IV, 155 Seiten
ISBN: 3-89336-414-5

- 45. **The structure of magnetic field in the TEXTOR-DED**
by K.H. Finken, S.S. Abdullaev, M. Jakubowski, M. Lehnen, A. Nicolai, K.H. Spatschek (2005), 113 Seiten
ISBN: 3-89336-418-8

- 46. **Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels der 5 kW Klasse**
von T. Wüster (2005), 211 Seiten
ISBN: 3-89336-422-6

Kurzzusammenfassung:

Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen (PEFCs) bedürfen erheblicher Optimierungen, um konkurrenzfähig im Vergleich zu bereits am Markt etablierten Technologien zu werden. Basierend auf experimentellen Untersuchungen werden in diesem Buch innovative Ansätze zur optimierten Auslegung von PEFCs beschrieben. Diese umfassen unter anderem die Betrachtung des Wasser- und Wärmemanagements, die Kenntnis über die zu erwartende Strömungs- und Stromdichteverteilung sowie die Abhängigkeit der Zelleistung von den Betriebsparametern. Unter Berücksichtigung der vorgestellten Ergebnisse erfolgte der Bau und die Inbetriebnahme einer PEFC der 5 kW Klasse.

Autor:

Thorsten Wüster studierte an der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule (RWTH) in Aachen und der University of California at Davis (USA) Maschinenbau mit dem Schwerpunkt Wärmetechnik. Als Mitarbeiter des Lehrstuhls für Brennstoffzellen der RWTH Aachen begann er im Jahr 2001 im Rahmen eines vom Land Nordrhein-Westfalen geförderten Projektes am Institut für Energieverfahrenstechnik im Forschungszentrum Jülich mit der Entwicklung eines 5 kW Brennstoffzellenstapels. Der Inhalt dieses Buches wurde von der RWTH Aachen als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Ingenieurwissenschaften genehmigt.

Institut:

Die Forschungsaufgaben des Instituts für Energieverfahrenstechnik (IWW-3) sind auf die Realisierung von Hoch- und Niedertemperatur-Brennstoffzellen sowie von entsprechenden Stacks oder Systemen für stationäre, portable oder mobile Anwendungen ausgerichtet. Ferner umfassen die verfahrens- und systemtechnischen Entwicklungen die Bereitstellung von Apparaten zur Brenngaserzeugung. Diese Arbeiten werden von physikalisch-chemischen Grundlagenuntersuchungen sowie systemanalytischen Studien der Energieverfahrenstechnik begleitet.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Band/Volume 46
ISBN 3-89336-422-6

Energietechnik
Energy Technology