

Entwicklung eines Direkt- Methanol-Brennstoffzellensystems der Leistungsklasse kleiner 5 kW

Marcus Nölke



Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energieforschung (IEF)
Brennstoffzellen (IEF-3)

Entwicklung eines Direkt- Methanol-Brennstoffzellensystems der Leistungsklasse kleiner 5 kW

Marcus Nölke

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology

Band / Volume 64

ISSN 1433-5522

ISBN 978-3-89336-481-7

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

Herausgeber Forschungszentrum Jülich GmbH
und Vertrieb: Zentralbibliothek, Verlag
 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 2007

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energietechnik / Energy Technology Band / Volume 64

D 82 (Diss., Aachen, RWTH, 2006)

ISSN 1433-5522
ISBN 978-3-89336-481-7

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

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

Entwicklung eines Direkt-Methanol-Brennstoffzellensystems der Leistungsklasse kleiner 5 kW

von Marcus Nölke

Kurzfassung:

Die Attraktivität der Verstromung des flüssigen Brennstoffes Methanol in einer Brennstoffzelle besteht in der einfachen Speicherung bei hoher Energiedichte. Daher eignen sich Direkt-Methanol-Brennstoffzellen (DMFC) für den Einsatz in portablen Systemen und mobilen Anwendungen der kW-Klasse.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, ein gegenüber dem Stand der Technik verbessertes und optimiertes peripheres System zum Betrieb eines DMFC-Stacks der kW-Klasse zu entwickeln und für eine mobile Anwendung zu demonstrieren. Die mobile Anwendung besteht in dem Umbau der Energieversorgung eines „Scooters“. Hierbei sollen die Bleibatterien gegen ein DMFC-System ausgetauscht werden, das den elektrischen Motor mit Strom versorgt.

Die notwendige Kompaktierung und Vereinfachung eines DMFC-Systems wird durch ein integriertes Konzept realisiert, das das periphere System und den Stack ideal miteinander kombiniert. Dabei ist eine genaue Analyse des Stacks und der peripheren Komponenten eine wichtige Voraussetzung für ein optimiertes Design. Den Ausgangspunkt zur Systementwicklung bilden die ausführliche Betrachtung der DMFC und die Modellierung des Stackverhaltens. Der Einfluss der wichtigsten Betriebsparameter wie Stacktemperatur, Zellspannung, Stromdichte, Luftzahl und Methanolkonzentration sind mit ausreichender Genauigkeit vom Modell erfasst und experimentell validiert worden. Dies bildet den Grundrahmen für die folgende Entwicklung eines optimierten Systementwurfs. Hier werden für die definierten Aufgaben des peripheren Systems Alternativen untersucht und die optimale Lösung ausgewählt.

Bei der Charakterisierung der Fluidenergiemaschinen werden anhand des Systementwurfs und der besonderen Anforderungen an die Komponenten in einem DMFC-System die am Markt verfügbaren Pumpen und Gebläse untersucht.

Die Untersuchung und die Modellierung des Abgaskondensators führen zu einem optimierten Designentwurf für das DMFC-System. Des Weiteren ist die Integration des Anodenkreislaufes bestehend aus Versorgungsleitungen, Umwälzpumpe, Anodengasabscheider mit Anodenabgasleitungen in den Stack gelungen. Die Parallelschaltung des Stacks mit einem Lithium-Ionen-Akkumulator wird als Möglichkeit der Konditionierung der elektrischen Leistungsabgabe untersucht.

Bei der statischen Systemmodellierung ist der Einfluss der Betriebsparameter auf die charakterisierenden Kennzahlen elektrische Leistung, Wirkungsgrad und Leistungsdichte herausgearbeitet worden, ebenso die Implikationen der Verknüpfung von Wärme- und Wassermanagement. Das System lässt sich nur bezüglich einzelner Zielgrößen optimieren. Zum Beispiel sind für einen maximalen Systemwirkungsgrad eine Zellspannung von 400 mV und eine Stacktemperatur von 70 °C ermittelt worden.

Im letzten Teil wird die Entwicklung einer Stromversorgung für einen Scooter beschrieben. Hierfür ist ein kompaktes System mit einer elektrischen Nettoleistung von 1230 W realisiert worden. Der Systemwirkungsgrad beträgt 18,8 %.

Development of a Direct Methanol Fuel Cell System for the Power Segment Below 5 kW

by Marcus Nölke

Abstract:

The attractiveness of electrical conversion of liquid methanol in a fuel cell is defined by its simple storage and high energy density. Therefore, direct-methanol fuel cell (DMFC) qualifies for applications in portable systems and mobile application in the kW-class.

The goal of this work is to develop and demonstrate an improved and optimized peripheral DMFC system compared to the current level of technology. The selected mobile application is the retrofit of the energy supply of a „Scooter“ with a fuel cell system.

The required size reduction and the simplification of the DMFC system are realized by an integrated concept, which combines ideally the peripheral system and the fuel cell. A profound analysis of the stack and the peripheral components is a prerequisite for an optimized design.

A detailed modelling and understanding of the stack behaviour establish the starting point of this work. The influence of the most important operating parameters like stack temperature, cell voltage, current density, air ratio and methanol concentration is captured accurately by the developed model and validated by experimental data. This shapes the frame work of the following system design approach. For this the clearly defined task of the peripheral system are investigated individually for alternatives and the best option is selected for the final solution.

For selecting the right pumps and blowers available products and prototypes are characterized and checked for the system requirements.

The investigation and the modelling of the exhaust gas condenser lead to an optimized component design for the „Scooter“ DMFC design. Additionally, the integration of the anode loop is accomplished consisting of the supply lines, the circulating pump, the gas separator and the exhaust line. The direct coupling of the fuel cell with a lithium-ion battery as an option for electrical conditioning is investigated.

In the system modelling the influence of the operational parameter on characteristic performance indicators like electrical power, efficiency, and power density is analysed in combination with the heat and water management of the system. The system can be optimized only for single specific targets. For example the best system efficiency has been evaluated for a cell voltage of 400 mV and a stack temperature of 70 °C.

In the final part the development of the power supply of a Scooter is described. A compact system with a net power output of 1230 W has been realized. The system efficiency amounts up to 18.8 %.

1	EINLEITUNG	1
2	GRUNDLAGEN UND STAND DER TECHNIK	3
2.1	Flüssig betriebene Direkt-Methanol-Brennstoffzellen	3
2.2	Systeme für flüssig betriebene DMFCs	17
2.3	Ziel der Arbeit und Vorgehensweise	22
3	STACKBESCHREIBUNG UND -MODELLIERUNG	24
3.1	Stackaufbau.....	24
3.2	Modellierung des Stackverhaltens.....	25
3.3	Experimentelle Untersuchung und Modellvalidierung.....	35
3.4	Zusammenfassung	48
4	ENTWICKLUNG EINES VERFAHRENSKONZEPTE	50
4.1	Luftversorgung.....	51
4.2	Wassermanagement	54
4.3	Wärmemanagement.....	58
4.4	Gasabscheidung im Anodenkreis.....	64
4.5	Anodenabgasreinigung.....	66
4.6	Wasserrückführung zur Anode	76
4.7	Ausgewähltes Systemkonzept und Intergrationsansätze	76
5	CHARAKTERISIERUNG DER FLUIDENERGIEMASCHINEN	78
5.1	Pumpe zur Anodenumwälzung.....	79
5.2	Dosierpumpe	90
5.3	Kondensatpumpe	94
5.4	Kathodenluftversorgung	96
5.5	Zusammenfassung	105
6	ENTWICKLUNG NEUER SYSTEMKOMPONENTEN	107
6.1	Experimentelle Untersuchung, Modellierung und Optimierung eines Kondensators zur Wasserrückgewinnung	107
6.2	Integriertes Anodensystem.....	129

Inhaltsverzeichnis

6.3	Brennstoffzufuhr	135
6.4	Elektrische Kopplung von Akkumulator und Brennstoffzelle	138
6.5	Zusammenfassung	144
7	STATISCHE SYSTEMMODELLIERUNG	145
7.1	Systemschaltung (Stoff- und Wärmeströme)	145
7.2	Ergebnisse der Simulationsrechnungen	147
7.3	Zusammenfassung	156
8	UMSETZUNG AM PROJEKTBEISPIEL „SCOOTER“	159
8.1	Beschreibung des Systems	159
8.2	Charakteristische Kennzahlen	162
8.3	Betriebsverhalten des Systems	164
9	ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK	167
10	LITERATURVERZEICHNIS	170
11	NOMENKLATUR.....	176
12	ANHANG	180
12.1	Standardbildungsenthalpien und -entropien	180
12.2	Berechnung der thermodynamische Phasengleichgewichte im DMFC-System	180
12.3	Elektrische Antriebe	181
12.4	Kennzahlen zur Auswahl der Fluidenergiemaschinen	185
12.5	Untersuchte Wärmeübertragerstrukturen	193

1 Einleitung

Die Attraktivität der Verstromung des flüssigen Brennstoffes Methanol in einer Brennstoffzelle besteht in der einfachen Speicherung bei hoher Energiedichte. Der spezifische Energiegehalt liegt zwar mit 15,9 kJ/l unterhalb der von Diesel oder Benzin, jedoch klar oberhalb der von konkurrierenden Wasserstoffspeichersystemen. Die direkte Umsetzung von Methanol in einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (DMFC) ermöglicht einen einfachen Systemaufbau. Die Nachteile der DMFC im Vergleich mit Wasserstoffbrennstoffzellen liegen im geringeren Wirkungsgrad und niedrigerer Leistungsdichte. Hinzu kommt die fehlende Akzeptanz des Brennstoffes für automobiler oder stationäre Anwendungen. Dies beschränkt den potentiellen Einsatz auf portable Systeme und mobile Anwendungen der kW-Klasse. Hier sind drei Anwendungsbereiche im Fokus der Entwicklung von DMFC-Systemen:

- Stromversorgung von tragbaren elektrischen Geräten wie Mobiltelefone oder Notebooks
- Portable Stromaggregate für zum Beispiel militärische Anwendungen
- Transportable Stromaggregate als Notstromgenerator
- Stromversorgung für elektromotorische Antriebe in mobilen Anwendungen mit leichter Traktion wie zum Beispiel Rollstühle, Scooter oder Motorroller

Bei diesen Anwendungsfeldern konkurriert die DMFC zum einen mit der Wasserstoffbrennstoffzelle als auch mit konventionellen Technologien. Bei Energiespeichersystemen sind dies die Batterien auf Lithium-Ionen-, Nickel-Cadmium- oder Bleibasis. Hier kann sich die DMFC nur über Energiedichte und Komfort differenzieren. Bei Notstromaggregaten behindert die Konkurrenz zu konventionellen motorgetriebenen Generatoren einen baldigen Markteintritt der DMFC, die im Vergleich einen besseren Wirkungsgrad aufweist und sich leiser betreiben lässt.

Aus Kundensicht bietet ein DMFC-System eine netzunabhängige Versorgung mit elektrischem Strom über einen begrenzten Zeitraum. Somit bilden die elektrische Leistung und Dauer die primären Anforderungen an eine Stromversorgung. Tabelle 1.1 gibt typische Werte für portable, transportable und mobile Anwendungen an.

Tabelle 1.1: Typische Leistungsanforderungen für portable, transportable und mobile Anwendungen

Anwendung	Leistungsanforderung [W]
Portabel:	
Mobiltelefon	0,1
Laptop	15-25
Allgemeine Stromversorgung	50-100
Transportabel:	
Notstromgenerator	>500
Hilfsstromaggregat	100
Mobil:	
Rollstuhl	300
Scooter	1000
Kleine Roller	1000

Die weiteren Anforderungen ergeben sich aus den Bedingungen unter denen diese Leistung zur Verfügung gestellt wird. Eine Stromversorgung muss leicht, leise, kompakt und emissionsfrei sein. Gleichzeitig dürfen nur begrenzte Herstellkosten anfallen und eine hohe Verfügbarkeit und Zuverlässigkeit für eine ausreichende Lebensdauer müssen garantiert sein. Folgende Parameter dienen zur qualitativen Erfassung der Anforderungen:

- Nennleistung / Teillastverhalten
- Spezifische Leistung
- Leistungsdichte
- Energiedichte
- Schallpegel bei Betrieb
- Herstell- und Betriebskosten
- Emissionen
- Lebensdauer

Die hohen spezifischen Kosten sowie die beschränkte Lebensdauer sind bedeutende Hürden auf dem Weg zur Kommerzialisierung der DMFC-Technologie. Mit der Smart Fuel Cells AG verkauft momentan nur ein Anbieter seit 2004 DMFC-Systeme an Privatpersonen für Nischenanwendungen wie die autarke Stromversorgung für Caravane und die Bordstromversorgung auf Segelyachten. Jedoch sind in naher Zukunft weitere Produkte mit DMFC-Technologie für die portablen Anwendungen im militärischen wie auch kommerziellen Bereich zu erwarten.

2 Grundlagen und Stand der Technik

Nach einer kurzen Einführung in die Funktionsweise einer flüssig betriebenen Methanolbrennstoffzelle folgt eine ausführliche Darstellung des Entwicklungsstandes der DMFC und ihrer technischen Besonderheiten. Dies ist der Ausgangspunkt der anschließenden Beschreibung der Aufgaben eines Systems zum Betrieb der Brennstoffzelle. Eine Dokumentation des Standes der Systementwicklung bildet den Übergang zur Erläuterung der Aufgabenstellung und der Methodik.

2.1 Flüssig betriebene Direkt-Methanol-Brennstoffzellen

Die Funktionsweise einer Brennstoffzelle wird hier nur kurz zusammengefasst. Für eine ausführliche Beschreibung wird auf die Literatur verwiesen [1, 2, 3]. Die vorliegende Arbeit behandelt ausschließlich die Methanolbrennstoffzelle, die auf dem Reaktionsmechanismus eines protonenleitenden und sauren Polymerelektrolyten basiert. Die in [4] beschriebene alkalisch arbeitende DMFC und das in [5] entwickelte Konzept eines zirkulierenden Elektrolyten bieten Alternativen zum Polymerelektrolyten an, die momentan jedoch nur geringe Bedeutung haben.

Bei flüssig betriebenen DMFCs erfolgt die Brennstoffversorgung über ein flüssiges Wasser/Methanol-Gemisch, das die Anode durchströmt. Prinzipiell ist der Betrieb mit einem gasförmigen Wasser/Methanol -Gemisch möglich. Der Vorteil besteht in einer geringeren Wasser- und Methanolpermeation in Folge einer geringeren Methanolkonzentration an der Membran. Der Diffusionstransport der Edukte zur Reaktionszone ist in der Gasphase deutlich besser als in der Flüssigphase. Wegen des hohen Energiebedarfs des Wassererdampfungsprozesses kann ein Gesamtsystem nicht effektiv betrieben werden kann [6]. Das Konzept in [7] geht von einem zirkulierenden Kohlendioxidanteil aus. Das Kohlendioxid wird dabei über die elektrochemisch aktive Fläche abgeschieden. Hier ist die zu verdampfende Wassermenge erheblich kleiner. Diese Idee ist vor allem für kleine Systeme interessant, die über die Oberfläche des Stacks gekühlt werden können.

2.1.1 Theoretische Grundlagen der Energieumwandlung in einer DMFC

Die Brennstoffzelle stellt elektrische Energie durch eine räumliche Trennung von Oxidations- und Reduktionsreaktion bereit. Die elektrochemische Reaktion wandelt die chemische Energie des Brennstoffes direkt in elektrische, und unter realen Bedingungen, auch in thermische Energie um. Bild 2.1 zeigt die Konfiguration einer DMFC, bestehend aus Membran, Katalysator-, Diffusionsschicht und Verteilerstruktur.

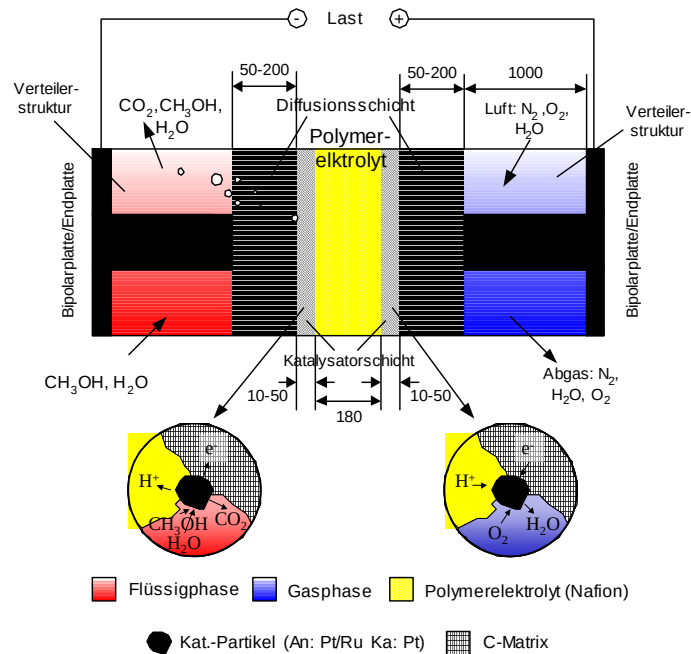


Bild 2.1: Grundkonfiguration DMFC (Alle Zahlenangabe in µm)

Auf der Anode strömt ein Wasser-Methanol-Gemisch in die Zelle ein. Über die Diffusionsschicht wird Wasser und Methanol zur Katalysatorschicht transportiert. In der anodischen Reaktionsschicht wird Methanol an einem Platin/Ruthenium-Katalysator mit Wasser zu Kohlendioxid oxidiert. Die hierbei nach Gleichung (2.1) pro Molekül Methanol frei werdenden sechs Elektronen wandern über die Diffusionsschicht und die Verteilerstruktur zur Last und von dort zur kathodischen Reaktionsschicht. Die auf der Anode freigesetzten Protonen bewegen sich aufgrund von Konzentrationsunterschieden durch den Elektrolyten zur kathodischen Katalysatorschicht.



Das Kohlendioxid verlässt mit dem übrigen Wasser und Methanol die Zelle. Die Elektronen fließen über die Elektrode und die Last zur Kathodenseite. Die Protonen wandern durch die Membran zur Kathode. Dort bilden sie mit den Elektronen und dem dort vorhandenen Sauerstoff Wasser:



Es ergibt sich die Bruttoreaktion:



Die Reaktionen können nur in den in Bild 2.1 vergrößert dargestellten Bereichen ablaufen. Lokal müssen dabei durch Elektrolyt und Elektrodenmaterial der am Katalysator ablaufenden Reaktion Protonen und Elektronen zugänglich gemacht beziehungsweise abgeführt werden.

Würde die gesamte Reaktionsenthalpie ΔH_R in elektrische Leistung umgewandelt werden, läge an den Elektroden die thermoneutrale Spannung an. Unter Standardbedingungen ($T^0 = 298,15 \text{ K}$ und $p^0 = 1013 \text{ mbar}$) gilt:

$$U_{th}^0 = -\frac{\Delta H_R^0}{6 \cdot F} \quad (2.4)$$

Die thermoneutrale Spannung, auch als Heizwertspannung bezeichnet, kann von einer ideal arbeitenden Brennstoffzelle nicht erreicht werden. Selbst bei reversiblen Betrieb wird ein Teil der chemischen Energie zur Entropieerhöhung bei der Reaktion $T\Delta S$ aufgewendet. Die freie Enthalpie ΔG ist der verbleibende Teil der Reaktionswärme, der in beliebig andere Energieformen umwandelbar ist:

$$\Delta G_R^0 = \Delta H_R^0 - T^0 \cdot \Delta S^0 \quad (2.5)$$

Damit lässt sich die reversible Zellspannung definieren als

$$U_{rev}^0 = -\frac{\Delta G_R^0}{6 \cdot F} \quad (2.6)$$

Die reversible Zellspannung ist von idealen, also verlustfrei arbeitenden Zellen erreichbar. Somit lässt sich durch einen Vergleich der realen Zellspannung mit der reversiblen Spannung die Güte der elektrochemischen Umsetzung messen. Zur Bewertung der Güte der thermodynamischen Umsetzung bei einem Brennstoffzellentyp wird die im reversiblen Fall nutzbare elektrische Energie (frei Reaktionsenthalpie) mit der durch direkte Verbrennung frei werdenden Wärme (Reaktionsenthalpie) verglichen. Dieser thermodynamische Wirkungsgrad berechnet sich mit:

$$\eta_{th} = \frac{\Delta G_R^0}{\Delta H_R^0} = \frac{U_{rev}^0}{U_{th}^0} \quad (2.7)$$

Nach den Werten aus Tabelle 2.3 liegt der thermodynamische Wirkungsgrad der flüssig betriebenen DMFC bei $1,21/1,25 = 0,97$. Die eher als Konversionsgrad zu interpretierende Größe kann sogar Werte über 1 annehmen [6]. Ähnlich dem Carnotwirkungsgrad gibt der thermodynamische Wirkungsgrad den Teil der freien Enthalpie an, der sich frei in andere Energieformen umwandeln lässt. Liegt ein Aggregatswechsel bei der Reaktion vor, kann die Entropie der Edukte größer als die der Produkte sein. In diesem Fall ließe sich die gesamte freie Enthalpie und die resultierende Wärme aus der Entropieabnahme frei in eine andere Energieform umwandeln.

Für die Berechnung der thermoneutralen und reversiblen Zellspannung werden die in Tabelle 12.37 in Anhang 12.1 angegebenen Stoffdaten verwendet. Das Methanol wird dabei flüssig zugeführt. Wasser liegt sowohl als Edukt als auch als Produkt in flüssigem Zustand vor. Das Produkt Kohlendioxid wird als Gasphase und nicht als in Wasser gelöst angenommen. Anhand der stöchiometrischen Beziehungen der Reaktionsgleichung lassen sich Reaktionsenthalpie, -entropie und freie Reaktionsenthalpie bestimmen (Tabelle 2.2) und mittels der Gleichungen (2.4) und (2.6) in elektrische Potenziale umrechnen (Tabelle 2.3). Die dem oberen Heizwert entsprechende Heizwertspannung beträgt $1,25 \text{ V}$ und die reversible Zellspannung liegt bei $1,21 \text{ V}$.

Tabelle 2.2: Reaktionsenthalpien und -entropien

Reaktion	Reaktions- enthalpie ΔH_r [kJ/mol]	Reaktions- entropie ΔS_r [J/mol K]	Freie Reaktions- enthalpie ΔG_r [kJ/mol]
$CH_3OH(l) + H_2O(l) \rightarrow CO_2(g) + 6e^- + 6H^+$	131,0	17,0	125,9
$\frac{3}{2}O_2(g) + 6e^- + 6H^+ \rightarrow 3H_2O(g)$	-857,4	-98,0	828,2
$CH_3OH(l) + \frac{3}{2}O_2(g) \rightarrow CO_2(g) + 2H_2O(l)$	-726,4	-81,0	702,3

Tabelle 2.3: Thermoneutrale, reversible Elektrodenpotenziale und Zellspannungen

Potenzial:	Thermoneutral [V] gegen NHE	Reversibel [V] gegen NHE
Anode	0,226	0,020
Kathode	1,48	1,23
Zellspannung	1,254	1,210

Die reversible Zellspannung zeigt bei abnehmender Temperatur ein leichtes Abfallen (-0,14 mV/K [8]). Die Druckabhängigkeit der reversiblen Zellspannung ist aufgrund der überwiegend flüssigen Reaktanden vernachlässigbar.

Der Einfluss der Konzentration der Reaktanden auf die reversible Zellspannung lässt sich aus dem Gleichgewicht der elektrochemischen Reaktionen an den Elektroden ableiten. In Abhängigkeit von der Aktivität der Stoffe an der Elektrode ergibt sich die konzentrationsabhängige reversible Zellspannung, die Nernstspannung genannt wird, zu [2]:

$$U_{rev} = U_{rev}^0 + \frac{R \cdot T}{6F} \ln \left(\frac{a_{O_2}^K \cdot a_{CH_3OH}^A}{a_{H_2O}^K \cdot a_{CO_2}^A} \right) \quad (2.8)$$

Die experimentelle Zellspannung weicht jedoch von der Nernstspannung ab. Gegenüber der Nernstspannung kommt es zu Spannungsverlusten als Folge von einer nicht vollständigen stofflichen Abdichtung der Reaktionsräume, die zu einer Mischpotenzialbildung führt. Bei Leistungsabgabe fließt ein Laststrom, der zumeist auf die aktive Zellfläche bezogen wird und die Stromdichte i ergibt. Bild 2.2 zeigt den typischen Verlauf eines Spannung/Stromdichte-Diagramms (U/i -Kennlinie) einer Brennstoffzelle. Die Differenz zwischen der Nernstspannung und der experimentellen Zellspannung U_{Zelle} wird durch Überspannungen hervorgerufen, die an beiden Elektroden und dem Elektrolyten auftreten. Der starke Abfall der Zellspannung bei geringen Stromdichten ist durch die Reaktionskinetik

bedingt und wird als Aktivierungsüberspannung bezeichnet. Der Bereich mit nahezu linear abfallender Spannung ist durch den Ladungstransport dominiert. Bei Einsetzen der Stofftransportlimitierung knickt die Zellspannung ab und der Betrieb wird instabil. Die von der Brennstoffzelle abgegebene elektrische Leistung P_{Zelle} berechnet sich aus dem Produkt des Laststromes und der Zellspannung. Bezogen auf die aktive Zellfläche ergibt sich die Leistungsdichte zu:

$$\hat{P}_{\text{Zelle}} = i \cdot U_{\text{Zelle}} \quad (2.9)$$

Die Leistungsdichte, für einen beliebigen Arbeitspunkt hier als Fläche eingezeichnet, steigt mit der Stromdichte, erreicht ein Maximum vor dem Abknicken der U/i -Kennlinie und fällt dann bei der Grenzstromdichte auf null. Der typische Arbeitsbereich einer Brennstoffzelle in einem System liegt links von dem Punkt mit maximaler Leistung im linearen Bereich der U/i -Kennlinie. Für einen beispielhaften Arbeitspunkt ist der Anteil der in elektrische Energie und in Wärme umgewandelten chemischen Energie dargestellt. Bei Erreichen der Grenzstromdichte wird die gesamte Reaktionsenthalpie in Form von Wärme frei.

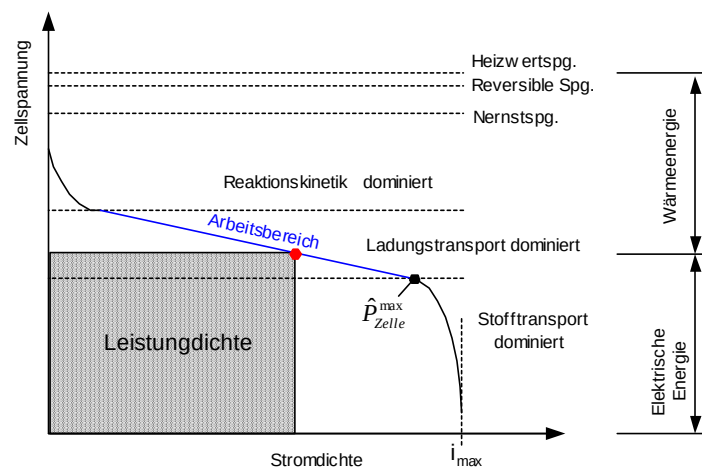


Bild 2.2: Spannung/Stromdichte-Kennlinie und Leistungsdichte bei einer DMFC

Der Spannungswirkungsgrad setzt die gemessene Zellspannung mit der reversiblen Zellspannung ins Verhältnis:

$$\eta_U = \frac{U_{\text{Zelle}}}{U_{\text{rev}}} \quad (2.10)$$

Diese Definition ist analog zu der des exergetischen Wirkungsgrades zur Bewertung von Wärmekraftanlagen. Auch hier wird die erzielte Wirkleistung nur auf den konvertierbaren Anteil des Wärmeangebots, also den Exergiegehalt, bezogen. Der auf die Stromdichte bezogene Spannungswirkungsgrad und die maximale Leistungsdichte sind ein Maß für den technologischen Stand einer ausgeführten DMFC.

Für die spätere Modellierung ist es sinnvoll auch die zu- und abströmenden Stoffmengen auf die Zellfläche zu beziehen und eine Molenstromdichte zu definieren als:

$$\dot{n} = \frac{\dot{N}}{A_{\text{Zelle}}} \quad (2.11)$$

In Bild 2.3 sind die Stoffströme und –umsätze zusammengefasst. Die Senkströme sind mit negativem, die Quellströme mit positivem Vorzeichen versehen.

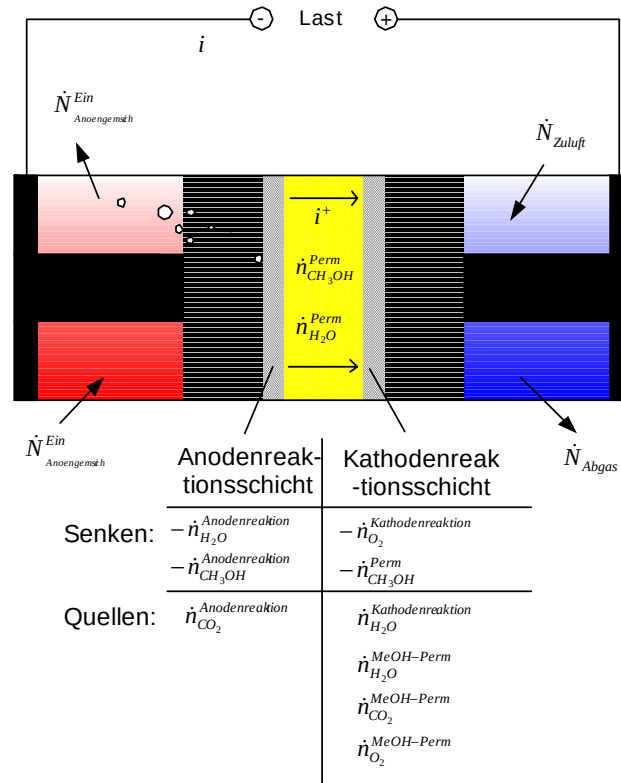


Bild 2.3: Stoffströme und –umsätze in der DMFC

Die bei der Anodenreaktion umgesetzten Stoffmengen ergeben sich aus dem Faraday'schen Gesetz:

$$\dot{n}_{\text{CH}_3\text{OH}}^{\text{Anodenreaktion}} = -\frac{i}{6 \cdot F} \quad (2.12)$$

$$\dot{n}_{\text{CO}_2}^{\text{Anodenreaktion}} = \frac{i}{6 \cdot F} \quad (2.13)$$

$$\dot{n}_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{Anodenreaktion}} = -\frac{i}{6 \cdot F} \quad (2.14)$$

Die Brennstoffversorgung wird über die Stoffmengenkonzentration des Methanols im zugeführten Anodengemisch sowie durch den Anodenvolumenstrom beschrieben.

Auf der Kathodenseite wird Luft oder reiner Sauerstoff zugeführt. Sauerstoff reagiert zusammen mit Protonen und Elektronen am Platin-Katalysator nach Gleichung (2.2) zu Wasser. Die bei der Kathodenreaktion umgesetzten Molenströme ergeben sich aus dem Faraday'schen Gesetz:

$$\dot{n}_{O_2}^{Kathodenreaktion} = -\frac{i}{4 \cdot F} \quad (2.15)$$

$$\dot{n}_{H_2O}^{Kathodenreaktion} = \frac{i}{2 \cdot F} \quad (2.16)$$

Bei der kathodischen Reaktion ist die Luftzahl definiert als Verhältnis des zugeführten Sauerstoffmolenstroms zum stöchiometrisch notwendigen Sauerstoffmolenstrom:

$$\lambda_K = \frac{\dot{n}_{O_2}^{Zuluft}}{\dot{n}_{O_2}^{Kathodenreaktion}} \quad (2.17)$$

2.1.2 Elektrochemischen Methanoloxidation

Die elektrochemische Methanolumsetzung verläuft über mehrere Zwischenschritte. Die Grundschrirte sind in [9] angegeben. Ein Zwischenprodukt ist auf Platin adsorbiertes Kohlenmonoxid, das die Platinkatalysatorplätze irreversible blockieren kann. Daher ist die Präsenz Rutheniums erforderlich, um das Kohlenmonoxid mit OH-Gruppen weiter oxidieren zu lassen. Der Ruthenium-Anteil im Katalysator liegt bei etwa 50 Atom-%. Zusätzlich entstehen in geringen Mengen weitere Nebenprodukte wie Formaldehyd, Ameisensäure und Methylformiat, die in den Anodenkreislauf gelangen können [10, 11]. Die Reaktionsrate der Methanoloxidation ist um 3-4 Größenordnungen langsamer als die Wasserstoffoxidation [12]. Die Edelmetallbelegung liegt bei 2-4 mg/cm². Katalysatoren wie dreifache (Pt/Ru/Os) oder vierfache (Pt/Ru/Os/Ir) Legierungskompositionen versprechen eine höhere Aktivität und werden derzeit weiterentwickelt [13].

2.1.3 Methanolpermeation

Die molekulare Ähnlichkeit zu Wasser begünstigt die Aufnahme von Methanol in der Membran und führt zu einem Transport von Brennstoff zur Kathode. Dort wird das Methanol am Platin-Katalysator oxidiert. Dadurch stellt sich an der Kathode ein Mischpotenzial ein, das zwischen den Ruhepotenzialen der Methanoloxidation und der Sauerstoffreduktion liegt und einen Spannungsverlust der Zelle bedeutet [14]. Das an der Kathode oxidierte Methanol trägt nicht zur Gewinnung von elektrischer Energie bei und wird daher nicht durch das Faraday'sche Gesetz erfasst. Der Methanolverluststrom wird im so genannten Faraday'schen Wirkungsgrad erfasst:

$$\eta_F = \frac{\dot{n}_{CH_3OH}^{Anodenreaktion}}{\dot{n}_{CH_3OH}^{Anodenreaktion} + \dot{n}_{CH_3OH}^{Perm}} \quad (2.18)$$

Der Methanolpermeationsstrom wird auch als Permeationsstromdichte i_{Perm} angegeben:

$$i_{Perm} = \dot{n}_{CH_3OH}^{Perm} \cdot 6 \cdot F \quad (2.19)$$

Der Gesamtwirkungsgrad der Stromerzeugung einer Brennstoffzelle ergibt sich unter Berücksichtigung der Methanolpermeation zu

$$\eta_{\text{Zelle}} = \eta_F \cdot \eta_U \cdot \eta_{\text{th}} \quad (2.20)$$

und wird im weiteren Verlauf Zellwirkungsgrad genannt. Dieser Wirkungsgrad kann direkt mit dem thermischen Wirkungsgrad von Wärmekraftanlagen verglichen werden. Durch die Oxidation des Methanols auf der Kathodenseite ergeben sich gemäß der Reaktionsstöchiometrie folgende Stoffumsätze:

$$\dot{n}_{\text{O}_2}^{\text{MeOH-Perm}} = -\frac{i_{\text{Perm}}}{4 \cdot F} \quad (2.21)$$

$$\dot{n}_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{MeOH-Perm}} = \frac{i_{\text{Perm}}}{3 \cdot F} \quad (2.22)$$

$$\dot{n}_{\text{CO}_2}^{\text{MeOH-Perm}} = \frac{i_{\text{Perm}}}{6 \cdot F} \quad (2.23)$$

Die Methanolpermeation ist von der Zelltemperatur, der Methankonzentration und der Stromdichte [15] abhängig. Der Betrieb der DMFC mit einer vom stöchiometrischen Verhältnis von 1:1 abweichenden Methanol-Wasser-Lösung kann die Methanolpermeation wirkungsvoll begrenzen. Üblicherweise liegt die Methankonzentration im Bereich von 0,3 – 1 M.

In der Katalysatorschicht auf der Kathodenseite wird Platin als Katalysator eingesetzt. Der Einfluss des Methanols auf die Reduktion des Sauerstoffs ist bislang nicht ausreichend geklärt. Wegen der Methanolpermeation und des hohen Anfalls von flüssigem Wasser liegt der Katalysatorbedarf deutlich höher als bei der PEM-Technologie (0,4 mg/cm² [16]). Derzeit liegt die Belegung bei etwa 2 mg/cm². Methanol-insensitive Katalysatoren werden derzeit entwickelt [9].

2.1.4 Wasserpermeation

Bei Polymermembranen, deren Protonenleitung auf einen Wasseranteil in der Membran angewiesen ist, tritt Wasserpermeation auf. Die Wasserpermeation setzt sich aus dem elektroosmotischen und dem diffusiven Wasserstrom zusammen. Beim elektroosmotischen Transport dient das durch die Membran wandernde hydratisierte Proton als Vehikel für den Wassertransport. Dieser Transportmechanismus wird auch als elektroosmotischer Drag bezeichnet. Mit Hilfe der Transportzahl t_{Trans} , die die Anzahl der pro Proton transportierten Wassermoleküle wiedergibt, kann der elektroosmotische Wasserstrom berechnet werden:

$$\dot{n}_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{EOD}} = t_{\text{Trans}} \cdot \frac{i}{F} \quad (2.24)$$

Die Transportzahl, auch elektroosmotischer Drag genannt, ist abhängig von dem Membrantyp, dem Wassergehalt der Membran und der Temperatur. Die Transportzahl steigt von etwa 2,1 bei 20 °C auf 3,4 bei 80 °C (Nafion[®] 117 NW 1200, [17]). Unter Berücksichtigung der Gleichung (2.1) ergibt sich pro Mol umgesetztes Methanol bei 80 °C ein anodischer Wasserverlust von mindestens 21,4 Mol, der systemtechnisch wieder ausgeglichen werden muss. Dieses große Wasseraufkommen auf der

Kathode führt ebenso zu einer Blockierung der Sauerstoffversorgung. Vorteilhaft zu werten ist jedoch die verbesserte Versorgung der Anode mit Brennstoff aufgrund des konvektiven Wasserstroms zur Elektrode, der die langsame Methanoldiffusion in flüssigem Wasser kompensiert.

Der durch den Protonenfluss induzierte Wassertransport durch die Membran führt zu dem so genannten Flooding der kathodischen Katalysator- und Diffusionsschicht. Dieses ist bei der PEFC auch bekannt, tritt jedoch hier wegen der Rückdiffusion des Wassers zur Anode und der geringeren Transportzahl (<1) nur bei hohen Stromdichten ($> 1 \text{ A/cm}^2$) auf [18]. Bei der DMFC führt der Betrieb schon bei geringen Stromdichten zu einer Blockierung der Gaspfade in der Katalysator- und Diffusionsschicht. Dies führt zu einer signifikanten Beschränkung der Zelleistung [19, 20]. Daher wäre der Betrieb einer gasförmigen DMFC vorteilhaft, da hier ein ähnliches Verhalten wie bei einer mit Wasserstoff betriebenen Brennstoffzelle und somit eine geringere Wasserpermeation zu erwarten sind.

Die hohe Methanol- und Wasserpermeation limitieren die Leistungsdichte und den Wirkungsgrad der DMFC. Derzeitige Forschungsaktivitäten setzen bei der Entwicklung neuer Membranen an diesen Grundproblemen an. Eine Möglichkeit ist es, durch Einbringen von Additiven wie zum Beispiel Silica-Gel die Nafion[®]-Membran in ihren Eigenschaften gezielt zu verändern. Auch die Kombination von Sperrschichten in Verbindung mit Nafion[®] geht diesen Weg. Das Ziel ist es, die Wasser- und Methanolpermeation zu verringern und dabei gleichzeitig die gute Protonenleitfähigkeit des Nafion[®]s auszunutzen. Das partiell flourinierte Polymer BAM3G von Ballard wurde bisher nur bei PEM-Brennstoffzellen getestet und hat dort gute Beständigkeit gezeigt. Der Einsatz bei der DMFC ist geplant. Zu den nicht-flourinierten Membranen ohne PTFE-Gerüst gehören sPEEK und PBI. sPEEK ist in DMFCs mit ähnlichen Leistungsmerkmalen wie Nafion[®] getestet worden. PBI zeigt eine geringere Methanolpermeation als Nafion[®]. Die Langzeitstabilität ist jedoch noch nicht nachgewiesen.

2.1.5 Aufbau von Membran-Elektroden-Einheiten und Verschaltung zu Stacks

Eine Membran-Elektroden-Einheit (MEA), die beidseitig von Platten mit einer Verteilerstruktur verpresst ist, bildet die Grundeinheit einer DMFC (siehe Bild 2.1). Die MEA basiert auf einer Sandwichstruktur, deren Kern eine Polymermembran bildet. Beidseitig mit der Membran stoffschlüssig verbunden sind die Katalysator- sowie die Diffusionsschichten. Der Verbund der Schichten zu einer Membran-Elektroden-Einheit erfolgt zumeist über einen Heißpressvorgang. Dabei werden zwei unterschiedliche Herstellprozeduren unterschieden. Die eine Möglichkeit ist, die Katalysatorschicht mittels eines Lösungsverfahrens auf die Membran aufzubringen. Dies ergibt eine CCM (Catalyst Coated Membrane), die dann mit der Diffusionsschicht verpresst wird. Bei der anderen Prozedur wird zuerst eine Gasdiffusionselektrode hergestellt, die aus einer Diffusionsschicht mit einer einseitig aufgetragenen Katalysatorschicht besteht. Die Gasdiffusionselektrode bildet mit der Membran nach einem Pressvorgang wiederum die MEA.

Polymerelektrolyt

Der Polymerelektrolyt hat die Aufgabe, die Protonen von der Anode zur Kathode zu leiten und die beiden Reaktionsräume gegeneinander abzudichten. Gute Leitfähigkeit bei geringer Methanol- und Wasserpermeation sind ideale Voraussetzungen für den Einsatz einer Membran in einer DMFC.

Nafion® ist zurzeit das Standardmaterial für die PEM-Technologie und findet auch vorwiegend bei der DMFC Verwendung. Nafion® ist ein perfluoriertes Polymer, das 1960 von der Firma Dow Chemical ursprünglich für den Einsatz in der Chlor-Alkali-Elektrolyse entwickelt wurde. Die Struktur basiert auf einem PTFE-Gerüst, das der Membran eine sehr gute chemische und mechanische Stabilität verleiht. Im Brennstoffzellenbetrieb sind die Mikroporen des Nafion®s mit Wasser gefüllt und gewährleisten so den Protonentransport. Bei Austrocknen der Membran nimmt deren Leitfähigkeit rapide ab. Nachteilig ist die Durchlässigkeit der Nafion®-Membran für Methanol und Wasser.

Katalysatorschicht

Die beiden Katalysatorschichten bilden die reaktiven Zentren für die Anoden- und Kathodenreaktion. Diese finden an den Dreiphasengrenzen statt. Diese wird von der Kontaktstelle zwischen Elektrolyt, Elektrode und Fluid gebildet. Je größer die Fläche der Dreiphasengrenze und je besser die Versorgung mit den Edukten, desto geringer sind die Überspannung und die Verluste. Die Katalysatorschicht ist ein eng mit der Membran verbundenes poröses Gefüge. Eine Mischung aus geträgertem oder ungeträgertem Katalysator wird mit Graphitpulver und einem Binder zu einer Paste verarbeitet und entweder direkt auf die Membran oder auf die Diffusionsschicht aufgetragen und getrocknet. PTFE- oder Nafion®-Lösung oder eine Kombination aus beidem können als Binder dienen. Der Nafion®-Anteil führt zu einem Aufbau von Ionenleitpfaden innerhalb der Schicht. Über das Graphit werden die Elektronen abgeleitet. Die Beigabe von PTFE bewirkt eine Hydrophobisierung der Poren. Dies ist wichtig, um den Gastransport zur Reaktionszone zu gewährleisten. Die Porosität ist von dem Trocknungsverfahren und der Pastenzusammensetzung abhängig. Die hohe Katalysatorbelegung führt verglichen mit Wasserstoff betriebenen Brennstoffzellen zu einer größeren Schichtdicke. Dies erschwert die lokal gleichmäßige Versorgung mit allen Reaktionspartnern erheblich. Eine stark inhomogene Verteilung der elektrochemischen Aktivität kann die Folge sein. Dies führt zu höheren Transportverlusten oder einer schlechteren Ausnutzung des Katalysatorangebotes [8].

Diffusionsschicht

Die Diffusionsschicht hat die Aufgabe, den Stromfluss zu ermöglichen und Edukte beziehungsweise Produkte abzuleiten. Daher wird die Diffusionsschicht grobporiger als die Katalysatorschicht ausgeführt. Die Diffusionsschichten bestehen zumeist aus Kohlefasergeweben oder Kohlepapier. Um die Kontaktierung zu verbessern oder die Hydrophobizität zu verändern, wird die Schicht mit einer Lösung aus PTFE und/oder Kohle getränkt.

Bei der Gestaltung der anodischen Diffusionsschicht muss der notwendige Abtransport der entstehenden Gasblasen berücksichtigt werden. Eine experimentelle Untersuchung [21] zeigt bei einer hydrophilen Anodenkatalysatorschicht eine etwa doppelt so hohe Leistungsdichte aufgrund verbesserten Massentransports. Dies weist auf eine Verbesserung von Gasaustrag und Methanolversorgung hin. Eine Blockierung der Diffusionsfläche und der einzelner Kanäle mit Gasbläschen sollte vermieden werden. In [22] wird die Bildung von Blasen und deren Abtransport auf der Anode während des Zellbetriebes dokumentiert. Eine hohe Strömungsgeschwindigkeit in den Verteilerkanälen und eine hydrophile Diffusionsschicht sind vorteilhaft. Bei einer turbulenten

Kanalströmung verbessert sich der Stofftransport zur Reaktionszone deutlich. Dieses muss jedoch mit der höheren erforderlichen Pumpleistung ins Verhältnis gesetzt werden.

Bei der Gestaltung der kathodischen Diffusionsschicht sind die Versorgung der Reaktionszone mit Sauerstoff und der Abtransport des Wassers durch die Verteilerstruktur entscheidend. [22] und [23] zeigen die Bildung und den Abtransport flüssiger Wassertropfen aus der Diffusionsschicht. Große Wassertropfen können einzelne Kanäle blockieren und so zu einer Unterversorgung mit Sauerstoff führen.

Versorgungsstrukturen und Stackaufbau

Die Verteilerstrukturen haben die Aufgabe, die Edukte möglichst homogen über die reaktive Fläche zu verteilen und die Produkte effektiv abzuführen. Dies wird über Kanalstrukturen realisiert, die entweder direkt in die Bipolar-/Endplatten oder in eine zusätzliche Strukturplatte eingearbeitet sind. Die Verteilerstrukturen sind den unterschiedlichen Medien auf Kathoden- und Anodenseite angepasst. Sind mehrere Zellen zu einem Stack verschaltet, verbinden zumeist mit im Stack integrierte Zufuhr- und Abfuhrleitungen die Verteilerstrukturen. Insbesondere auf der Kathodenseite werden auch so genannte offene Verteilerstrukturen eingesetzt, bei denen über eine äußere Versorgung beziehungsweise Entsorgung auf die Kanäle zugegriffen wird. Bipolarplatten verschalten die Zellen elektrisch und mechanisch zu Stapeln, die von zwei massiven Endplatten über Zuganker zusammengepresst werden. Über die Bipolarplatten werden zum einen die Einzelzellen elektrisch in Reihe geschaltet und zum anderen sorgt die gute Wärmeleitfähigkeit für den notwendigen Wärmetransport zwischen der Kathode und der Anode. Das so genannte monopolare Stackdesign verschaltet die Zellen über nach außen geführte Stromabnehmer. Dadurch werden von einer Kanalstruktur jeweils zwei Elektroden versorgt. Das monopolare Stackdesign ist sehr kompakt, ist aber aufgrund der höheren ohmschen Verluste nur bei Anwendungen mit geringeren Stromdichten wie zum Beispiel bei Mobiltelefonen von Vorteil [24]. Ebenfalls sehr kompakt und eher für portable Anwendungen geeignet ist das planare Konzept. Hier werden auf einer zusammenhängenden Membranfläche die einzelnen Elektroden nebeneinander aufgebracht und elektrisch über Stromabnehmer verschaltet. Es sind keine Bipolar- oder Endplatten notwendig. Bild 2.4 stellt die Schaltungstypen dar.

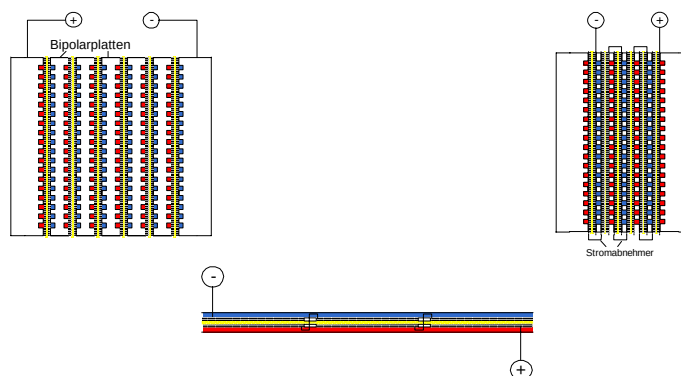


Bild 2.4: Bipolare (oben rechts), monopolare (oben links) und planare (unten) Stackkonfiguration

2.1.6 Stand der Entwicklung von DMFC-Stacks

Die größten Entwicklungsaktivitäten liegen zurzeit in einem Leistungsbereich von 0,1 W bis 50 W für portable Kleinsysteme im „Consumer Electronics“-Segment. Die Schwerpunkte liegen in den im vorherigen Abschnitt diskutierten Problemfeldern der DMFC-Technologie. Hersteller von Mobiltelefonen oder Laptops wie Samsung, Toshiba und Motorola sowie Forschungseinrichtungen wie das Korean Institute of Energy Research und das ISE in Freiburg sind in diesem DMFC-Leistungsbereich aktiv. MTI-MicroFuelcells als Ausgründung des Los Alamos National Laboratory (LANL, USA) hat ebenfalls Kleinsysteme vorgestellt. Jedoch hat bisher von diesen Prototypen keiner die Marktreife erreicht. Die DMFC für Kleinsysteme besteht aus nur einer Zelle oder mit nach dem planaren Konzept verschalteten mehreren Zellen. Das Ziel der Zellentwicklung ist es, das periphere System soweit wie möglich zu minimieren. MTI-MicroFuelcells berichtet über die Realisierung eines Kleinsystems mit internem Wassermanagement und Selbstatmung. Nur eine Brennstoffpumpe, die pures Methanol in die Zelle fördert, wird als aktives Element eingesetzt [25]. Neuentwicklungen von Toshiba und Samsung können aufgrund einer optimierten MEA-Struktur mit reinem Methanol betrieben werden [26]. Ebenso werden neue Membrantechnologien mit geringerer Methanoldurchlässigkeit getestet. Wegen der moderaten Stromdichten wirkt sich die gleichzeitig schlechtere Protonenleitfähigkeit der neuen Membranen nicht nachteilig auf den Zellwirkungsgrad aus. Die Betriebstemperatur liegt leicht über Umgebungstemperatur und die Abwärme wird über natürliche Konvektion abgeführt. Das interne Wassermanagement als auch die Minimierung der Methanolpermeation begrenzen die Stromdichte und somit die Leistungsdichte der DMFCs für Kleinsysteme. Die Leistungsdichte liegt bei 10-50 mW/cm² im Luftbetrieb [9]. Smart Fuel Cells hat ein 50 W-System 2004 bis zur Marktreife entwickelt, bei dem zu vermuten ist, dass es vom Systemkonzept eher den Systemen > 150 W ähnelt.

Im Bereich höherer Leistungsanforderungen > 150 W übernimmt das periphere System Aufgaben, die bei den Kleinsystemen im Stack realisiert werden. Hierdurch kann im Stack die Leistungsdichte deutlich gesteigert werden (Siehe Tabelle 2.4). Wegen des Einflusses auf den Bauraum und den parasitären Verbrauch des peripheren Systems sind Luftbedarf und kathodischer Druckverlust wichtige Parameter beim Stackdesign. Die aufgeführten Stackkonzepte basieren auf Nafion®-Membrantechnologie. Sie werden auf der Kathode mit trockener Luft betrieben. Auf der Anodenseite wird ein stark verdünntes Methanol-Wasser-Gemisch zugeführt, um die Methanolpermeation zu begrenzen. Das Anodenabgas wird über das Anodengemisch aus dem Stack herausgeführt. Die Betriebstemperatur liegt im Bereich von 60 °C bis 80 °C. Die Stacks werden drucklos betrieben.

Das Los Alamos National Laboratory (LANL, USA) arbeitet an Stacks > 150 W unter anderem für den Einsatz als Hilfsstromaggregat (Auxiliary Power Unit (APU)). Die Stacks können mit niedriger Luftzahl (<2) betrieben werden. Auf Basis eines getesteten 6-Zellers mit einer Leistung von 140 W soll ein 500 W-Stacks mit 3,2 kg Gewicht und einem Zellwirkungsgrad von 40 % entwickelt werden [27]. Die Zelldicke beträgt nur 1,4 mm. Das Jet Propulsion Laboratory (JPL, USA) entwickelte in Zusammenarbeit mit Giner Inc. innerhalb eines DARPA (*Defense of Advanced Research Project Agency*) -Projektes einen Stack der 1-kW-Klasse, der sich ebenfalls mit einer Luftzahl kleiner 2 betreiben lässt [28]. Smart Fuel Cells bietet DMFC-Systeme im Bereich 25-100 W an. Leistungsdaten bezüglich der eingesetzten Stacktechnologie sind nicht verfügbar. Das Forschungszentrum Jülich hat

2004 einen optimierten Stack mit einer elektrischen Leistung von 1,8 kW und einem geringeren Luftbedarf vorgestellt. Tabelle 2.4 gibt eine Übersicht der Stackentwicklung bei LANL und JPL im Vergleich zum Forschungszentrum Jülich.

Tabelle 2.4: Kennzahlen aktueller Stackentwicklungen
(Kennzahlen bezogen auf eine Stacktemperatur von 80°C)

Forschungsgruppe	Stromdichte bei 400 mV / Leistungsdichte bei 400 mV	Absolute und Spezifische Leistung	Katalysator- belegung	Luftzahl Kathode	Methanol- Konzentration
LANL 2004 [27]	250 mA/cm ² 100 mW/cm ²	500 W 150 W/kg	0,6 mg/cm ² Ka	1,5-2,5	0,3
Forschungszentrum Jülich 2004 [29]	200 mA/cm ² 80 mW/cm ²	1700 W 110 W/kg	2 mg/cm ² An 2 mg/cm ² Ka	4	0,5
JPL 2004 [28] (Von 60 °C auf 80 °C umgerechnet)	205 mA/cm ² 82 mW/cm ²	150 W 70 W/kg		<2	0,5

Ein Schwerpunkt der Weiterentwicklung der DMFC-Stacks größerer Leistung liegt bei der weiteren Reduktion der Edelmetallbelegung bei gleichzeitiger Anhebung der Leistungsdichte. Des Weiteren muss die Degradation der MEAs minimiert werden. Die vom LANL entwickelten Stacks erreichen bereits eine Lebensdauer von 3000 Stunden bei einem Leistungsverlust von 15 % [30].

2.1.7 Relevante Betriebsparameter und charakterisierende Kennzahlen

Der DMFC-Stack wird in Bild 2.5 als Systemkomponente mit Eingangsgrößen, ablaufenden Prozessen und Ausgangsgrößen beschrieben. Die Eingangsgrößen sind die relevanten Betriebsparameter, die die Prozesse beeinflussen. Die Prozesse innerhalb der DMFC produzieren die Ausgangsgrößen, die durch Kennzahlen charakterisiert werden können.

Im weiteren Verlauf der Arbeit werden folgende Betriebsparameter betrachtet:

- Stacktemperatur (Mittlere Temperatur des Anodengemisch am Eintritt und Austritt)
- Zellspannung / Stromdichte
- Druck Anode / Kathode
- Luftzahl
- Sauerstoffkonzentration
- Methanolkonzentration
- Anodendurchfluss

Die Prozesse bilden die elektrochemische Energieumwandlung, die Methanolpermeation und die Wasserpermeation. Sie werden durch die in Bild 2.5 dargestellten Kennzahlen beschrieben. Die U-i-Kennlinie beschreibt die Leistungsfähigkeit einer Einzelzelle beziehungsweise eines Stacks. Je nach Anwendung ist jedoch nur ein Teilbereich der Kennlinie interessant. Hierfür können aus der U-i-Kennlinie der Spannungswirkungsgrad und die auf die Zellfläche bezogene Leistungsdichte abgeleitet werden. Der Spannungswirkungsgrad erfasst die Güte der elektrochemischen Energieumwandlung. Die Leistungsdichte ist ein Maß der Ausnutzung der Membranfläche. Die Methanolpermeation beeinflusst zum einen die U/i-Kennlinie. Zum anderen führt die Permeation zu einem Brennstoff- und Wirkungsgradverlust, der über den Faraday'schen Wirkungsgrad beschrieben wird. Die Wasserpermeation hat ebenfalls Einfluss auf die U/i-Kennlinie und bewirkt eine Zunahme des Wasserverlustes auf der Anode.

Die Schlüsselkennzahlen der DMFC sind zum einen die elektrische Leistung und der Zellwirkungsgrad. Zum anderen die spezifische Leistung und die Leistungsdichte, die Gewicht und Baugröße beschreiben. Druckverluste auf der Anode und Kathode sind wichtig für den parasitären Verbrauch des Kathodengebläses und der Umwälzpumpe. Der anodische Wasserverlust muss systemtechnisch ausgeglichen werden.

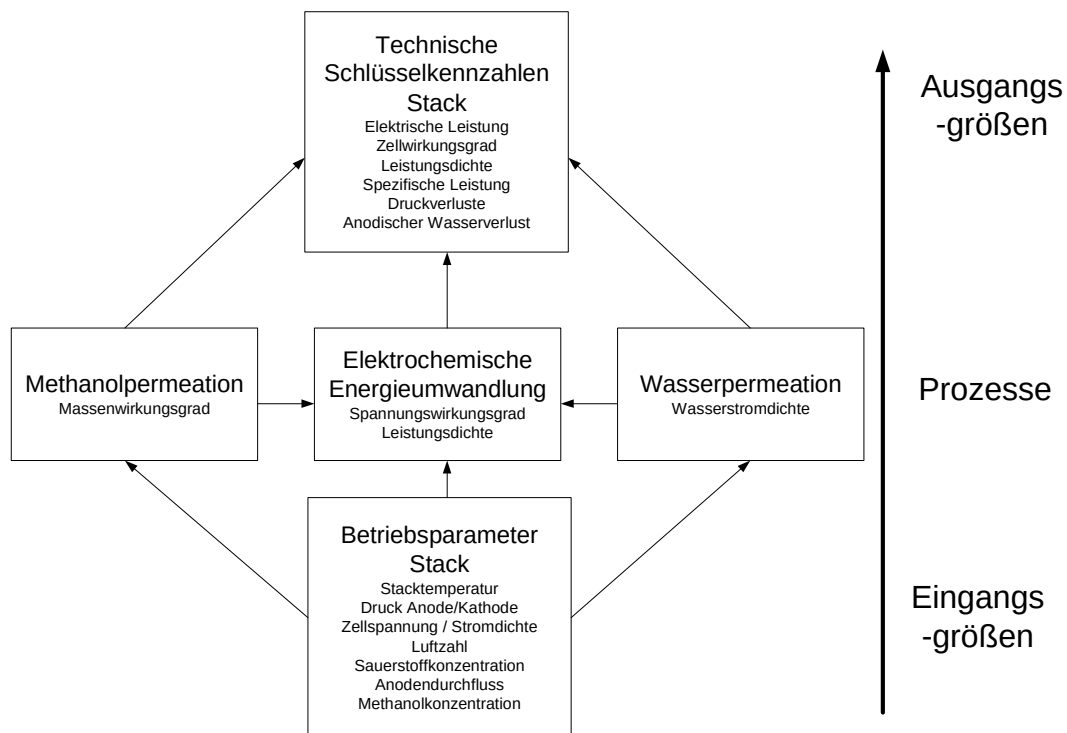


Bild 2.5: Betriebsparameter, Prozesse und technische Schlüsselkennzahlen der Systemkomponente DMFC-Stack

Im weiteren Verlauf des Verfahrenentwurfs und der Systemanalyse ist eine genaue Beschreibung des Verhaltens des Stacks und damit der drei Prozesse notwendig. Dies liefert eine Modellierung des Stacks, die die Abhängigkeiten der Schlüsselkennzahlen von den Betriebsparametern wiedergibt.

Zusätzlich haben konstruktive Parameter Einfluss auf die Schlüsselkennzahlen. Im Rahmen dieser Arbeit werden jedoch nur die Abhängigkeiten von den Betriebsparametern betrachtet. Sie bieten den Handlungsrahmen und die Freiheitsgrade zur Optimierung der Schlüsselkennzahlen des Stacks und des Gesamtsystems.

Die die Lebensdauer des Systems beeinflussende Alterung des Stacks wird im Rahmen dieser Arbeit nicht betrachtet. Eine Untersuchung der Einflüsse der Betriebsparameter auf die Alterung und eine eventuelle Optimierung im Hinblick auf minimale Alterung ist daher nicht möglich.

2.2 Systeme für flüssig betriebene DMFCs

2.2.1 Grundlegender Aufbau und Stand der Entwicklung

Im „Consumer-Electronics“-Bereich kann eine DMFC als Akku-Ersatz im Leistungsbereich von 0,1 W bis 50 W eingesetzt werden. Die Anforderungen für diese Kleinsysteme orientieren sich an der vorhandenen Speichertechnologie, den Lithium-Ionen-Akkus. Wichtig sind Leistungs- und Energiedichte des Systems, jedoch auch die Robustheit gegenüber der Orientierung und die Begrenzung auf moderate Betriebstemperaturen. Die für Kleinsysteme entwickelten DMFCs lösen intern das Wassermanagement und die Kohlendioxidabscheidung. Der Oxidans wird über natürliche Konvektion zugeführt. In Bild 2.6 ist ein typisches Beispiel für ein Kleinsystem zu sehen. Als einzige periphere Komponenten sind Methanoltank, DC/DC-Wandler, Steuerung und eine Methanolzuführung notwendig [25]. Die Miniaturisierung von Flüssigkeitspumpen ist schon weit fortgeschritten. Pumpen basierend auf Piezoantriebstechnik sind erhältlich [31]. Nachteilig ist jedoch der schlechte Wirkungsgrad der Mikropumpen. Die Brennstoffzufuhr kann auch passiv über ein Kapillarsystem zur Anode erfolgen. Die Blasenproduktion auf der Anode kann als eine weitere Triebkraft für den Fluidtransport genutzt werden [32]. Die von DMFC-Kleinsystemen demonstrierten Leistungsdichten reichen momentan noch nicht an die von Lithium-Ionen-Akkus heran (siehe Tabelle 2.5). Bezieht man jedoch die Austauschbarkeit der Tanks eines DMFC-Systems mit ein, ist die jetzige DMFC-Technologie in Bezug auf Laufzeit den Lithium-Ionen-Akkus überlegen.

Tabelle 2.5: DMFC-Kleinsysteme < 50 W

	DOE Ziele 2008 [33]	Lithium- Ionen- Akku 2002 [33]	Toshiba 2005 [26]
Leistung [W]	<50 W	-	0,1
W/kg	30	50	11,8
W/l	30	60	13,5
Wh/l	500	150	270
Wirkungsgrad	-	-	19,8 %
Lebensdauer	1000	300-500 Zyklen	-

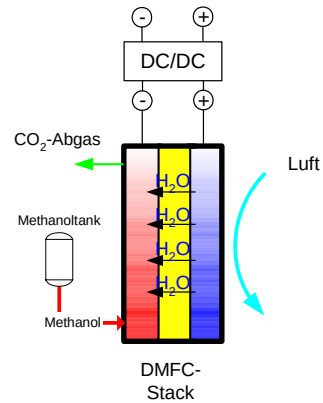


Bild 2.6: Beispielhaftes DMFC-Kleinsystem

Ein weiteres Anwendungsfeld für DMFC-Systeme liegt im Bereich portabler, transportabler und mobiler Strombereitstellung. Dies entspricht einem Leistungsbereich von 150 W bis etwa 5 kW. In diesem Bereich ist zum Betrieb der Stacks ein komplexeres peripheres System notwendig.

Bild 2.7 zeigt einen beispielhaften Systemaufbau. An ihm sollen im Folgenden die Aufgaben des peripheren Systems erläutert werden.

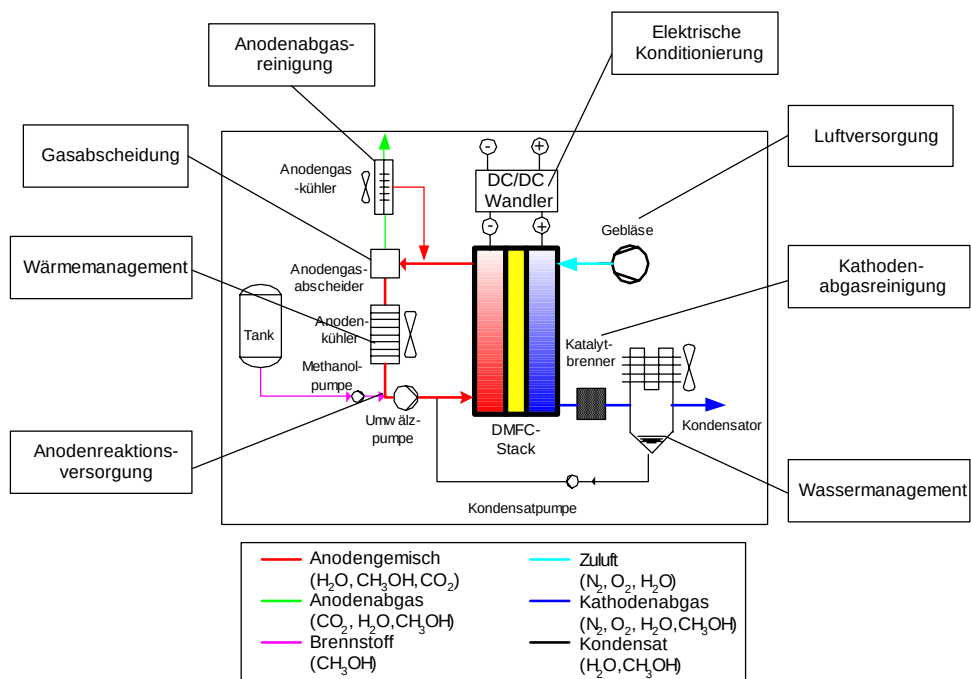


Bild 2.7: Beispielhafter Systemaufbau eines DMFC-Systems mit Erläuterung der Aufgaben des peripheren Systems

Die **Anodenreaktionsversorgung** verschaltet die Anode des Stacks zu einem Kreislauf, in dem ein Wasser-Methanol-Gemisch zirkuliert. Die Brennstoffversorgung bestehend aus Methanoldosierpumpe und Tank kompensiert den Methanolverlust im Kreislauf. Die Methanolkonzentration liegt üblicherweise zwischen 0,3 M und 1 M. Um die Methanolkonzentration im Anodenkreislauf zu regeln, ist ein Methanolsensor erforderlich. Dazu sind einige Verfahren zur Methanolkonzentrationsmessung entwickelt worden. Eine Möglichkeit bietet eine kleine Brennstoffzellenmesszelle, die ein von der Methanolkonzentration abhängiges elektrisches Potenzial erzeugt [34]. Siemens hat mehrere Patente zur Messung verschiedener physikalischer Stoffeigenschaften angemeldet [35]. Bis jetzt ist jedoch kein kommerziell erhältlicher Methanolsensor mit geringen Kosten verfügbar [36].

Bei Zellbetrieb entsteht ein Anodenabgas, das über das Anodengemisch aus dem Stack transportiert wird. Die **Gasabscheidung** trennt das Anodengas von dem Anodengemisch und führt es aus dem Anodenkreislauf. Dabei steht die möglichst komplette Kohlendioxidabscheidung mit minimalem Brennstoffverlust im Vordergrund. Das abgeschiedene Anodenabgas enthält neben Kohlendioxid auch Wasserdampf und Methanol. Dies führt zu einem zusätzlichen Brennstoff- und Wasserverlust. Beim Einleiten des Anodenabgases in die Atmosphäre müssen Grenzwerte für die Emission von Kohlenwasserstoffen beachtet werden. Beide Aspekte werden bei der **Anodenabgasreinigung** adressiert. Im vorliegenden Beispiel wird ähnlich einem Systementwurf von JPL [37] ein Anodenabgaskondensator zur Rückgewinnung des Methanols verwendet. DaimlerChrysler publizierte Anlagenentwürfe, die zur Erhöhung der Leistungsdichte den druckaufgeladenen Betrieb bei Temperaturen bis 130 °C ermöglichen. Der bei den hohen Temperaturen hohe Methanolverlust über das Anodenabgas wird durch eine zweistufige Kühlung mit Methanolrückgewinnung vermindert. In [38] beschreibt Siemens die Abtrennung von Kohlendioxid von Wasser und Brennstoff mittels einer Brennstoffzelle ähnlichen Trennanlage. Siemens hat sich auch ein Konzept zur Methanolrückgewinnung mittels Gaswäsche in einem porösen Element patentieren lassen [39]. Smart Fuel Cells beschreibt in einer Patentanmeldung [40] einen Aufbau bei dem die kathodische Wasserabtrennung und die anodische Gasabscheidung so in einem Behälter kombiniert sind, dass die abgetrennten Gasblasen durch das abgeschiedene Kathodenkondensat perlen und dabei Methanol in das Kondensat übergeht.

Das **Wärmemanagement** ermöglicht den Betrieb des Stacks bei einer vorgegebenen Temperatur. Dies heißt, dass die im Stack produzierte Abwärme abgeführt werden muss. Im Beispielsystem ist dafür ein Kühler im Anodenkreislauf vorgesehen. Als zusätzliche Aufgabe des Wärmemanagements kann die Aufheizung beim Anfahren genannt werden. Die Stackabwärme bewirkt eine Aufwärmung des Systems, die durch eine elektrische Heizung ergänzt werden kann [37].

Das **Wassermanagement** hat die Aufgabe, für einen Ausgleich des anodischen Wasserverlustes zu sorgen. Hierzu muss das im Kathodenabgas dampfförmig und flüssig vorliegende Wasser in ausreichender Menge abgetrennt werden. In den meisten Systementwürfen wird ein luftgekühlter Kondensator verwendet [37, 41]. JPL hat speziell für ein DMFC-System einen keramischen Kondensator zur Wasserrückgewinnung entwickelt [37]. Der Kondensator zeigt eine gute Materialbeständigkeit und senkt den elektrischen Leistungsbedarf des Kühlgebläses von über 100 W

auf 38 W für ein 1-kW-DMFC-System. In einem Systementwurf des Forschungszentrums Jülich [42] ist ein Befeuchtermodul vorgesehen, das Wasser auf die Zuluft überträgt. Das auf der Abgasseite des Befeuchtermoduls anfallende flüssige Wasser kann abgetrennt und der Anode zugeführt werden. Das Modul ist kombiniert mit einer katalytischen Beschichtung auf der Abgasseite. Diese **Kathodenabgasreinigung** ist notwendig, wenn das Kathodenabgas Methanol und andere Kohlenwasserstoffe enthält. In [43] durchgeführte Messungen haben Methanol und das Oxidationszwischenprodukt Ameisensäure im Kathodenabgas nachgewiesen. Im Systembeispiel ist hierfür ein dem Kondensator vorgeschalteten Katalytbrenner zur Oxidation der Kohlenwasserstoffe vorgesehen.

Die **Luftversorgung** realisiert die vom Stack geforderte Luftzahl. Für die Luftversorgung von Brennstoffzellensystemen mit Druckverlusten, die keinen Einsatz von Radiallüftern mehr erlauben, werden neue Kompressoren entwickelt (zum Beispiel von Vairex Corp. und Firma UniVane). Das für einen Motorroller entwickelte DMFC-System arbeitet mit einem Einzellenverdichter der Firma UniVane [44]. Die Zuluft sollte frei von Grobpartikeln und Ölen sein. Eine Befeuchtung der Zuluft wie bei PEFC-Systemen ist bei einer flüssig betriebenen DMFC nicht erforderlich. Die Elektrolyt-Membran ist von der Anode ausreichend befeuchtet.

Da die Brennstoffzelle weder eine Spannungsquelle noch eine Stromquelle darstellt, muss eine **elektrische Konditionierung** einen geregelten Strom oder Spannung einstellen. Ein DC/DC-Wandler kann bei variablen Eingangsspannungen von der Brennstoffzelle eine konstante Ausgangsspannung für den elektrischen Verbraucher bereitstellen. In [45] wird eine parallele Kopplung der Brennstoffzelle mit einer Batterie vorgeschlagen, um den Spannungsausgang in einem kleineren Bereich zu halten.

Zusätzliche Anforderungen an ein kommerzielles DMFC-System liegen im Bereich der Schallemissionen und der Stoffemissionen. Da Methanol als toxisch eingestuft ist, muss dessen Emission generell als kritisch bewertet werden. Als Orientierung zur Bewertung der Methanolemissionen eines DMFC-Systems in geschlossenen Räumen wird der MAK-Wert betrachtet. Der MAK-Wert gibt die höchstzulässige Konzentration eines giftigen Stoffes in der Luft am Arbeitsplatz an. Dieser liegt für Methanol bei 200 ppm. Für eine mobile Anwendung außerhalb geschlossener Räume gibt der EURO 4 – Grenzwert von 0,1 g/km geltend für Kohlenwasserstoffe [46] einen Anhaltspunkt. Die für die Kundenakzeptanz von Methanoltbrennstoffzellen möglicherweise wichtige Geruchsschwelle liegt nach [47] bei 5,3 mg/m³. Im Anodenabgas entspricht dies einer Konzentration von ca. 4 ppm.

Als ein Grenzwert für die Schallemissionen einer Anwendung in geschlossenen Räumen sollte ein Schalldruckpegel von 40 dbA(1m) nicht überschritten werden. Dies ist der Normwert für eine Gebäudeklimaanlage. Für transportable und mobile Anwendungen außerhalb von Räumen ist ein höherer Schallpegel zulässig. Motor getriebenen Stromgenerator weisen ein Schalldruckpegel von unter 70 dbA(1m) auf [48].

Die zum Betrieb des Stacks notwendigen Komponenten wie Gebläse, Pumpen und Ventile verbrauchen elektrische Leistung und vermindern die Leistungsabgabe des Brennstoffzellensystems.

Die Systemleistung ermittelt sich aus der Stackleistung abzüglich der elektrischen Leistungsaufnahme der peripheren Komponenten:

$$P_{\text{System}} = P_{\text{Stack}} - P_{\text{Peripherie}} \quad (2.25)$$

Mittels des auf die Stackleistung bezogenen Eigenbedarfs lässt sich ein Wirkungsgrad des peripheren Systems definieren:

$$\eta_P = \frac{P_{\text{Stack}} - P_{\text{Peripherie}}}{P_{\text{Stack}}} = 1 - \bar{P}_{\text{Peripherie}} \quad (2.26)$$

Die Leistungsdichte $\bar{V}_{\text{Peripherie}}$ und spezifische Leistung $\bar{m}_{\text{Peripherie}}$ bewerten Gewicht und Bauvolumen des peripheren Systems.

Um den Einfluss des Brennstoffverlustes über das Anodenabgas (AG) auf den Systemwirkungsgrad zu bestimmen, wird ein anodischer Faraday'scher Wirkungsgrad η_F^A definiert, der sich aus dem Verhältnis vom im Stack umgesetzter Methanolmenge zur Summe vom im Stack umgesetzter und über das Anodenabgas ausgetragener Methanolmenge berechnet:

$$\eta_F^A = \frac{\dot{N}_{\text{CH}_3\text{OH}, \text{Stack}}}{\dot{N}_{\text{CH}_3\text{OH}, \text{ges}}} = \frac{\dot{N}_{\text{CH}_3\text{OH}, \text{Stack}}}{\dot{N}_{\text{CH}_3\text{OH}, \text{Stack}} + \dot{N}_{\text{CH}_3\text{OH}, \text{AG}}} \quad (2.27)$$

Mit dem anodischen Faraday'schen Wirkungsgrad und dem peripheren Wirkungsgrad lässt sich der Systemwirkungsgrad berechnen:

$$\eta_{\text{System}} = \frac{P_{\text{System}}}{\dot{Q}_{\text{zu}}} = \eta_P \cdot \eta_F^A \cdot \eta_{\text{Zelle}} \quad (2.28)$$

Die Energiedichte bezieht die vom Brennstoffzellensystem mit einer Tankfüllung abrufbare elektrische Energie auf das Volumen des Gesamtsystems. Dies besteht aus Stack, peripherem System und Tank. Die spezifische Energie bezieht sich auf das Gesamtsystemgewicht.

$$E_{\text{System}}^V = \frac{P_{\text{System}} \cdot T_{\text{System}}}{V_{\text{System}}} \quad (2.29)$$

$$E_{\text{System}}^m = \frac{P_{\text{System}} \cdot T_{\text{System}}}{m_{\text{System}}} \quad (2.30)$$

In Tabelle 2.6 sind die Kennzahlen der Systeme dargestellt. Smart Fuel Cells arbeitet an kleinen DMFC-Systemen als Batterieladegerät für beispielsweise Yachten und Caravane, für die das A50 mit einer Leistung von 50 W kommerziell erhältlich ist. JPL hat in Zusammenarbeit mit Giner im Jahr 2001 ein 1-kW-System demonstriert [37]. Es arbeitet drucklos mit einem Kühler je auf der Anoden- und Kathodenseite. Yamaha und Vectrix Inc haben ein DMFC-Antriebssystem als Prototypen für einen Motorroller mit einer Leistung bis 800 W entwickelt [41, 44]. Ball Aerospace hat ein System mit einer Leistung von 100 W demonstriert. Das DOE fordert für 2007 eine spezifische Leistung von 200 W/kg und eine Leistungsdichte von 200 W/l. Keine der bisher entwickelten DMFC-Systeme erreichen diese Vorgaben.

Tabelle 2.6: DMFC-Systeme > 100 W					
Institution	DOE Ziele 2007 [33]	JPL/Giner [28]	JPL/Giner [37]	Yamaha [41]	Ball Aerospace [49]
Leistung [kW]	1-5	0,15	1	0,5	0,1
Temperatur [°C]	-	60-70	60	60	-
W/kg	200	22,2	16,7	20,8	16,3
W/l	200	15	-	7,8	17,7
Wh/l	-	-	-	-	160
Wirkungsgrad		26-29 %	-	-	-
Lebensdauer	2000 h kommerziell 5000 h militärisch				

2.3 Ziel der Arbeit und Vorgehensweise

Das Ziel der Arbeit ist es, ein gegenüber dem Stand der Technik verbessertes und optimiertes peripheres System zum Betrieb eines DMFC-Stacks der kW-Klasse zu entwickeln und für eine mobile Anwendung zu demonstrieren. Die mobile Anwendung liegt in dem Umbau der Energieversorgung eines „Scooters“. Hierbei sollen die Bleibatterien gegen ein DMFC-System ausgetauscht werden, das den elektrischen Motor mit Strom versorgt.

System- und Stackentwicklung laufen dabei parallel, so dass ein iterativer Entwicklungsprozess mit Rückkopplungen auf das Stackdesign gewährleistet ist.

Das DMFC-System soll insbesondere unter folgenden Aspekten bewertet werden:

- Systemvereinfachung
- Systemkompaktierung
- Wirkungsgradoptimierung

Folgende methodische Vorgehensweise wird in der Arbeit angewendet:

Den Anfang bildet in Kapitel 3 eine Untersuchung des DMFC-Stacks als Hauptkomponente des Systems. Für die Analyse ist ein Stackmodell zu entwickeln, das insbesondere die Abhängigkeiten der charakteristischen Kennzahlen des Stack von den Betriebsparametern abbildet. Dies bildet die Grundlage für eine umfassende Verfahrensanalyse in Kapitel 4, an als deren Resultat ein verbesserter Systementwurf steht.

Kapitel 5 charakterisiert die Fluidenergiemaschinen im Kontext einer Verwendung in einem DMFC-System. Dabei erfolgt eine Auswahl der optimalen Komponente für den Demonstrator. Zur Realisierung des entwickelten Systementwurfs sind Komponentenentwicklungen und Verfahrensuntersuchungen notwendig. Ausgehend von einer experimentellen Untersuchungen und einer Kondensatormodellierung wird ein optimierter Kondensator entwickelt. Des Weiteren wird die Integration des Anodenkreislaufs in den Stack beschrieben. Verfahrenstechnisch erfolgen Untersuchungen zur Kopplung von Hilfsbatterie und Brennstoffzelle sowie die Brennstoffversorgung.

In Kapitel 7 erfolgt die statische Systemmodellierung zur Optimierung der charakteristischen Kennzahlen. In Kapitel 8 wird die Entwicklung des Demonstrators näher beschrieben. In Bild 2.8 ist die Vorgehensweise im Überblick dargestellt.

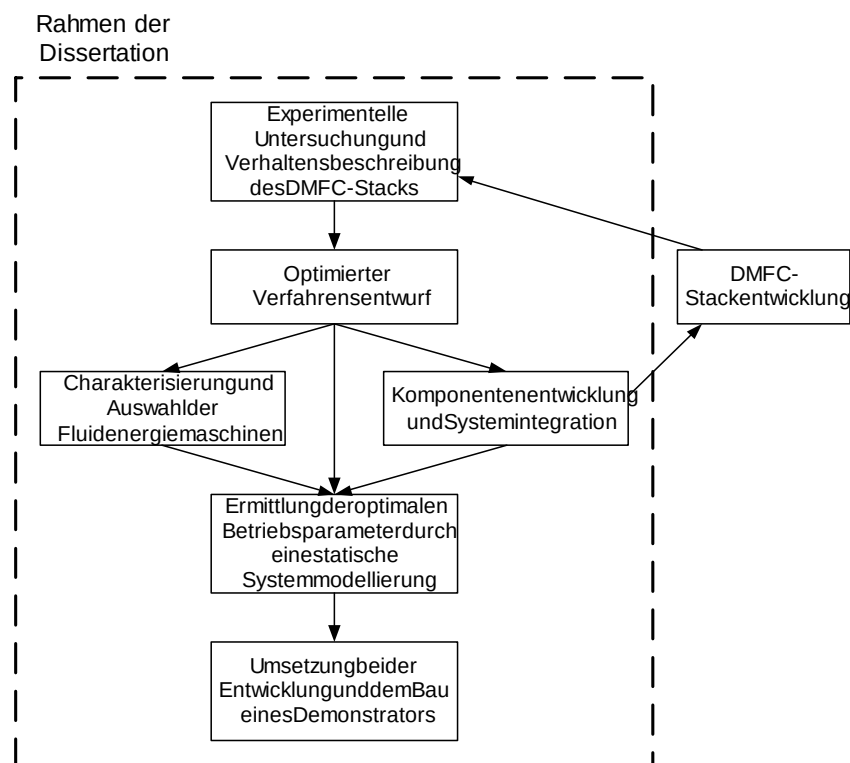


Bild 2.8: Vorgehensweise und Fokus der Arbeit innerhalb der DMFC-Systementwicklung

3 Stackbeschreibung und -modellierung

Dieses Kapitel betrachtet den für das System verwendeten Stack, dessen Entwicklung außerhalb dieser Arbeit liegt. Dabei werden die Schnittstellen des Stacks zu den übrigen Systemkomponenten diskutiert. Die Modellierung geht auf das Betriebsverhalten des Stacks ein, welches für die Gesamtsystembetrachtung in Kapitel 7 abgebildet werden muss. Es folgt ein kurzer Überblick über den Aufbau des Stacks. Für nähere Informationen sei auf [50] verwiesen. Das anschließende Kapitel beschreibt die Modellierung des Stackverhaltens und die Validierung an einem 10-Zeller-Stack.

3.1 Stackaufbau

Bild 3.9 zeigt den Aufbau des Brennstoffzellenstapels. Die Zellen bestehen aus der Membranelektrodeneinheit (MEA), den Anoden- und Kathodenflowfields und den Bipolarplatten. Über zwei Endplatten werden die einzelnen Zellen zu einem Brennstoffzellenstapel verpresst.

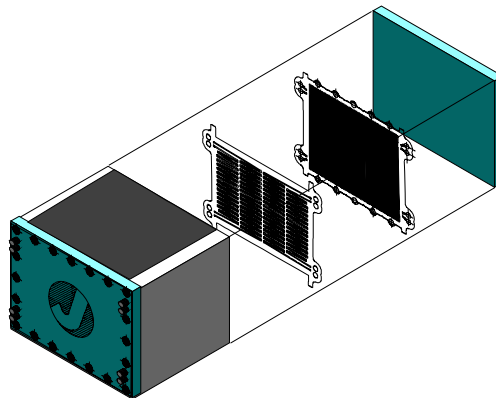


Bild 3.9: Jülicher DMFC-Stackkonzept 2004

Der Stromabgriff erfolgt an den Endplatten. Die Zellen werden auf der Anode über jeweils rechts und links unten liegende Strömungskanäle mit Brennstoff versorgt. Jeweils rechts und links oben liegende Kanäle führen das Anodengemisch ab. Die Zellfläche wird von unten nach oben über vier nebeneinander liegende Mäander durchflossen. Der Mäanderkanal hat eine Breite 2 mm und eine Höhe von 1 mm. Die kathodische Zellfläche wird über senkrecht liegende Kanäle mit Oxidans versorgt. Die Kanäle haben eine Teilung von 1,5 mm, eine Breite von 1,5 mm und eine Höhe von 1 mm. Die Länge beträgt 210 mm. Alle kathodischen Kanäle sind unten und oben nach außen geführt. Somit bildet die gesamte obere Stackfläche die Kathodeneinströmung und die gesamte untere Fläche die Kathodenausströmung. An Ein- und Ausgang der Kathodenkanäle ist eine katalytische

Beschichtung von etwa 10 mm Länge aufgetragen. Die aktive Fläche einer Zelle beträgt 310 cm². Der Brennstoffzellenstack besteht aus 100 Zellen.

3.2 Modellierung des Stackverhaltens

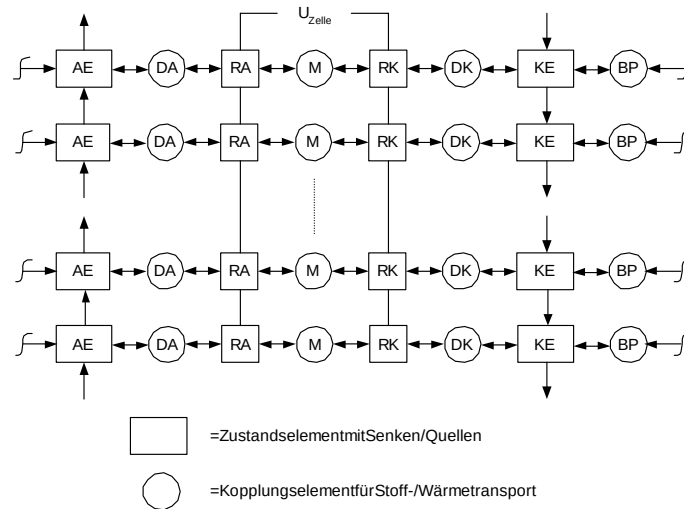
Der Brennstoffzellenstapel wird als Einzelzelle modelliert. Die anodische und kathodische Strömungsverteilung wird nicht abgebildet. Die Vor- und Nachteile dieses Ansatzes sind in Tabelle 3.7 dargestellt. Vorteile dieses Ansatzes sind der geringere Bedarf an Rechenleistung, geringere Modellierungsaufwand und geringerer Validierungsaufwand. Ein Nachteil ergibt sich aus der nicht erfassten Inhomogenität der Medienversorgung in Folge der anodischen und kathodischen Strömungsverteilung. Die dadurch auftretende Unterversorgung einzelner Zellen kann durch das Modell nicht wiedergegeben werden.

Tabelle 3.7: Vor- und Nachteile der Modellierung des Stacks als Einzelzelle

Vorteile:	- geringerer Modellierungsaufwand / einfaches Modell - kleinerer Bedarf an Rechenleistung - bessere Validierungsmöglichkeit und geringerer Validierungsaufwand
Nachteil:	- Keine Erfassung der Unterversorgung einzelner Zellen (siehe Abschnitte 3.3.7 und 3.3.9)

Die medienführenden Kanäle bilden die Basis des Modells. Dabei werden entlang des Kanals die Stoff- und Energiebilanzen berechnet. Dies erfolgt nicht analytisch differentiell, sondern mit einem numerischen Differenzen-Verfahren. Die Kanalstruktur wird entlang des Strömungspfades in einzelne Simulationselemente aufgeteilt, die nach der Rührkesselmethode [51, 52] bilanziert werden. Der Eintrittszustand des Fluids in ein Simulationselement markiert den Gesamtzustand des Elementes. Der aus den Stoff- und Energiebilanzen resultierende Austrittszustand ist der Eintrittszustand des folgenden Elementes.

Die gegenüberliegenden anodischen und kathodischen Elemente werden über Verbindungselemente miteinander gekoppelt. Über die Verbindungselemente findet Stoff- und Wärmetransport statt. Bild 3.10 zeigt das Schema für die Simulation einer Zelle in einem Stapel. Die Anodenelemente (AE) und Kathodenelemente (KE) bilden die medienführenden Kanäle. Die Kopplung mit den Reaktionszonen (RA/RK) erfolgt über die Diffusionsschichten (DA/DK). In den Reaktionszonen finden die elektrochemischen Teilreaktionen sowie die Oxidation des permeierten Methanols statt. Zwischen anodischer und kathodischer Reaktionszone liegt die Zellspannung U_{Zelle} an. Die Reaktionszonen werden als Äquipotenzialfläche betrachtet. Es gibt keine lokalen Potenzialunterschiede. Die Reaktionszonen einer Elektrode sind dabei nur elektrisch gekoppelt. Stoff- und Wärmetransport in der Flächenebene werden nicht berücksichtigt. Im Folgenden werden die Elemente näher erläutert.



AE = Anodenelement / DA = Diffusionsschicht Anode / RA = Reaktionszone Anode / M = Membran
 KE = Kathodenelement / DK = Diffusionsschicht Kathode / RK = Reaktionszone Kathode

Bild 3.10: Kopplung der Elemente zur Simulationsmatrix für eine Zelle eines Stapels

Kathoden-/Anodenelement (AE/KE)

Das Element wird einem Rührkessel entsprechend behandelt. Im gesamten Kontrollraum bestehen die gleichen Zustände. Es gibt keinen Gradienten für Druck, Temperatur oder Konzentration. Der Fluidvektor Θ in Bild 3.11 beinhaltet die Daten über Temperatur T , Druck p , Molenstrom $\dot{N}$ und Molanteile x_i der einzelnen Stoffe. Mit dem Wärmestrom $\dot{Q}$ und dem Molenstrom $\dot{N}$, die über die Grenze des Kontrollvolumens senkrecht zur Strömungsrichtung fließen, wird der Fluidvektor Θ am Austritt berechnet. Dieser ist der Eintrittsvektor für das folgende Element. Die Temperatur muss unter Berücksichtigung von Phasenwechsel, das heißt Fluidverdampfung oder –kondensation, iterativ bestimmt werden.

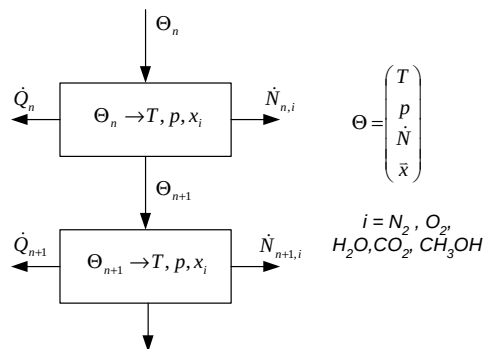


Bild 3.11: Bilanzierung Kathoden- und Anodenelement

Diffusionsschicht Anode

Der Stofftransport durch die Diffusionsschicht wird als verlustfrei angenommen. Das bedeutet, es gibt keine Gradienten in Methanolkonzentration und Temperatur zwischen anodischer Reaktionszone und Kanal. Der Fehler durch diese Annahme ist nach [53-55] vernachlässigbar klein.

Reaktionszone Anode

Die lokalen Molenstromdichten zum Verbrauch von Wasser und Methanol und die Bildung von Kohlendioxid aufgrund der elektrochemischen Teilreaktion werden berechnet mit:

$$\dot{n}_{CO_2, RA} = \frac{i_n}{6 \cdot F} \quad (3.31)$$

$$\dot{n}_{CH_3OH, RA} = -\frac{i_n}{6 \cdot F}$$

$$\dot{n}_{H_2O, RA} = -\frac{i_n}{6 \cdot F} \quad (3.32)$$

mit i_n = lokaler Stromdichte in Kontrollelement

Um die lokale Stromdichte zu ermitteln, muss die anodische Überspannung bestimmt werden. Dies geschieht nach einem semiempirischen Modell vorgestellt in [15]. Für die Überspannung auf der Anode gilt:

$$\eta_{An, n} = f_1 + f_2 \cdot \ln(i_n) + f_3 \cdot \exp\left(\frac{f_4 \cdot i_n}{c_{CH_3OH}}\right) \quad (3.33)$$

mit f_{1-4} : Fitfaktoren

c_{CH_3OH} : Methanolkonzentration [M]

Die Faktoren f_1 und f_4 berechnen sich temperaturabhängig nach [15] wie folgt:

$$f_1 = f_{11} \cdot \left(\frac{T - 273,15 K}{K}\right) + f_{12} \quad (3.34)$$

$$f_4 = f_{41} \cdot \exp\left(\frac{f_{42}}{T}\right) \quad (3.35)$$

Die Faktoren f_2 und f_3 werden aus experimentellen Daten ermittelt.

Membran

Die Membran ist ein Transportelement. Entsprechend des lokalen Stroms werden Protonen transportiert. Die Ohmschen Verluste aufgrund des Ionentransports berechnet sich zu

$$\eta_{Ohm, n} = \frac{l_{Mem}}{\sigma_{Mem}} \cdot i \quad (3.36)$$

Die Membrandicke von Nafion® 117 beträgt im gequollenen Zustand 180 µm [56]. Die Leitfähigkeit liegt bei 0,1 S/cm [57].

Der Methanoltransport durch die Membran wird ebenfalls durch einen semiempirischen Ansatz aus [15] ermittelt:

$$i_{Perm,n} = m_1 + m_2 \cdot i \quad (3.37)$$

mit

$$m_1 = m_{11} \cdot \frac{c_{CH_3OH}}{1M} \cdot \exp(m_{12} \cdot (T - 273,15)) \quad [A/cm^2] \quad (3.38)$$

und

$$m_2 = m_{21} + m_{22} \cdot \frac{t_{Trans}}{t_{Trans,Rf}} \cdot \frac{c_{CH_3OH}}{1M} \quad (3.39)$$

mit $t_{Trans,Rf} : 4$

Der permeierende Methanolemstrom folgt aus

$$\dot{n}_{CH_3OH,n}^{Perm} = \frac{i_{Perm,n}}{6 \cdot F} \quad (3.40)$$

Die Wasserpermeation durch die Membran setzt sich zusammen aus elektroosmotischen Transport und Diffusion. Das Permeationswasser wird durch den elektroosmotischen Drag von der Anodenseite der Membran zur Kathode transportiert. Der Molenstrom berechnet sich nach

$$\dot{n}_{H_2O,n}^{EOD} = t_{Trans} \cdot \frac{i_n}{F} \quad (3.41)$$

Die Transportzahl t_{Trans} ist abhängig von der Temperatur. Daten für Nafion® 117 NW 1200 sind in [17] veröffentlicht. Bild 3.12 zeigt die gemessenen Werte für eine auf beiden Seiten mit Wasser im Gleichgewicht befindliche Membran.

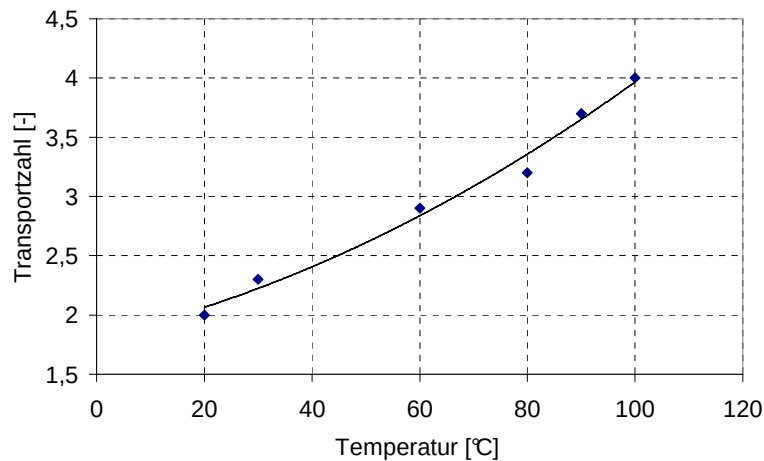


Bild 3.12: Gemessene Transportzahl in Abhängigkeit der Temperatur nach [17] mit Fit-Kurve

Zur Berechnung der Transportzahl in Abhängigkeit der Temperatur wird folgende Fitfunktion verwendet:

$$t_{Trans} = 1,337e^{-4} \cdot (T - 273,15)^2 + 9,116e^{-3} \cdot (T - 273,15) + 1,9 \quad (3.42)$$

Der diffusive Wassertransport ist überlagert durch den permeierenden Wasserstrom. Zur Beschreibung des diffusiven Transports wird das Lösungs-Diffusions-Modell [58] angewendet. Es geht davon aus, dass das Wasser in der Membran in flüssiger Phase in Lösung geht und entsprechend dem Konzentrationsgradienten durch die Membran diffundiert. Dieses Modell zeichnet sich durch den einfachen Ansatz mit nur einem Transportparameter (Diffusionskoeffizient für Wasser in der Membran) aus. In vielen Simulationsarbeiten [59-64] wird dieser Ansatz mit guter Genauigkeit angewendet. In [65, 66] geht man von einem Porenmodell aus. In [56] werden die beiden Ansätze verglichen. Das Porenmodell gibt das Konzentrationsprofil des Wassers in der Membran besser wieder, jedoch sind mehr beschreibende Parameter notwendig. Für diese Anwendung zeigt der Lösungs-Diffusionsansatz mit weniger Parametern eine ausreichende Genauigkeit (siehe Abschnitt 3.3.2).

Für einen beliebigen Punkt in der Membran lässt sich die Differentialgleichung aufstellen:

$$\dot{n}_{H_2O,n}^{Diff} = -\frac{\delta_{Mem}}{M_{Mem}} \cdot D_{H_2O,Mem} \cdot \frac{d\lambda_w}{dx} + \dot{n}_{H_2O,n}^{Perm}$$

mit $D_{H_2O,Mem}$: Diffusionskoeffizient für Wasser in Nafion®

λ_w : Wassergehalt in der Membran, Anzahl der Moleküle pro Sulfonsäuregruppe (3.43)

δ_{Mem} : Trockene Dichte der Membran

M_{Mem} : Äquivalentes Gewicht der Membran

Der Diffusionskoeffizient $D_{H_2O,Mem}$ lässt sich bestimmen nach [67] und ist abhängig von der Temperatur und dem Wassergehalt der Membran:

$$D_{H_2O,M}(T, \lambda_w) = (1,76e^{-5} + 1,94e^{-4} \cdot \lambda_w) \cdot \exp\left(\frac{-2436}{T}\right) \quad (3.44)$$

Der Wassergehalt der Membran in der Kontaktfläche zu den Reaktionszonen ist abhängig von dem Aggregatzustand, der Konzentration und der Temperatur des Wassers. Das Sorptionsgleichgewicht mit einer gasförmigen Grenzphase lässt sich ermitteln aus [68, 69]:

$$\begin{aligned} 30 \text{ °C} : \lambda_w &= 0,043 + 17,81 \cdot a_{H_2O} - 39,85 \cdot a_{H_2O}^2 + 36,0 \cdot a_{H_2O}^3 \\ 80 \text{ °C} : \lambda_w &= 0,3 + 10,8 \cdot a_{H_2O} - 16,0 \cdot a_{H_2O}^2 + 14,1 \cdot a_{H_2O}^3 \end{aligned} \quad (3.45)$$

Für Temperaturen zwischen 30 und 80 °C wird der Wert t interpoliert. Der Aktivitätskoeffizient a_{H_2O} des Wassers an der Membranoberfläche ist definiert durch:

$$a_{H_2O} = \frac{p_{H_2O}}{p_{sat,H_2O}(T)} \quad (3.46)$$

Für das Gleichgewicht mit flüssigem Wasser gilt nach [68]:

$$\lambda_w = 9,38 + 0,138 \cdot (T - 273,15) \quad (3.47)$$

Reaktionszone Kathode

Der Verbrauch von Sauerstoff und die Bildung von Wasser aufgrund der elektrochemischen Teilreaktion werden berechnet mit:

$$\dot{n}_{O_2, RK} = -\frac{i_n}{4 \cdot F} \quad (3.48)$$

$$\dot{n}_{H_2O, RK} = \frac{i_n}{2 \cdot F} \quad (3.49)$$

mit i_n , der lokalen Stromdichte im Kontrollelement

Hinzu kommt das die Oxidation des auf die Kathodenseite permeierten Methanols in der Katalysatorschicht. Es wird vollständige Umsetzung des Methanols angenommen. Nach [43] gelangt nur ein sehr geringer Teil des Methanols oder Zwischenprodukte der Oxidation in das Kathodenabgas, so dass diese Annahme zulässig ist. Die Molenströme der Reaktionsprodukte der Methanoloxidation sind

$$\dot{n}_{CO_2, Perm} = \frac{i_{n, Perm}}{6 \cdot F} \quad (3.50)$$

$$\dot{n}_{H_2O, Perm} = \frac{i_{n, Perm}}{3 \cdot F} \quad (3.51)$$

Der Sauerstoffverbrauch wird berechnet nach

$$\dot{n}_{O_2, Perm} = -\frac{i_{n, Perm}}{4 \cdot F} \quad (3.52)$$

Aus der Änderung des Protonenstroms j in der elektrochemisch aktiven Schicht folgt der Reaktionsrate Q^K der kathodischen Teilreaktion:

$$\frac{dj}{dx} = Q^K(x) \quad (3.53)$$

Gleichzeitig erzeugt der Protonenstrom aufgrund von Leitungsverlusten σ^K eine Änderung im Potenzial des Elektrolyten und somit in der Kathodenüberspannung:

$$j = \sigma^K \frac{d\eta_{Kat}}{dx} \quad (3.54)$$

Die von der Überspannung abhängige Reaktionsrate koppelt nun die Differentialgleichungen (3.53) und (3.54). Die exakte Lösung ist implizit [70]. Für kleine Stromdichten lassen sich jedoch ohne

großen Fehler die Potenzialgradienten in der Elektrolytphase und in der Elektrode vernachlässigen. Mit der Tafel-Gleichung für die lokale Reaktionsrate ergibt sich:

$$Q_{Kat} = i_{Kat}^* \left(\frac{c_{O_2}}{c_{O_2, Ref}} \right)^{\gamma_{Kat}} \exp \left(\frac{\alpha_{Kat} \cdot F}{R \cdot T} \eta_{Kat} \right)$$

α_{Kat} : Durchtrittsfaktor
 i_{Kat}^* : Austauschstromdichte
 γ_{Kat} : Reaktionsordnung
 $c_{O_2, Ref}$: Sauerstoffreferenzkonzentration

(3.55)

und Gleichung (3.53) kann daher geschrieben werden:

$$\frac{dj}{dx} = i_{Kat}^* \left(\frac{c_{O_2}}{c_{O_2, Ref}} \right)^{\gamma_{Kat}} \exp \left(\frac{\alpha_{Kat} \cdot F}{R \cdot T} \eta_{Kat} \right)$$
(3.56)

Gleichung (3.56) kann über die Katalysatorschichtdicke integriert werden und ergibt umgestellt:

$$\eta_{Kat} = \frac{R \cdot T}{\alpha_{Kat} \cdot F} \cdot \ln \left[\frac{i}{l_{Kat} \cdot i_{Kat}^*} \left(\frac{c_{O_2, Ref}}{c_{O_2}} \right)^{\gamma_{Kat}} \right]$$
(3.57)

l_{Kat} : Dicke der Katalysatorschicht
 i : Stromdichte

Der Einfluss der Oxidation des permeierten Methanols auf das Überpotenzial der Kathode wird nach [15] berücksichtigt mit folgendem Zusatz:

$$\eta_{Kat} = \frac{R \cdot T}{\alpha_{Kat} \cdot F} \cdot \ln \left[\frac{i + i_{Perm}}{l_{Kat} \cdot i_{Kat}^*} \left(\frac{c_{O_2, Ref}}{c_{O_2}} \right)^{\gamma_{Kat}} \right] + k(i) \cdot i_{Perm}$$
(3.58)

Die Katalysatorschicht wird als unendlich dünn angenommen. Dies bedeutet zum einen, dass keine weiteren Transportwiderstände für Produkte und Edukte vorliegen. Zum anderen werden keine Gradienten des Potenzials und der Stoffkonzentration in x-Richtung in der Katalysatorschicht abgebildet. Die Katalysatorschicht wird als flächenförmige Senke für Sauerstoff und Quelle für Wasser und Kohlendioxid angesehen.

Eine Blockierung der Reaktionszone durch flüssiges Wasser wird durch eine Verringerung der Austauschstromdichte erfasst und mit der Sättigung s korreliert. Die Sättigung gibt das Verhältnis von Flüssigvolumen zu Gasvolumen in einem porösen Element an. Ist kein flüssiges Wasser vorhanden beträgt die Sättigung $s = 0$. Bei einer vollständigen Füllung der Poren mit flüssigem Wasser ergibt sich die Sättigung $s = 1$.

Somit ergibt sich unter Berücksichtigung des Flooding-Effekts die folgende Gleichung für die Kathodenüberspannung:

$$\eta_{Kat} = \frac{R \cdot T}{\alpha_{Kat} \cdot F} \cdot \ln \left[\frac{i + i_{Perm}}{l_{Kat} \cdot i_{Kat}^* \cdot (1-s)} \left(\frac{c_{O_2, Rf}}{c_{O_2}} \right)^{\gamma_{Kat}} \right] + k(i) \cdot i_{Perm} \quad (3.59)$$

Diffusionsschicht Kathode

Die Diffusionsschicht wird als homogener poröser Block mit der Porosität ε angenommen. Bild 3.13 zeigt die Transportvorgänge in der Diffusionsschicht mit Wasser in gasförmiger Phase. Zur Reaktionszone wird Sauerstoff entsprechend der elektrochemischen Teilreaktion und der Methanoxidation diffusiv transportiert. Wasserdampf und Kohlendioxid strömen diffusiv und konvektiv zum Kathodenkanal. Der konvektive Strom ergibt sich, da bei der Reaktion die Produkte ein größeres Volumen einnehmen als die Edukte. Dadurch entsteht eine Bulk-Strömung durch die Schicht mit der Schwerpunktsgeschwindigkeit w_x in Richtung Kathodenkanal (semipermeable Wand oder Verdunstungsproblem).

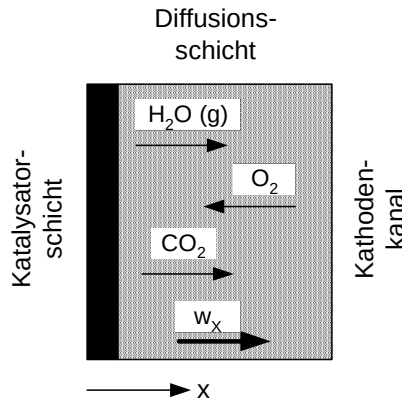


Bild 3.13: Stofftransport in Diffusionsschicht (Wasser gasförmig)

Für den Gastransport in der Diffusionsschicht gilt nach dem Fickschen Gesetz:

$$\dot{n}_i = - \frac{\varepsilon_{eff} \cdot D_{i,Gas}}{R \cdot T} \cdot \frac{dp_i}{dx} + \frac{p_i}{p} \cdot w_x \quad (3.60)$$

mit $i = \text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}$ und O_2

Die von Druck und Temperatur abhängigen Diffusionskoeffizienten werden bestimmt nach:

$$D_{O_2, Gas} = 9,69e^{-10} \cdot T^{1,75} \cdot (1,013/p) \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad [71] \quad (3.61)$$

$$D_{O_2, Gas} = 7,32e^{-10} \cdot T^{1,75} \cdot (1,013/p) \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad [71] \quad (3.62)$$

$$D_{H_2O, Gas} = 1,728e^{-9} \cdot T^{1,685} \cdot (1,013/p) \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad [72] \quad (3.63)$$

Den Transport des flüssigen Wassers durch die Diffusionsschicht bewirkt die Kapillaraktivität in den Poren der Diffusionsschicht. Die Triebkraft ist ein Gradient im Kapillardruck. Die Transportgleichung entspricht der einer Darcy-Strömung und unter Vernachlässigung der Schwerkraft ergibt sich:

$$\dot{n}_{H_2O,l} = \frac{k_{r,H_2O}}{\nu \cdot M_{H_2O}} \cdot K \cdot \frac{dp_c}{dx}$$

$$k_{r,H_2O} = s^3 \text{ (relative Permeabilität)}$$

ν : Viskosität des Wassers
 K : Permeabilität
 p_c : Kapillardruck
 M_{H_2O} : Molekularmasse von Wasser

(3.64)

Der Kapillardruck eines homogenen porösen Körpers ist abhängig von der Sättigung mit der flüssigen Phase. Die Sättigung gibt den Grad der Füllung der Poren mit Wasser an. Der Kapillardruck lässt sich berechnen mit [18]:

$$p_c = \sigma \cdot \cos \theta \cdot \left(\frac{\varepsilon}{K} \right)^{1/2} \cdot J(s)$$

$J(s)$: Sättigungsfunktion
 σ : Oberflächenspannung des Wassers
 θ : Kontaktwinkel des porösen Körpers
 ε : Porosität
 K : Permeabilität

(3.65)

Die Sättigungsfunktion gibt den funktionalen Zusammenhang zwischen der Sättigung und dem Kapillardruck wieder und ist abhängig von der Beschaffenheit des porösen Körpers. Aus Mangel an Daten für eine Kathoden-Diffusionsschicht wird hier ein Ansatz aus der Bodenkunde für poröse Gesteinsschichten verwendet, die für hydrophile ($\theta < 90^\circ$) und für hydrophobe ($\theta > 90^\circ$) Poren gilt. Dies ist die so genannte Levrett-Funktion [18]:

$$J(s) = 1,417 \cdot (1-s) - 2,12 \cdot (1-s)^2 + 1,263 \cdot (1-s)^3 \quad \text{für } \theta < 90^\circ$$

$$J(s) = 1,417 \cdot s - 2,12 \cdot s^2 + 1,263 \cdot s^3 \quad \text{für } \theta > 90^\circ$$
(3.66)

Die Gleichungen (3.64) bis (3.66) liefern ein Integral, welches über die Dicke der Diffusionsschicht zu lösen ist. Als Randbedingung wird $s=0$ an der Kanalgrenze angenommen. Dies ergibt folgenden Zusammenhang für hydrophile und hydrophobe Schichten:

$$s^4 \cdot (-0,2415 + 0,6676s - 0,6315s^2) = \dot{n}_{H_2O,l} \cdot M_{H_2O} \frac{\nu}{\sqrt{\varepsilon_D K_D} \cdot \sigma_D \cos \theta_D} \cdot l_D \quad \text{für } \theta_D < 90^\circ$$

$$s^4 \cdot (0,35425 - 0,8450s + 0,6135s^2) = \dot{n}_{H_2O,l} \cdot M_{H_2O} \frac{\nu}{\sqrt{\varepsilon_D K_D} \cdot \sigma_D \cos \theta_D} \cdot l_D \quad \text{für } \theta_D > 90^\circ$$
(3.67)

Das Resultat liefert die Beziehung zwischen dem Flüssigwasserstrom und der Sättigung an der Kontaktstelle der Diffusionsschicht mit der Katalysatorschicht. Um die Sättigung in der Katalysatorschicht zu berechnen wird mit der Randbedingung gleichen Kapillardrucks folgende Gleichung aufgestellt, die nach der Sättigung in der Katalysatorschicht aufgelöst werden kann:

$$p_{c,K} \Big|_{\text{Grenze}} = p_{c,D} \Big|_{\text{Grenze}}$$

$$\sigma \cdot \cos \theta \cdot \left(\frac{\varepsilon}{K} \right)^{1/2} \cdot J(s) \Big|_{K, \text{Grenze}} = \sigma \cdot \cos \theta \cdot \left(\frac{\varepsilon}{K} \right)^{1/2} \cdot J(s) \Big|_{D, \text{Grenze}} \quad (3.68)$$

Innerhalb der Katalysatorschicht wird jedoch aufgrund der geringen Dicke eine konstante Sättigung angenommen.

In der Diffusionsschicht der Kathode sind zwei Transportprozesse überlagert. Zum einen der diffusionsgetriebene Gastransport und der kapillargetriebene Flüssigtransport. Der Flüssigtransport beruht auf einem Gradienten in der Sättigung und der Gastransport auf einem Gradienten in der Gaskonzentration. Jedoch wird der Gastransport ebenfalls von der Sättigung beeinflusst, indem die möglichen Transportwege des Gases eingeschränkt werden. Dies wird über eine so genannte von der Sättigung abhängige Porosität ε_s der Diffusionsschicht beschrieben:

$$\varepsilon_s = (1-s) \cdot \varepsilon_{\text{eff}} \quad (3.69)$$

Kombiniert man nun (3.69) mit (3.60) ergibt sich für die vom Flüssiggehalt der Poren abhängige Transportgleichung der Diffusionsströmung:

$$\dot{n}_i = - \frac{\varepsilon_{\text{eff}} \cdot (1-s) \cdot D_{i,\text{Gas}}}{R \cdot T} \cdot \frac{dp_i}{dx} + \frac{p_i}{p} \cdot w_x \quad (3.70)$$

Um die Differentialgleichungen (3.64) und (3.70) unabhängig voneinander lösen zu können, wird für die Sättigung ein konstanter gemittelter Wert angenommen.

Der Stofftransport im Übergang zur Kanalströmung wird entsprechend dem Ansatz für laminare Strömung in einer geschlossenen Kanalströmung berechnet. Unter Anwendung der Analogie von Stoff- und Wärmetransport ergibt sich für einen rechteckigen Querschnitt mit einer Wärme/Stoff übertragenen Seite nach [73] folgender Zusammenhang für die Sherwoodzahl:

$$Sh = Nu \cdot \frac{Sc}{Pr} = 2,73 \cdot \frac{Sc}{Pr} \quad (3.71)$$

Mit der Sherwood-Zahl können der Stoffübergang und simultan zum Fickschen Ansatz die Stoffgradienten bestimmt werden.

Wärmebilanz

Die Berechnungen können nur isotherm für die ganze Zelle unter Vorgabe einer mittleren Temperatur durchgeführt werden. Durch den guten Wärmeübergang und die hohe Wärmekapazität der Anodenströmung ist die Modellierungsungenauigkeit klein. Eine iterative Berechnung der Temperatur unter Berücksichtigung der Wärmebilanz für jedes Kontrollelement benötigt eine hohe Rechenkapazität. Die Wärmebilanz wird nach Durchlauf der gesamten Zellrechnung entsprechend der eingehenden und ausgehenden Enthalpieströme und der zugeführten Reaktionswärme geprüft. Ein negativer Wert der Bilanz entspricht einer Aufwärmung des Stacks und ein positiver einer Abkühlung.

3.3 Experimentelle Untersuchung und Modellvalidierung

Zur Ermittlung der Transportparameter, der Koeffizienten im semiempirischen Ansatz zur Elektrochemie und zur Validierung des Gesamtmodells werden experimentelle Untersuchungen an einem 10-Zeller durchgeführt, die im Folgenden beschrieben werden.

3.3.1 Versuchsaufbau und Auswertung

Bild 3.14 zeigt schematisch den Versuchsaufbau. Eine Druckluftleitung versorgt den 10-Zeller mit trockener Luft. Der Volumenstrom im Messpunkt 1 wird über ein Hitzdrahtanemometer (TSI 4226-01-01) gemessen. Ein Pt100 erfasst die Kathodengasaustrittstemperatur des Stacks. Auf der Anodenseite messen zwei Pt100 am Ein- und Austritt des 10-Zellers die Temperatur. Eine Dosierpumpe fördert entsprechend dem Sollwert Methanol vor der Umwälzpumpe in den Kreislauf. Mit einer Waage (Sartorius LP4200S, 4200 g, $\pm 0,01$ g) wird das Gewicht des Methanoltanks bestimmt. Über die Massenänderung während der Messung wird der geförderte Methanolmassenstrom ermittelt. Im Messpunkt 4 werden zusätzlich die Methankonzentration mit einem Differential-Refraktometer, der Überdruck mit einem elektrischen Druckgeber und die Durchflussrate ebenfalls mit einem Hitzdrahtanemometer gemessen. Die Laststromstärke wird über einen Shunt im elektrischen Anschlusskabel der Last gemessen. Die Datenerfassung liest direkt die Zellspannung ein. Alle 2 Sekunden werden Messwerte eingelesen und gespeichert.

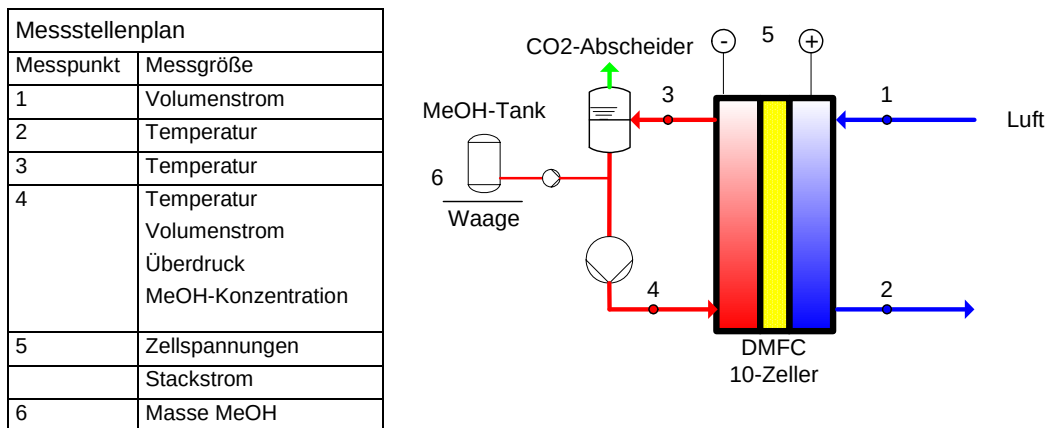


Bild 3.14: Versuchsaufbau und Messstellenplan

Die Zellspannungen werden im Betrieb mit trockener Luft unter Variation der Betriebsparameter Stromstärke, Temperatur, Methankonzentration, Luftvolumenstrom und Anodenumwälzrate gemessen. Des Weiteren wird zusätzlich über eine Zumischung von Stickstoff zur Druckluft der Sauerstoffgehalt in der Kathodenzuluft variiert. Der Volumenstrom des Stickstoffs wird über einen Bronkhorstmessgeber ermittelt. Der Einfluss der Feuchte der Kathodenzuluft wird über eine Wasserdampfzumischung zur trockenen Luft ermittelt.

Der Wasserverlust auf der Anode wird über Versuche ermittelt, bei denen über 20 Minuten der Wasserstand im Gasabscheider durch eine stetige Zugabe von Frischwasser konstant gehalten wird.

Die zugegebene Wassermenge abzüglich des Wasserverbrauchs der anodischen Zellreaktion und des Wasserverlustes über die Abscheidung des Kohlendioxids ergibt den durch die Membran auf die Kathodenseite transportierten Wasserstrom.

Die Bilanzierung des Methanolstroms ergibt unter Berücksichtigung der elektrochemisch verbrauchten Methanolmenge und den Verlusten über die Abscheidung des Kohlendioxids den Methanolpermeationsstrom durch die Membran.

3.3.2 Wassertransport durch die Membran

Der Wassertransport durch die Membran bei Betrieb einer DMFC setzt sich aus dem elektroosmotischen und dem diffusiven Transport zusammen und wird als Wasserpermeation bezeichnet. Die Transportzahl beschreibt den elektroosmotischen Transport bei einer Nafion®-Membran und ist abhängig von Temperatur, Stromdichte und Wassergehalt der Membran. Der diffusive Transport wird durch den Gradienten des Wassergehalts in der Membran beeinflusst. Da an der anodischen Kontaktschicht von einer mit Wasser vollständig gesättigten Membranfläche ausgegangen wird, wird der Gradient im Wesentlichen von der Aktivität des Wassers an der kathodischen Grenzfläche der Membran bestimmt. Somit ist der diffusive Wassertransport über die gesamte Zellfläche von der relativen Feuchte des Kathodengases abhängig. Die relative Feuchte über der Membranfläche ist wiederum von Druck, Temperatur und kathodischem Volumenstrom abhängig.

Im Folgenden wird der Einfluss dieser Größen auf die Wasserpermeation an Hand von experimentellen Daten im Vergleich zu simulierten Werten diskutiert. Bild 3.15 zeigt die Wasserpermeation in Abhängigkeit von der Laststromstärke im Bereich von 30 bis 160 mA/cm² bei einer mittleren Stacktemperatur von 63 °C und einem Luftvolumenstrom von 35 l/min. Der Vergleich mit der Geraden, die nur den elektroosmotischen Wassertransport wiedergibt, zeigt eine stetige Abnahme des diffusiv transportierten Wassers mit zunehmender Stromdichte. Dies liegt an der schnelleren Aufsättigung des Kathodengases mit Wasser im Kanal bei höherer Stromdichte. Damit steigt die relative Feuchte an der kathodischen Kontaktfläche. Zum anderen strömt bei steigender Stromdichte insgesamt mehr Wasserdampf von der Membranfläche durch Katalysatorschicht und Diffusionsschicht zum Kanal. Dies erhöht ebenfalls die relative Feuchte an der Membran. Die berechneten Werte geben die experimentellen Werte sehr gut wieder.

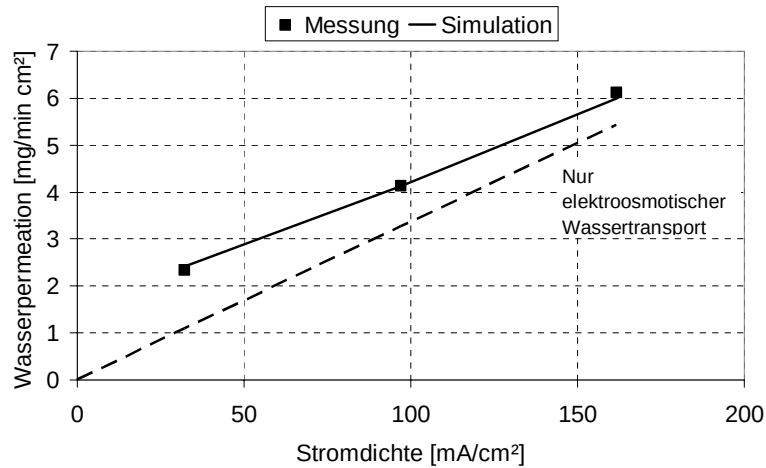


Bild 3.15: Experimentell ermittelte Wasserpermeation im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stromdichte ($\vartheta_{Stack} = 63\text{ °C}$; $\dot{V}_{Luft} = 35\text{ l/min}$)

Den Einfluss der Stacktemperatur auf die Wasserpermeation zeigt Bild 3.16. Eine Erhöhung der Stacktemperatur von 47 °C auf 63 °C führt bei einer Stromdichte von 30 mA/cm^2 zu einer Verdopplung der Wasserpermeation. Der mit der Temperatur steigende Sattedampfdruck erzeugt ein größeres treibendes Gefälle für den Wassertransport. Dies erhöht den diffusiven Wassertransport. Zusätzlich steigen die Transportzahl mit der Temperatur und damit der elektroosmotische Transport. Verlauf und Werte der Messungen werden durch die Simulation sehr gut wiedergegeben.

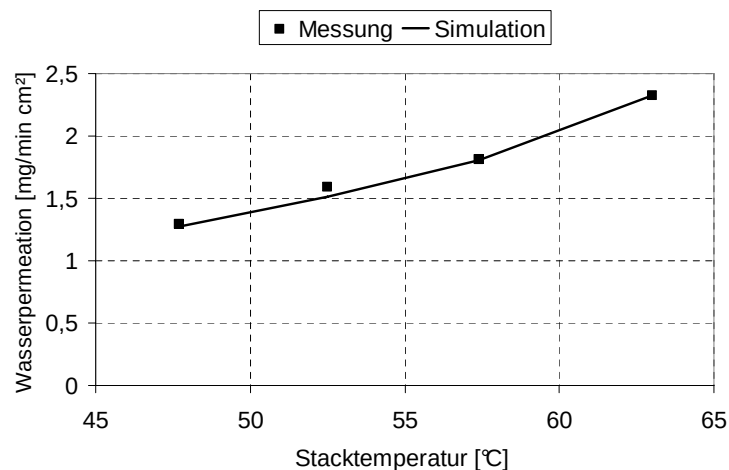


Bild 3.16: Experimentell ermittelte Wasserpermeation im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stacktemperatur ($i_{Stack} = 30\text{ mA/cm}^2$; $\dot{V}_{Luft} = 35\text{ l/min}$)

Den Einfluss des kathodischen Volumenstroms zeigt Bild 3.17 bei einer Stromdichte von 100 mA/cm^2 und einer Stacktemperatur von $63 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Wasserpermeation ist gegenüber dem kathodischen Volumenstrom weniger sensitiv als gegenüber der Temperatur. Eine Steigerung des Volumenstroms um knapp 40 % führt nur zu einer Anhebung der Permeation von unter 10 %. Dies zeigt, dass der elektroosmotische Wassertransport dominiert. Eine Volumenstromerhöhung wirkt sich nur auf den diffusiven Transport aus.

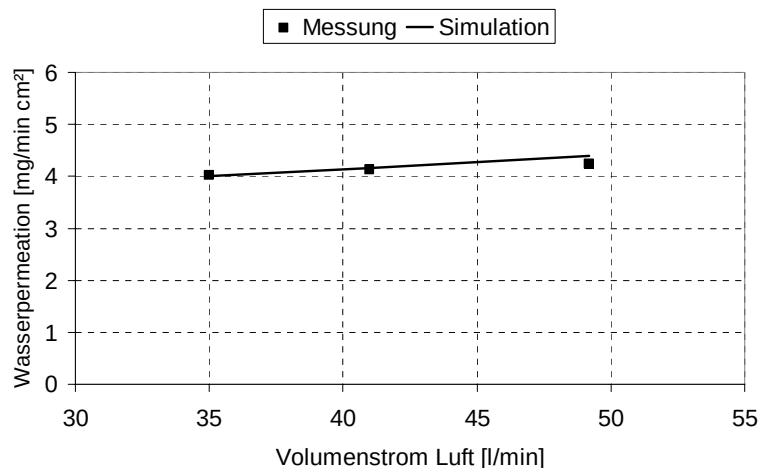


Bild 3.17: Experimentell ermittelte Wasserpermeation im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit vom Luftvolumenstrom ($i_{Stack} = 100 \text{ mA/cm}^2$; $\vartheta_{Stack} = 63 \text{ }^\circ\text{C}$)

In der Tabelle 4.13 sind die gewählten Parameter für die Simulationsrechnungen zur Ermittlung der Wasserpermeation aufgeführt. Dies sind die freien Parameter aus dem Ansatz zur Berechnung der Wasserpermeation. Der Transport durch die Membran wird über Gleichung (3.43) ermittelt. Der Gas und Flüssigkeitstransport durch Katalysator- und Diffusionsschicht werden durch den Gleichungskomplex (3.64)-(3.70) modelliert.

Tabelle 3.8: Parameter zur Berechnung der Wasserpermeation

Parameter	Symbol	Gleichungen	Wert
Porosität kathodische Diffusionsschicht	ε_D	(3.64)-(3.70)	0,3
Dicke kath. Diffusionsschicht	l_D	(3.64)-(3.70)	280 μm
Kontaktwinkel kath. Diffusionsschicht	θ_D	(3.64)-(3.70)	170°
Permeabilität kath. Diffusionsschicht	K_D	(3.64)-(3.70)	$1,64^{-12} \text{ m}^2$
Porosität kath. Katalysatorschicht	ε_K	(3.64)-(3.70)	0,3
Kontaktwinkel kath. Katalysatorschicht	θ_K	(3.64)-(3.70)	160°
Permeabilität kath. Katalysatorschicht	K_D	(3.64)-(3.70)	$1,64^{-12} \text{ m}^2$
Membrandicke	l_{Mem}	(3.43)	180 μm

3.3.3 Methanolpermeation

Die Einflussgrößen Temperatur, Methanolkonzentration und Stromdichte auf die Methanolpermeation werden betrachtet. Mit Hilfe der experimentellen Daten sind die in Tabelle 3.9 angegebenen Parameter des semiempirischen Ansatzes mit den Gleichungen (3.38) und (3.39) ermittelt worden. Die Parameter m_{11} und m_{12} zur Temperaturabhängigkeit entsprechen den Werten aus [15]. Die Parameter m_{21} und m_{22} weichen ab. Die Daten in [15] wurden an einer Zelle mit unterschiedliche geometrische Abmessungen und Verteilerstrukturen auf der Anodenseite ermittelt. Dies führt zu den Abweichungen der Parameter und zeigt auch den engen Anwendungsbereich des gewählten semiempirischen Ansatzes.

Tabelle 3.9: Parameter zur Berechnung der Methanolpermeation		
Parameter	Gleichung	Wert
m_{11}	(3.38)	$4,7^{-2}$
m_{12}	(3.38)	0,013
m_{21}	(3.39)	-0,5
m_{22}	(3.39)	0,8

Bild 3.18 zeigt für die Methanolkonzentrationen 1 M, 0,7 M und 0,5 M am Stackeintritt die Methanolpermeation in Abhängigkeit von der Stromdichte bei einer Stacktemperatur von 60 °C. Eine höhere Methanolkonzentration führt zu einer höheren Methanolpermeation. Die Sensitivität steigt mit zunehmender Stromdichte. Mit zunehmender Methanolkonzentration steigt der Gradient der Kurve. Bei 0,5 M und 0,7 M ist der Gradient negativ und bei 1 M knapp positiv. Dies liegt am Abbau des Methanols in der anodischen Katalysatorschicht. Bei zunehmender Stromdichte wird vermehrt Methanol umgesetzt, so dass bei gleicher Methanolkonzentration im Kanal die Methanolkonzentration an der anodischen Membrangrenzfläche sinkt. Bei kleineren Methanolkonzentrationen ist diese Absenkung so stark, dass der Einfluss des mit der Stromdichte steigenden elektroosmotischen Drags mehr als kompensiert wird. Bei einer Methanolkonzentration von 1 M neutralisieren sich die Einflüsse nahezu. Bei Methanolkonzentration größer 1 M wird daher eine steigende Methanolpermeation mit der Stromdichte beobachtet [15].

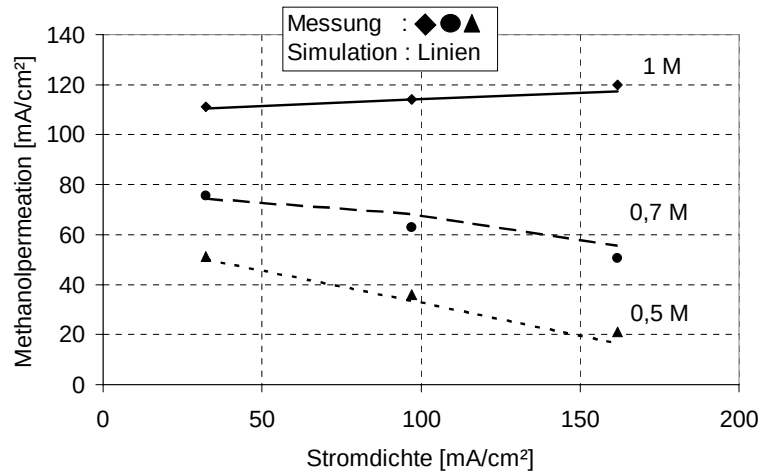


Bild 3.18: Experimentell ermittelte Methanolpermeation im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stromdichte für Methanolkonzentrationen 1, 0,7, 0,5 M bei einer Stacktemperatur von 60 °C

Der starke Einfluss der Temperatur auf die Methanolpermeation ist in Bild 3.19 bei einer Methanolkonzentration von 1 M und einer Stromdichte von 30 mA/cm² dargestellt. Ausgehend von 40 °C ergibt sich bei einer Anhebung um 30 K eine Zunahme der Methanolpermeation um mehr als 50 %.

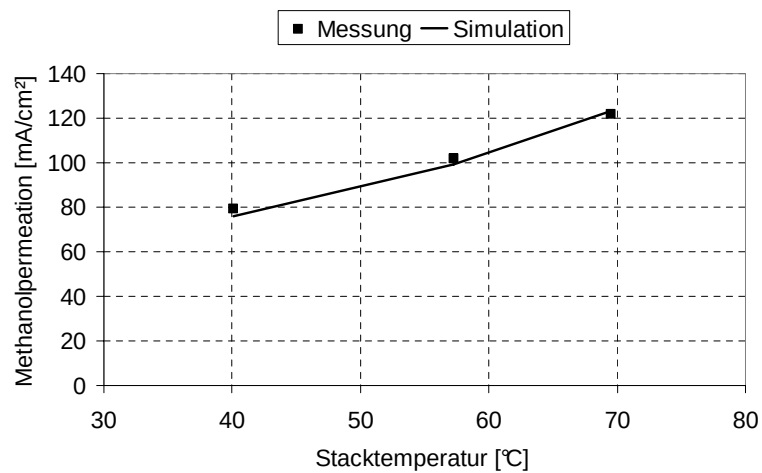


Bild 3.19: Experimentell ermittelte Methanolpermeation im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stacktemperatur (1 M, 30 mA/cm²)

3.3.4 Stackspannung in Abhängigkeit von den Betriebsparametern

Mit Hilfe der experimentellen Daten sind die in Tabelle 3.10 angebenen Parameter des semiempirischen Ansatzes mit den Gleichungen (3.33) und (3.35) ermittelt worden. Sie liegen in der

Größenordnung der in [15] für eine Einzelzelle angegebenen Parameter. Im Folgenden werden die Einflussgrößen auf die Stackspannung an Hand von experimentellen Daten und Modellierungsergebnissen diskutiert.

Tabelle 3.10: Parameter zur Berechnung der Zell-/Stackspannung

Parameter	Gleichung	Wert
Anode:		
f_{11}	(3.34)	-0,0028
f_{12}	(3.34)	0,71
f_2	(3.33)	0,055
f_3	(3.33)	0,0012
f_{41}	(3.35)	0,033
f_{42}	(3.35)	1870
Kathode:		
I_{Kat}^*	(3.58)	0,00042 A/cm ²

3.3.4.1 Stromdichte

Für den Systembetrieb ist der gesamte Bereich der U-i-Kennlinie einer Brennstoffzelle unerheblich. Der interessante Betriebsbereich liegt in dem linearen Bereich der Kennlinie, der in Bild 3.20 dargestellt ist. Der Verlauf der Messergebnisse wird durch die Simulation bei 60 °C und bei 70 °C mit sehr guter Genauigkeit wiedergegeben. Der Auslegungspunkt mit einer Zellspannung von 0,4 V und einer Temperatur von 60 °C liegt bei einer Stromdichte von 30 mA/cm².

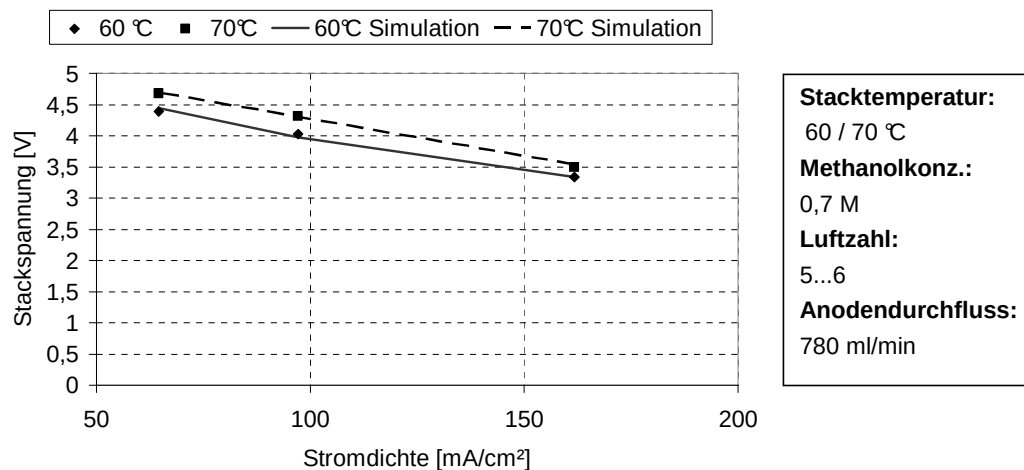


Bild 3.20: Experimentell ermittelte Stackspannung im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stromdichte

3.3.5 Temperatur

Das Temperaturverhalten des 10-Zellers ist in Bild 3.21 für unterschiedliche Methanolkonzentrationen bei einer Stromdichte von 160 mA/cm^2 dargestellt. Die Massentransporthemmung und gehemmte Kinetik auf der Anodenseite sowie die Auswirkungen des Mischpotenzials und der Sauerstoffverbrauchs aufgrund von Methanolpermeation auf der Kathode ergeben den Verlauf der Kurven.

Stacktemperatur: 50 °C

Bei geringen Temperaturen ist die Methanolversorgung zur Anode schlechter. Außerdem ist die Methanoloxidation bei tiefen Temperaturen sensibler gegenüber Verringerung der Methanolkonzentration. Demgegenüber ist die Methanolpermeation bei geringen Temperaturen klein. In diesem Fall ist in Bezug auf die Stackspannung die Methanolkonzentration von 1 M optimal. Der starke Abfall der Stackspannung zu tiefen Temperaturen bei einer Methanolkonzentration von 0,7 M fällt bei der Simulation etwas schwächer aus. Vermutlich ist der Methanoltransport von dem Anodenkanal zur Reaktionszone beeinträchtigt. Dies führt zu einem eher linearen Einfluss der Stacktemperatur auf die anodische Überspannung und ist in dem Modellansatz zur Berechnung der anodischen Überspannung nicht berücksichtigt. Der Gradient der Methanolkonzentration zwischen Reaktionszone und Kanal wird vernachlässigt [15].

Stacktemperatur: 60 °C

Hier ist die Versorgung der anodischen Katalysatorschicht verbessert. Bei der Methanolkonzentration von 0,7 M zeigt sich ein Maximum für die Stackspannung, die etwa 20 mV/Zelle höher liegt als bei 0,5 oder 1 molarem Wasser/Methanol-Gemisch. Bei geringeren Methanolkonzentrationen steigt die anodische Überspannung. Die mit höheren Methanolkonzentrationen zunehmende Methanolpermeation verschlechtert die Sauerstoffversorgung der Kathode und verstärkt die Mischpotenzialbildung. Beides führt zu einem Absinken des kathodischen Potenzials und somit zu einer Verringerung der Stackspannung.

Stacktemperatur: 70 °C

Bei 70 °C hat sich der Methanoltransport von dem Anodenkanal und der anodischen Katalysatorschicht weiter verbessert. Dies bedeutet, geringere Methanolkonzentrationen in der Kanalströmung erlauben eine ausreichende, dass heißt sich nicht auf die Stackspannung auswirkende, Versorgung der Oxidationsreaktion. Zusätzlich steigt die Methanolpermeation (siehe Bild 3.19) weiter an. Zusammen ergibt sich ein flacher Verlauf der Stackspannung mit der Methanolkonzentration.

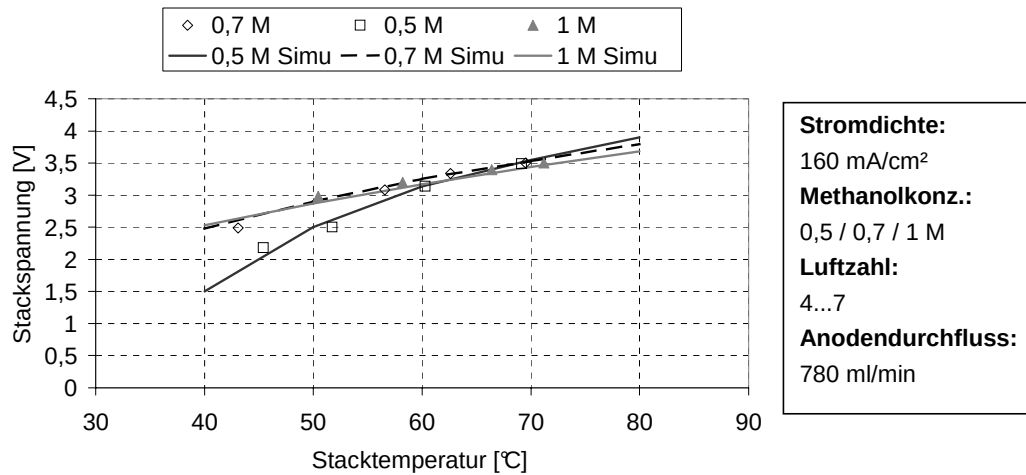


Bild 3.21: Experimentell ermittelte Stackspannung im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Stacktemperatur

3.3.6 Methanolkonzentration

In Bild 3.22 sind gemessene und simulierte Ergebnisse zum Einfluss der Methanolkonzentration auf die Stackspannung für einen Temperaturbereich von 50 °C bis 70 °C und einem konstanten Stromdichte von 160 mA/cm² dargestellt. Bei einer Stacktemperatur von 70 °C lässt sich kein Einfluss der Methanolkonzentration auf die Stackspannung erkennen. Die gegenläufigen Effekte, einerseits bessere Methanolversorgung auf der Anodenseite und andererseits zunehmende Mischpotenzial, heben sich auf. Die hohe Temperatur vermindert dabei den Einfluss der Methanolpermeation auf die kathodische Überspannung. Messungen bei unter 0,4 M waren nicht möglich, da der Stack sich nicht mehr stabil bei 160 mA/cm² betreiben ließ. Einzelne Zellen zeigten ein starkes Absinken der Zellspannung und tendierten zum Umpolen. Das gleiche Verhalten trat bei Absenkung des Anodendurchflusses auf (siehe nächsten Abschnitt).

Bei 60 °C ergibt sich ein leichtes Optimum bezüglich der Zellspannung bei etwa 0,75 M. Eine höhere Methanolkonzentration führt zu einer leichten Verringerung der Spannung. Dies ist auf den erhöhten Sauerstoffverbrauch und das Mischpotenzial an der Kathode zurückzuführen. Bei einer Absenkung der Methanolkonzentration auf 0,45 M ergibt sich ebenso eine geringere Zellspannung, die durch eine schlechtere Versorgung der Anode zu erklären ist.

Bei 50 °C ist die Messung bei der deutlich höheren Luftzahl 11 durchgeführt worden. Daher ist die Vergleichbarkeit eingeschränkt. Die Betrachtung der Luftzahl im folgenden Abschnitt zeigt jedoch für Methanolkonzentrationen von 0,5 M bis 0,7 M nur einen geringen Einfluss der Luftzahl auf die Zellspannung. Daher wird hier von einer ausreichenden Vergleichbarkeit für den Bereich von 0,5 M bis 0,7 M ausgegangen. Für Methanolkonzentrationen oberhalb von 0,7 M kann die größere Luftzahl zu einem besseren Sauerstoffangebot an der Kathode führen. Dies verringert den negativen Einfluss des Permeationsmethanols auf das Kathodenpotential. Somit kann der kontinuierliche Anstieg der Zellspannung bei steigender Methanolkonzentration erklärt werden. Im Bereich von 0,5 M bis 0,7 M

zeigt sich bei 50 °C Stacktemperatur jedoch ein erheblich stärkerer Abfall der Zellspannung verglichen mit höheren Stacktemperaturen. Dies zeigt den Einfluss der Temperatur auf die Brennstoffversorgung der Anode deutlich. Der konvektive Transport sinkt infolge einer starken Abnahme des elektroosmotisch transportierten Wassers mit der Temperatur (siehe Abschnitt 3.3.2). Der konvektive Strom durch die Membran führt zu einem dem Diffusionsmechanismus überlagerten Methanoltransport vom Anodenkanal zur Anodenreaktionszone. Daher verschlechtert sich bei abnehmender Temperatur die Methanolversorgung der Reaktionszone. Zusätzlich bewirkt die Abnahme des Diffusionskoeffizienten eine weitere Limitierung der Methanolversorgung. Zusammen führt dies zu einem Anstieg der anodischen Überspannung.

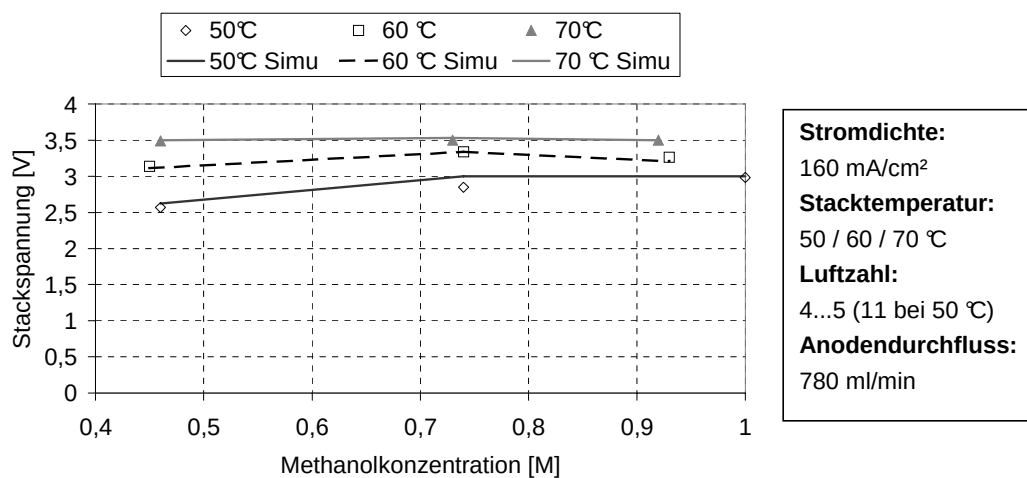


Bild 3.22: Experimentell ermittelte Stackspannung im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit der Methanolkonzentrationen

Bei Betrieb des Stacks mit einer kleineren Stromdichte verringert sich wie erwartet die Zellspannung kontinuierlich mit steigender Methanolkonzentration (Bild 3.23). Bei geringerer Stromdichte steigt die Methanolpermeation an und die Methanolversorgung verbessert sich. Daher fehlt der bei der höheren Stromdichte von 160 mA/cm² zu beobachtende Abfall der Zellspannung bei Methanolkonzentrationen von 0,5 M bis 0,7 M.

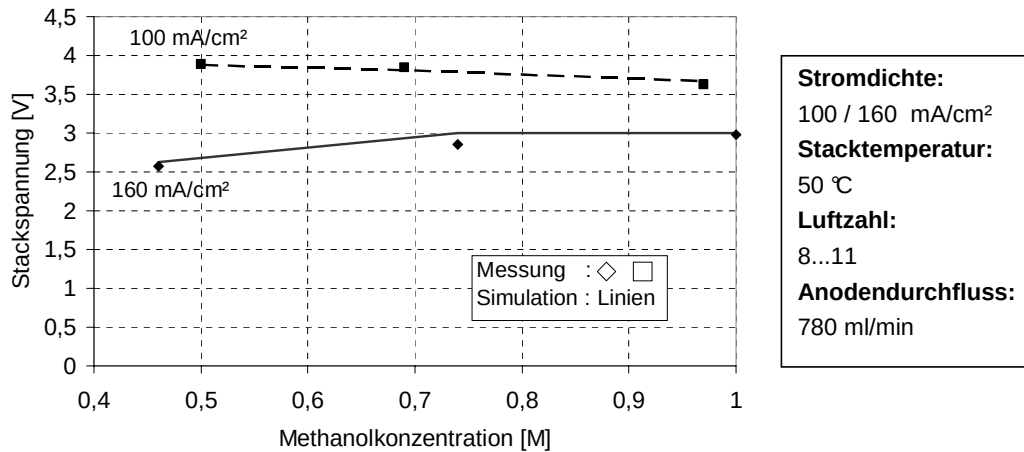


Bild 3.23: Experimentell ermittelte Stackspannung im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit der Methanolkonzentrationen

3.3.7 Anodendurchfluss

Bild 3.24 zeigt hier die Zellspannung der besten und der schlechtesten Zelle bei Variation der Anodendurchflussrate bei einer Stacktemperatur von 60 °C, einer Methanolkonzentration von 0,5 M und einer Stromdichte von 160 mA/cm². Man erkennt, ein sehr unterschiedliches Verhalten der Zellen, die aufgrund von Verteilungsproblemen im Stackmanifold verursacht wird. Die Unterversorgung einer Zelle kann durch die bessere Versorgung einer anderen Zelle nicht kompensiert werden. Daher liegt die Simulationskurve zwischen den dargestellten Messwerten. Um eine ausreichende Versorgung bei geringer Methanolkonzentration zu gewährleisten, müsste die Durchflussrate mindestens 800 ml/min betragen.

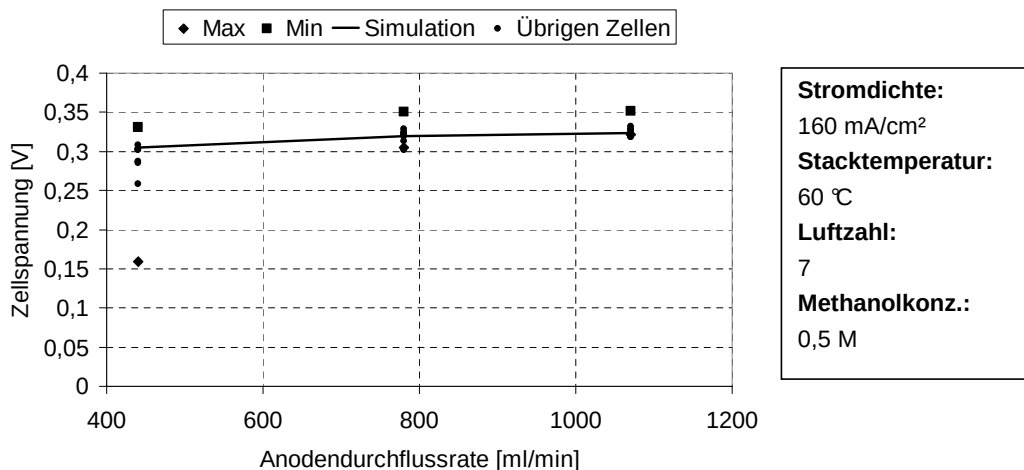


Bild 3.24: Experimentell ermittelte Zellspannungen im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit vom Anodendurchfluss

3.3.8 Luftzahl

Im Bild 3.25 ist der Einfluss der Luftzahl auf die Stackspannung bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M bis 0,7 M, eine Stacktemperatur von 67 °C und einer Stromdichte von 160 mA/cm² dargestellt. Bei Verringerung der Luftzahl von etwa 8 auf 3,5 zeigt sich eine stetige Abnahme der Stackspannung. Unterhalb der Luftzahl 3,5 zeigt der Stack keinen stabilen Betrieb mehr. Dies könnte an der Unterversorgung der Kathode mit Sauerstoff aufgrund einer kleineren Sauerstoffkonzentration am Austritt und an der Zunahme des flüssigen Wassers in Diffusions- und Katalysatorschicht liegen.

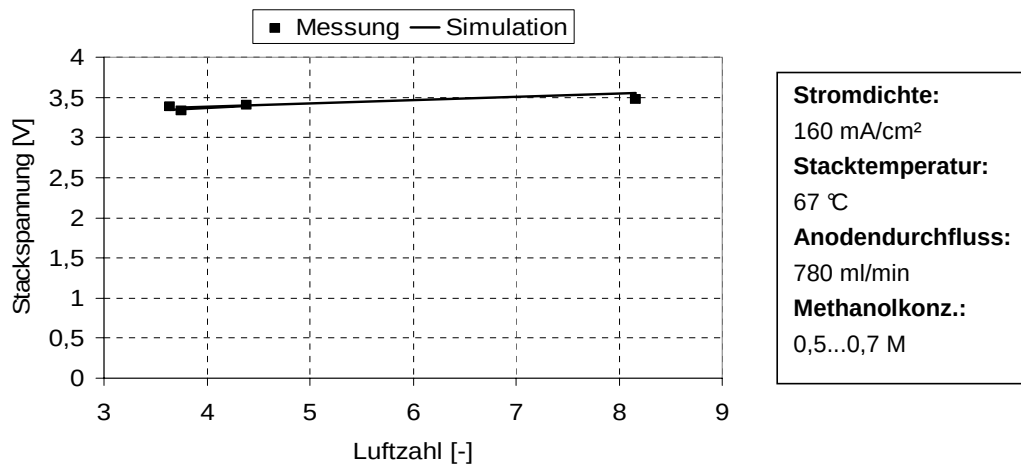


Bild 3.25: Experimentell ermittelte Stackspannung im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Luftzahl

3.3.9 Sauerstoffkonzentration

Bild 3.26 zeigt wiederum die Zellspannung der besten und der schlechtesten Zelle bei Variation der Sauerstoffkonzentration am Stackeintritt durch Beimischung von Stickstoff. Diese Darstellung ist bezogen auf 60 °C Stacktemperatur, 0,5 M Methanolkonzentration und 160 mA/cm² Stromdichte. Man erkennt das unterschiedliche Verhalten der Zellen aufgrund von Verteilungsproblemen im Stackmanifold. Die Unterversorgung einer Zelle kann durch die bessere Versorgung einer anderen Zelle nicht kompensiert werden. Daher liegt die Simulationskurve zwischen den dargestellten Messwerten. Zudem kann der vereinfachte Ansatz der Berechnung der kathodischen Überspannung, der auf einer homogenen Katalysatorschicht beruht, zu einer Abweichung führen.

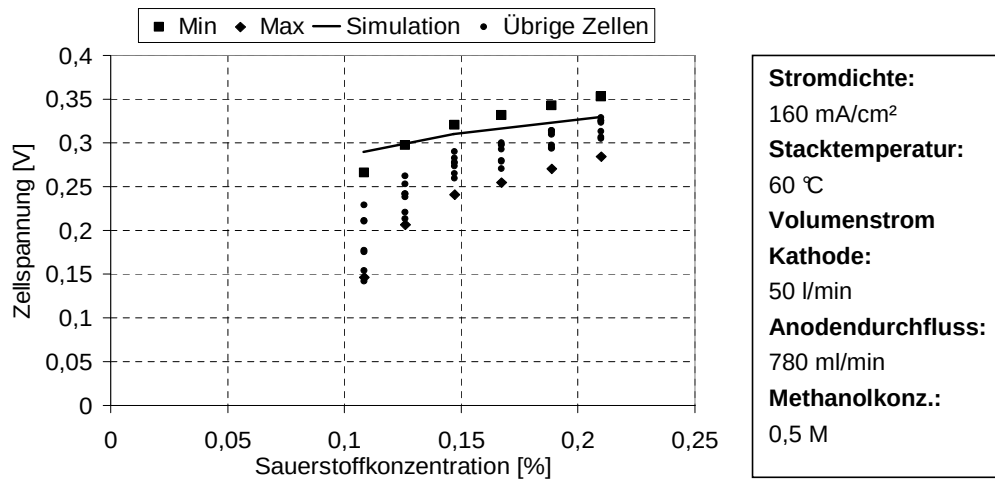


Bild 3.26: Experimentell ermittelte Zellspannungen im Vergleich zu simulierten Ergebnissen in Abhängigkeit von der Sauerstoffkonzentration der eintretenden Luft

3.3.10 Druckverluste

Bild 3.27 zeigt den gemessenen anodischen Druckverlust des 10-Zellers und die gewählte Fitkurve für die Systemrechnungen. Gemessen wurde im stromlosen und bei 160 mA/cm² Stromdichte. Es ergibt sich kein Unterschied im Druckverlustverlauf.

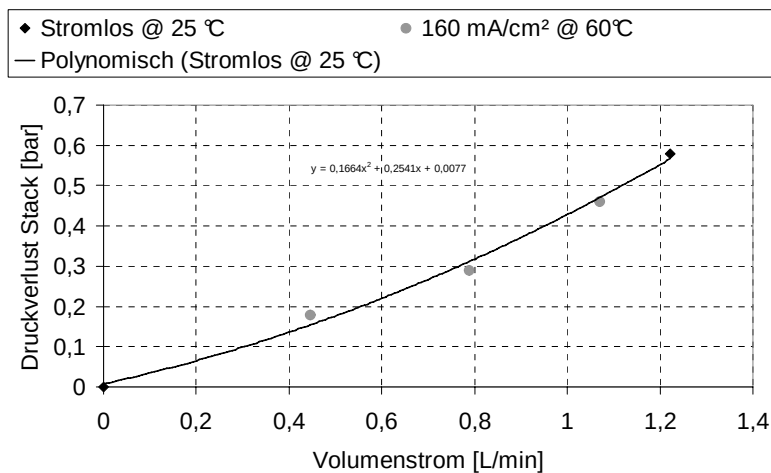


Bild 3.27: Druckverlust des DMFC-10-Zellers

In Bild 3.28 ist der kathodische Druckverlust des Stacks gemessen an einem 3-Zeller dargestellt. Die Messung ist mit dem Medium Luft bei 60 °C durchgeführt worden. Über die daraus abgeleitete Regressionsgerade wird der kathodische Druckverlust im Modell berechnet.

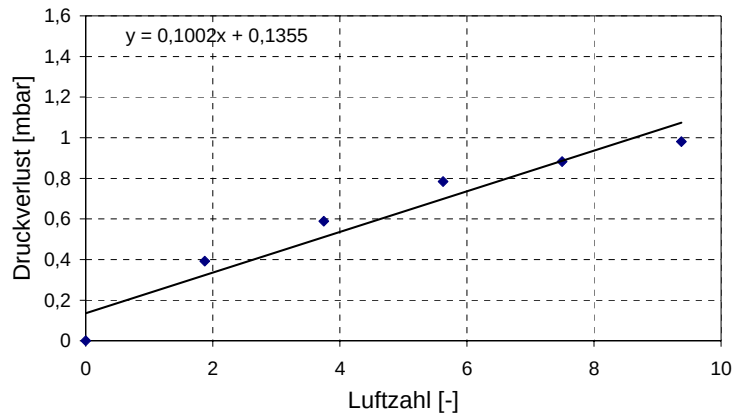


Bild 3.28: Gemessener Kathodischer Druckverlust des DMFC-Stacks (3- Zeller, 60 °C, 1 bar, Medium Luft)

3.4 Zusammenfassung

Das Jülicher Stackdesign besteht aus Einzelzellen mit einer aktiven Fläche von 310 cm². Die kathodischen Kanäle sind aus der Zelle herausgeführt, so dass die obere Stackfläche der Luftzufuhr und die untere Stackfläche der Abgasabführung dienen. Eine katalytische Beschichtung im Kathodenkanal ermöglicht die interne Abgasreinigung. Für den weiteren Verlauf der Arbeit wird ein Stack nach Jülich Design mit 100 Zellen betrachtet.

Der Modellierungsansatz basiert auf einem Einzelzellenmodell, dass das Differenzen-Verfahren verwendet. Mit einem semiempirischen Ansatz werden die Überspannung der elektrochemischen Reaktion und die Methanolpermeation ermittelt. Zusätzlich wird über ein 1-dimensionales physio-mathematisches Modell das Wassermanagement in den Zellen modelliert. Mittels des Lösungs-Diffusionsmodell wird dabei der Wassertransport durch die Membran ermittelt. Die kathodische Katalysator- und Diffusionsschicht werden als poröse Körper aufgefasst, die ein Kapillarsystem bilden. Hiermit kann der Flüssigtransport und die Limitierung des Gastransport abgebildet werden.

Die Validierung des Modells und die Ermittlung erfolgt mit experimentellen Untersuchungen an einem Stack mit 10 Zellen unter Variation der Betriebsparameter Stacktemperatur, Methanolkonzentration, Anodendurchflussrate, Luftzahl, Zuluftsauerstoffkonzentration und der Stromdichte. Das Modell gibt mit ausreichender Genauigkeit das Verhalten des 10-Zellers im betrachteten Parameterraum wieder und bildet somit die Grundlagen für das Stackmodul für die Systemsimulationen in Kapitel 7 und 8.

Die Untersuchung zur Wasserpermeation zeigt einen starken Einfluss der Parameter Stacktemperatur und Stromdichte. Ein Anstieg der Stacktemperatur von 50 °C auf 60 °C führt zu einer Steigerung der Wasserpermeation von über 40 %. Der Verlauf der Wasserpermeation bei Zunahme der Stromdichte

gibt deutlich den linearen Einfluss des elektroosmotischen Transports wieder. Ein Flooding der Kathode ist innerhalb des betrachteten Stromdichtebereichs bis 160 mA/cm² nicht zu erkennen.

Die Methanolpermeation zeigt wie erwartet eine starke Abhängigkeit von der Methanolkonzentration, der Stacktemperatur und der Stromdichte. Bei einer Stromdichte von 160 mA/cm² und einer Stacktemperatur von 60 °C ergibt eine Verdopplung der Methanolkonzentration von 0,5 M auf 1 M einen Anstieg der Permeationsstromdichte von 20 mA/cm² auf 120 mA/cm². Dies entspricht einer Verschlechterung des Faraday'schen Wirkungsgrades von 89 % auf 43 %. Ein Temperaturanstieg von 40 °C auf 80 °C steigert die Methanolpermeation um 50 % bei 30 mA/cm² Stromdichte und 1 M Methanolkonzentration.

Die Stacktemperatur hat erheblichen Einfluss auf die Leistungsdichte des Stacks. Eine Steigerung der Stacktemperatur von 50 °C auf 80 °C erzielt eine Erhöhung der Zellspannung von 200 mV auf 350 mV bei einer Stromdichte von 160 mA/cm² und einer Methanolkonzentration von 0,5 M. Bei kleineren Methanolkonzentrationen zeigt sich eine größere Temperaturabhängigkeit der Zellspannung. Dies lässt sich durch den Einfluss der Temperatur auf den anodischen Methanolversorgungsgrad erklären.

Messungen bei Variation des Anodendurchflusses bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M und einer Stromdichte von 160 mA/cm² zeigen, dass ein Betrieb des 10-Zellers nicht mit Durchflussraten unter 0,6 l/min erfolgen sollte. Bei Durchflüssen unterhalb von 0,6 l/min zeigen sich ein starker Abfall der Zellspannung und ein instabiles Verhalten einiger Zellen. Dieses Verhalten kann von dem Modell nur unzureichend wiedergegeben werden. Ebenso ist bei Luftzahlen unterhalb von 3,5 ein Unterversorgung einzelner Zellen festzustellen.

Der gemessene anodische Druckverlust beträgt bei 0,6 l/min etwa 220 mbar. Der kathodische Druckverlust liegt bei Luftzahlen bis 8 unter 1 mbar.

Bis in Kapitel 7 eine genaue Bestimmung der Betriebsparameter vorgenommen wird, werden hier folgende Eckwerte zur Vorabauslegung für den Stack festgelegt:

Tabelle 3.11: Zusammenfassung der Eckwerte zum Betrieb des 1,5-kW-Stacks (100 Zellen, 310 cm² aktive Fläche pro Zelle)

Parameter	Wert	Parameter	Wert
Elektrische Leistung	1,5 kW	Luftzahl	5
Zellspannung	400 mV	Kathodischer Druckverlust	0,7 mbar
Stacktemperatur	70 °C	Anodendurchfluss	6 l/min
Stromdichte	120 mA/cm ²	Methanolkonzentration	0,5 M
Leistungsdichte	48 mW/cm ²	Anodischer Druckverlust	220 mbar
Kathodendruck	1 bar	Anodendruck (Stackaustritt)	1 bar
Faraday'scher Wirkungsgrad	0,75	Wasserpermeation	120 ml/min

4 Entwicklung eines Verfahrenskonzeptes

Ausgehend vom Stand der Technik wird in diesem Kapitel ein neues Verfahrenskonzept entwickelt. Die Verfahrensentwicklung folgt einer Methode aus der Systemtheorie nach [74], wonach sich eine Problemstellung in parallel zu bearbeitende Teilprobleme zerlegen lässt. Für jedes Teilproblem werden zuerst unabhängige Lösungsmöglichkeiten erarbeitet. Aus den Lösungsansätzen für die Teilprobleme wird die optimale Gesamtlösung ermittelt.

Die Aufgaben des peripheren Systems zum Betrieb eines DMFC-Stacks wurden bereits in Kapitel 2.2 identifiziert. Die in Bild 4.29 dargestellten Aufgaben sind mit Lösungsvorschlägen versehen, die in den Unterkapiteln erläutert werden. Am Ende des Abschnitts werden die optimalen Lösungen der Aufgaben zu einem Verfahrensentwurf aggregiert.

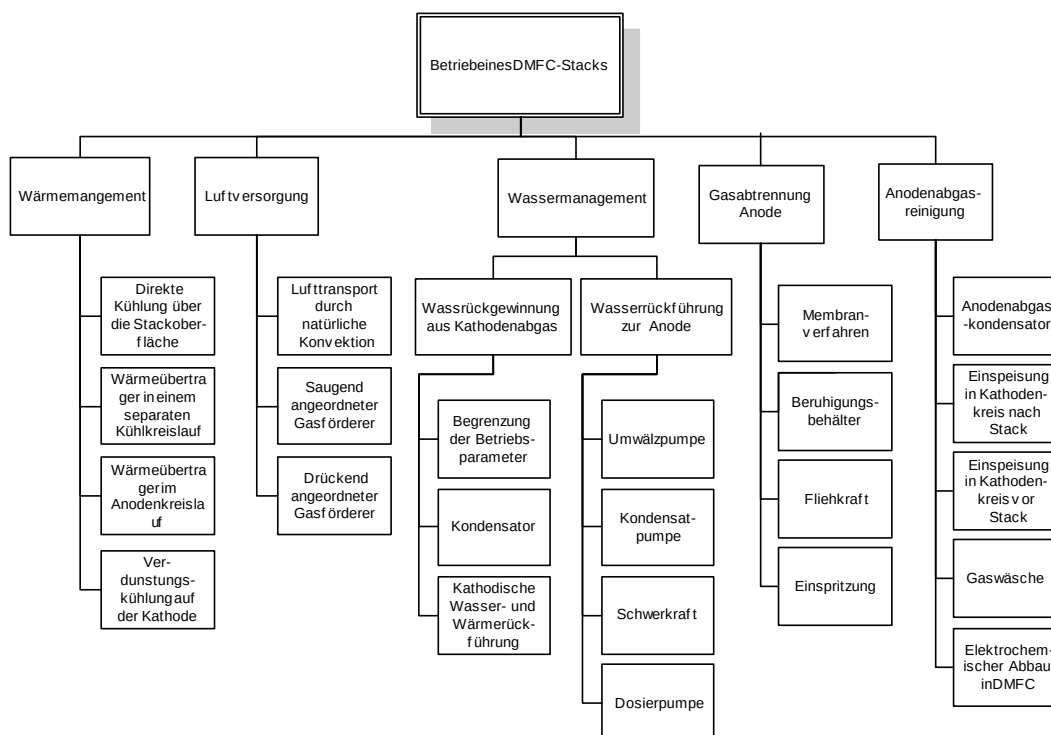


Bild 4.29: Teilprobleme der Verfahrensentwicklung mit den betrachteten Teillösungen

4.1 Luftversorgung

Jede Zelle im Stack muss auf der Kathode mit ausreichend mit Sauerstoff versorgt werden. Bei den experimentellen Untersuchungen in Kapitel 3 wurde eine minimal erforderliche Luftzahl von etwa 3,5 ermittelt. Diese muss von der Luftversorgung für alle Zelle gleichmäßig bereitgestellt werden. Bei dem Vergleich der Push und Pull-Anordnung wird der Aspekt der Gleichverteilung des Zuluftstroms auf die Zellen im Stack betrachtet. Danach wird kurz die Option der druckaufgeladenen Kathode untersucht.

4.1.1 Vergleich Push- und Pull-Anordnung

Bei der Push-Anordnung ist das Gebläse kathodenseitig vor der Brennstoffzelle angeordnet. Bei einer internen Luftverteilung müssen ein oder mehrere Frischluftleitungen versorgt werden. Bei einer externen Luftverteilung muss die Luft gleichmäßig über die oben liegende Kathodeneinströmfläche zugeführt werden, damit die Zellen jeweils bei gleichen Luftzahlen arbeiten.

Um eine gleichmäßige Verteilung der Luft über die einzelnen Zellen zu gewährleisten, ist ein möglichst gleicher statischer Druckgradient über die Zellen notwendig. Dieser Druckgradient wird zum einen beeinflusst durch unterschiedliche Strömungspfade zur Zelle und von der Zelle weg, als auch durch Störungen in der Strömung vor dem Stack. Eine mögliche Störung ist der nur allmähliche Abbau des Impulses einer einmündenden Rohrströmung. Bild 4.30 zeigt die Eindringtiefe einer Rohrströmung in einen Raum. Bei der Push-Strömung bleibt nach einem Abstand von dem zehnfachen des einmündenden Rohrdurchmessers (10 D) immer noch ca. 50 % der mittleren Rohrströmung als Peakgeschwindigkeit im Freistrahle erhalten. Im Falle einer Konfiguration beispielhaft dargestellt in Bild 4.31, kommt es zu einer ungleichen Geschwindigkeitsverteilung und somit zu einer inhomogenen Druckverteilung oberhalb des Stacks. Dies bedingt eine unterschiedliche Luftversorgung der einzelnen Zellen. Des Weiteren erzeugt ein Radiallüfter einen erheblichen Drall in der Strömung, der sich bis zum Verteilerkasten fortpflanzt und ebenfalls die Druckverteilung beeinflusst. Folgende Möglichkeiten ergeben sich bei einer Push-Anordnung zur Strömungshomogenisierung:

- 1.) Vorverteilung und Beruhigung des Strahls in einem konischen Einlauf auch mit Unterstützung von Leitblechen
- 2.) Einsatz von Hindernissen in der Haube (Netze, Lochbleche) zur Erhöhung der Gesamtdruckdifferenz
- 3.) Abflachung der Haube zum Strömungsende
- 4.) Großer Haubenquerschnitt verglichen mit Querschnitt der Kathodenkanälen
- 5.) Eine „U“-Durchströmung führt zu einem Ausgleich der Strömungsverhältnisse zwischen den Kanälen

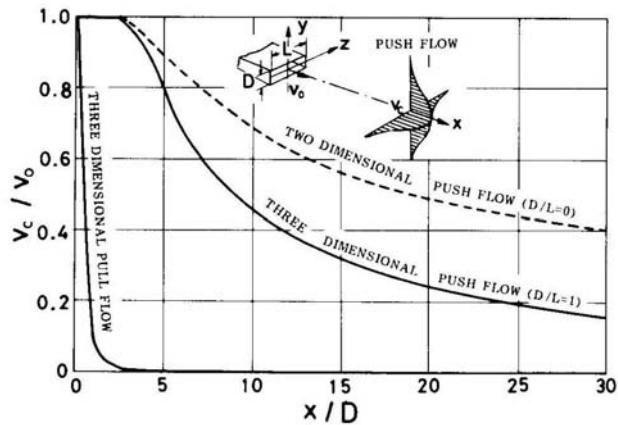


Bild 4.30: Eindringtiefe einer Rohrströmung in einem Freistrah

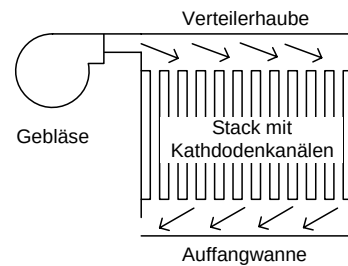


Bild 4.31: Luftversorgung mit Haube und Wanne in U-Konfiguration

In Bild 4.32 ist die Verteilerhaube des 1,5-kW-Stacks für eine Push-Konfiguration zu sehen. Für die Verteilung des Einstromimpulses sind Leitbleche eingebaut. Zudem wurde eine relativ große Haubenquerschnittsfläche gewählt.



Bild 4.32: Verteilerhaube für eine Push-Anordnung
(Abmaße: 35 x 28 x 8 cm)

Bei der Pull-Anordnung ist das Gebläse kathodenseitig nach der Brennstoffzelle angeordnet. Die Luft wird frei von der Umgebung durch den Stack angesaugt (Bild 4.33). Wie aus Bild 4.30 abzulesen ist, ist ab 2,5 D keine Auswirkung der abführenden Rohrströmung zu sehen. Dadurch erhält man in der Auffangwanne eine homogene Geschwindigkeitsverteilung. Bei Einsatz eines Gebläses wird der Drall stromabwärts des Stackes erzeugt und kann daher die Geschwindigkeitsverteilung in der Wanne nicht stören. Es ist daher zu erwarten, dass die Pull-Anordnung eine gleichmäßige Luftbeaufschlagung der

Zellen bewirkt. Nachteilig ist der höhere Volumenstrom, den das Gebläse auf der Saugseite fördern muss. Außerdem darf der Druckverlust im Kathodenpfad nicht zu hoch sein, da sonst der Sauerstoffpartialdruck und die Wasseraufnahmekapazität der Kathodenluft zu stark absinken. Dies hätte einen Leistungsverlust der DMFC zur Folge.

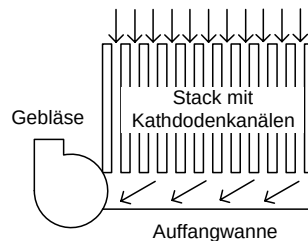


Bild 4.33: Gebläse saugend angeordnet

4.1.2 Druckaufgeladene Kathode

Höhere Betriebsdrücke auf der Kathode und die dadurch mögliche Anhebung der Stacktemperatur über 90 °C führt zu einer höheren Leistungsdichte des Stacks [75]. Mittels einer Verdichter/Expander-Einheit (Bild 4.34) lässt sich die hydraulische Energie der druckaufgeladenen Zuluft zumindest zum Teil wieder zurückgewinnen. Die in [75] durchgeführte Systembetrachtung zeigt jedoch, dass eine Druckerhöhung mit einer Verdichter/Expander-Schaltung negativen Einfluss auf den Systemwirkungsgrad hat. Die für die Druckerhöhung der Zuluft benötigte elektrische Leistung der Luftversorgung übersteigt den Leistungszuwachs des Stacks in Folge höherer Drücke und Temperaturen. In [76] ist eine Schraubenverdichter/-expander-Aggregat für ein 25 kW-PEFC-System theoretisch betrachtet worden. Etwa 60 % der benötigten Verdichterleistung kann über den Expander zurückgewonnen werden.

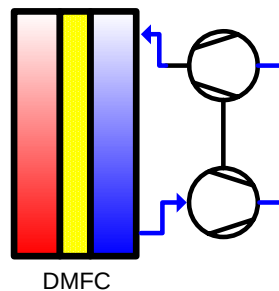


Bild 4.34: Verdichter/Expander-Einheit

4.1.3 Bewertung und Auswahl

Aufgrund des Wegfalls der Verteilerhaube stellt die Pull-Anordnung die kompaktere Variante gegenüber der Push-Anordnung und der Verdichter-/Expandereinheit für ein System der kW-Klasse dar. Zusätzlich besteht ein Vorteil in der Gleichverteilung der Zuluft bei einem nicht im Stack integrierten Verteiler. Dadurch kann der Stack bei kleineren Luftzahlen betrieben werden. Dieser

Vorteil bei der Strömungsverteilung kann bei Einsatz eines Kondensators auf diesen ausgedehnt werden. Das Gebläse ist dabei stromabwärts vom Kondensator angeordnet. Idealerweise ließe sich zudem der Gebläseanschluss in das Kondensatorgehäuse integrieren. Ein experimenteller Nachweis der gleichmäßigeren Strömungsverteilung bei Sauganordnung kann im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht erbracht werden.

4.2 Wassermanagement

Das Wassermanagement sorgt für einen Ausgleich des anodischen Wasserverlustes. Hierzu muss das im Kathodenabgas dampfförmig und flüssig vorliegende Wasser in ausreichender Menge abgetrennt werden.

Um ein DMFC-System ohne kontinuierliche Wasserzufuhr von außen betreiben zu können, müssen innerhalb der Bilanzgrenzen des Systems die Wasserquellen größer oder gleich den Wassersenken sein. Bild 4.35 zeigt die Wasserbilanz und die Quellen und Senken, die in Tabelle 4.12 mit den wichtigsten Einflussparametern zusammengefasst sind.

Bild 4.35: Wasserbilanz einer DMFC

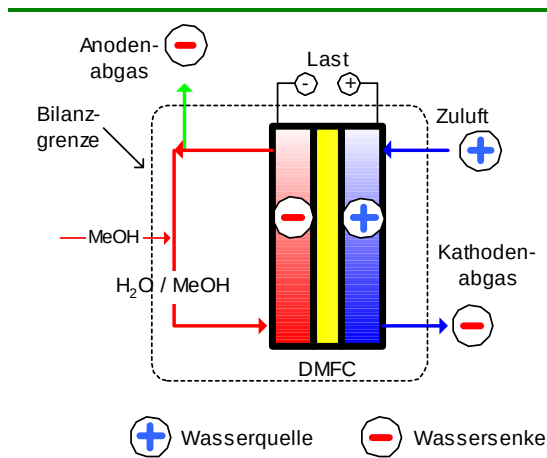


Tabelle 4.12: Wasserquellen und –senken in einer DMFC und dessen Einflussparameter

Quelle	Einflussparameter
Produktwasser der Kathodenreaktion	Stromdichte
Produktwasser der Methanoloxidation auf der Kathode	Stromdichte, Temperatur, Methanolkonzentration
Zuluftfeuchte	Luftzahl, Umgebungsfeuchte, Stromdichte
Senke	
Wasseraustrag über Kathodenabgas	Luftzahl, Kathodendruck, Temperatur, Stromdichte
Eduktwasser der Anodenreaktion	Stromdichte
Wasseraustrag über Anodenabgas	Anodendruck, Temperatur, Stromdichte

Die Wasserproduktion resultiert zum einen aus der elektrochemischen Methanolumsetzung und ist von der Stromdichte abhängig. Zusätzlich entsteht Wasser durch die katalytische Methanoloxidation an der Kathode. Daher steigert die Methanolpermeation den im System produzierten Wasserstrom und ist daher beeinflusst durch Temperatur, Stromdichte und Methanolkonzentration. Ein geringerer Wasserstrom wird durch die Feuchte der Zuluft in das System eingebracht. Bei einer Temperatur von 20 °C und einer relativen Feuchte von 40 % beträgt der eingebrachte Wasserstrom etwa 30 % der Wasserproduktionsrate (Luftzahl = 5).

Der Wasserbedarf der Anodenreaktion und der Wasseraustrag über Anoden- und Kathodenabgas stellen Wassersenken im System dar. Der dampfförmige Wasseraustrag aus der Kathode ist limitiert durch die Wasseraufnahmekapazität des ausströmenden Kathodenabgases. Diese wird festgelegt durch Druck und Temperatur. Flüssig anfallendes Wasser kann von dem Gasstrom abgetrennt werden und im System verbleiben. Der dampfförmige Anteil verlässt mit dem ausströmenden Kathodenabgas das System.

Bild 4.36 zeigt das Verhältnis der oben aufgeführten Quellen zu den Senken für einen Stacktemperaturbereich von 30 °C bis 80°C. Bei 80°C verlässt über das 10-fache der Wasserproduktion über das Kathodenabgas das System. Das Anodenabgas spielt in Bezug auf die Wasserautarkie eine untergeordnete Rolle. Bei 80°C wird etwa 40% der Wasserproduktion abgeführt. Das heißt jedoch auch, dass das Anodenabgas in Bezug auf einen wasserautarken Betrieb bei hohen Stacktemperaturen ebenfalls relevant ist und das darin enthaltene Wasser teilweise zurückgewonnen werden muss.

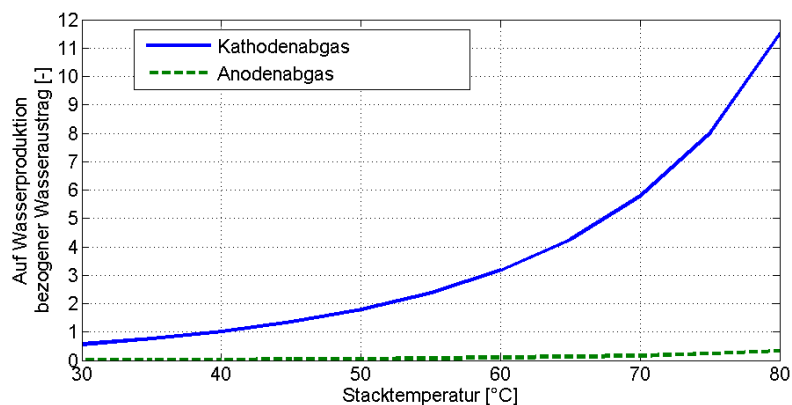


Bild 4.36: Verhältnis Wasseraustrag über Kathoden- und Anodenabgas zur Wasserproduktion ($\lambda_K = 5$; $p_K = 1$ bar)

Im Folgenden werden verschiedene Konzepte zum Wassermanagement des Systems erläutert. Eine Bewertung und Auswahl schließt die Betrachtung ab.

4.2.1 Begrenzung der Betriebsparameter

Eine Bilanzierung der zu- und abgehenden Wasserströme in Abhängigkeit von den Betriebsparametern Luftzahl und Druck, ergibt die Grenztemperatur der abgehenden Gasströme (Bild 4.37), bei der der Wasserverlust genau der Wasserproduktion entspricht. Wird das System oberhalb dieser Grenztemperatur betrieben, muss für den kontinuierlichen Systembetrieb eine externe Wasserzufuhr erfolgen. Bei Luftzahlen zwischen 3 und 5 und bei drucklosem Betrieb ist die Zelltemperatur auf 35 °C bis 45 °C begrenzt. Eine Aufladung der Zelle auf 2 bar erhöht den Temperaturbereich um etwa 12 °C.

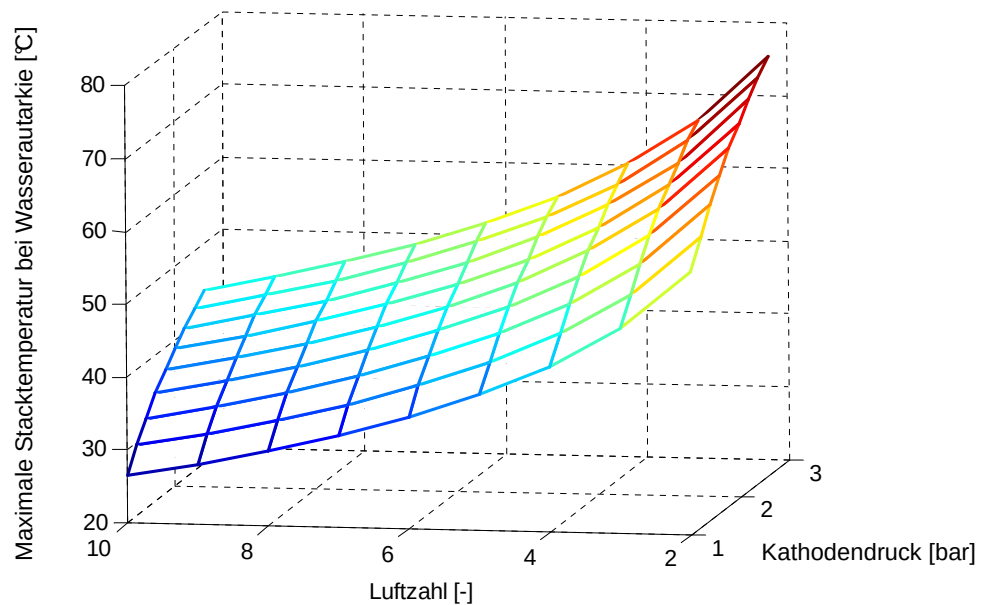


Bild 4.37: Betriebskennfeld des Stacks bei Wasserautarkie

4.2.2 Kondensator

Um über den maximalen Taupunkttemperaturen aus Bild 4.37 liegende Zelltemperaturen zu realisieren, ist eine der DMFC nachgeschaltete Komponente notwendig, die den dampfförmigen Wasseranteil im Kathodenabgas herabsetzt und das gewonnene flüssige Wasser abscheidet und somit im System behält. Ein luftgekühlter Kondensator kühlt den Abgasstrom ab, wobei Wasser auskondensiert und abgetrennt werden kann (Bild 4.38).

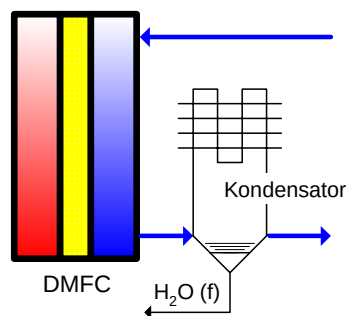


Bild 4.38: Wasserrückgewinnung mit Kondensator

4.2.3 Kathodische Wasser- und Wärmerückführung

Um den Wasserdampfgehalt des Abgases herabzusetzen, bietet sich die Möglichkeit, Wasser auf den Zuluftstrom zu übertragen und so im System zu halten. Dazu muss wie in Bild 4.39 dargestellt gleichzeitig die latente Wärme des Wasserdampfes transportiert werden.

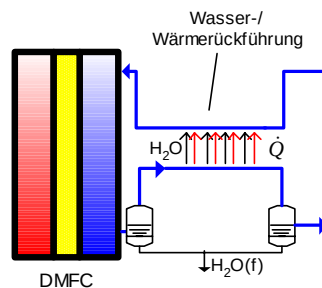


Bild 4.39: Wasserrückgewinnung mit Membranverfahren

Hierzu gibt es folgende systemtechnische Optionen:

Permeation

Mit einer selektiv durchlässigen Membran lässt sich die Feuchtigkeit der Abluft in die Zuluft transportieren, ohne dass sich die beiden Stoffströme vermischen. Man spricht von einer Permeation des Wassers aus der Abluft in die Frischluft. Nafion® bietet zum Beispiel eine sehr gute Permeabilität für Wasser. In [77] werden mehrere Membrantypen untersucht und verglichen. Das Membranmodul lässt sich ähnlich einem Brennstoffzellenstack aufbauen. In [42] ist ein Befeuchtermodul näher erläutert. Hier ist zusätzlich eine katalytische Beschichtung auf der Abluftseite vorgesehen, um eventuelle Methanolsuren im Abgas umzusetzen. Vor und nach dem Membranmodul wird in Abscheiden das flüssige Wasser abgetrennt.

Regenerator

Hier wird das Prinzip eines regenerativen Wärmeübertragers verfolgt. Ein Element, welches sowohl Wasser als auch Wärme speichert, wird abwechselnd von der Zuluft und der Abluft durchströmt. Dies kann zum Beispiel durch ein Laufrad, deren oberes Segment der Zuluft und deren unteres Segment der Abluft zugeordnet sind, realisiert werden. Das Patent [78] beschreibt dieses System näher.

Wärmeübertrager mit Einspritzung

In einem Wärmeübertrager wird Wärme von der Abluft zur Zuluft übertragen. Das auskondensierte Wasser auf der Abgasseite wird über eine separate Wassereindüsung der Zuluft zugeführt, so dass das Wasser im Wärmeübertrager auf der Zuluftseite wieder verdampfen kann.

Die Vorwärmung und Befeuchtung der Zuluft verringert das Auskühlen in der kathodischen Eintrittszone des Stacks. Nachteilig ist jedoch die größere Menge flüssigen Wassers in den

Kathodenkanälen des Stacks. Dies behindert den Sauerstofftransport zur Reaktionszone und erhöht den Druckverlust.

4.2.4 Bewertung und Auswahl

Ohne zusätzliche Vorrichtung zur Wasserrückgewinnung müsste die DMFC im wasserautarken Betrieb unterhalb einer Temperatur von 45 °C betrieben werden. Bei dieser Temperatur ergibt sich eine geringe Leistungsdichte, etwa der Hälfte der Leistungsdichte bei 80 °C (siehe Kapitel 3.2). Zudem müsste bei 45 °C bezogen auf den unteren Heizwert die gesamte Abwärme des Stacks über einen Anodenkühler ausgetragen werden, weil nur ein geringer Anteil über Verdunstung auf der Kathode aufgenommen wird. Das heißt, die Einsparung des Bauteils Kondensator auf der Kathodenseite würde durch einen zusätzlichen Kühler auf der Anodenseite erkaufte. Für Systeme kleiner Leistung im mobilen Bereich, die ausreichend über die Stackoberfläche gekühlt werden können und damit keinen Anodenkühler benötigen, ist dies die bessere Lösung.

Die kathodische Wasser/Wärmerückführung erfordert einen hohen systemtechnischen Aufwand, da zusätzlich ein Anodenkühler notwendig ist. Außerdem steigt der parasitäre Verbrauch durch höhere Druckverluste im Kathodenpfad.

Bei der Wasserrückgewinnung durch einen Abgaskondensator kann der Stack bei Temperaturen über 60 °C betrieben werden. Dies bewirkt eine deutliche Steigerung der Leistungsdichte und des Wirkungsgrades und stellt somit für ein DMFC-System der kW-Klasse die beste Lösung dar. Gekoppelt mit der Abwärmeabfuhr über die Verdunstungskühlung, ergibt sich die systemtechnisch einfachste Lösung. Daher wird diese Lösung für den Bereich Wassermanagement ausgewählt.

4.3 Wärmemanagement

Das Wärmemanagement ermöglicht den Betrieb des Stacks bei einer vorgegebenen Temperatur. Dies heißt, dass die im Stack produzierte Abwärme abgeführt werden muss. Der Zellwirkungsgrad einer DMFC liegt im Auslegungspunkt bei zwischen 20 % und 30 %. Während des Zellbetriebs wird daher etwa zwei- bis dreimal soviel thermische Energie erzeugt wie elektrische. Die Wärme, die bei der Zellreaktion entsteht, ist abhängig von Stromdichte, Zellspannung und Faraday'schen Wirkungsgrad:

$$\dot{q}_{\text{Zelle}} = \left(\frac{U_{\text{HW}}}{\eta_F} - U_{\text{Zelle}} \right) \cdot i \quad (4.72)$$

Der Luftvolumenstrom und die Stacktemperatur bestimmen dabei den Wärmestrom, der durch die Verdunstung von Wasser abgeführt werden kann. Bei Zufuhr von trockener Luft gilt:

$$\dot{q}_{\text{Verd}} = \dot{n}_{\text{Abgas, Inert}} \frac{1}{p_g / p_{\text{Satt, H}_2\text{O}}(T) - 1} \Delta h_{\text{vap}}(T) \quad (4.73)$$

Der Abgasinertmolenstrom $\dot{n}_{\text{Abgas, Inert}}$ resultiert aus dem zugeführten Molenstrom trockener Luft, des Sauerstoffumsatzes und der Kohlendioxidproduktion. Bezogen auf die Stromdichte i , der Luftzahl λ_K und des Faraday'schen Wirkungsgrades η_F ergibt sich für den Abgasinertmolenstrom:

$$\dot{n}_{Abgas, Inert} = \left(\frac{\lambda_K}{4 \cdot 0,21} - \frac{1}{4 \cdot \eta_F} + \frac{1 - \eta_F}{6 \cdot \eta_F} \right) i / F \quad (4.74)$$

Gleichung (4.74) eingesetzt in (4.73) liefert mit (4.72) den über die Wasserverdunstung ausgetragenen Wärmestrom. Zunächst ergibt sich aus der Luftversorgung dieses Stacks die minimal notwendige Luftzahl von 3,5 (siehe Abschnitt 4.1). In Bild 4.40 ist der entsprechende relativ zur Stackabwärme aufgetragene Verdunstungswärmestrom in Abhängigkeit von der Stacktemperatur aufgetragen. Der Stack muss unterhalb einer Betriebstemperatur von 77 °C zusätzlich gekühlt werden. Stacktemperaturen oberhalb von 77 °C lassen sich nicht realisieren, da über die Verdunstung mehr Wärme ausgetragen wird als im Stack produziert wird. Bei einer Stacktemperatur von 60 °C sinkt der Anteil der über Verdunstung ausgetragenen Wärme auf 30 %.

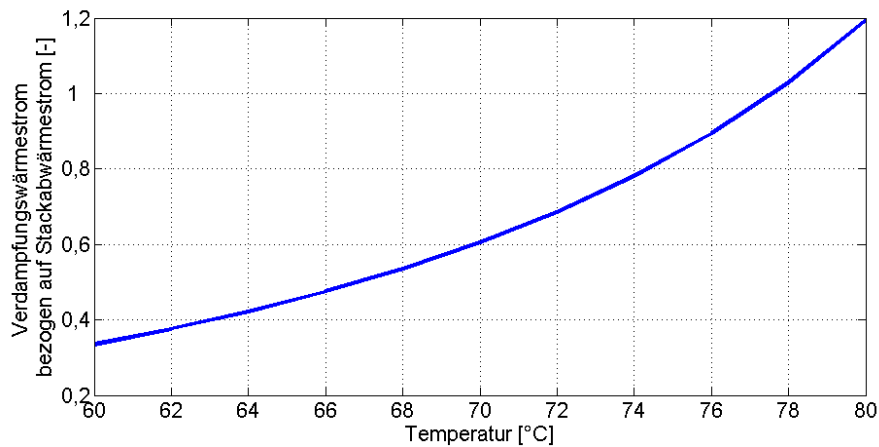


Bild 4.40: Verdunstungswärmestrom bezogen auf die Gesamtstackabwärme in Abhängigkeit von der Stacktemperatur ($U_{Zelle} = 400$ mV; $\eta_F = 0,75$, $\lambda_K = 3,5$; $p_K = 1$ bar)

Bild 4.41 betrachtet die Möglichkeiten der Wärmeabfuhr. Bei der Auswahl des geeigneten Verfahrens ist neben der geringen Systemkomplexität eine möglichst homogene Verteilung der Fluidtemperatur über der Zelfläche wichtig. In den folgenden Unterkapiteln werden die einzelnen Lösungswege aus Bild 4.41 näher erläutert und untersucht.

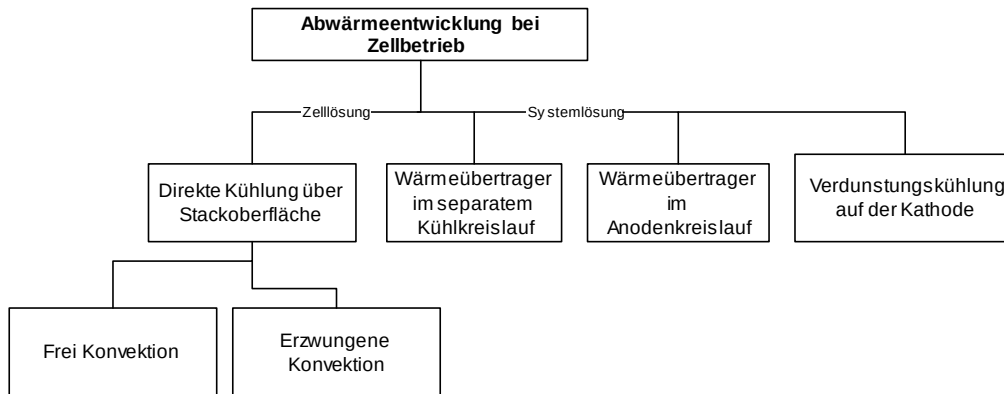


Bild 4.41: Wärmeabfuhrkonzepte

4.3.1 Direkte Kühlung über Stackoberfläche

Die Abwärme des Stacks kann über die Oberfläche des Stacks und des Systems über natürliche oder erzwungene Konvektion abgegeben werden. Die Systemgröße spielt dabei eine wichtige Rolle. Zum einen ist die Leistungsdichte bei Stacks mit geringerer Leistungsgröße kleiner, zum anderen erhöht sich das Oberflächen/Volumenverhältnis mit abnehmender Stackgröße. Beides trägt dazu bei, dass bei kleineren Leistungen ein immer größerer Teil der Abwärme über die Stackoberfläche ausgetragen werden kann. Bild 4.42 links zeigt für einen Leistungsbereich von 10 W bis 1000 W die Leistungsdichte für einen typischen DMFC-Stack im Bipolardesign mit Endplatten aus Aluminium. Die Leistungsdichte fällt bei 10 W auf etwa 40 % des Wertes bei 1000 W. Gleichzeitig steigt das Oberflächen/Volumenverhältnis bei einer Leistung von 10 W auf das Fünffache, wenn von einem Quader gleicher Kantenlänge ausgegangen wird.

Bei Vorgabe der Leistungsdichte und Geometrie kann der Wärmeartrag abgeschätzt werden. Der Stack wird dafür als Quader betrachtet. Dabei wird der Wärmeartrag über die Flächen in Kantennähe über Formfaktoren bestimmt [79]. Unter der Annahme einer über das Stackvolumen konstant verteilten Wärmequellendichte, eines Wärmeleitkoeffizienten des Stackmaterials von 50 W/mK und eines Wärmeübergangskoeffizienten von 50 W/m²K bei erzwungener Konvektion an der Stackaußenfläche ergibt sich ein relativer Wärmeartrag über die gesamte Stackoberfläche gemäß Bild 4.42 rechts. Der relative Wärmeartrag gibt das Verhältnis der über die Stackausenfläche abgegebenen Wärme zur Gesamtabwärme abzüglich der Verdunstungswärme wieder. Gemäß Bild 4.40 wird bei 60 °C Stacktemperatur etwa 30 % der Abwärme schon über Wasserverdunstung auf der Kathode abgeführt. Bei einer Stacktemperatur von 70 °C steigt dieser Wert auf 65 %. Stacks mit einer elektrischen Leistung bis 20 W können über die direkte Kühlung bei 60 °C Stacktemperatur gehalten werden. Stackgrößen bis 150 W können auf 70 °C temperiert werden. Bei 1000-W-Stacks können bei 60 °C etwa 20 % und bei 70 °C etwa 50 % der verbleibenden Abwärmelast über direkte Kühlung abgegeben werden.

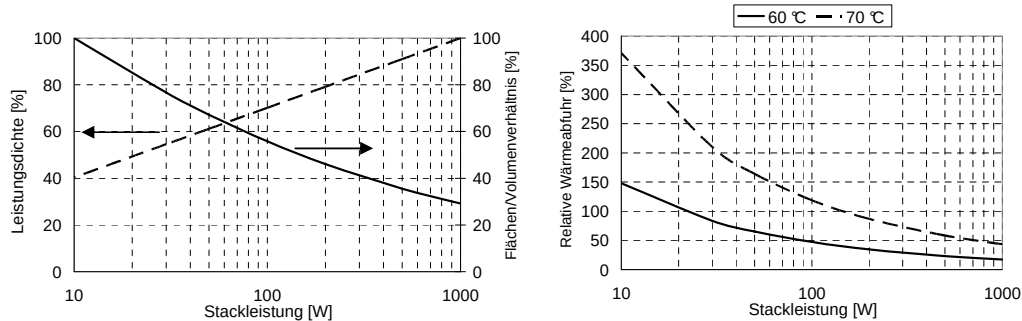


Bild 4.42: Leistungsichte und Oberflächen/Volumenverhältnis in Abhängigkeit der Stackleistung (links); Relative Wärmeabfuhr in Abhängigkeit von der Stackleistung bei $\vartheta_{Stack} = 60\text{ °C}$ und 70 °C ($\eta_{Zelle} = 20\%$, $\vartheta_{Umg} = 20\text{ °C}$, $\lambda_K = 3,5$; $p_K = 1\text{ bar}$)

4.3.2 Wärmeübertrager mit einem separaten Kühlkreislauf

Wie bei mit Wasserstoff betriebenen Brennstoffzellen ist bei der DMFC auch ein zusätzlicher Kühlkreislauf denkbar. Damit kann das Wärmemanagement unabhängig von Luftversorgung und Anodenkreislauf arbeiten. Tabelle 4.13 zeigt eine Abschätzung der zusätzlichen Baugröße des Stacks bei Integration der Kühlkanäle. Zum Beispiel bei der Kühlung jeder vierten Zelle steigt das Stackvolumen um 8 %. Hinzu kommt noch der zusätzliche Bauraumbedarf einer Kühlwasserpumpe und des Wärmeübertragers.

Tabelle 4.13: Abschätzung des zusätzlichen Bauraums für die Kühlkanäle (DMFC-Zelle 3mm; Kühlkanal 1mm)

Anzahl gekühlter Zellen pro Kühlkanal/flowfield	Absolute Vergrößerung der durchschnittl. Zellbreite in [mm]	Vergrößerung des Stackvolumens [%]
1	1	33
2	0,5	17
3	0,33	11
4	0,25	8

4.3.3 Wärmeübertrager im Anodenkreislauf

In den Anodenkreislauf lässt sich ein luftgekühlter Wärmeübertrager integrieren. Dieser hält die Stackeintrittstemperatur auf einen konstanten Wert. Grundsätzlich gibt es zwei Möglichkeiten der Anordnung des Wärmeübertragers im Anodenkreislauf (Bild 4.43 und Bild 4.44):

- **Vor der Gasabtrennung:** Ein 2-Phasengemisch aus Wasser, Methanol und Kohlendioxid durchströmt den Wärmeübertrager.

- **Nach der Gasabtrennung:** Ein flüssiges Wasser/Methanol-Gemisch durchströmt den Wärmeübertrager.

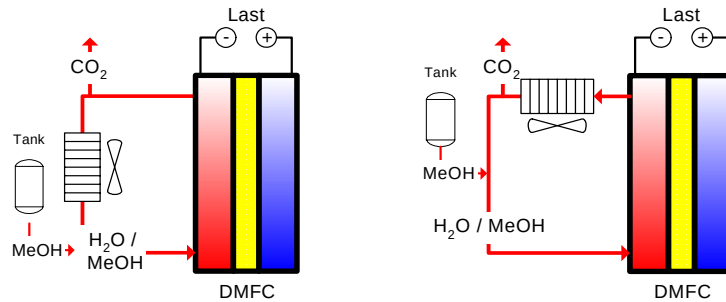


Bild 4.43: Nach Anodengasabscheider angeordneter Anodenkühler Bild 4.44: Vor Anodengasabscheider angeordneter Anodenkühler

Erfolgt die Gasabscheidung nach dem Anodenkühler, fällt die Abscheidetemperatur um die Temperaturabkühlung im Kühler geringer aus und es wird ein geringer Methanolmassenstrom über das Anodenabgas emittiert. In Bild 4.45 ist die Temperaturspreizung über den Kühler in Abhängigkeit von der Stacktemperatur bei einem in Kapitel 3.3 ermittelten Anodenvolumenstrom von 6 l/min dargestellt. Die Temperaturabkühlung sinkt mit abnehmender Kühllast. Bei etwa 77 °C liegt die Kühllast bei Null, da die gesamte Stackabwärme über Verdunstung ausgetragen wird. Mit fallender Stacktemperatur steigen die Kühllast und damit die Temperaturspreizung. Bei 60 °C beträgt die Abkühlung etwa 7 °C. Damit ist die Temperaturabsenkung im Kühler zu gering, um die Methanolemission spürbar zu senken (siehe folgenden Abschnitt 4.5). Jedoch steigt durch die 2-Phasen-Strömung im Wärmeübertrager der Druckverlust des Kühlers erheblich. Dadurch erhöhen sich die Förderhöhe und der parasitäre Verbrauch der Umwälzpumpe im Anodenkreislauf. Daher ist eine vorgeschaltete Gasabscheidung der nachgeschalteten Variante vorzuziehen.

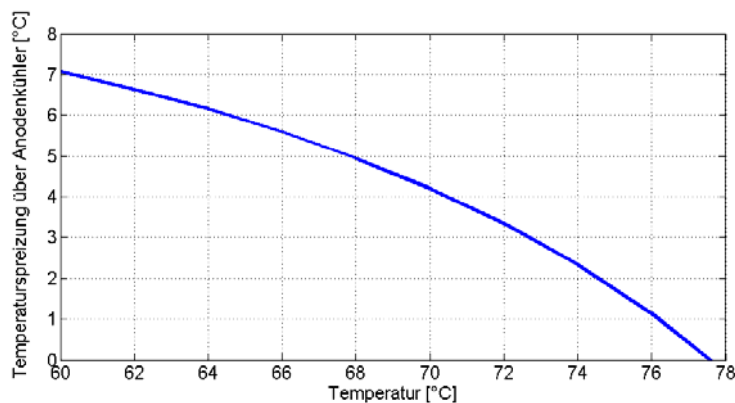


Bild 4.45: Temperaturspreizung über den Anodenkühler in Abhängigkeit der Stacktemperatur ($U_{\text{Zelle}} = 400 \text{ mV V}$; $\eta_F = 0,75$; $\dot{V}_{\text{Anodengemisch}} = 6 \text{ l/min}$)

4.3.4 Verdunstungskühlung auf der Kathode

Über die Luftzahl kann der Verdunstungswärmestrom so eingestellt werden, dass die gesamten Stackabwärme abgeführt werden kann. Nach Bild 4.40 entspricht bei etwa 77 °C Stacktemperatur die für die Wärmeabfuhr notwendige Luftzahl der für die eigentliche Luftversorgung notwendige Luftzahl von 3,5. Soll eine niedrigere Stacktemperatur eingestellt werden, muss die Luftzahl angehoben werden. In Bild 4.46 ist die zur Kühlung notwendige Luftzahl in Abhängigkeit von der Stacktemperatur dargestellt. Bei einer Absenkung der Zelltemperatur von 80 °C auf 60 °C steigt die Luftzahl von 3 auf 10. Dies bedeutet zum einen eine Erhöhung der Luftförderleistung und zum anderen eine erhebliche Absenkung der Grenztaupunkttemperatur zur Wasserautarkie (siehe Abschnitt 4.2).

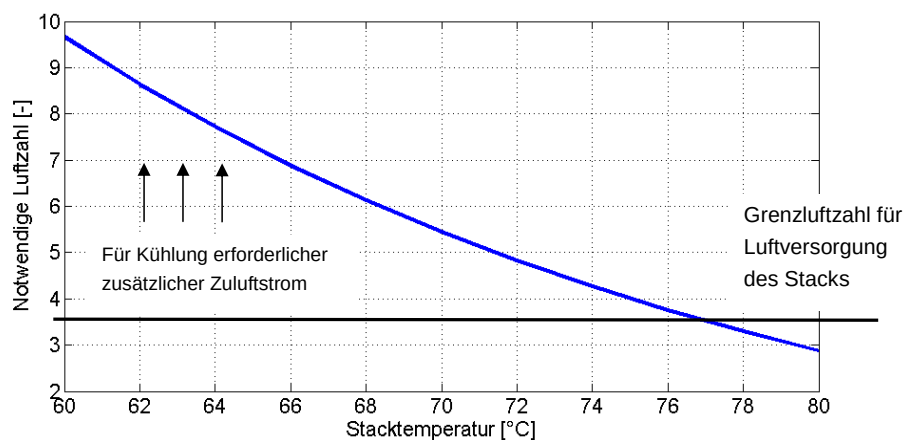


Bild 4.46: Erforderliche Luftzahl zur Kühlung in Abhängigkeit von der Stacktemperatur ($\eta_F = 0,75$; $U_{Zelle} = 400 \text{ mV}$)

4.3.5 Bewertung und Auswahl eines Kühlkonzeptes

Auszuschließen ist die Kühlung über einen separaten Kühlkreislauf. Dies würde die Systemkomplexität erhöhen und durch zusätzliche Kühlkanäle die Leistungsdichte des Stacks herabsetzen. Die Verdunstungskühlung ergibt sich automatisch während des Stackbetriebs, so lange die Taupunkttemperatur der Zuluft nicht über der Stacktemperatur liegt. Eine ausschließliche Kühlung über die Verdunstung auf der Kathodenseite ist für einen weiten Bereich von Betriebsparametern möglich und systemtechnisch die einfachste Lösung. Zu beachten ist jedoch die Gefahr der Austrocknung der Membran und der Auskühlung im Eintrittsbereich der Zuluft aufgrund der hohen Verdunstungsrate [80]. Durchgeführte Untersuchungen am 10-Zeller mit trockener Zuluft zeigen jedoch keine Probleme bei Stacktemperaturen bis 70 °C. Bei Betrieb mit hohem Druck, geringer Temperatur oder kleiner Luftzahl ist es möglich, dass der Wärmeabtrag über die Verdunstungskühlung nicht ausreicht, um die Stackwärme abzuführen. Mit einer Kombination aus Verdunstungskühlung und Anodenkühler ist es also möglich, den Stack in einem erweiterten Betriebsparameterbereich zu betreiben. Kleine Stacks mit elektrischen Leistungen bis etwa 150 W lassen sich über die Stackaussenfläche ausreichend kühlen.

Für den Systementwurf wird alleinig die Verdunstungskühlung zur Wärmeabfuhr verwendet. Die Auswirkung auf die Systemauslegung wird in Kapitel 7 diskutiert.

4.4 Gasabscheidung im Anodenkreis

In der Zelle bildet sich unter Last Kohlendioxid. Dieses verlässt zusammen mit der Anodenflüssigkeit als 2-Phasen-Gemisch den Anodenraum. Ein Teil des Kohlendioxids wird in der Anodenflüssigkeit gelöst. Das gasförmig verbleibende Kohlendioxid muss im Anodenkreislauf vor der Umwälzpumpe abgetrennt werden.

4.4.1 Membranverfahren

In [36] ist der Einsatz von Membranen auf Polyethylenbasis diskutiert. Eine vorwiegend für Kohlendioxid durchlässige Membran führt die Abscheidung des Gases von der Anodenflüssigkeit herbei. Ein Abscheidungsgrad von bis zu 99 % ist erreichbar. Dabei kann eine zusätzliche Methanol- und Wasserpermeation durch die Membran nicht verhindert werden. Das Membranverfahren erscheint in Verbindung mit einem Anodenkühler als Alternative zur direkten Abtrennung. Die Kopplung der Wärmeabfuhr mit der Gasabscheidung in einem Bauteil führt zu einem kompakten Systemaufbau. Nachteilig ist die großflächige Abgabe von Methanol und Wasser über die Membranoberfläche an die Umgebung.

4.4.2 Beruhigungsbehälter

Durch den Einfluss der Schwerkraft kann die Gasphase von der Flüssigphase getrennt werden. Der Behälter muss dabei so groß dimensioniert werden, dass eine genügend große Beruhigungszone zum Ausperlen der Gasblasen vorhanden ist.

Bild 4.47 teilt den Behälter in drei Zonen ein. Die Einstromzone zeigt ein stark ungeordnetes und instationäres Verhalten, zum einen verursacht durch den Einstromimpuls des 2-Phasen-Gemisches und zum anderen durch das Ausperlen der größeren Gasblasen. Darunter beginnt die Beruhigungszone, in die nur die kleineren Blasen vordringen, bevor sie wieder nach oben steigen und in die Gasatmosphäre übergehen.

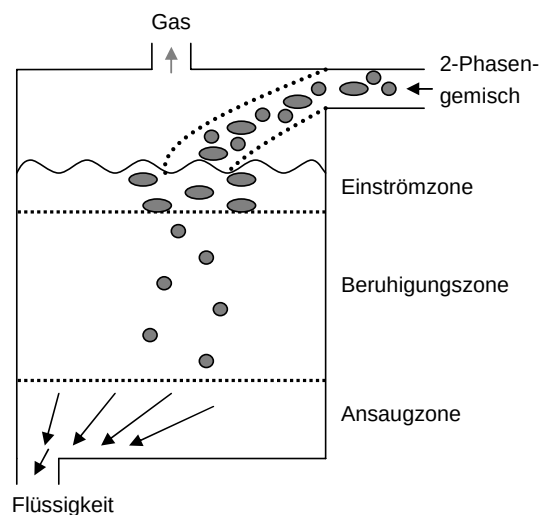


Bild 4.47: Schematische Darstellung der Zonen in einem Beruhigungsbehälter

4.4.3 Fliehkraft

Dem Prinzip der Zyklonstaubabscheider folgend kann das 2-Phasen-Gemisch in Rotation versetzt werden. Dadurch wirkt eine höhere Fliehkraft auf die Teilchen mit höherer Masse. Die Gasbläschen werden nach innen getrieben und die Flüssigphase nach außen gedrückt. Eine Abführung des Gases in der Mitte der Drallströmung kann dann die Gasphase sauber von der Flüssigphase trennen. Dies ermöglicht eine Bauraumverringering bei gleicher Abtrennleistung verglichen mit dem Beruhigungsbehälter.

4.4.4 Einspritzung

Durch eine feine Zerstäubung des Gemisches trennt sich das Gas von der Flüssigkeit und steigt nach oben. Die Zerstäubung wird zum Beispiel durch eine verengte Düse erzeugt.

Bild 4.48 zeigt das Schema einer Vorrichtung beschrieben in [36]. Eine Schwierigkeit stellt dabei das Abscheideverhalten bei Teillast mit abgesenktem Anodendurchfluss dar. Der zusätzliche Druckverlust im Anodenkreislauf von bis zu 1 bar, erhöht den parasitären Verbrauch und den Bauraum der Umwälzpumpe.

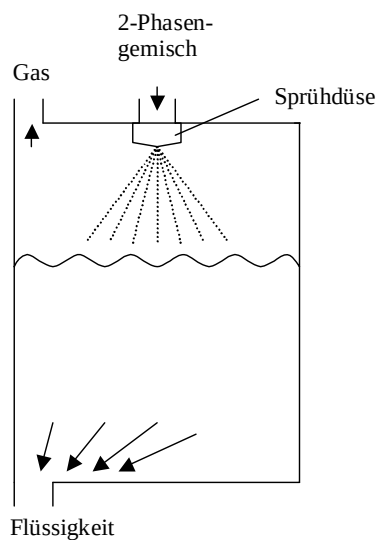


Bild 4.48: Zerstäubungsvorrichtung zur Kohlendioxidabtrennung nach [36]

4.4.5 Bewertung und Auswahl

Im Hinblick auf Einfachheit und Kompaktheit wird der durch Fliehkräfte unterstützte direkte Abtrennprozess ausgewählt. Diese Option bietet zusätzliches Potenzial zur Systemintegration und Kompaktierung wie in Kapitel 6.2 ausführlich beschrieben wird.

4.5 Anodenabgasreinigung

In der Brennstoffzelle wird unter Last Kohlendioxid produziert, das zuerst bis zur Sättigungsgrenze in der Anodenflüssigkeit in Lösung geht. Weiter entstehendes Kohlendioxid bildet als Trägergas mit der Anodenflüssigkeit ein 2-Phasengemisch. Die Gasphase, im Folgenden als Anodengas bezeichnet, muss abgetrennt und an die Umgebung abgegeben werden. Entsprechend der Zusammensetzung der Anodenflüssigkeit enthält das Anodenabgas zusätzlich zum Kohlendioxid dampfförmige Anteile von Wasser, Methanol und anderen Abbauprodukten der Methanoloxidation. In der folgenden Analyse wird jedoch nur ein Gemisch aus Kohlendioxid, Wasser und Methanol betrachtet.

Die Molenströme Methanol und Wasserdampf, die mit dem Anodenabgas die Brennstoffzelle verlassen, ergeben sich aus:

$$\dot{N}_i = y_i \frac{\dot{N}_{CO_2}}{y_{CO_2}} \quad \text{mit } i = H_2O; CH_3OH \quad (4.75)$$

Die Molanteile y_i der Komponenten werden über die in Anhang 12.1 beschriebenen Gleichgewichtsthermodynamik bestimmt.

Die vorgestellten Varianten zur Behandlung des Anodenabgases werden im Hinblick auf folgende Punkte bewerten:

- Wirkungsgradverringering infolge von Brennstoffverlust über das Anodengas
- Methanolemissionen des Systems

Der anodische Wasserverlust über das Anodenabgas ist in Kapitel 4.2 untersucht worden und wird hier nicht weiter betrachtet.

Der elektrochemisch umgesetzte Methanolumenstrom entspricht genau dem produzierten Kohlendioxidmolenstrom. Der Methanolverlust über das Anodenabgas kann mit dem anodischen Faraday'schen Wirkungsgrad erfasst werden. Er definiert sich aus:

$$\eta_F^A = \frac{1/\eta_F}{1/\eta_F + y_{CH_3OH}/y_{CO_2}} \quad (4.76)$$

Der anodische Faraday'sche Wirkungsgrad hat gemäß Gleichung (2.28) direkten Einfluss auf den Zellwirkungsgrad.

Wenn ein DMFC-System in einem geschlossenen Raum betrieben wird, stellt sich eine von der Methanolemission des Systems und der Luftwechselzahl des Raums abhängige Methanolraumkonzentration ein. Die Konzentration in der Raumluft lässt sich über das Raumvolumen und die Luftwechselzahl berechnen:

$$x_{CH_3OH} = \frac{\dot{N}_{CH_3OH}}{V_{Raum} \cdot z_{Wechsel}} \quad (4.77)$$

Die Luftwechselzahl gibt den Anteil des Raumvolumens an, der pro Stunde erneuert wird. Nach DIN 4701 darf eine Luftwechselzahl von 0,5 nicht unterschritten werden. Bei einem 16 m² großen Raum mit 2,5 m Deckenhöhe ergibt sich mit einer Luftwechselzahl von 0,5 und dem MAK-Wert von 200 ppm der maximale zu emittierende Methanolstrom von 10⁻⁴ mol/s. Dabei wird von einer idealen Vermischung im Raum ausgegangen.

Für die Berechnung der streckenbezogenen Methanolemission dient als Basis ein Fahrzeug mit einem DMFC-Antriebssystem, das im Nennbetrieb 1 kW elektrische Leistung erzeugt und dabei 20 km/h schnell fährt.

Im Folgenden werden einzelne Schaltungsvarianten im Hinblick auf Methanolemissionen und Wirkungsgradeinfluss betrachtet. Die einfachste Möglichkeit besteht in der direkten Abgabe des im Gasabscheider abgetrennten Anodengases. Bild 4.49 zeigt den Methanolanteil im abgetrennten Anodenabgas und den anodischen Faraday'schen Wirkungsgrad für Temperaturen von 30 °C bis 80 °C und Methanolkonzentrationen 0,5, 1, und 2 M in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider. Mit steigender Temperatur steigt der Methanolanteil in der Gasphase exponentiell aufgrund des steigenden Dampfdrucks des flüssigen Methanols. Der Einfluss der Methanolflüssigkeitskonzentration auf den Methanolanteil im Anodengas ist nahezu linear. Bei Abscheidetemperaturen bis 60 °C und Konzentrationen bis 1 M der Methanolverlust über die CO₂-Abtrennung gering ($\eta_F^A \geq 0,95$). Bei hohen Temperaturen über 60 °C steigt der Methanolgasanteil bis auf fast 15 % bei 80 °C und 2 M. Der anodische Faraday'sche Wirkungsgrad fällt dabei auf unter 70 %. Bei Betrieb mit einer geringen Methanolkonzentration von 0,5 M bei 80 °C Abscheidetemperatur liegt $\eta_F^A > 92$ % und verschlechtert den Systemwirkungsgrad um etwa 2 %-Punkte.

Bild 4.50 zeigt den Methanolanteil im abgetrennten Anodenabgas und den anodischen Faraday'schen Wirkungsgrad für Abscheidedrücke von 1 bar bis 3 bar und Methanolkonzentrationen 0,5, 1, und 2 M der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider. Der Methanolanteil im Anodenabgas verhält sich umgekehrt reziprok zum Abscheidendruck. Bei einer Verdopplung des Druckes von 1 bar auf 2 bar halbiert sich der Methanolanteil im Abgas. Bei einer 1 M-Anodenlösung im Abscheider steigt der anodische Faraday'sche Wirkungsgrad von 0,90 auf 0,95. Dies verbessert den Systemwirkungsgrad um etwa 1,3 %-Punkte.

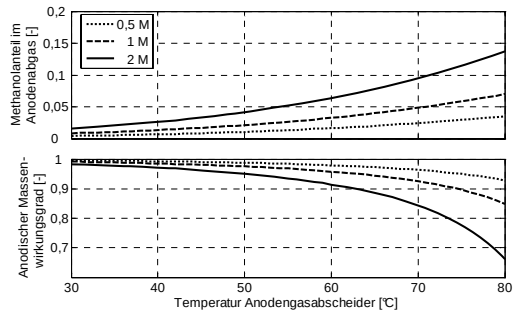


Bild 4.49: Methanolanteil im Anodenabgas und Faraday'scher Wirkungsgrad für verschiedene Methankonzentrationen in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider in Abhängigkeit von der Temperatur (Druck Abscheider = 1 bar)

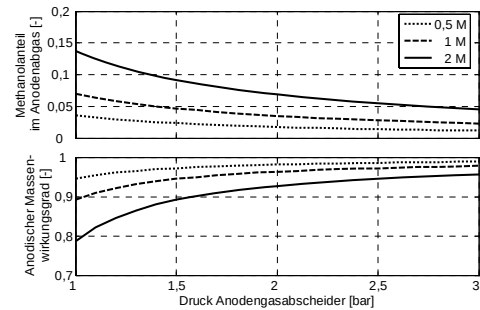


Bild 4.50: Methanolanteil im Anodenabgas und Faraday'scher Wirkungsgrad für verschiedene Methankonzentrationen in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider in Abhängigkeit vom Druck (Temperatur Abscheider = 80 °C)

Für den definierten Basisraum ist die sich im Dauerbetrieb einstellende Methankonzentration berechnet und in Bild 4.51 für einen Temperaturbereich von 30° bis 80°C für eine 1000 W-DMFC dargestellt. Der Betrieb mit Abscheidetemperaturen über 50 °C führt zu Methankonzentrationen im Basisraum, die über dem MAK-Wert liegen. Die Geruchsschwelle von 4 ppm wird überschritten. Der Vergleich der Methanolemissionen eines DMFC-Antriebssystems mit dem EURO 4 –Grenzwert ist in siehe Bild 4.52 dargestellt. Der EURO 4-Grenzwert wird bei 30 °C knapp eingehalten und wird bei 80 °C Abscheidetemperatur um mehr als das 10-fache überschritten, so dass eine Nachbehandlung notwendig wird.

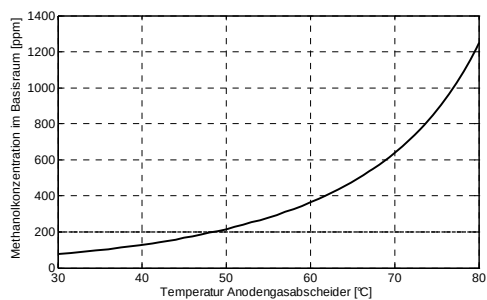


Bild 4.51: Methanolemission durch Anodenabgas bei 1-kW-DMFC-System ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

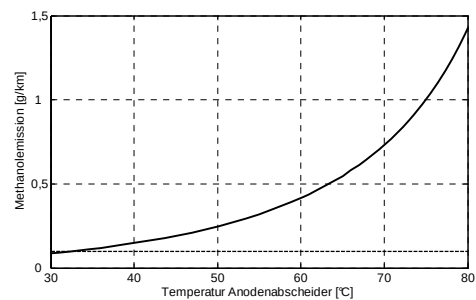


Bild 4.52: Methanolemission bei einem 1-kW- DMFC- Antriebssystem ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

4.5.1 Anodenabgaskondensator

Das feuchte und warme Anodenabgas kann in einem Kondensator abgekühlt werden. Ein Abscheider trennt das auskondensierte Wasser und Methanol ab. Der Kondensator in Bild 4.53 kann durch einen separaten Lüfter, durch die Kühlluft des Kathodenkondensators oder durch den Kathodenzuluftstrom gekühlt werden.

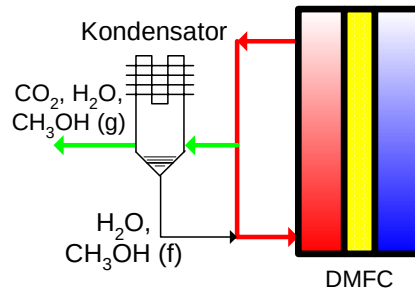


Bild 4.53: Schaltung mit Kondensator zur Methanolrückgewinnung

Bild 4.54 zeigt den Methanolanteil im abgetrennten Anodenabgas und den anodischen Massenwirkungsgrad nach dem Anodenkondensator für Temperaturen von 30 °C bis 80 °C bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M in der Anodenflüssigkeit und 1 bar Druck im Anodengasabscheider. Der Anteil sinkt deutlich verglichen mit dem ursprünglichen Wert des Anodenabgases im Abscheider. Bei 80 °C Abscheidetemperatur beträgt die Methanolemission nur noch die Hälfte des ursprünglichen Wertes. Es werden somit 50 % des Methanols im Anodenabgas zurückgewonnen. Der anodische Faraday'sche Wirkungsgrad liegt mit dem Anodengaskondensator über 0,98. Bild 4.55 zeigt die Verbesserung des Systemwirkungsgrads bei einer Abkühlung des Anodenabgases auf 30 °C. Bei Anodentemperaturen um 60 °C ist nur eine geringe Verbesserung festzustellen. Bei 80 °C lässt sich jedoch der Systemwirkungsgrad um 0,9 %-Punkte steigern.

Für den definierten Basisraum ist die sich im Dauerbetrieb einstellende Methanolkonzentration berechnet und in Bild 4.56 für einen Temperaturbereich von 30° bis 80°C für eine 1000 W-DMFC dargestellt. Der Betrieb mit Abscheidetemperaturen über 55 °C führt zu Methanolkonzentrationen im Basisraum, die über dem MAK-Wert liegen.

Der Vergleich der Methanolemissionen eines DMFC-Antriebssystems mit dem EURO 4 –Grenzwert ist in siehe Bild 4.57 dargestellt. Der EURO 4-Grenzwert wird bis 35 °C Abscheidetemperatur eingehalten. Steigt diese auf 80 °C wird der Grenzwert um mehr als das 4-fache überschritten. Das Methanol ist im Anodenabgas als auch im Basisraum als Geruch wahrzunehmen.

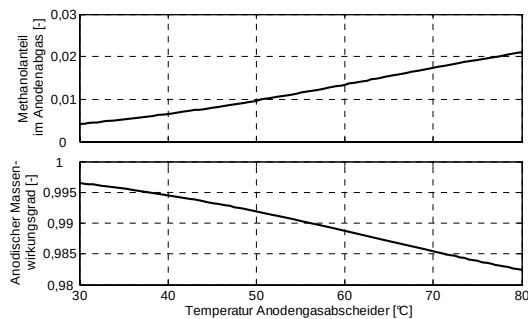


Bild 4.54: Methanolanteil im Anodenabgas und Faraday'scher Wirkungsgrad für verschiedene Methanolkonzentrationen in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider in Abhängigkeit von der Temperatur ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodenabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

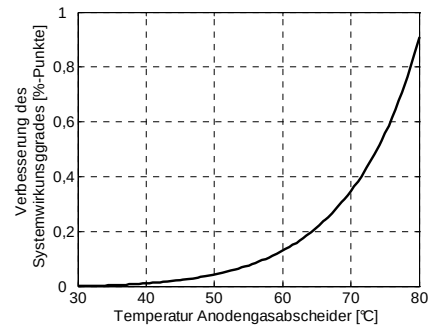


Bild 4.55: Verbesserung des Systemwirkungsgrads durch die Methanolrückgewinnung bei Abkühlung des Anodenabgases auf 30 °C ($\eta_U = 25 \%$, $p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

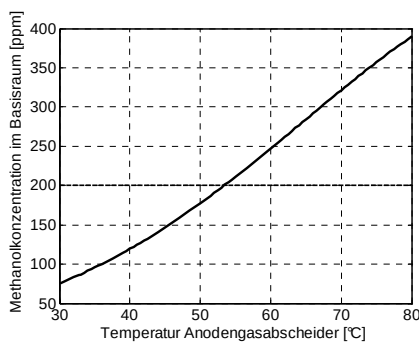


Bild 4.56: Methanolemission durch Anodenabgas bei einem 1-kW-DMFC-System ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

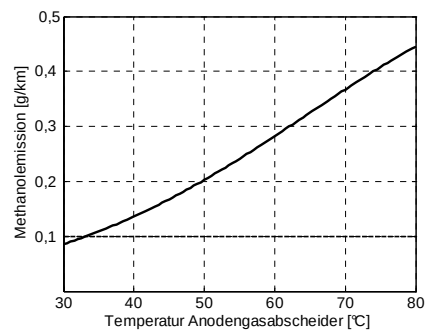


Bild 4.57: Methanolemission bei einem 1-kW-DMFC-Antriebssystem ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

4.5.2 Einspeisung in Kathodenkreislauf nach der Brennstoffzelle

Um das Anodenabgas mit Methanolanteilen nicht direkt in die Umgebung zu leiten, bietet sich die Möglichkeit einer Vermischung des Anodenabgases mit dem Kathodenabgas. Das Inertgasstromverhältnis zwischen Kathoden- und Anodenabgas ist abhängig von der Luftzahl. Bei einer Luftzahl von 4 liegt das Inertgasstromverhältnis bei 28:1. Bild 4.58 zeigt eine Verfahrenskonfiguration mit einer Zumischung des Anodengases direkt nach der Brennstoffzelle und vor dem Kondensator.

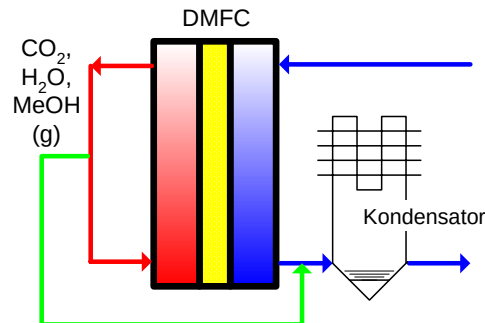


Bild 4.58: Methanolkonzentration in der Kathodenabluft nach dem Kondensator bei Zusp eisung Anodenabgas vor dem Kondensator

Bei einer Kondensatoraustrittstemperatur von 40 °C ist etwa 40 % des Methanols am Kondensatoraustritt auskondensiert. Der anodische Wirkungsgrad beträgt 0,97 bei 80 °C Anodenabscheidertemperatur.

Die Verdünnung des Methanols im Kathodenabgas ist in Bild 4.59 bei einer Luftzahl von 4 dargestellt. Der Methanolanteil im Kathodenabgas steigt im Bereich von 30 °C bis 80 °C Abscheidetemperatur von 400 ppm auf 1200 ppm und liegt damit über der Geruchsschwelle.

Der Systemwirkungsgrad lässt sich bis zu 0,6 %-Punkte bei 80 °C Abscheidetemperatur verbessern (siehe Bild 4.60). Die sich im Dauerbetrieb für den Basisraum einstellende Methanolkonzentration liegt nach Bild 4.56 ab 60 °C Abscheidetemperatur über dem MAK-Wert.

Der EURO 4-Grenzwert wird für Abscheidetemperatur von 60°C bis 80°C nicht eingehalten. Bei 80 °C Abscheidetemperatur wird der Grenzwert um mehr als das 7-fache überschritten. Das Methanol ist im Kathodenabgas als auch im Basisraum als Geruch wahrzunehmen.

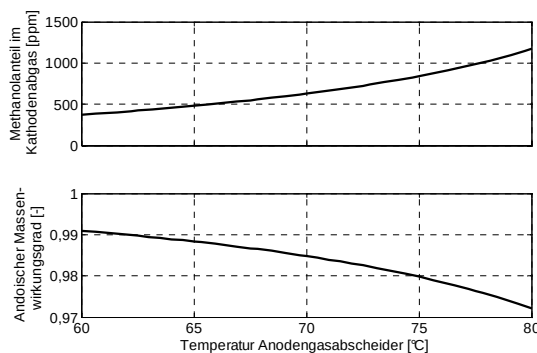


Bild 4.59: Methanolanteil im Anodenabgas und Faraday'scher Wirkungsgrad für verschiedene Methanolkonzentrationen in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider in Abhängigkeit von der Temperatur ($p_{\text{Anodengasabscheider}}=1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5 \text{ M}$)

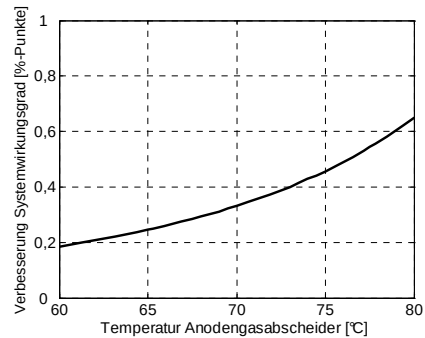


Bild 4.60: Verbesserung des Systemwirkungsgrads durch die Methanolrückgewinnung bei Einspeisung des Anodenabgases in den Kathodenabgaskondensator ($\eta_U = 25 \%$, $p_{\text{Anodengasabscheider}}=1 \text{ bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5 \text{ M}$)

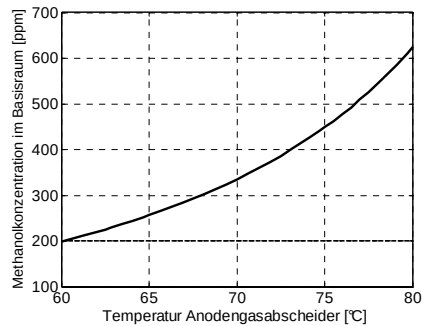


Bild 4.61: Methanolemission durch Anodenabgas bei 1-kW-DMFC-System ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $C_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

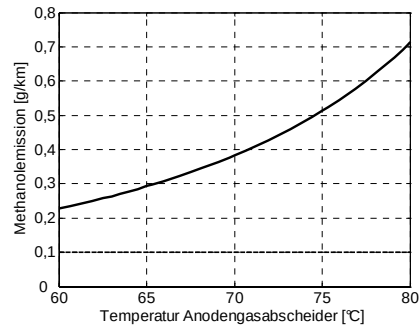


Bild 4.62: Methanolemission bei einem 1-kW-DMFC-Antriebssyst. ($p_{\text{Anodengasabscheider}} = 1 \text{ bar}$, $C_{\text{Anodengasabscheider}} = 0,5 \text{ M}$)

4.5.3 Einspeisung in den Kathodenkreislauf vor dem Stack

Eine Einspeisung vor dem Stack (siehe Bild 4.63) bietet die Möglichkeit die elektrochemische aktive Schicht des Stacks und die zusätzliche Katalysatorbeschichtung auf den Bipolarplatten als Katalytbrenner zu nutzen. Zudem bleibt die freigesetzte Wärme der Methanoloxidation im System und kann zur Verdampfung des kathodischen Wasser genutzt werden. Eine analytische Betrachtung oder eine experimentelle Untersuchung der Abgaszusammensetzung wird im Rahmen dieser nicht Arbeit nicht vorgenommen. Durchgeführte Geruchsproben bei Betrieb des Scooter-Systems mit dieser Schaltung zeigen im Nennbetrieb keine wahrnehmbaren Methanolanteile im Abgas. Daher wird von einer Abgaskonzentration von unter 5 ppm ausgegangen.

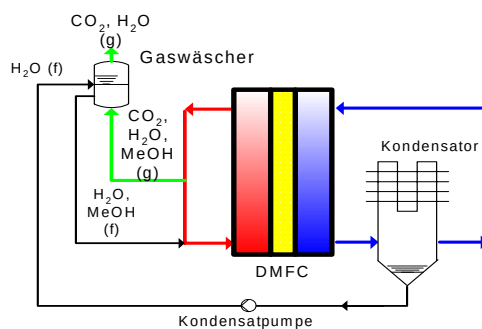


Bild 4.63: Zumischen des Anodenabgases in den Kathodenpfad stromaufwärts des Stacks

4.5.4 Gaswäsche

Das im Anodenabgas enthaltene dampfförmige Methanol kann durch eine in der chemischen Industrie üblichen Gaswäsche zurückgewonnen werden. Dabei wird das Gas in einem Behälter mit reinem flüssigem Wasser in Kontakt gebracht. Es entsteht ein thermodynamisches Ungleichgewicht,

das zu einem Auskondensieren des Methanols führt bis wieder ein Gleichgewichtszustand zwischen Gas- und Flüssigkeitsphase erreicht ist. Bei einem DMFC-System bietet sich als Flüssigkeit das auf der Kathodenseite abgetrennte Kondensat an. Das mit Methanol angereicherte Kondensat wird dann dem Anodenkreislauf zugeführt (siehe Bild 4.64).

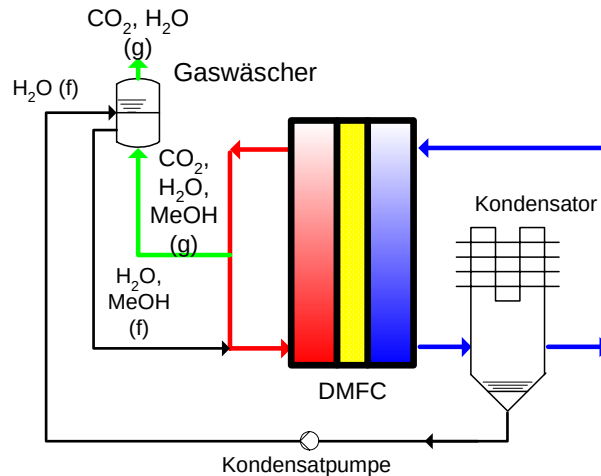


Bild 4.64: Prinzip der Gaswäsche zur Methanolrückgewinnung aus dem Anodenabgas

Für die nachfolgende Analyse werden Kondensattemperatur und Kondensatmassenstrom aus der Wasserbilanz des Gesamtsystems bei wasserautarkem Betrieb und einer Luftzahl von 4 ermittelt. Im Gaswäscher wird die vollständige Durchmischung des Gases mit dem Kondensat bei thermodynamischem Gleichgewicht am Austritt angenommen. Bild 4.65 zeigt den Methanolanteil im abgetrennten Anodenabgas und den anodischen Faraday'schen Wirkungsgrad nach der Gaswäsche für Temperaturen von 60 °C bis 80 °C bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M in der Anodenflüssigkeit und 1 bar Druck im Anodengasabscheider. Der Methanolanteil liegt in dem betrachteten Temperaturbereich zwischen 0,1 und 0,6 % im gereinigten Anodenabgas. Es werden etwa 90 % des Methanols bei der Gaswäsche auskondensiert und abgeschieden. Das Methanol ist im gereinigten Abgas weiterhin über Geruch wahrzunehmen. Der anodische Wirkungsgrad beträgt 0,995 bei 80 °C Anodenabscheidertemperatur. Der Systemwirkungsgrad lässt sich bis zu 1,6 %-Punkte bei 80 °C Abscheidertemperatur verbessern (siehe Bild 4.66). Die sich im Dauerbetrieb für den Basisraum einstellende Methanolkonzentration liegt nach Bild 4.67 im betrachteten Temperaturbereich klar unter über dem MAK-Wert.

Der EURO 4-Grenzwert wird für Abscheidertemperatur bis 75 °C eingehalten (siehe Bild 4.68). Bei 80 °C Abscheidertemperatur wird der Grenzwert nur um 40 % überschritten. Das Methanol ist im Anodenabgas als auch im Basisraum als Geruch wahrzunehmen.

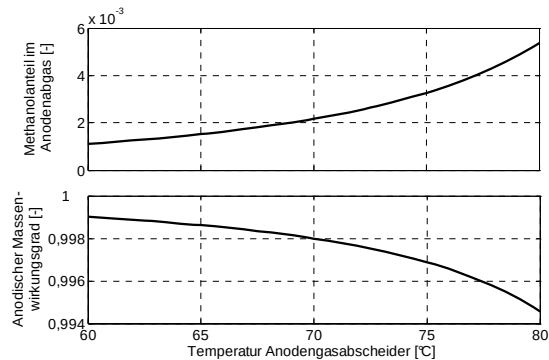


Bild 4.65: Methanolanteil im Anodenabgas und Faraday'scher Wirkungsgrad für verschiedene Methankonzentrationen in der Anodenflüssigkeit im Anodengasabscheider in Abhängigkeit von der Temperatur ($p_{\text{Anodengasabscheider}}=1\text{bar}, c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5\text{M}$)

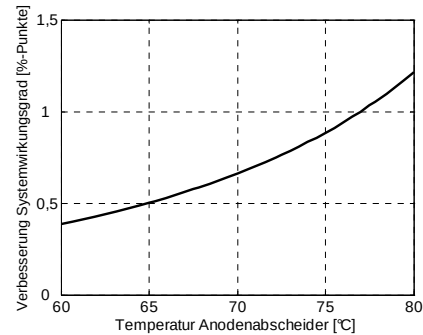


Bild 4.66: Verbesserung des Systemwirkungsgrads durch die Methanolrückgewinnung durch Gaswäsche ($\eta_U = 25\%$, $p_{\text{Anodengasabscheider}}=1\text{bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5\text{M}$)

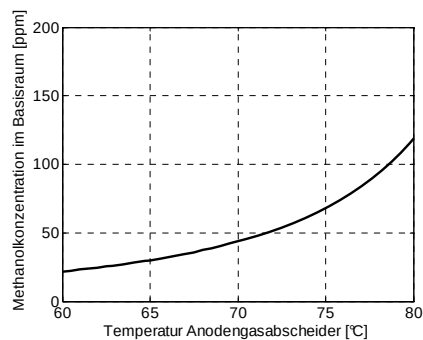


Bild 4.67: Methanolemission durch Anodenabgas bei 1-kW-DMFC-System ($p_{\text{Anodengasabscheider}}=1\text{bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5\text{M}$)

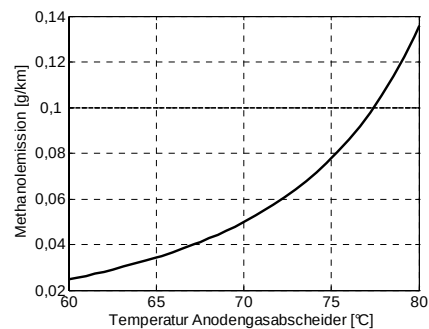


Bild 4.68: Methanolemission bei einem 1-kW-DMFC-Antriebssyst. ($p_{\text{Anodengasabscheider}}=1\text{bar}$, $c_{\text{Anodengasabscheider}}=0,5\text{M}$)

4.5.5 Elektrochemischer Abbau in gasförmig betriebener DMFC

Das Anodenabgas kann in einer gasförmig betriebenen DMFC zur Brennstoffversorgung dienen. Dabei fungiert das Kohlendioxid als Trägergas für das für die Reaktion notwendige Methanol und Wasser (siehe Bild 4.69). Dabei kann zusätzliche elektrische Leistung gewonnen werden. Dies erhöht den Systemwirkungsgrad. Diese Alternative wird im Rahmen dieser Arbeit nicht analytisch untersucht und wird hier nur als Option aufgeführt.

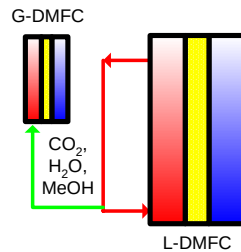


Bild 4.69: Elektrochemischer Methanolabbau

4.5.6 Bewertung und Auswahl

Die Verfahren zur Anodenabgasreinigung sind in Tabelle 4.14 zusammengefasst. Bei der Gaswäsche wird am meisten Methanol aus dem Anodenabgas zurückgewonnen. Die Systemwirkungsgradsteigerung gegenüber der direkten Emission des Anodenabgases beträgt 0,7 %-Punkte. Ebenso werden bei der Gaswäsche die Emissionsgrenzwerte eingehalten. Wird das Anodenabgas nach der Gaswäsche vor dem Stack eingeleitet, könnte ein Methanolanteil im Abgas von unter 5 ppm erreicht werden. Nachteilig ist bei der Gaswäsche der erhöhte Bauaufwand.

Der systemtechnische Aufwand ist bei der Einspeisung vor dem Stack gering. Die Emissionsgrenzwerte werden ebenfalls eingehalten. Zusätzlich wird die Geruchsschwelle unterschritten. Negativ ist die fehlende Methanolrückgewinnung zu beurteilen. Die Abwärme der katalytischen Umsetzung verbleibt jedoch im System und kann zur Aufwärmung des Stacks genutzt werden. Bei den anderen Verfahren werden die Emissionsgrenzwerte weit überschritten. Die Methanolrückgewinnung fällt geringer als bei der Gaswäsche aus.

Für ein möglichst kompaktes System ist die Variante mit der Zumischung des Anodenabgases vor dem Stack am günstigsten. Somit wird diese Variante ausgewählt und dessen Potenzial zur Systemkompaktierung wird am Ende des Kapitels diskutiert.

Tabelle 4.14: Zusammenfassung der Behandlungsverfahren für das Anodenabgas bei 70 °C
Abscheidetemperatur, 0,5 M und Luftzahl =4

Verfahren	Abgas- konzentration	Basisraum- konzentration [ppm]	Strecken- emissionen [g/km]	Systemwirkungsgrad- verbesserung gegenüber direkter Emission [%-Punkte]
Keine Reinigung	2,5 %	600	0,7	0
Anodengaskühler (Rückkühlung auf 30 °C)	1,8 %	320	0,38	0,35
Einspeisung in Kathodenkreislauf nach dem Stack	600 ppm	340	0,39	0,32
Verdünnung in Kathodenabgas vor Stack	< 5 ppm (Schätzung)	-	-	0
Gaswäsche	0,2 %	45	0,05	0,7

4.6 Wasserrückführung zur Anode

Das aus dem Kathodenabgas abtrennte flüssige Wasser muss zur Anode zurückgeführt werden, um den dortigen Verlust durch Permeation und anodischer Teilreaktion auszugleichen. Im Folgenden werden verschiedene Optionen zum Wassertransport zum Anodenkreislauf diskutiert.

4.6.1 Schwerkraft

Wird das Kathodenabgas vor der Wasserabtrennung oberhalb des Stacks geführt, kann dort das Wasser flüssig zurückgewonnen werden. Aufgrund der Höhendifferenz kann das Wasser zurück in den Anodenkreislauf geführt werden. Nachteilig ist zum einen die Einschränkung bei der Abgasführung. Zum anderen sammelt sich das schon flüssig aus dem Stack austretende Wasser unterhalb des Stacks und kann so dem System nicht mehr zugeführt werden.

4.6.2 Kondensatpumpe

Mittels einer Kondensatpumpe wird das abgetrennte Wasser aus einem Auffangbehälter in das Anodensystem zurückgefördert. Die Pumpe ist dabei je nach Wasseranfall diskontinuierlich oder drehzahlregelt in Betrieb.

4.6.3 Umwälzpumpe

Ein genügend hoher Druckverlust in der Ansaugleitung erzeugt einen Unterdruck vor der Umwälzpumpe. Das abgetrennte Wasser befindet sich aber bei Umgebungsdruck. Die aufgebaute Druckdifferenz kann das Wasser in das Anodensystem transportieren. Problematisch ist dabei das Einhalten des NPSH-Wertes der Umwälzpumpe. Dieses stellt sicher, dass durch Kavitation in der Ansaugung die Pumpe auf Dauer nicht geschädigt wird.

4.6.4 Dosierpumpe

Der rückzuführende Wassermengenstrom ist ebenso wie der notwendige Methanolenstrom proportional zur Stromdichte des Stacks. Eine größer ausgelegte Dosierpumpe, die aus dem Methanoltank als auch aus dem Wassersammler ansaugt, kann die Wasserförderung übernehmen.

4.7 Ausgewähltes Systemkonzept und Integrationsansätze

Bild 4.70 zeigt den aus der Auswahl der Teillösungen aggregierten verfahrenstechnischen Systemvorschlag für das DMFC-System.

Die Luftversorgung erfolgt über ein saugend am Ende des kathodischen Strömungspfad liegenden Gebläses. Die Abwärme des Stacks bei Betrieb wird allein über die Verdunstung des Wassers auf der Kathode abgeführt. Ein luftgekühlter Kondensator ermöglicht die Rückgewinnung des Wassers aus dem Kathodenabgas. Das Kondensat wird über eine Pumpe zurück zur Anode gefördert. Vor und nach dem Stack ist eine katalytische Reinigung der Gase vorgesehen.

Der Anodenkreislauf besteht nur aus einem Abscheidebehälter und der Umwälzpumpe. Im Abscheidebehälter wird unterstützt durch Fliehkräfte das Anodenabgas abgetrennt und vor dem Stack

der Zuluft beigemischt. Über eine Methanolfpumpe wird Brennstoff in den Anodenkreislauf gefördert. Elektrisch parallel zum Stack ist ein Akkumulator geschaltet.

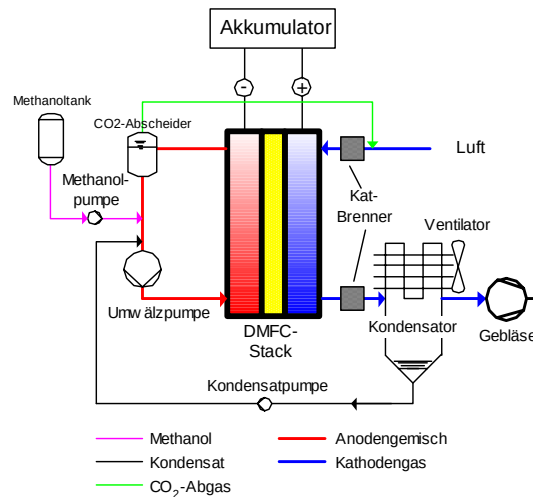


Bild 4.70: Verfahrenskonzept für das DMFC-System

Bild 4.71 zeigt die Integrationsansätze für die Entwicklung und Konstruktion des DMFC-Systems. Hierbei werden folgende Einheiten gebildet:

- **Stackeinheit:** Zusammen mit dem Stack bilden katalytischer Brenner, Anodenkreislauf und Beimischung des Anodenabgases diese Integrationseinheit.
- **Wasserrückgewinnung:** Die Wasserrückgewinnung, bestehend aus Kondensator und Kühlgebläse, wird mit dem Kathodengebläse zu einer Einheit zusammengefasst.

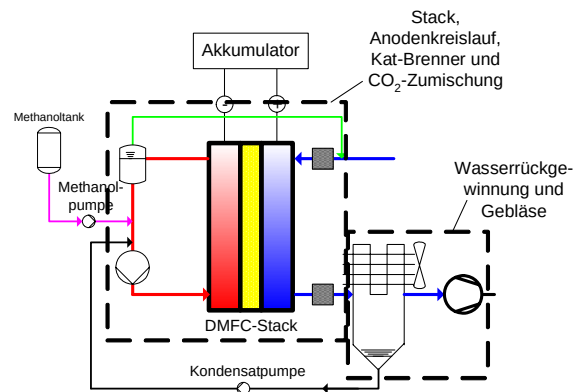


Bild 4.71: Integrationsansätze zur Vereinfachung und Kompaktierung des Systems

In den nächsten Kapiteln werden die hier identifizierten Komponenten näher betrachtet. Zudem wird auf die Umsetzung der Integrationsansätze eingegangen.

5 Charakterisierung der Fluidenergiemaschinen

Wichtige Bestandteile eines DMFC-Systems sind Pumpen und Gebläse. Die geeignete Komponentenauswahl hat großen Einfluss auf den Eigenbedarf des Systems und die Baugröße. Tabelle 5.15 zeigt die benötigten Fluidenergiemaschinen für das in Kapitel 4 ausgewählte Verfahren.

Tabelle 5.15: Funktionen und Fluidenergiemaschine		
Funktion	Komponentenfamilie	Komponente
Zirkulation des Anodengemisches	Pumpe	Umwälzpumpe
Zudosierung des Brennstoffs	Pumpe	Dosierpumpe
Rückführung des Kondensats	Pumpe	Kondensatpumpe
Zuluftversorgung der Kathode	Kompressor	Kathodengebläse
Kühlung des Kondensators	Kompressor	Kühlgebläse

Im Bild 5.72 ist die Vorgehensweise bei der Einteilung und Auswahl der Komponenten dargestellt. Zunächst wird das Anforderungsprofil der jeweiligen Anwendung geklärt und Kriterien zur Auswahl der Komponenten aufgestellt. Die in Anhang 12.4 eingeführten Kennzahlen wie spezifische Drehzahl und spezifischer Durchmesser bieten ein Grundgerüst zur Einteilung der einzelnen Maschinentypen und einer Vorabspiegelung an dem Anwendungsprofil. Vertreter der identifizierten Maschinentypen werden getestet und deren Kennzahlen ermittelt. Abschließend kann eine Bewertung der Ergebnisse vorgenommen werden. Das Kühlluftgebläse für den Kondensator wird im Abschnitt 6.1 betrachtet.

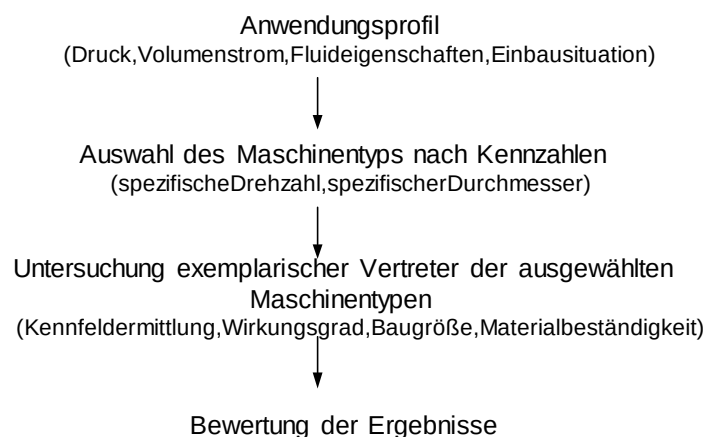


Bild 5.72: Vorgehensweise bei der Betrachtung und Auswahl der Fluidenergiemaschinen

5.1 Pumpe zur Anodenumwälzung

5.1.1 Anforderungen

Die Umwälzpumpe hat die Aufgabe das Wasser/Methanol-Gemisch im Anodenkreislauf zu zirkulieren. Das Verfahrenskonzept in Bild 4.70 zeigt die Anordnung der Umwälzpumpe im Anodenkreislauf nach dem Gasabscheider, der auch als Vorlage- oder Ausgleichsbehälter dient. Das in der Flüssigkeit gelöste Kohlendioxid kann im Gasabscheider nicht abgetrennt werden und verbleibt im Anodengemisch. Dabei wird Kohlensäure gebildet, die die chemischen Eigenschaften der Flüssigkeit beeinflusst. Die Flüssigkeit wird zu einer leichten Säure (pH-Wert von etwa 3) und der Leitwert kann in Abhängigkeit von den Betriebsparametern bis zu 100 $\mu\text{S}/\text{cm}$ betragen [36]. Die maximale Temperatur des Gemisches ist mit der maximalen Stacktemperatur von 80 °C begrenzt. Als Viskosität des Gemisches kann die von reinem Wasser mit $3,5 \times 10^{-4} \text{ kg}/(\text{m} \cdot \text{s})$ bei 25 °C [71] angegeben werden.

Solange sich die Umwälzpumpe unterhalb des Gasabscheiders befindet, muss die Pumpe nicht selbstansaugend sein. Selbstansaugende Pumpen können beliebig zum Gasabscheider angeordnet werden. Für die Auslegung des Gasabscheiders ist es sinnvoll keine hundertprozentige Abscheidung der Gasphase zu fordern, da dies zusätzlichen konstruktiven Aufwand und Platzbedarf darstellt. Daher müssen vereinzelt in die Saugleitung vordringende Gasbläschen von der Pumpe toleriert werden.

Neben dem Bauvolumen kann je nach Anwendung die Form des Pumpenkörpers für eine gute Einbettung in das System wichtig sein. Eine sehr einfache und kompakte Integration kann eine Tauchpumpe leisten. Sie könnte direkt in den Gasabscheider eingebaut werden, wodurch Saugleitung und Anschlüsse entfallen. Auch eine Teilung der Pumpe in Antrieb und Pumpenkörper wäre vorteilhaft. Der Pumpenkörper wird in den Gasabscheider integriert. Die Antriebseinheit kann von außen mit dem Pumpenkörper magnetisch gekoppelt werden.

Der notwendige Umwälzvolumenstrom ist für den Stack nach FZ-Jülich-Design in Kapitel 3 ermittelt worden und wird wie folgt festgelegt:

- Volumenstrom pro Zelle: 0,06 l/min
- Leistung pro Zelle: 15 Watt

Dies entspricht einem Volumenstrom von 4 ml/min pro Watt Stackleistung. Die Druckdifferenz der Pumpe ist von den Druckverlusten des Stacks und des peripheren Anodenkreislaufs geprägt.

$$\Delta p_{\text{Umwälzpumpe}} = \Delta p_{\text{Stack}} + \Delta p_{\text{Anodenkreislauf}} \quad (5.78)$$

Der gesamte Druckverlust wird mit 300 mbar festgelegt. Davon entfallen 220 mbar auf den Stack (siehe Messung in Abschnitt 3.3.10).

Für einen umfassenden Überblick wird der Stackleistungsbereich von 300 W bis 2500 W sowie Förderdrücke bis 1000 mbar für die folgende Analyse betrachtet.

5.1.2 Theoretische Betrachtung der Maschinentypen anhand von Kennzahlen

Für jeden Pumpentypen lassen sich nach Bild 12.158 in Anhang 12.4.1 mittlere spezifische Drehzahlen bestimmen. Unter Einbeziehung der Drehzahl, bei der die jeweilige Pumpe läuft, kann für einen gegebenen Volumenstrom der erreichbare Druck und der Durchmesser des Wirkkörpers für den jeweiligen Pumpentyp abgeschätzt werden. Tabelle 5.16 gibt die in die Betrachtung eingehenden Kennzahlen wieder, die den Auslegungspunkt einer ausgeführten Pumpe beschreiben. Durch Wahl der gemäß Bild 12.158 in Anhang 12.4.1 maximal ausgeführten spezifischen Drehzahl für Zahnrad-, Vielzellen-, und Peripheralradpumpe ist jeweils die untere Grenze des Förderdruckbereichs dieser Pumpentypen beschrieben. Die Schraubenpumpe geht mit der höchsten spezifischen (Niederdruck-(ND-)schraubenpumpe) und mit der niedrigsten spezifischen Drehzahl (Hochdruck-(HD-)schraubenpumpe) in die Analyse ein. Bei der Kreiselpumpe sind mit der niedrigsten ausführbaren spezifischen Drehzahl die maximalen Förderdrücke ermittelt. In Bild 5.73 ist für variable Stackleistungen der Umwälzvolumenstrom nach den Angaben im vorherigen Abschnitt berechnet, und der theoretische Förderdruck der einzelnen Kompressortypen bei diesem Volumenstrom dargestellt. Mit Hilfe des erweiterten Cordier-Diagramms (Bild 12.159 in Anhang 12.4.1) kann zusätzlich ein mittlerer Durchmesser in Abhängigkeit von Stackleistung und Pumpentyp ermittelt werden.

Tabelle 5.16: Spezifische Drehzahl, Spezifischer Durchmesser, Betriebsdrehzahl der jeweiligen Pumpentypen

Pumpentyp	Spezifische Drehzahl [min ⁻¹]	Spezifischer Durchmesser	Betriebsdrehzahl [min ⁻¹]
Vielzellenpumpe	1,4 (max)	10	3000
Zahnradpumpe	3 (max)	10,5	3000
HD-Schraubenpumpe	1,5 (min)	7	3000
ND-Schraubenpumpe	10 (max)	5	3000
Peripheralradpumpe	5 (max)	12	6000
Kreiselpumpe (einstufig)	15 (min)	8,5	6000

In Bild 5.73 sind links oben die Nennförderdrücke der in Tabelle 5.16 beschriebenen Zahnrad-, Vielzellen-, HD-Schrauben- und Peripheralradpumpen dargestellt. Links unten ist der Druckbereich der Kreisel- und der ND-Schraubenpumpe dargestellt. Der Förderdruckbereich der Pumpen verhält sich reziprok zur spezifischen Drehzahl. Folgende Feststellungen zur Vorauswahl geeigneter Pumpen für ein DMFC-System können gemacht werden:

- Die Pumpen mit einer spezifischen Drehzahl von $< 5 \text{ min}^{-1}$ erfüllen den geforderten maximalen Förderdruck von 1000 mbar für den gesamten Stackleistungsbereich.
- Der Förderdruck der Kreiselpumpe und der ND-Schraubenpumpe liegen für den gesamten Leistungsbereich unter 1000 mbar. Die Kurven bilden hier den maximalen Grenzwert des anodischen Druckverlustes für den Einsatz dieser Typen.

- Bei Einsatz der Verdrängerpumpen oder der Peripheralradpumpe liegen die Nennbetriebspunkte beziehungsweise die Nenndrücke insbesondere bei hohen Stackleistungen weit oberhalb des Betriebsdruckes im System. Dadurch werden die Pumpen außerhalb des Optimalbereiches betrieben.

In Bild 5.73 sind rechts oben die anhand der Durchmesserzahl abgeschätzten Durchmesser der Wirkkörper der in Tabelle 5.16 beschriebenen Zahnrad-, Vielzellen-, HD-Schrauben- und Peripheralradpumpe dargestellt. Rechts unten ist der Durchmesserbereich der Kreisel- und der ND-Schraubenpumpe dargestellt. Folgende Punkte sind wichtig:

- Die Durchmesser der Wirkkörper der rotierenden Verdrängerpumpen werden zu kleinen Stackleistungen / Umwälzvolumenströmen sehr klein. Hier erscheinen eine Herstellung der teilweise komplexen Läufergeometrien und der Einsatz als Umwälzpumpe unwirtschaftlich. Sofern ein fluktuierender Förderstrom zulässig ist, kommen in diesem Bereich Kolben- oder Membranpumpen zum Einsatz.
- Die Kreiselpumpe weist bei 300 W Stackleistung einen minimalen Durchmesser von etwa 17 mm auf. Diese Laufradgröße ist in Anwendungen wie zum Beispiel Aquariumpumpen verwirklicht.

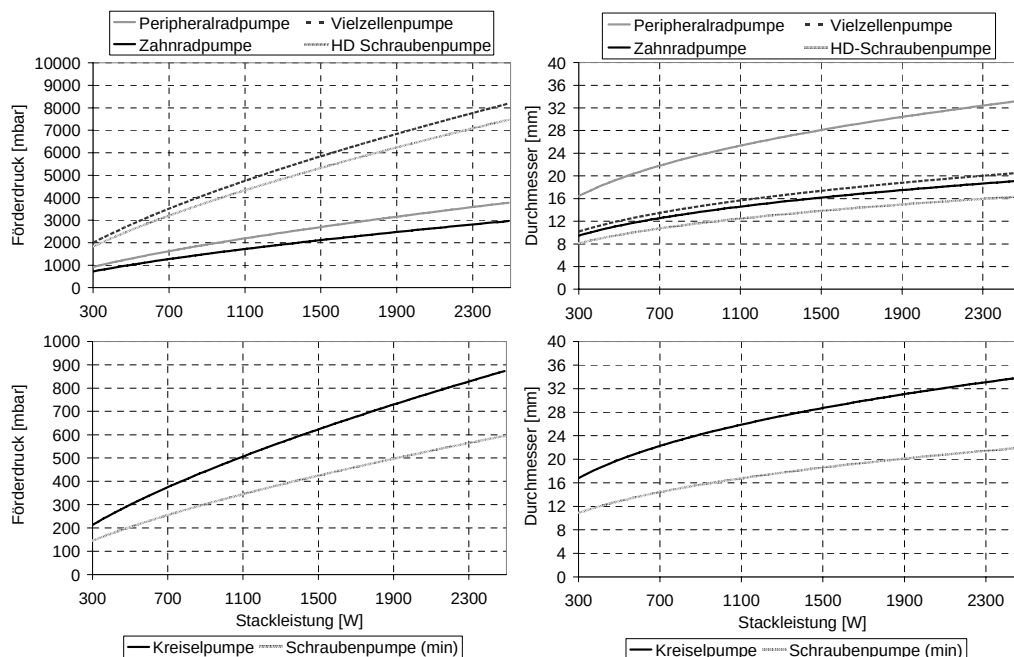


Bild 5.73: Förderdruckbereiche und Wirkkörperdurchmesser der einzelnen Pumpentypen in Abhängigkeit von der Stackleistung

Bei Schraubenpumpen wird der Rotor längs seiner Rotationsachse durchströmt. Daher baut die Schraubenpumpe bei kleinen Volumenströmen ($< 10 \dots 16 \text{ m}^3/\text{h}$) entsprechend größer als

vergleichbare Verdrängermaschinen [81] und wird im Folgenden nicht weiter betrachtet. Zum Betreiben eines Stacks mit 1,5 kW Leistung bei 0,4 V Zellspannung kommen daher folgende Wirkprinzipien nach obiger Einteilung in Frage (Klammer = Grenze für den anodischen Druckverlust):

- Kreislpumpe (610 mbar)
- Zahnradpumpe (1000 mbar)
- Peripheralradpumpe (1000 mbar)
- Vielzellenpumpe (1000 mbar)

Exemplarisch ausgewählte Vertreter der dieser Pumpentypen werden im nächsten Abschnitt vertieft betrachtet.

5.1.3 Untersuchung ausgewählter Pumpen

Für jede der in Tabelle 5.17 aufgeführten Pumpe wurde das Kennfeld aufgenommen sowie Leistungsaufnahme und Wirkungsgrad bestimmt. Im Folgenden werden Kennlinienverhalten, Wirkungsgrade, Kompaktheit und Materialbeständigkeit diskutiert.

Tabelle 5.17: Exemplarisch zur weiteren Untersuchung ausgewählte Pumpen

Pumpentyp	Dichtung	Nenndaten ($\dot{V}$; Δp)	Medienberührende Materialien
Kreislpumpe 1	Magnetgekuppelte Radialpumpe	22,7 L/min; 0,48 bar	PSU, Magnet gekapselt
Kreislpumpe 2	Magnetgekuppelte Radialpumpe	20 L/min; 0,85 bar	Edelstahl 1.4571, ferritischer Magnet
Kreislpumpe 3	Magnetgekuppelte Radialpumpe	45,4 L/min; 2 bar	Vectra, Keramik, EPDM
Kreislpumpe 4	Magnetgekuppelte Radialpumpe	12,1 L/min; 0,21 bar	Vectra, Keramik, EPDM
Kreislpumpe 5	Tauchpumpe	12 L/min; 0,8 bar	Acetal, ferritischer Magnet
Peripheralradpumpe	Wellendichtung	5 L/min; 4,5 bar	Edelstahl 1.4571
Flügelzellenpumpe	Wellendichtung	6 L/min; 5 bar	PVDF, Edelstahl 1.4571
Innzahnradpumpe	Magnetgekuppelt über Motor	1,6 L/min; 6 bar	Edelstahl 1.4571, PEEK

Kennlinienverhalten

In Bild 5.74 sind die gemessenen Kennlinien der verschiedenen Pumpentypen dargestellt. Die Flügelzellenpumpe zeigt einen geringen Einfluss des Gegendruckes auf die Durchflussmenge. Die Kreiselpumpe weist einen deutlich vom Druck abhängigen Durchfluss auf. Bei Durchflüssen im Bereich kleiner 40 % vom gemessenen Maximaldurchfluss ist die Kennlinie sehr flach. In diesem Bereich lässt sich eine Kreiselpumpe nicht mehr stabil betreiben. Kleine Änderungen in der Anlagenkennlinie haben große Fluktuationen des Durchflusses zur Folge. Die Peripheralradpumpe zeigt ein einer Verdrängerpumpe ähnliches Verhalten. Die Kennlinie ist sogar steiler als die der Flügelzellenpumpe. Die Kennliniencharakteristik einer Verdrängerpumpe ist günstiger für eine Anwendung, bei der unabhängig von der Anlagencharakteristik ein konstanter Volumenstrom gefördert werden muss. Bei der Auslegung muss verglichen mit der Kreiselpumpe weniger Sicherheit für abweichende Druckverluste in der Anlage berücksichtigt werden. Die Kreiselpumpe sollte, wenn ohne Durchflussmessung betrieben, möglichst im steilen Teil ihrer Kennlinie laufen. In einem fiktiven Betriebspunkt bei 0,4 bar würde eine 10-%ige Änderung des Förderdruckes bei der Kreiselpumpe den Förderstrom um 1,2 % variieren, verglichen mit 0,9 % bei der Flügelzellenpumpe und nahezu konstantem Verhalten der Peripheralradpumpe ist dies ebenfalls ein sehr geringer Wert.

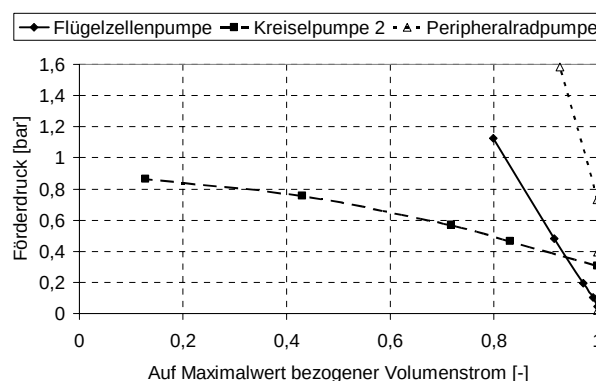


Bild 5.74: Vergleich der gemessenen Kennlinien der Flügelzellen-, Kreis- und Peripheralradpumpe (1 = Maximaler Wert der Messung)

Wirkungsgrad und Eigenbedarf

Bild 5.75 zeigt die maximalen Wirkungsgrade der untersuchten Pumpen im Bestpunkt (bei Verdränger- und Peripheralradpumpe maximal 1 bar) und bei einem Förderdruck von 300 mbar. Der beste Wirkungsgrad erreicht die Kreiselpumpe 2 mit 33 %. Die Tauchpumpe (Kreiselpumpe 5) erreicht nur knapp 10 %. Laut Hersteller hat die Pumpe, die in Aquarien eingesetzt wird, einen Antrieb mit einem Wirkungsgrad von nur 20 %. Abhängig vom jeweiligen Auslegungspunkt der Kreiselpumpen liegen die Wirkungsgrade bei 300 mbar Förderdruck etwas niedriger. Von den Verdrängerpumpen weist die Flügelzellenpumpe mit 19 % den höchsten Wirkungsgrad auf. Peripheralrad- und Zahnradpumpe liegen bei 7 % und 10 % Wirkungsgrad. Das insgesamt niedrigere Wirkungsgradniveau der Verdrängerpumpen liegt im für diesen Typ niedrigen Förderdruck von 1 bar begründet. Bei einem Förderdruck von 300 mbar vergrößern sich die Verluste weiter. Dies führt zu

einem starken Absinken der Wirkungsgrade. Die Flügelzellenpumpe zeigt mit einem Wirkungsgrad von 8 % den höchsten Wert der Verdrängerpumpen.

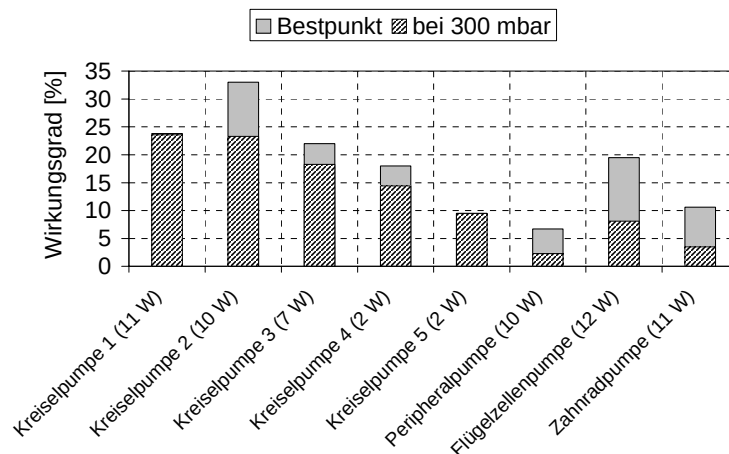


Bild 5.75: Vergleich der gemessenen maximalen Pumpenwirkungsgrade der untersuchten Pumpen im Bestpunkt und bei 300 mbar Förderdruck

Dies ist auch in Bild 5.76 dokumentiert, in dem der Wirkungsgradverlauf entlang der Kennlinie einer Pumpe dargestellt ist. Man sieht bei der Flügelzellen- und Peripheralradpumpe einen starken Abfall des Wirkungsgrades zu kleinen Drücken und hohen Volumenströmen. Daher bedingt ein Betreiben der Pumpen in diesem Bereich einen erhöhten parasitären Verbrauch. Die Kreiselpumpe hat im mittleren Drittel der Kennlinie in Plateau mit Wirkungsgraden nahe dem Maximalwirkungsgrad.

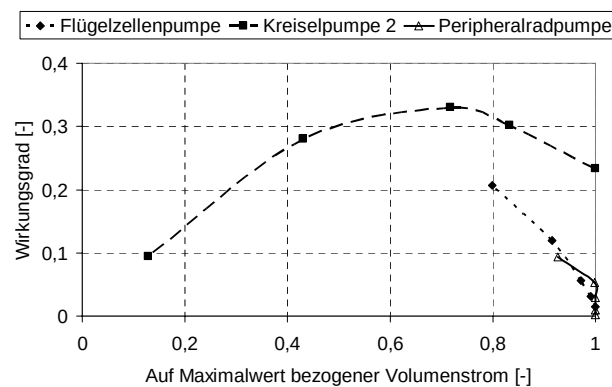


Bild 5.76: Wirkungsgradverlauf entlang der Förderkennlinie bei Nenndrehzahl (Flügelzellen-, Kreiselpumpe und Peripheralradpumpe)

In Bild 5.77 ist der Wirkungsgradverlauf beim Betrieb der Pumpen in Teillast dargestellt. Eine verringerte Drehzahl senkt den Förderstrom und entsprechend der Anlagenkennlinie den Gegendruck der Pumpe. Die Flügelzellenpumpe weist ein stärkeres Absinken des Wirkungsgrades in Teillast auf.

Bei der Kreiselpumpe sinkt der Wirkungsgrad bis 75 % Teillast moderat von 34 % auf 30 %. Bei 50 % Teillast geht der Wirkungsgrad der Kreiselpumpe jedoch stärker auf 22 % zurück. Die Flügelzellenpumpe läuft bei 50 %iger Teillast nur noch mit einem Wirkungsgrad von 7 %.

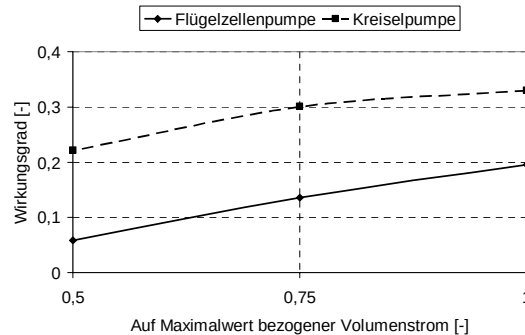


Bild 5.77: Wirkungsgradverlauf bei variabler Drehzahl und gegebener Anlagencharakteristik (Flügelzell- und Kreiselpumpe)

Bild 5.78 zeigt den von Förderdruck und Gesamtwirkungsgrad der Pumpe abhängigen Eigenbedarf in einem DMFC-System. Entsprechend des Förderdruckes lässt sich für die jeweilige Pumpe der Förderstrom ermitteln, der zur Berechnung der Stackleistung führt. Die elektrische Leistungsaufnahme der Pumpe kann so mit der berechneten Stackleistung korreliert werden. Bei der oberen Grenze von 1000 mbar lassen sich nur die Verdrängerpumpen und die Peripheralradpumpe betreiben. Bei diesem Förderdruck hat die Flügelzellenpumpe mit 3,5 % der Stackleistung den geringsten Eigenbedarf. Die Peripheralradpumpe erreicht wegen ihres schlechten Wirkungsgrades den höchsten Wert mit 10 %.

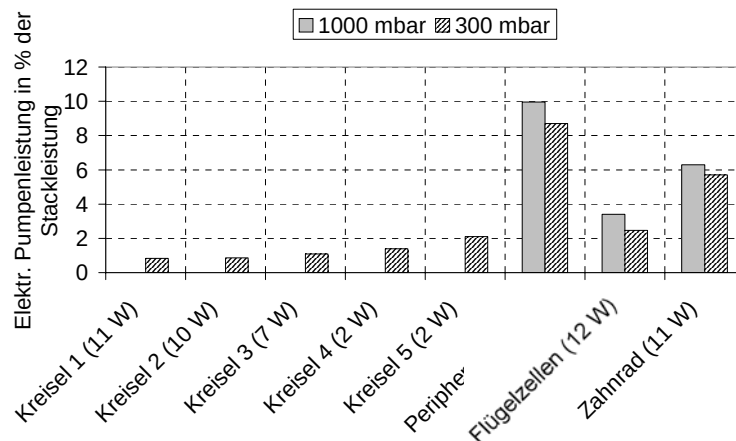


Bild 5.78: Vergleich der elektrischen Leistungsaufnahme der untersuchten Pumpen bezogen auf die Stackleistung

Bei einem Förderdruck von 300 mbar liegen die Kreiselpumpen im Durchschnitt bei 1 % Eigenbedarf. Die Tauchpumpe würde aufgrund des schlechten Wirkungsgrades 2 % der Stackleistung an elektrischer Leistung benötigen. Verglichen mit den Kreiselpumpen resultiert der Einsatz von Verdränger- und Peripheralradpumpen in einem klar höheren Eigenbedarf. Nur die Flügelzellenpumpe liegt mit etwa 2,5 % noch im akzeptablen Bereich.

Kompaktheit

In Bild 5.79 sind spezifisches Volumen und spezifisches Gewicht der getesteten Pumpen gemäß folgender Definition dargestellt:

$$\overline{V}_{P,Stack} = \frac{V_{Pumpe}}{P_{Stack}} \quad (5.79)$$

$$\overline{m}_{P,Stack} = \frac{m_{Pumpe}}{P_{Stack}} \quad (5.80)$$

Bei 1000 mbar Förderdruck weist die Flügelzellenpumpe mit 0,32 l/kW_{Stack} und 0,8 kg/kW_{Stack} das kleinste spezifische Bauvolumen und Gewicht auf. Peripheralrad- und Zahnradpumpe liegen um das Doppelte höher. Bei 300 mbar Förderdruck sind die Kreiselumpen im Durchschnitt halb so groß und halb so schwer wie die Flügelzellenpumpe. Das kleinste spezifische Bauvolumen und Gewicht erreicht die Kreiselpumpe 3 mit 0,1 l/kW_{Stack} und 0,2 kg/kW_{Stack}. Bei der Tauchpumpe (Kreiselpumpe 5) muss noch berücksichtigt werden, dass zumindest auf der Saugseite keine Zuführleitungen und Anschlusssteile benötigt werden.

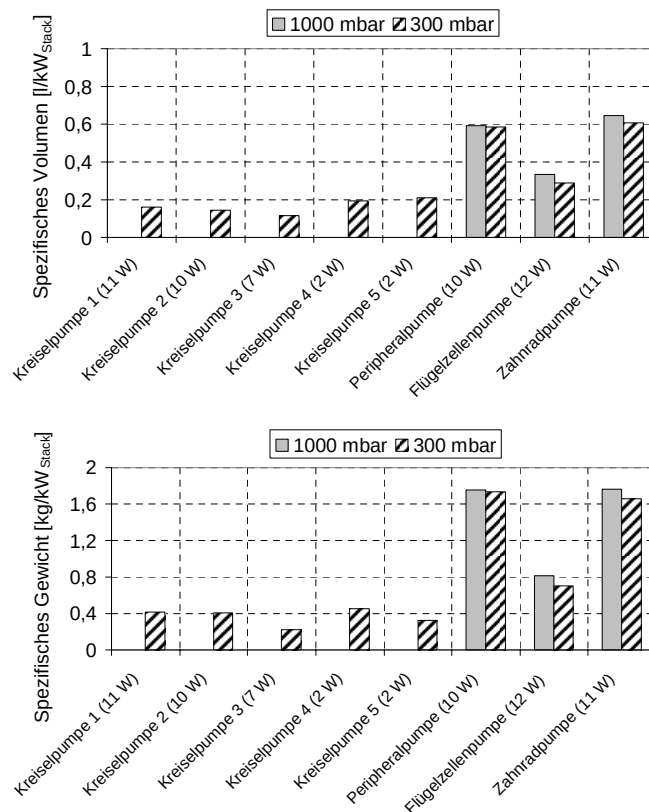


Bild 5.79: Spezifisches Volumen (oben) und spezifisches Gewicht (unten) der betrachteten Pumpen bezogen auf die Stackleistung bei 1000 mbar und 300 mbar Förderdruck

Materialbeständigkeit

Die medienberührenden Teile der Pumpen selbst oder ersatzweise Materialproben wurden bei 70 °C einer Anodenbasislösung in einem Dauerversuch > 40 h ausgesetzt. Die Basislösung bildete eine 1 molare Methanollösung mit 1 ml Ameisensäure auf einem Liter Gemisch. Das Gemisch hatte einen pH-Wert von 3 und eine Leitfähigkeit von 100 µS/cm. Die Kreiselpumpen 1,3 und 4, die Flügelzellenpumpe und die Zahnradpumpe erwiesen sich dabei als ausreichend beständig bei Betrieb mit der Basislösung. Die Tauchpumpe zeigte erhöhte Auslösungen von Kationen insbesondere Eisen. Dies ist auf den direkten Kontakt des Testgemisches zu dem ferritischen Magneten der Antriebe zurückzuführen.

5.1.4 Zusammenfassung der Ergebnisse zu den Pumpenuntersuchungen

Die Ergebnisse der Untersuchungen sind eingeflossen in eine Bewertungsmatrix (Tabelle 5.18). Die Erfüllung der einzelnen Kriterien wurde mit Zahlenwerten zwischen 0 und 3:

- 0 : Der Wert „0“ wurde nur bei Kriterium 1 und 3 verwendet und bedeutet die Nichterfüllung der Anforderung und somit die Eliminierung aus der Auswahlprozedur
- 1 : unterdurchschnittlich
- 2 : durchschnittlich
- 3 : überdurchschnittlich

Als Anforderung für das Kriterium 1 ist ein Förderstrom von 6 l/min bei einem Förderdruck von 300 mbar für den Betrieb eines 1,5 kW Stacks definiert.

Tabelle 5.18: Bewertungsmatrix der getesteten Pumpen

Nr.	Kriterium	Kreisel 1	Kreisel 2	Kreisel 3	Kreisel 4	Kreisel 5	Peripheralrad	Flügelzellen	Zahnrad
1	Max .Förderstrom/-druck	2	2	3	0	0	0	3	0
2	Materialbeständigkeit	3	0	3	3	0	-	3	2
3	Wirkungsgrad	2	3	2	2	1	1	2	1
4	Geräuschverhalten	3	3	3	3	3	2	1	1
5	Gewicht	3	3	3	3	2	1	2	1
6	Bauvolumen/Einbau	3	3	3	3	3	1	3	1
7	Toleranz Gasanteil	1	1	1	1	1	3	3	3
8	Güte der Abdichtung	3	3	3	3	3	2	2	3
	Gesamtdurchschnitt	2,5	2,3	2,6	2,3	1,6	1,4	2,4	1,5

Der Vergleich der Pumpentypen zeigt, dass, wenn der anodische Druckverlust den Einsatz einer Kreiselpumpe ermöglicht, diese den Verdränger- und der Peripheralradpumpe weitgehend überlegen ist.

Der **Wirkungsgrad** bei einem Förderdruck von 300 mbar ist mit über 24 % etwa dreimal so gut verglichen mit der Flügelzellenpumpe. Dies resultiert in einem **Eigenbedarf** für die Kreispumpe von unter 1 % der Stackleistung. Eine im DMFC-System betriebene Flügelzellenpumpe verbraucht über 2 % der Stackleistung. Das spezifische **Bauvolumen** bei gemeinsamer Förderdruckbasis liegt mit durchschnittlich $0,15 \text{ l/kW}_{\text{Stack}}$ bei der Kreispumpe etwa bei der Hälfte des Volumens der Flügelzellenpumpe. Das spezifische **Gewicht** der Flügelzellenpumpe ist mit $0,7 \text{ kg/kW}_{\text{Stack}}$ dreimal größer als das der mit Kunststoffgehäuse gefertigten Kreispumpe ($0,2 \text{ kg/kW}_{\text{Stack}}$). Das **Geräuschverhalten** der Kreispumpen ist subjektiv besser. Die Flügelzellenpumpe hat laut Herstellerangabe mit 60 dB(A) einen relativ hohen Schallpegel.

Im hohen Förderdruckbereich, in dem ausschließlich Verdrängerpumpen und Peripheralradpumpen eingesetzt werden können, ist die Flügelzellenpumpe die beste Alternative. Gewicht, Wirkungsgrad und Bauvolumen sind akzeptabel. Hinzu kommen die drucksteife Kennlinie und die Toleranz gegenüber Gasblasen. Außerdem gestaltet sich die Integration in das Anodensystem wie in Kapitel 6.2 beschrieben deutlich kompakter als die der getesteten Kreispumpe.

Bei der für das 1,5 kW-System geforderten Förderstrom/Förderdruck-Konstellation eignen sich am besten die Kreispumpe 3 und die Flügelzellenpumpe.

5.1.5 Kennfeld zur Pumpenauswahl für DMFC-Systeme

Entsprechend der oben gewonnenen Kenntnisse können für die Auslegung zukünftiger Systeme die Konsequenzen durch die Festlegung des Umwälzvolumenstroms und des anodischen Druckverlustes dargestellt werden. Dabei ist besonders der Einsatzbereich der Kreispumpe wichtig, da dadurch deutliche Vorteile im Bereich Kompaktheit, Systemgewicht, Geräuschverhalten, Eigenbedarf und Systemwirkungsgrad entstehen.

In Bild 5.80 ist ein Einsatzkennfeld für den Betrieb eines 1,5 kW Stacks dargestellt. Ausgehend von der Basis 6 l/min Umwälzvolumenstrom und 300 mbar anodischer Druckverlust ist für zukünftige Systemauslegungen der Volumenstrombereich um 50 % auf 9 l/min und der Bereich der Druckverluste von 200 mbar bis 1000 mbar ausgedehnt worden. Mit Hilfe der spezifischen Drehzahl können nun Grenzkurven für den Einsatz von Kreispumpen in das Einsatzkennfeld eingezeichnet werden. Ausgehend von den spezifischen Drehzahlen der untersuchten Pumpen (Tabelle 5.17) und den gemessenen Wirkungsgrade wurden die Werte für Tabelle 5.19 ermittelt. Für die Flügelzellenpumpe ist ein höherer Wert gegenüber der Messung angesetzt worden, um das Entwicklungspotenzial, das eine genau für diesen Druckbereich ausgelegte Pumpe bietet, zu berücksichtigen.

Tabelle 5.19: Spezifische Drehzahlen und Wirkungsgrade der Pumpen

Eingesetzter Pumpentyp	Spezifische Drehzahl [min ⁻¹]	Wirkungsgrad [%]	Drehzahl [min ⁻¹]
Kreiselpumpe	15	25	6000
Kreiselpumpe	20	35	6000
Kreiselpumpe	25	40	6000
Flügelzellenpumpe	6,5	15	3000

Ausgehend von den spezifischen Drehzahlen in Tabelle 5.19 und der Volumenströme sind die Förderdrücke berechnet und als Grenzkurve in Bild 5.80 eingezeichnet worden. Für jede Grenzkurve ist unter Berücksichtigung der in Tabelle 5.19 angegebenen Wirkungsgrade an den Punktmarkierungen die Änderung des auf die Stackleistung bezogenen Eigenbedarfs angegeben. Die Basis hierfür bildet ein Auslegungspunkt von 6 l/min bei 300 mbar Förderdruck.

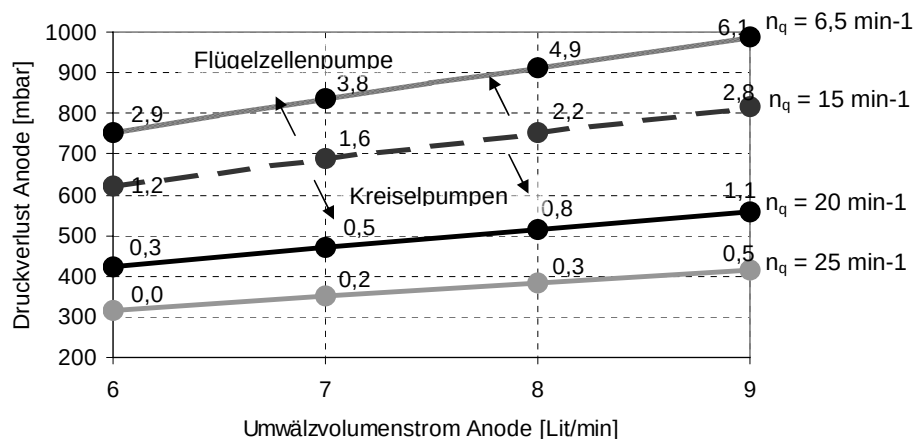


Bild 5.80: Einsatzkennfeld für eine Umwälzpumpe in einem DMFC-System bei Variation des Umwälzvolumenstroms und des anodischen Druckverlustes

Entsprechend Bild 5.80 werden nun die Auswirkungen einer Veränderung des Förderdruckes oder des Umwälzvolumenstroms deutlich. Beispielsweise führt eine Erhöhung des Förderstroms auf 9 l/min bei einem anodischen Druckverlust von 400 mbar in der Systemauslegung zu dem Einsatz einer Kreiselpumpe mit der spezifischen Drehzahl von 25 min⁻¹. Der Eigenbedarf erhöht sich dadurch um 0,5 %-Punkte der Stackleistung. Dieser Erhöhung des Eigenbedarfs muss einer Erhöhung bei der Stackleistung oder einem systemtechnischer Vorteil wie zum Beispiel Bauraumverkleinerung der Komponenten gegenüberstehen. Anhand dieser Einsatzmatrix kann eine systemtechnische Optimierung für die Wahl der Parameter Umwälzvolumenstrom und Druckverlust im Anodenkreislauf durchgeführt werden.

5.2 Dosierpumpe

5.2.1 Anforderungen

Die Dosierpumpe hat die Aufgabe einen vorgegebenen Methanolvolumenstrom in den Anodenkreislauf zu fördern. Bild 5.81 zeigt die Pumpe im Anodensystem. Das Methanol wird in einem Tank zur Verfügung gestellt. Der Förderstrom muss entsprechend des Sollwerts für den Methanolmassenstrom dosiert werden. Ist die Pumpe oberhalb des Tanks angeordnet, muss diese selbst ansaugend sein. Das Fördermedium Methanol hat eine Viskosität von $3,5 \times 10^{-4} \text{ kg/(m}^2\text{s)}$ bei 25°C [71].

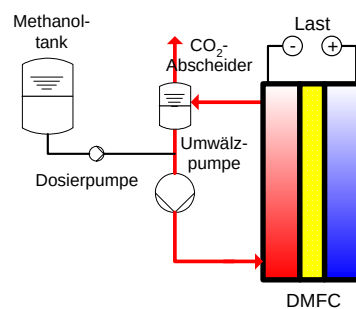


Bild 5.81: Dosierpumpe im Anodensystem

Bei der Dosierpumpe kommt es darauf an, den geforderten Dosierbereich einer DMFC von Mindestlast bis zur Maximallast abzudecken. Der maximale Dosierstrom für folgt aus

$$\dot{V}_{\text{MeOH}} = \frac{I_{\text{BZ}} \cdot n \cdot M_{\text{MeOH}}}{6 \cdot F \cdot \rho_{\text{MeOH}} \cdot \eta_F} \quad (5.81)$$

Ein Stack, betrieben mit einer Leistung von 1 kW bei einer Zellspannung von 0,4 V und einem Faraday'schen Wirkungsgrad von 80 %, benötigt einen Methanolvolumenstrom von 13 ml/min. Der Förderdruck ist abhängig von dem Druckniveau der Dosierstelle im Anodenkreislauf und den Strömungsverlusten in der Brennstoffleitung.

5.2.2 Theoretische Betrachtung der Maschinentypen anhand von Kennzahlen

Bild 5.82 gibt einen Überblick über die Dosieraufgaben verwendeten Verdrängerpumpen. Die Arbeitsprinzipien sind in [82] detailliert beschrieben.

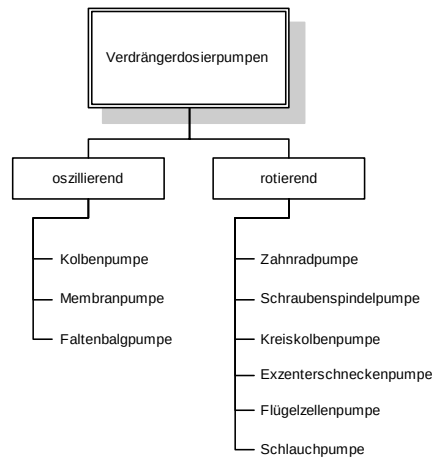


Bild 5.82: Übersicht Verdrängerdosierpumpen nach [82]

Bild 5.83 zeigt die spezifische Drehzahl für die Dosieraufgabe aufgetragen über der Stackleistung bei einem angenommenen Förderdruck von 100 mbar. Die spezifische Drehzahl liegt für Stackleistungen von 500 W – 2000 W zwischen 1 min^{-1} und 2 min^{-1} . Nach der Einteilung in Bild 12.158 aus Anhang 12.4.1 sind in diesem Bereich nur Verdrängerpumpen einsetzbar. Bei der „drucksteifen“ Verdrängerpumpe ist der Förderstrom nahezu unabhängig vom Gegendruck. Zwischen Pumpendrehzahl und Förderstrom besteht ein linearer Zusammenhang. Daher sind Verdrängerpumpen besonders zur Flüssigkeitsdosierung ohne Durchflussregelung geeignet.

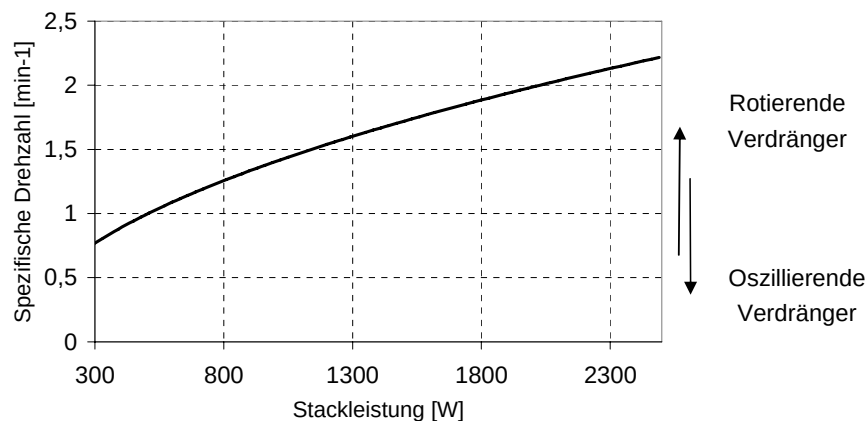


Bild 5.83: Spezifische Drehzahl der Dosierpumpe in einem DMFC-System in Abhängigkeit von der Stackleistung ($\Delta p = 100 \text{ mbar}$; $n_{\text{pumpe}} = 3000 \text{ min}^{-1}$)

Fertigungsbedingt scheiden für kleine Dosiermengenströme ($< 1 \text{ l/min}$) Spindel- und Schneckenpumpen aus. Bei Kolbenpumpen muss der gesamte Gleitraum des Kolbens abgedichtet werden. Dies bedeutet hohe fertigungstechnische Anforderungen für Kolben und Buchse, welches keinen wirtschaftlichen Einsatz von Kolbenpumpe in der Leistungsklasse zulässt. Bei der Kreiskolben-, Flügelzellen- und Zahnradpumpe ergeben sich folgende Möglichkeiten der Abdichtung:

- Wellendichtring auf Antriebswelle zwischen Motor und Pumpe
- Vollständige Kapselung der Pumpe durch Einsatz eines Spaltrohrmotors

Bei Schlauch-, Membran- und Faltenbalgpumpe übernimmt eine elastische Trennwand die Verdrängerwirkung und dichtet somit den Flüssigkeitsraum hermetisch ab. Der Einsatz einer Schlauchpumpe ist nicht wartungsfrei. Zum Beispiel muss ein Schlauch aus Silikon alle 1500 h gewechselt werden. Daher wird dieser Pumpentyp nicht weiter berücksichtigt.

Für die Dosieraufgabe im DMFC-System erscheinen folgende Pumpentypen als passend:

- Membranpumpe
- Kreiskolbenpumpe
- Faltenbalgpumpe
- Zahnradpumpe

Im Folgenden werden exemplarisch Vertreter der Typen Membran-, Faltenbalg-, und Zahnradpumpe untersucht.

5.2.3 Untersuchung ausgewählter Dosierpumpen

Tabelle 5.20 zeigt die getesteten Dosierpumpen. Die Wirkprinzipien „Membran“, „Faltenbalg“ und „Zahn“ werden im Folgenden betrachtet. Außerdem werden mit dem Linearmotor, dem einfachen DC-Motor als auch ein Schwingankerantrieb untersucht. In Anhang 12.3 erfolgt eine Übersicht der elektrischen Antriebe.

Tabelle 5.20: Untersuchte Dosierpumpen

Pumpentyp	Antrieb	Ansteuerung
Membranpumpe 1	Linearmotor	0-3,5 V
Membranpumpe 2	Schwingankermotor	0-10 V Gleichstromfrequenz
Membranpumpe 3	DC-Motor	0-12 V Versorgungsspannung
Faltenbalgpumpe	Linearmotor	0-5 V
Zahnradpumpe	DC-Motor bürstenlos mit Encoder	0-10 V, Bereichsanpassung
Membranpumpe 4	Linearmotor mit Hubverstellung	0-5 V, 0-10 V, 4-20 mA, Bereichsanpassung

Dosierbereich / Reproduzierbarkeit / Genauigkeit

Tabelle 5.21 zeigt den Dosierbereich der getesteten Pumpen. Die Werte in Klammern geben den jeweiligen Bereich bei 0,5 bar Gegendruck wieder. Bei fehlenden Klammerwerten weist die Pumpe keine Druckabhängigkeit des Volumenstroms auf. Die größte Spreizung zeigt die Membranpumpe 4, die als Laborpumpe eingesetzt wird. Hier kann der Volumenstrom auf 0,1 % des maximalen Wertes gedrosselt werden. Eine Hubverstellung könnte den Volumenstrom noch weiter auf 0,001 ml/min verringern. Membranpumpe 2 und die Zahnradpumpe erreichen mit 0,1 % beziehungsweise 0,6 % eine sehr große Lastspreizung. Bei einem Gegendruck von 0,5 bar erreicht die einfache Membranpumpe 3 ebenfalls mit 0,1 % des maximalen Wertes einen sehr weiten Betriebsbereich. Der Gegendruck stabilisiert zudem den Fördermengenstrom und verbessert die Kennlinienabweichung von 0,8 % auf 0,1 % des Endwertes erheblich. Die Schwingankerpumpe (Membranpumpe 2) weist bei Gegendruck eine Hysterese in der Kennlinie auf. Die Abweichung erreicht 2,9 % vom maximalen Förderstrom. Dies kann auf eine Verformung des Gehäuses unter Druckeinfluss hindeuten.

Die Pumpen mit Linearmotor oder Encodersteuerung haben wie erwartet die geringsten Abweichungen von der Kennlinie.

Tabelle 5.21: Dosierbereich / Reproduzierbarkeit - Genauigkeit

Pumpentyp	Dosierbereich [ml/min]	Minimaler Dosierstrom [% vom Endwert]	Mittlere Kennlinienabweichung / Genauigkeit [% vom Endwert]
Membranpumpe 1	17 – 270 (16 – 241)	6,3 (6,6)	0,3 (0,6)
Membranpumpe 2	0,4 – 192 (0,2 – 127)	0,1 (0,2)	0,9 (2,9)
Membranpumpe 3	23 – 151 (0,1 – 134)	15 (0,1)	0,8 (0,1)
Faltenbalgpumpe	1,6 – 64	2,5	0,1
Zahnradpumpe	0,4 – 70	0,6	0,2
Membranpumpe 4	0,08 – 80	0,1	0,1

Verbrauch / Baugröße

In Tabelle 5.22 sind der Verbrauch und das Gewicht der getesteten Dosierpumpen dargestellt. Alle Pumpen liegen unter 10 W elektrischer Leistungsaufnahme. Membranpumpe 2 und 3 weisen mit 4 W beziehungsweise 2 W den geringsten Bedarf auf. Auch beim Gewicht schneiden Membranpumpe 2 und 3 am besten ab. Jedoch weist auch die Zahnradpumpe mit 75 g ein sehr niedriges Gewicht auf.

Tabelle 5.22: Verbrauch und Gewicht der getesteten Dosierpumpen

Pumpentyp	Elektrischer Verbrauch [W]	Gewicht ohne Steuerung [kg]
Membranpumpe 1	9	0,625
Membranpumpe 2	4	0,167
Membranpumpe 3	2	0,062
Faltenbalgpumpe	8	1,2
Zahnradpumpe	8	0,075
Membranpumpe 4	-	0,75

5.2.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der Dosierpumpenbetrachtung

Die Tabelle 5.23 zeigt die Bewertungsmatrix für die getesteten Dosierpumpen. Die Membranpumpe 2 mit Schwingankerantrieb zeigt für alle technischen Kriterien eine gute Bewertung. Die Zahnradpumpe schneidet etwas besser ab. Jedoch liegen die Kosten der Zahnradpumpe um ein Vielfaches über denen der Membranpumpe, da diese schon im Massenmarkt Einsatz findet. Das Kostenreduktionspotenzial kann auch nur schwer abgeschätzt werden. Vom technischen Standpunkt eignen sich Zahnrad- und Schwingankerpumpe gleichermaßen für den Einsatz als Dosierpumpe in einem DMFC-System.

Tabelle 5.23: Bewertungsmatrix der getesteten Pumpen

Nr.	Kriterium	Membranpumpe 1	Membranpumpe 2	Membranpumpe 3	Faltenbalgpumpe	Zahnradpumpe	Membranpumpe 4
1	Dosierbereich	1	3	1-2	1	3	3
2	Materialbeständigkeit	3	3	3	3	3	3
3	Gute Dosiergenauigkeit/ Reproduzierbarkeit	1	2	1	1	3	3
4	Baugröße/Gewicht	1	3	3	0	3	0
5	Druckeinfluss auf die Fördermenge	2	2	2	3	3	3
6	Güte der Abdichtung	3	3	3	3	2	3
	Gesamtdurchschnitt	1,8	2,7	2,3	1,8	2,8	2,5

5.3 Kondensatpumpe

5.3.1 Anforderungen

Die Kondensatpumpe fördert das auf der Kathodenseite gesammelte Kondensat aus einer Auffangwanne zurück in den Gasraum des Anodenkreislaufs. Dadurch ist sicher gestellt, dass bei Stillstand der Pumpe keine Flüssigkeit zurück in die Auffangwanne läuft. Diese Konstellation spart ein Rückschlag- oder ein Magnetventil. Füllstandssensoren in der Auffangwanne und im Anodenkreislauf schalten die Pumpe an oder aus. Dabei stellt sich ein diskontinuierlicher Betrieb der Pumpe ein. Falls die Kondensatpumpe oberhalb der Auffangwanne angeordnet ist, muss sie selbstansaugend sein. Außerdem ist ein Trockenlaufen nicht auszuschließen. Das Fördermedium besteht aus deionisiertem Wasser mit Spuren von Methanol und erreicht maximal Temperaturen von 80 °C. Die Viskosität beträgt $3,5 \times 10^{-4} \text{ kg/m} \cdot \text{s}$ bei 25 °C [71].

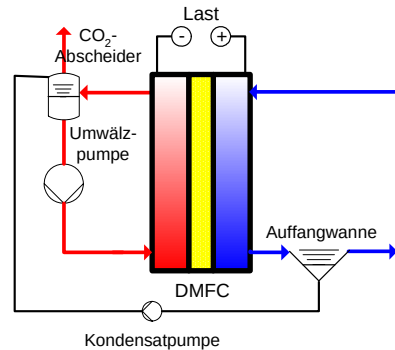


Bild 5.84: Kondensatpumpe im Anodensystem

Der Förderstrom ist durch den Wasserübertritt von der Anode zur Kathode und den Wasserverbrauch durch die Anodenreaktion bestimmt. Aus den Angaben in Kapitel 3 ergibt sich beim 1,5-kW-Stack, ein Kondensatförderstrom von etwa 120 ml/min.

5.3.2 Theoretische Betrachtung der Maschinentypen anhand von Kennzahlen

Bild 5.85 zeigt die spezifische Drehzahl für die Kondensatpumpe, aufgetragen über der Stackleistung bei einem angenommenen Förderüberdruck von 100 mbar. Die spezifische Drehzahl liegt für Stackleistungen von 500 W bis 2000 W zwischen 2 min^{-1} und 5 min^{-1} . In diesem Bereich lassen sich nur Verdrängerpumpen einsetzen. Die gleichen Pumpentypen wie in der Übersicht für Dosierpumpen (Bild 5.82) sind prinzipiell einsetzbar.

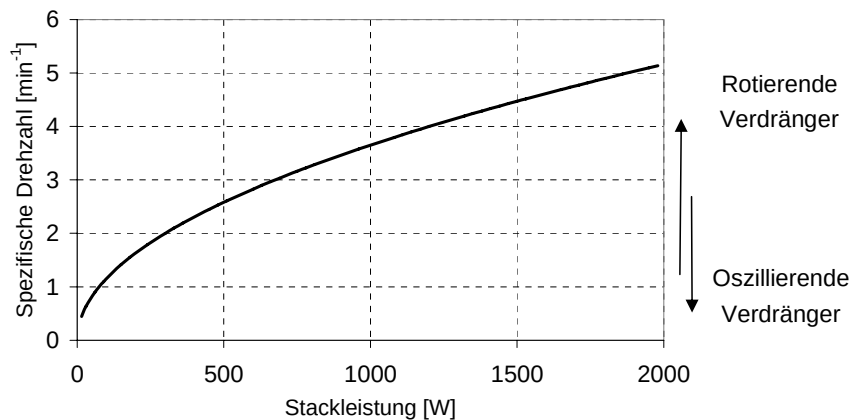


Bild 5.85: Spezifische Drehzahl der Kondensatpumpe in einem DMFC-System über der Stackleistung ($\Delta p = 100 \text{ mbar}$; $n_{\text{Pumpe}} = 3000 \text{ min}^{-1}$; $U_{\text{Zelle}} = 0,4 \text{ V}$; $t_{\text{Trans}} = 3$)

Die Kondensatpumpe kann über die Ansaugleitung Kontakt mit Sauerstoff haben. Dies stellt in Verbindung mit dem Kondensat ein großes Korrosionspotenzial dar. Daher sollten die medienberührenden Teile aus Kunststoff gefertigt sein. Eine Faltenbalgpumpe ist aufgrund des komplexen Aufbaus, des hohen Gewichts und Baugröße auszuschließen. Flügelzellen- und Zahnradpumpen neigen beim Trockenlaufen zum Blockieren. Somit beschränkt sich die Auswahl auf Membranpumpen.

5.3.3 Untersuchung und Auswahl der Kondensatpumpe

Tabelle 5.24 zeigt die untersuchten Membranpumpen. Allgemein ist der Wirkungsgrad mit $< 2 \%$ sehr niedrig. Die Schwingankerpumpe 1 mit einem Gewicht von 95 g bei einem Volumenstrom von 0,270 ml/min sehr leicht. Jedoch beträgt die Leistungsaufnahme 12,7 W. Die Schwingankerpumpe 4 liegt im elektrischen Verbrauch deutlich geringer bei etwas geringerem Förderstrom, ist aber mit einem Gewicht von 170 g vergleichsweise schwer. Die Membranpumpen mit einem einfachen DC-Antrieb liegen im Gewicht leicht oberhalb der Schwingankerpumpen. Der elektrische Verbrauch ist mit 5 W und 8 W durchschnittlich.

Tabelle 5.24: Untersuchte Kondensatmembranpumpen

Pumpe	Antrieb	Volumenstrom bei $\Delta p =$ 100 mbar [ml/min]	Leistungsaufnahme [W]	Gewicht [kg]
1	Schwinganker	270	12,7	0,095
2	DC-Motor	280	8	0,18
3	DC-Motor	200	5	0,27
4	Schwinganker	190	4,3	0,167

Die Schwingankerpumpe 4 zeigt im Bereich elektrischen Verbrauch und Gewicht die beste Leistung.

5.4 Kathodenluftversorgung

5.4.1 Anforderungen

Die Kathodenluftversorgung hat die Aufgabe den Stack mit ausreichend Oxidans zu versorgen. Bild 5.86 zeigt die grundsätzlichen Einbausituationen des Kompressors. Im Druckbetrieb saugt der Kompressor aus der Umgebung Luft über einen Filter an und drückt sie in den Stack. Ist der Kompressor saugend angeordnet, wird die Luft durch den Kondensator, den Stack und das Filter aus der Umgebung angesaugt und direkt in die Umgebung zurückgeführt. Zum Schutz vor Kontaminierung der Brennstoffzelle müssen drückende Arbeitsmaschinen ölfrei ausgeführt sein und dürfen nur einen geringen Abrieb aufweisen. Saugend arbeitende Kompressoren fördern das feuchte Abgas. Dies enthält kleine Wassertropfen, die sich stromaufwärts nicht abgeschieden haben. Daher muss ein Sauggebläse eine sehr gute Korrosionsbeständigkeit aufweisen. Die Wassertropfen können sich teilweise in der Maschine abscheiden und wieder in den Anodenkreislauf gelangen. Dies

ermöglicht einen Transport der im Kompressor ausgelösten Ionen in den Anodenkreislauf. Zusätzlich sind Temperaturen langfristig von maximal 45 °C und kurzzeitig von maximal bis zu 80 °C zu tolerieren.

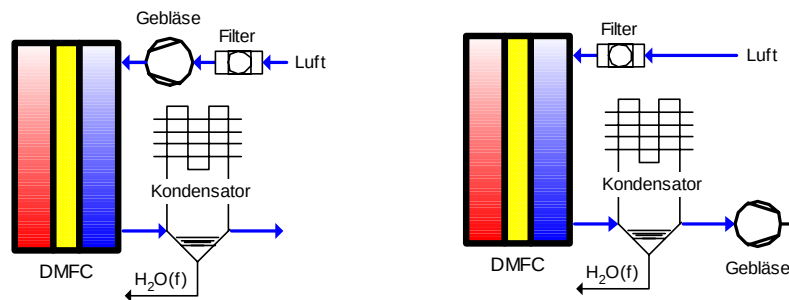


Bild 5.86: Drückende (links) und saugende (rechts) Einbausituation des Kathodenkompressors

Im Folgenden sollen für eine Vorauswahl der Kompressortypen die Vorgaben Luftförderstrom und Förderdruck für das Kathodensystem geliefert werden. Der Luftvolumenstrom wird als nur von der Stackleistung abhängige Größe betrachtet. Der Druckverlust im Kathodensystem definiert zunächst einen Freiheitsgrad bei der Verfahrens- und Komponentenauslegung. Der notwendige Luftvolumenstrom ist abhängig von der Stackleistung, der Zellspannung und der Luftzahl. Für einen 1,5 kW-Stack nach Jülich-Design ist nach den Angaben in Kapitel 3 ein Volumenstrom von 20 m³/h erforderlich. Auf eine Zelle bezogen ergibt sich:

- Luftvolumenstrom pro Zelle: 3,3 l/min
- Leistung pro Zelle: 15 Watt

Für ein atmosphärisch betriebenes System ist der Förderdruck des Kompressors allein bestimmt durch die Druckverluste der kathodischen Komponenten. Im Falle des Druckbetriebs sind dies Filter, Verteilerhaube, Brennstoffzelle, Auffangwanne, Leitungen, Kondensator und Tropfenabscheider. Bei Saugbetrieb entfallen die Druckverluste für Verteilerhaube und Tropfenabscheider. Der Förderdruck des Kompressors ergibt sich nach:

$$\Delta p_{\text{Förder}} = \Delta p_{\text{Stack}} + \Delta p_{\text{Filter}} + \Delta p_{\text{Auffangwanne}} + \Delta p_{\text{Ltg.}} + \Delta p_{\text{Kondensator}} \quad (5.82)$$

Gemäß der Druckverlustmessung in Abschnitt 3.3.10 beträgt bei einer Luftzahl von 5 der Stackdruckverlust etwa 0,7 mbar. Um die Druckverluste der übrigen Komponenten im Strömungspfad abzudecken ist ein abgeschätzter Gesamtförderdruck von 4 mbar erforderlich.

Für einen umfassenden Überblick wird der Stackleistungsbereich von 300 W bis 2500 W sowie Förderdrücke bis 1000 mbar für die folgende Analyse betrachtet.

5.4.2 Theoretische Betrachtung der Maschinentypen anhand von Kennzahlen

Wie schon bei den Pumpen in Abschnitt 5.1.2 beschrieben kann für die einzelnen Kompressortypen nach Bild 12.161 im Anhang eine mittlere spezifische Drehzahl, der erreichbare Förderdruck und der

Durchmesser des Wirkkörpers für den jeweiligen Kompressortypen bestimmt werden. Tabelle 5.25 gibt die in die Betrachtung eingehenden Kennzahlen wieder, die den Auslegungspunkt eines ausgeführten Kompressors beschreiben. Die spezifische Drehzahl wurde bei dem Wirkungsgradbestpunkt abgelesen.

Tabelle 5.25: Spezifische Drehzahl, Spezifischer Durchmesser, Betriebsdrehzahl der jeweiligen Kompressortypen

Kompressortyp	Spezifische Drehzahl [min^{-1}]	Spezifischer Durchmesser	Betriebsdrehzahl [min^{-1}]
Kolben-/Membrankompressor	0,2	11	3000
Drehschiebergebläse	0,4	10,5	2000
Schrauben-/Spiralkompressor	3	6	10000
HD-Radialgebläse	10	11	30000
Seitenkanalgebläse	4	11	10000
Radialgebläse	10	11	6000

In Bild 5.87 ist für die Stackleistung der Luftbedarf berechnet und der Förderdruck der einzelnen Kompressortypen bei diesem Volumenstrom dargestellt. Mit Hilfe des erweiterten Cordier-Diagramms kann zusätzlich ein mittlerer Durchmesser des Wirkkörpers für eine Stackleistung und einen Kompressortypen ermittelt werden. Beim Radialgebläse wurde die kleinste zu realisierende Drehzahl ausgewählt, um die Einsatzgrenzkurve dieses Typs zu ermitteln.

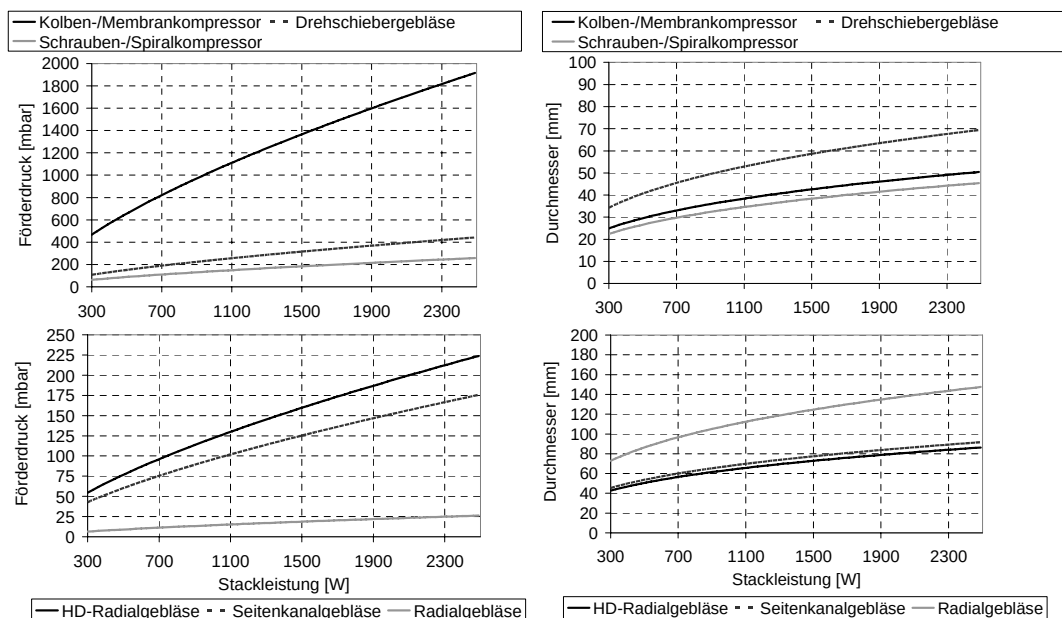


Bild 5.87: Förderdruckbereiche und Wirkkörperdurchmesser der einzelnen Kompressortypen in Abhängigkeit von der Stackleistung

Folgende Schlüsse können aus der theoretischen Betrachtung in Bild 5.87 gezogen werden:

Verdrängermaschinen (Kolben-/Membran-, Drehschieber- und Schrauben-/Spiralkompressor)

Je höher die Stackleistung und damit der notwendige Luftvolumenstrom, desto höher sind auch die erreichbaren Förderdrücke. Der oszillatorische Verdränger erreicht dabei die höchsten Drücke gefolgt von den rotatorischen Verdrängern wie Drehschiebergebläse und Schraubenkompressor. Die Abschätzung auf der rechten Seite in Bild 5.87 ergibt größere Durchmesser für das Drehschiebergebläse. Kolben-/Membran- und Schrauben-/Spiralkompressor liegen bei ähnlichen Durchmessern. Bei kleinen Stackleistungen ($< 700 \text{ W}$) sind Drehschiebergebläse oder Schrauben-/Spiralkompressoren ungeeignet, da mit Durchmessern kleiner 45 mm und 30 mm der Wirkkörper extrem klein wird, und damit die Fertigung technisch schwierig und unwirtschaftlich wird. Bei Kolben-/Membrankompressoren sind die Wirkkörper bis zu kleinen Durchmessern gut zu fertigen. Hinzu kommt die Möglichkeit des Einsatzes kompakter oszillatorischer Antriebe wie Schwinganker oder Piezokeramiken.

Strömungsmaschinen (HD-Radial-, Seitenkanal-, Radialgebläse)

Auch hier gilt, je höher die Stackleistung und damit der notwendige Luftvolumenstrom, desto höher sind auch die erreichbaren Förderdrücke. Jedoch liegen die Strömungsmaschinen im Druckbereich unter den Verdrängern. Ein Hochdruckradialgebläse erreicht knapp höhere Drücke als das Seitenkanalgebläse. Ein Radialgebläse liegt bei 300 W Stackleistung bei 6 mbar und erreicht bei 2500 W über 25 mbar Förderdruck. Der Kurvenverlauf markiert die Einsatzgrenze dieses Typs. Um ein Radialgebläse einsetzen zu können, müssen die kathodischen Druckverluste für die jeweilige Systemgröße unter dieser Kurve bleiben. Analog zu den Verdrängermaschinen ist auch hier der Einsatz durch Limitierung der Baugröße zu kleinen Durchmessern hin beschränkt. Zum einen sind die kleinen Laufräder schwieriger zu fertigen, zum anderen werden die Randeffekte und damit die Verluste größer.

Zum Betreiben eines Stacks mit 1,5 kW Leistung bei 0,4 V Zellspannung kommen daher folgende Wirkprinzipien nach obiger Einteilung in Frage (Klammer = Grenze für den kathodischen Druckverlust):

- Radialgebläse (20 mbar)
- Hochdruck(HD-)radialgebläse (160 mbar)
- Seitenkanalgebläse (125 mbar)
- Drehschiebergebläse (300 mbar)
- Schrauben-/Spiralkompressor (200 mbar)

Exemplarisch ausgewählte Vertreter der Kompressortypen (außer Schrauben-/Spiralkompressor) werden im nächsten Abschnitt vertieft betrachtet.

5.4.3 Untersuchung ausgewählter Kompressoren und Gebläse

Um die auf dem Markt verfügbaren Kompressortechnologien hinsichtlich der Einsetzbarkeit in einem DMFC-System genauer zu charakterisieren, sind die in Tabelle 5.26 aufgeführten Komponenten beschafft und getestet worden. Für jeden Kompressor wurde das Kennfeld aufgenommen sowie Leistungsaufnahme und Wirkungsgrad bestimmt. Im Folgenden werden Kennlinienverhalten, Wirkungsgrade, Kompaktheit und Materialbeständigkeit diskutiert. Die Hochdruckgebläse werden bei einem Förderdruck von 100 mbar verglichen.

Tabelle 5.26: Exemplarisch zur weiteren Untersuchung ausgewählte Kompressoren und Gebläse mit Bestpunktdaten

Kompressortyp	Druck [mbar]	Volumenstrom im [m³/h]	Drehzahl [min⁻¹]	Spezif. Drehzahl [min⁻¹]
Drehschiebergebläse	261	30,4	1800	0,13
HD-Radialgebläse	51,2	139,3	22600	11
Seitenkanalgebläse 1	66	8	7000	0,70
Seitenkanalgebläse 2	181	9,7	11000	0,58
Radialgebläse 1	10,3	49,1	6000	5,9
Radialgebläse 2	4,3	50,4	5100	9,8

Kennlinienverhalten

Bild 5.88 zeigt die Kennlinien bei maximaler Steuerspannung der Verdichter und Ventilatoren. Radial- und Seitenkanalmaschinen weisen eine starke Volumenstromabhängigkeit des Förderdruckes auf. Verglichen mit den Kreislumpenkennlinien sind die Kurven jedoch nahezu linear und flachen nur schwach zu kleinen Volumenströmen ab. Das Drehschiebergebläse weist bei kleinen Förderdrücken (< 50 mbar) eine starke Veränderung des Volumenstroms mit dem Förderdruck (15 % bei 50 mbar) auf. Steigt der Förderdruck jedoch weiter, ist die Kennlinie deutlich „drucksteifer“, als es bei Verdrängermaschinen zu erwarten ist.

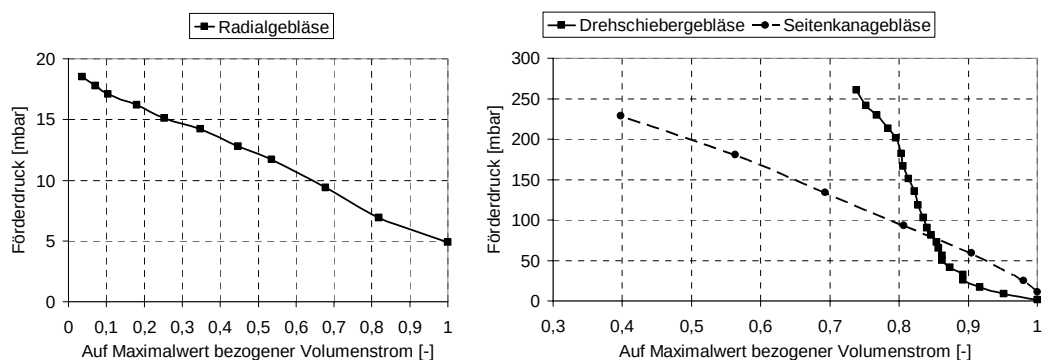


Bild 5.88: Vergleich der gemessenen Kennlinien der untersuchten Radial-, Drehschieber- und Seitenkanalgebläse

Wirkungsgrad

Bild 5.89 zeigt die maximal gemessenen Wirkungsgrade der verschiedenen Kompressortypen. Den höchsten Wirkungsgrad weist das Radialgebläse mit über 41 % auf. Die Seitenkanalmaschinen liegen erwartungsgemäß im Wirkungsgradniveau tiefer, bei etwa 20-25 %. Das HD-Radialgebläse weist mit 35 % trotz der hohen Drehzahlen einen sehr guten Wirkungsgrad auf. Das Drehschiebergebläse erreicht mit 37 % einen guten Wirkungsgrad, wobei das Potenzial von Verdrängermaschinen höher liegt (Bild 12.161 in Anhang 12.4.2).

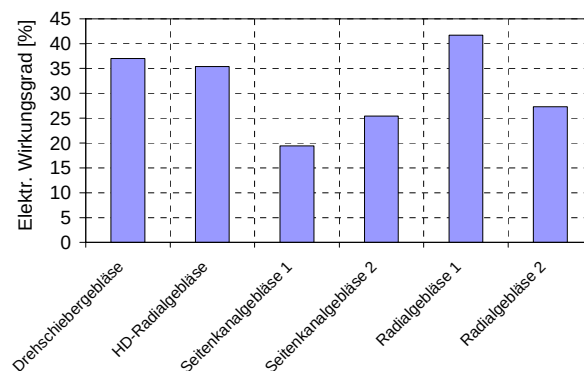


Bild 5.89: Experimentell ermittelte maximale elektr. Wirkungsgrade der untersuchten Gebläse

Bei einem Betriebspunkt bei 100 mbar Förderdruck sind die Wirkungsgrade des Drehschieber-, HD-Radial- und Seitenkanalgebläses in Bild 5.90 verglichen. Es zeigen sich nur geringe Unterschiede im Wirkungsgrad. Das HD-Gebläse liegt mit 27 % elektrischem Wirkungsgrad am besten. Seitenkanal und Drehschieber folgen mit 24 % beziehungsweise 23 %. Der auf die Stackleistung bezogene Eigenbedarf der Gebläse beträgt etwa 15 % für Seitenkanal- und HD-Radialgebläse. Das Drehschiebergebläse verbraucht über 17 % der Stackleistung.

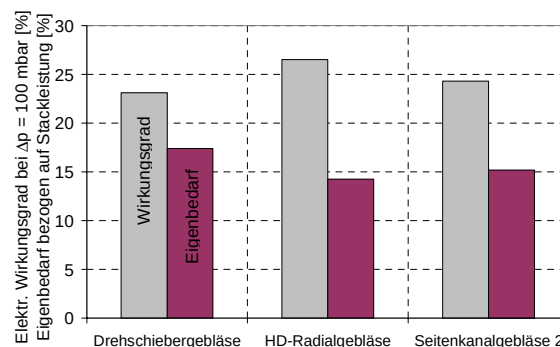


Bild 5.90: Teillastwirkungsgrad und auf die Stackleistung bezogener Eigenbedarf bei einem Gegendruck von 100 mbar für Drehschieber-, HD-Radial-, und Seitenkanalgebläse

Der Eigenbedarf der beiden Radialgebläse ist im Bild nicht dargestellt. Er liegt im Bestpunkt unter 1 %.

Der Wirkungsgradverlauf entlang der Kennlinien bei konstanter Drehzahl zeigt zwischen den Maschinentypen große Unterschiede (Bild 5.91). Die Seitenkanal- und Radialgebläse zeigen ein um das Wirkungsgradmaximum stabiles Verhalten. Der Wirkungsgrad verändert sich bei Volumenstromvariation von 20 % um diesen Punkt um höchstens 5 %-Punkte. Der Wirkungsgrad des Drehschiebers ist stark vom Förderdruck abhängig. Wird die Maschine bei Drücken unter 50 mbar betrieben, stellt sich ein Wirkungsgrad von unter 10 % ein. Bei Drücken über 200 mbar werden dagegen Wirkungsgrade von über 30 % erreicht.

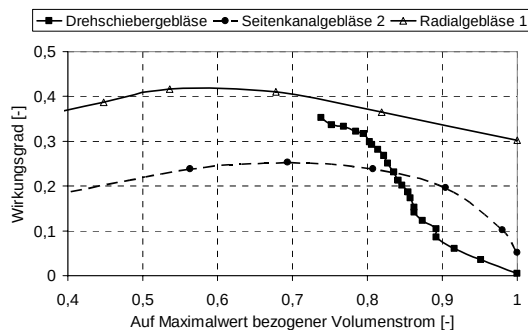


Bild 5.91: Wirkungsgradverlauf entlang der Kennlinie bei Nenndrehzahl

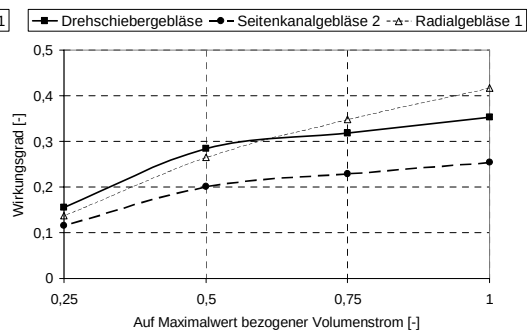


Bild 5.92: Wirkungsgradverlauf bei variabler Drehzahl gemäß einer Anlagencharakteristik

Daher ist es wenig effizient ein Drehschiebergebläse unterhalb seines Nennförderdruckes zu betreiben. Seitenkanal- und Radialgebläse sind hinsichtlich ihres Wirkungsgrades beim Einsatz abseits ihres Optimums robuster.

In Bild 5.92 ist der Wirkungsgradverlauf bei variabler Drehzahl und einer gegebenen Anlagencharakteristik dargestellt. Der Wirkungsgrad des Radialgebläses zeigt sich sensibler bei Drehzahländerungen verglichen mit dem Drehschieber- und Seitenkanalgebläse. Diese zeigen bis etwa 50 % Volumenstrom einen flachen Wirkungsgradverlauf. Unterhalb von 50 % Volumenstrom knicken die Kennlinien des Drehschieber- und Seitenkanalgebläses jedoch ab und zeigen eine stärkere Wirkungsgradverschlechterung. Obwohl das Drehschiebergebläse einen geringeren Wirkungsgrad im Nennpunkt als das Radialgebläse hat, zeigt es im Teillastbereich unterhalb 50 % einen besseren Wirkungsgrad als das Radialgebläse.

Kompaktheit

Für die Auswahl eines geeigneten Verfahrens und die Komponentenauslegung ist es hilfreich zu wissen, welche Konsequenzen der kathodische Druckverlust auf den Platzbedarf der Luftversorgung hat. Dazu wird für den Volumenstrom im Bestpunkt und bei 100 mbar Förderdruck die zugehörige Stackleistung nach den Angaben im vorherigen Abschnitt berechnet. Die auf die Stackleistung bezogene spezifische Gewicht und Volumen lassen sich wie folgt ermitteln:

$$\overline{m}_{K,Stack} = \frac{m_{Kompressor}}{P_{Stack}} \quad (5.83)$$

$$\overline{V}_{K,Stack} = \frac{V_{Kompressor}}{P_{Stack}} \quad (5.84)$$

In Bild 5.93 sind spezifisches Volumen (links) und spezifisches Gewicht (rechts) der untersuchten Gebläse dargestellt. Bei 100 mbar Förderdruck weist das HD-Radialgebläse mit 0,2 l/kW_{Stack} und 0,2 kg/kW_{Stack} das kleinste spezifische Bauvolumen und Gewicht auf. Mit Abstand den größten Bauraum und das höchste Gewicht zeigt das Drehschiebergebläse. Das Seitenkanalgebläse 1 liegt bei über 1,3 l/kW_{Stack} und 1,2 kg/kW_{Stack}. Die Radialgebläse zeigen spezifische Volumina von 0,3 bis 0,6 l/kW_{Stack} und spezifische Gewichte von 0,2 bis 0,4 kg/kW_{Stack}.

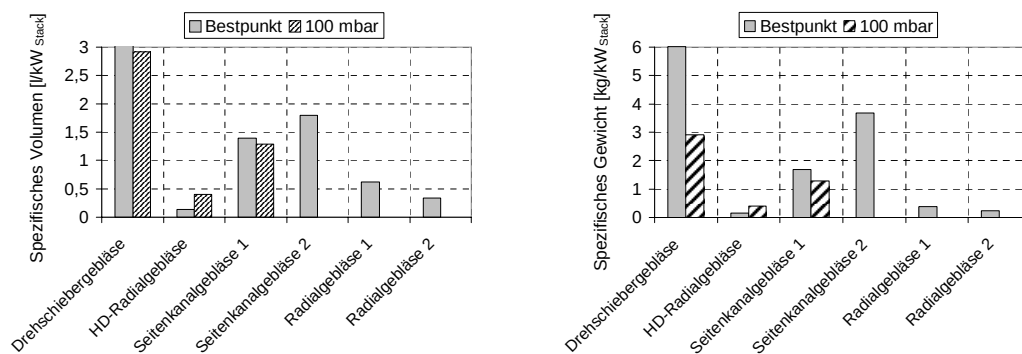


Bild 5.93: Vergleich des spezifischen Volumens (links) und des spezifischen Gewichts (rechts) der untersuchten Kompressortypen

5.4.4 Zusammenfassung der Ergebnisse der Kompressoruntersuchungen

Entsprechend der bei Pumpenbewertung angewandten Methodik ist in Tabelle 5.27 eine zusammenfassende Bewertung der getesteten Kompressortypen dargestellt. Als Anforderung für das Kriterium 1 ist ein Förderstrom von 20 m³/h bei einem Förderdruck von 4 mbar für den Betrieb eines 1,5 kW Stacks definiert.

Tabelle 5.27: Bewertungsmatrix für die untersuchten Gebläse

Nr.	Kriterium	Drehschieber- gebläse	HD-Radial- gebläse	Seitenkanal- gebläse 1	Seitenkanal- gebläse 2	Radial- gebläse 1	Radial- gebläse 2
1	Förderstrom/-druck	1	1	1	1	2	3
2	Ölfreier Betrieb/kein Abrieb	1	3	3	3	3	3
	Materialbeständigkeit						
3	bei saugender Anordnung	0	0	0	0	0	0
4	Wirkungsgrad	2	2	1	1	3	2
5	Geräuschverhalten	0-1	2	3	3	3	3
6	Bauvolumen/Gewicht	0	3	2	1	3	3
	Gesamtdurchschnitt	0,8	1,8	1,7	1,5	2,3	2,3

Aufgrund der sehr unterschiedlichen Volumenstrom/Druck-Charakteristika lassen sich die Radialgebläse nur schlecht mit den höher drückenden Kompressoren vergleichen. Wenn es der Druckverlust der kathodischen Luftführung erlaubt, Radialgebläse einzusetzen, sind diese selbstverständlich im Vorteil. Das Gebläse „Radial 2“ erfüllt am besten die geforderten Förderparameter des 1,5 kW-DMFC-Systems. Um das Gebläse saugend einzusetzen, müssen die medienberührenden Teile korrosionsfest sein. Der Impeller ist aus korrosionsbeständigem Kunststoff. Das geteilte Aluminiumgehäuse lässt sich leicht demontieren und wird mit PTFE beschichtet.

Bei höheren Kathodendruckverlusten (um ca. 100 mbar) lassen sich die drei Typen Drehschieber, HD-Radialgebläse und Seitenkanalgebläse gut vergleichen:

Die **Wirkungsgrade** liegen bei einem Förderdruck von 100 mbar bei den getesteten Kompressortypen um 25 % sehr nah beieinander. Dies resultiert bei einer Luftzahl von 5 in einer parasitären Leistung von etwa 15 %. Bei den maximalen Wirkungsgraden in den jeweiligen Bestpunkten der Typen sind Wirktyp „Radial“ und „Drehschieber“ mit um 40 % weit besser als das Seitenkanalgebläse. Das HD-Radialgebläse zeigt die größte **Kompaktheit** mit einem bezogenen Bauvolumen von etwa 0,4 l/kW Stackleistung und einem bezogenen Gewicht 0,3 kg/ kW Stackleistung. Das **Geräuschverhalten** des Seitenkanalgebläses ist mit 50 dBA laut Herstellerangabe am leisesten. Das Drehschiebergebläse liegt mit gemessenen 70 dB(A) bei einem relativ hohen Schallpegel.

Für ein DMFC-System mit einem hohen kathodischen Druckverlust von 100 mbar ist ein HD-Gebläse die entsprechend der obigen Kriterien die geeignete Wahl. Ein Seitenkanalgebläse ist relativ leise, zeigt jedoch einen schlechteren Wirkungsgrad.

5.5 Zusammenfassung

Die Kennzahlen „spezifische Drehzahl“ und „spezifischer Durchmesser“ führen die Parameter Förderstrom, Förderdruck und Antriebsdrehzahl der Fluidenergiemaschinen zusammen. Die spezifische Drehzahl bietet ein Grundgerüst zur Einteilung der einzelnen Maschinentypen und einer Vorabspiegelung an der jeweiligen Förderaufgabe. Mit dem spezifischen Durchmesser lässt sich eine Abschätzung der Baugröße eines Maschinentyps vornehmen.

Gemäß der theoretischen Analyse zeigen sich Kreisel-, Zahnrad-, Peripheralrad- und Vielzellenpumpe als geeignet in der Anodenumwälzung für einen 1,5 kW-Stack eingesetzt zu werden. Die experimentellen Untersuchungen an exemplarisch beschafften Vertreter dieser Maschinentypen ergeben Vorteile der Kreiselpumpe im Hinblick auf Wirkungsgrad, Baugröße und Gewicht. Der maximal gemessene Wirkungsgrad der Kreiselpumpe liegt bei 33 %. Die getestete Flügelzellenpumpe bietet Vorteile bei höheren Förderdrücken und der Integrationsfähigkeit. Beide Pumpentypen lassen sich für die betrachtete Systemgröße einsetzen. Für die in Kapitel 3 spezifizierten Förderparameter sind folgende Kennzahlen ermittelt worden:

Tabelle 5.28: Zusammenfassung der Eckwerte für Kreisel- und Flügelzellenpumpe im Einsatz mit einem 1,5 kW-Stack (6 l/min bei 300 mbar Förderdruck)

Pumpentyp	Kreiselpumpe	Flügelzellenpumpe
Wirkungsgrad	24 %	8 %
Baugröße/Gewicht	0,15 l/kW _{Stack}	0,3 l/kW _{Stack}
	0,4 kg/kW _{Stack}	0,7 kg/kW _{Stack}
Eigenbedarf	1 %	2 %

Anhand einer aus den Untersuchungen abgeleiteten Einsatzmatrix kann eine systemtechnische Optimierung für die Wahl der Parameter Umwälzvolumenstrom und Druckverlust im Anodenkreislauf durchgeführt werden.

Bei der Methanoldosierung ergibt sich aus den Förderparametern eine Beschränkung auf Verdrängerpumpen. Bei der Auswahl der Dosierpumpe ist die Dosiergenauigkeit und der Regelbereich wichtig. Damit steht der Antrieb der Pumpe im Vordergrund. Die Pumpen mit Linearmotor oder Encodersteuerung haben wie erwartet die geringsten Abweichungen von der Kennlinie. Die Zahnradpumpe mit Encodersteuerung und die Schwingankerpumpe eignen gleichermaßen für den Einsatz als Dosierpumpe in einem DMFC-System. Den größten Dosierbereich zeigt die Schwingankerpumpe, die bis auf 0,1 % ihres Maximalwertes gedrosselt werden kann. Dabei zeigt sie eine Kennlinienabweichung von 0,9 % vom Maximalwert. Die Zahnradpumpe lässt sich bis 0,4 % ihres Maximalwertes drosseln mit einer Kennlinienabweichung von nur 0,2 % vom Maximalwert.

Als Kondensatförderpumpe ist eine Membranpumpe aufgrund der guten Materialbeständigkeit am besten geeignet.

Bei Betrachtung der Gebläse für die Luftversorgung des Stacks ergibt sich für die Förderparameter des 1,5 kW Stacks nur der Einsatz eines Radialgebläses. Die experimentelle Untersuchung zeigt Wirkungsgrade der Radialgebläse bis zu 41 % im Nennpunkt. Würde der kathodische Druckverlust des Stacks größer ausfallen, sind Drehschieber-, Seitenkanal- und Hochdruckradialgebläse geeignete Alternativen. Ein Vergleich dieser Maschinentypen bei einem Förderdruck von 100 mbar ergibt Vorteile für das Hochdruckradialgebläse im Bereich Baugröße und Gewicht. Tabelle 5.21 zeigt die ermittelten Daten für Radial- und Hochdruckradialgebläse.

Tabelle 5.29: Zusammenfassung der Eckwerte für Radial- und Hochdruckradialgebläse

Pumpentyp	Radialgebläse 2 (4 mbar)	Hochdruckradialgebläse (100 mbar)
Wirkungsgrad	27 %	27 %
Baugröße/Gewicht	0,3 l/kW _{Stack}	0,4 l/kW _{Stack}
	0,2 kg/kW _{Stack}	0,4 kg/kW _{Stack}
Eigenbedarf	1 %	15 %

6 Entwicklung neuer Systemkomponenten

6.1 Experimentelle Untersuchung, Modellierung und Optimierung eines Kondensators zur Wasserrückgewinnung

Die Aufgabe des Kondensators auf der Kathodenabgasseite ist die Rückgewinnung des gasförmigen Wassers aus dem Abgas. Ein Ventilator versorgt den Kondensator mit Kühlluft aus der Umgebung. Das auskondensierte Wasser wird gesammelt und in dem Anodenkreislauf zurückgeführt (Bild 6.94).

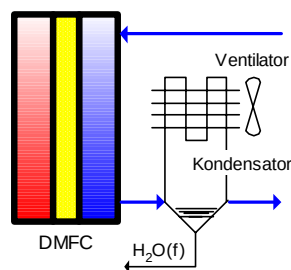


Bild 6.94: Wasserrückgewinnung mit Kondensator

Die Kühlung eines feuchten Abgas- oder Luftstroms über den Taupunkt hinweg wird in industriellen Produktionsprozessen zumeist mit wassergekühlten Rohrbündelwärmeübertragern realisiert. Im kleintechnischen Maßstab mit Wärmeleistungen in der kW-Klasse sorgen Plattenwärmeübertrager zum Beispiel in Brennwertkesseln für die Abgaswärmenutzung oder in Kondenstrockner für die Wasserabscheidung. Kondensatoren für Kondenstrockner werden zumeist aus Aluminium oder aus Kostengründen aus Kunststoff ausgeführt. Die Effizienz des Kondensators beeinflusst wesentlich den Eigenverbrauch des Trockners. Daher finden aufwendige Lamellenstrukturen hier ihre Anwendung. Verglichen mit der Anwendung in einem Brennstoffzellensystem sind jedoch die Gasdurchsätze deutlich höher. Daher ist eine Anpassung der Wärmeübertragerfläche, der Strömungsführung und der Lamellen notwendig. In Kooperation mit einem Industriepartner ist ein Wärmeübertrager auf Basis eines Kondensators für Kondensattrockner entwickelt worden. Im Folgenden werden die begleitende Modellierung und experimentelle Untersuchungen beschrieben, die für ein optimiertes Kondensatordesign notwendig sind. Zusätzlich unterstützt die Modellierung die Systemanalyse in Kapitel 7.

Die maximale Temperatur auf der Abgasseite des Wärmeübertragers ist gleich der maximalen Stacktemperatur. Diese beträgt 80 °C. Entsprechend des in Kapitel 4 entwickelten

Verfahrensschemas wird der Kondensator drucklos betrieben. Das Abgas ist mit Wasser übersättigt und kann Spuren von Methanol enthalten. Die medienberührenden Materialien des Wärmeübertragers müssen korrosionsbeständig sein, da über die Kondensatrückführung in den Anodenkreislauf gelöste Ionen die Brennstoffzelle erreichen.

6.1.1 Modellierung des Kondensators

Bei der Modellierung wird im ersten Schritt der Wärmeübergang auf der Kühlluft- und auf der Abgasseite für den eindimensionalen Fall betrachtet. Davon ausgehend wird das Modell eines Plattenwärmeübertragers anhand einer geeigneten Kaskadenschaltung von Berechnungselementen entwickelt.

6.1.1.1 Modellierung des 1-dimensionalen Wärmetransports in einem Volumenelement

Die 1-dimensionale Wärmestromdichte bei der Wärmeübertragung zwischen zwei durch eine undurchlässige Wand getrennte Stoffströme berechnet sich aus dem Wärmedurchgangskoeffizienten k und der Temperaturdifferenz zwischen den Stoffströmen:

$$\dot{q} = k \cdot (\vartheta_1 - \vartheta_2). \quad (6.85)$$

Dabei setzt sich der Wärmedurchgangskoeffizient zusammen aus den Wärmeübergangskoeffizienten α_1 und α_2 der Kühlluft- und der Abgasseite und der Dicke und Wärmeleitfähigkeit λ_L der Platte:

$$\frac{1}{k} = \frac{1}{\alpha_1} + \frac{l_{\text{Platte}}}{\lambda_L} + \frac{1}{\alpha_2}. \quad (6.86)$$

Für den kühlluftseitigen Wärmeübergangskoeffizienten α_1 werden für den Fall erzwungener Konvektion ohne Phasenübergang die dimensionslosen Kennzahlen Nusselt-, Reynolds- und Prandtl-Zahl wie folgt ermittelt:

$$Nu = \frac{\alpha d_h}{\lambda}, \quad Re = \frac{u \rho d_h}{\eta} \quad \text{und} \quad Pr = \frac{\eta c_p}{\lambda} \quad (6.87)$$

Der hydraulische Durchmesser ist definiert für nicht-kreisförmige Querschnitte aus dem Verhältnis der vierfachen Querschnittsfläche zum benetzten Umfang:

$$d_h = 4 \frac{A_Q}{U} \quad (6.88)$$

Für laminare Strömung ($Re < 2300$) in einem unendlichen Spalt mit der Lauflänge L unter Berücksichtigung des thermischen und hydrodynamischen Einlaufs ergibt sich die mittlere Nusselt-Zahl aus [72]:

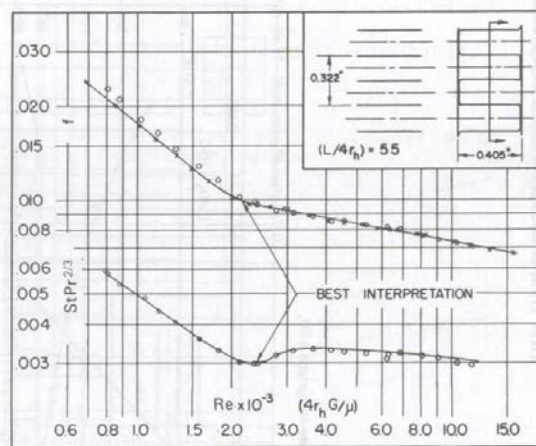
$$Nu_{m,L} = 8,235 + 0,024 \cdot \frac{\left(Re \cdot Pr \cdot \frac{d_h}{L} \right)^{1,14}}{1 + 0,0358 \cdot \left(Re \cdot Pr \cdot \frac{d_h}{L} \right)^{0,64} \cdot Pr^{0,17}} \quad (6.89)$$

Aus der Nusselt-Zahl errechnet sich nun der Wärmeübergangskoeffizient α_1 nach

$$\alpha_1 = \frac{\lambda_L Nu_{m,L}}{d_h} \quad (6.90)$$

Bei komplizierten Lamellenstrukturen werden die Wärmeübergangskoeffizienten mittels empirisch ermittelten Kennlinien aus [83] berechnet.

Fig. 10-24 Plain plate-fin surface 6.2.



Fin pitch = 6.2 per in = 244.1 per m
 Plate spacing, $b = 0.405$ in = 10.29×10^{-3} m
 Flow passage hydraulic diameter, $4r_h = 0.0182$ ft = 5.54×10^{-3} m
 Fin metal thickness = 0.010 in, aluminum = 0.254×10^{-3} m
 Total transfer area/volume between plates, $\beta = 204$ ft²/ft³ = 669.3 m²/m³
 Fin area/total area = 0.728

Bild 6.95: Beispiel einer empirisch ermittelten Kennlinie für eine Glattlamelle mit bestimmten geometrischen Abmessungen [83]

Mit der entsprechenden Reynolds-Zahl wird der Wert für $StPr^{2/3}$ abgelesen. Die Stanton-Zahl ist definiert als

$$St = \frac{\alpha}{\rho \cdot c_p \cdot w} \quad (6.91)$$

wobei w die Fließgeschwindigkeit senkrecht zur Querschnittsfläche des Lamellenkanals ist. Durch Umstellen von Gleichung (6.91) ergibt sich nun für den Wärmeübergang α

$$\alpha = St \cdot \rho \cdot c_p \cdot w \quad (6.92)$$

Beispielweise kann für eine mit obiger Glattlamelle ausgestattete Übertragereinheit bei einer Reynolds-Zahl von 10000 ein Wert von 5×10^{-3} für $StPr^{2/3}$ abgelesen werden. Aus Gleichung (6.92) und der Definition der Reynolds-Zahl ergibt sich dann für trockene Luft bei 20 °C ein Wärmeübergangskoeffizient von $\alpha = 410$ W/m²K bezogen auf die Grundfläche der Übertragereinheit.

Des Weiteren kann auf Herstellerangaben bezüglich der Wärmeübergänge der eingesetzten Profile zurückgegriffen werden.

Für die Prozessgasseite wird der Wärmeübergangskoeffizient α_2 für den Fall von Kondensation in Anwesenheit von Inertgasen ermittelt. Dabei transportieren zum einen erzwungene Konvektion und zum anderen die Kondensation von Wasserdampf an der Wand Wärme zwischen den Stoffströmen. Während die erzwungene Konvektion analytisch simultan zum kühlflutseitigen Fall behandelt wird, erfordert der Wärmetransport infolge von Kondensation eine Erweiterung des Ansatzes.

In Bild 6.96 ist der Kondensationsvorgang auf der Abgasseite des Wärmeübertragers dargestellt. Die Kondensation wird durch die Anwesenheit der Luft verglichen mit reiner Dampfkondensation beträchtlich gestört. Der kondensierende Wasserdampfstrom $\dot{m}_{Kond}$ ist limitiert durch den Massentransport des Wasserdampfes von der Kernströmung zu der Kondensationszone. Zudem sinkt durch den geringeren Wasserdampfpartialdruck die Kondensationstemperatur und damit der Temperaturgradient zwischen den Stoffströmen. Die Kondensationszone befindet sich direkt auf der Übertragerplatte oder auf der Oberfläche des Kondensatfilms.

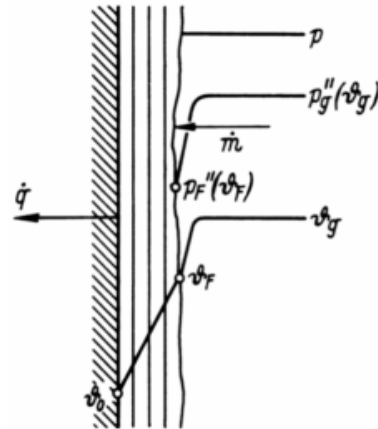


Bild 6.96: Filmkondensation in Anwesenheit von Inertgasen [84]

Der kondensierende Wassermassenstrom lässt sich berechnen nach [84] mit

$$\dot{m}_{Kond} = \rho_g \cdot \beta \cdot \ln \left(\frac{p - p_F''(\vartheta_F)}{p - p_g''(\vartheta_g)} \right)$$

mit $p_g''(\vartheta_g)$: Sattdampfdruck in der kondensierenden Kernströmung (entspricht dem Wasserdampfpartialdruck) (6.93)

$p_F''(\vartheta_F)$: Dampfdruck des Kondensats

β : Stoffübergangskoeffizient

ρ_g : Dichte des Gemisches in der Kernströmung

Aus der Analogie von Wärme- und Stoffübertragung wird für den Stofftransport aus der Nusselt-Zahl die Sherwood-Zahl und aus der Prandtl-Zahl die Schmidt-Zahl:

$$Nu \rightarrow Sh = \frac{\beta \cdot d_h}{D} \quad \text{und} \quad Pr \rightarrow Sc = \frac{\nu}{D} \quad (6.94)$$

mit D = Diffusionskoeffizient

Entsprechend der Gleichungen (6.89) und (6.94) ergibt sich für einen unendlichen breiten Spalt mit der Lauflänge L die mittlere Sherwood-Zahl zu

$$Sh_{m,L} = 8,235 + 0,024 \cdot \frac{\left(Re \cdot Sc \cdot \frac{d_h}{L} \right)^{1,14}}{1 + 0,0358 \cdot \left(Re \cdot Sc \cdot \frac{d_h}{L} \right)^{0,64} \cdot Sc^{0,17}} \quad (6.95)$$

Für die Wärmestromdichte folgt

$$\dot{q}_{Kond} = \frac{\dot{m}_{Kond}}{M_{H_2O}} \cdot \Delta h_{vap} \quad (6.96)$$

Zusätzlich fließt ein konvektiv übertragener Wärmestrom. Mit einer aus Gleichung (6.89) berechneten Nusselt-Zahl kann der Wärmeübergangskoeffizient ermittelt werden:

$$\alpha_2^* = \frac{\lambda_L Nu_{m,L}}{d_h} \quad (6.97)$$

Die so genannte Ackermann-Korrektur berücksichtigt, dass ein Teil des Wasserdampfes kondensiert und damit an der Phasengrenze verschwindet [85, S. 428]:

$$\zeta = \frac{-\phi}{\exp(-\phi) - 1} \quad \text{mit} \quad \phi = \frac{|\dot{m}_{Kond}| \cdot c_{p,G}}{\alpha_2^*} \quad (6.98)$$

Es ergibt sich für die konvektive Wärmestromdichte:

$$\dot{q}_{Konv} = \zeta \cdot \alpha_2^* \cdot (\vartheta_F - \vartheta_g) \quad (6.99)$$

Der Wärmewiderstand der sich bildenden Kondensatschicht wird nach [85, S. 421] wie folgt berücksichtigt:

$$\alpha_F = \frac{\lambda_L}{\delta} = \left[\frac{\rho_L \cdot (\rho_L - \rho_G) \cdot g \cdot \Delta h_{vap} \cdot \lambda_L^3 \cdot \frac{1}{x}}{4\eta_L \cdot \Delta \vartheta \cdot M_{H_2O}} \right] \quad (6.100)$$

mit $\Delta \vartheta$: Temperaturdifferenz über Wasserfilm

x : Lauflänge entlang Platte

ρ : Dichte von L = flüssiges Wasser und G = Gasgemisch

λ_L : Wärmeleitfähigkeit des flüssigen Wassers

η_L : dynamische Viskosität des flüssigen Wassers

Ausgehend von der Kühlluftseite ergibt sich für die Kondensatfilmtemperatur auf der Abgasseite:

$$\vartheta_F = \vartheta_1 + \frac{\dot{q}_{Kond} + \dot{q}_{Konv}}{\left(\frac{1}{\alpha_1} + \frac{1}{\alpha_F} \right)^{-1}} \quad (6.101)$$

Zur Berechnung der Wärmestromdichte muss nun iterativ die Filmtemperatur ϑ_F bestimmt werden. In Bild 6.97 ist der Berechnungsalgorithmus dargestellt. Nachdem die konvektive Wärmestromdichte und die Kondensationswärmestromdichte mit einer geschätzten Filmtemperatur ermittelt sind, kann mit Gleichung (6.101) die Filmtemperatur von der Kühlluftseite ausgehend berechnet werden.

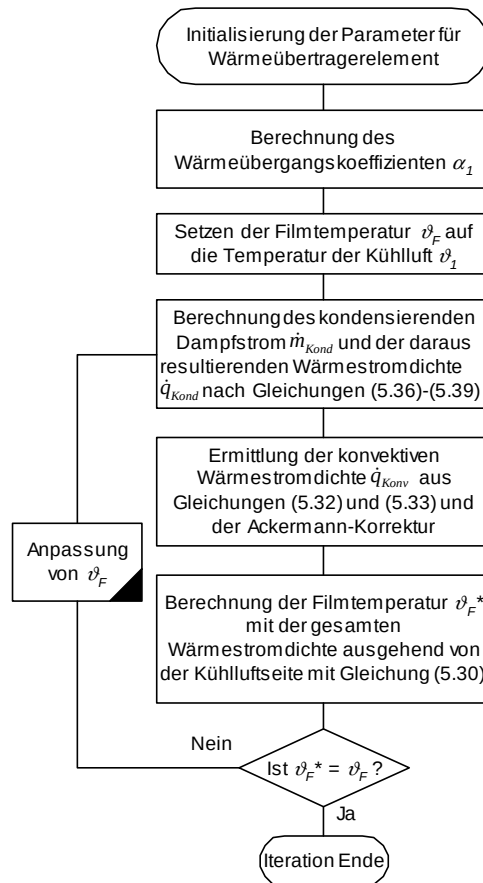


Bild 6.97: Algorithmus zur Ermittlung der Filmtemperatur bei der Kondensation in Anwesenheit von Inertgasen

Der resultierende Wärmeübergangskoeffizient auf der Abgasseite wird ermittelt aus der Summe der Wärmestromdichten dividiert durch den Temperaturgradienten von der Kernströmung zur Wand:

$$\alpha_2 = \frac{\dot{q}_{Kond} + \dot{q}_{Konv}}{\vartheta_2 - \vartheta_w} \quad (6.102)$$

Der Einfluss der Temperaturabhängigkeit der Stoffwerte und der unterschiedlichen Zusammensetzung des Gasgemisches in der Kondensationszone und in der Kernströmung wird nach [84] mit folgenden Faktoren erfasst:

$$f_1 = \left(\frac{Pr}{Pr_F} \right)^{0,11} \quad \text{und} \quad f_2 = \left(\frac{Sc}{Sc_F} \right)^{0,11} \quad (6.103)$$

Mit dem Faktor f_1 wird die Nusselt-Zahl und mit dem Faktor f_2 die Sherwood-Zahl korrigiert.

6.1.1.2 Thermohydraulische Modellierung eines Wärmeübertragers

Die obige Analyse ist gültig für ein kleines Flächenelement des Wärmeübertragers. Durch Verschalten dieser Flächenelemente kann nun eine beliebige Geometrie eines Wärmeübertragers und seiner Strömungsführung (Gleichstrom, Gegenstrom und Kreuzstrom) modelliert werden. Dabei gelten folgende Annahmen für ein Flächenelement:

- Keine Gradienten bezüglich Temperatur, Druck und Zusammensetzung des Gemisches in Strömungsrichtung
- Keine Wärmeleitung und Stoffdiffusion in Strömungsrichtung
- Es gelten die für die gesamte Rohrlänge gemittelten Werte für die Nusselt- und Sherwood-Zahl
- Für die Kühlluftseite ist laminare und turbulente Strömung zugelassen
- Die Abgasseite ist nur für laminare Strömung zu berechnen ($Re < 2300$)

Bild 6.98 zeigt die Verschaltung zu einem Kreuzstromwärmeübertrager. Die einzelnen Elemente werden parallel im Gleichstrom durchlaufen. Über die Verbindung der Elemente wird die Konfiguration realisiert.

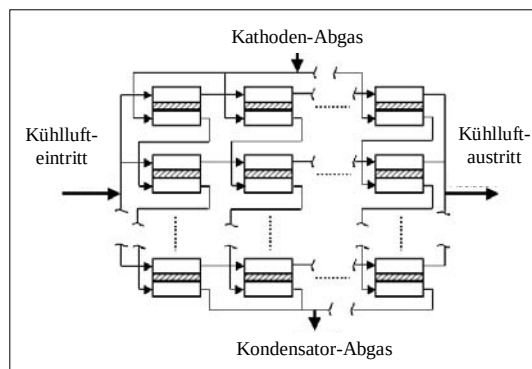


Bild 6.98: Schaltung der Flächenelemente zu einem Kreuzstromwärmeübertrager

Bild 6.99 zeigt das Ergebnis einer mit obiger Verschaltung durchgeführten Simulation. Die Prozessgasseite wurde dabei in 60 Abschnitte und die Kühlluftseite in 10 Abschnitte eingeteilt. Dies ergibt 600 zu einer Kreuzstrom-Konfiguration verschaltete Einzelelemente. Für jedes Element ist in Bild 6.99 die Temperatur der Prozessgasseite angegeben. Man erkennt gut den Einfluss der kreuzenden Kühlluftströmung auf das Temperaturprofil. Die Austrittstemperaturen der Prozessgasseite steigen in Strömungsrichtung der Kühlluft mit steigenden Temperaturen der Kühlluft. Für den Vergleich mit den Messergebnissen wird die mittlere Austrittstemperatur über eine Wärmebilanz ermittelt.

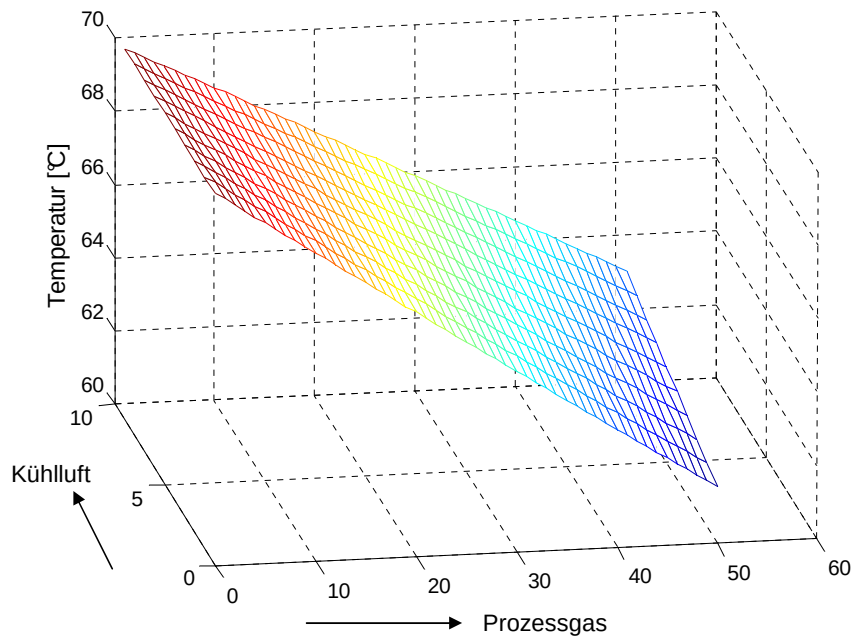


Bild 6.99: Simulation eines Kreuzstromwärmeübertragers (Prozessgasfließrichtung 60 Stützstellen; Kühlluftfließrichtung 10 Stützstellen)

Die Druckverluste der Wärmeübertragerstrukturen werden entweder aus Angaben des Industriepartners interpoliert oder aus empirisch ermittelten Kennlinien aus [83] berechnet. Gemäß des Beispiels aus Bild 6.95 kann der Reibbeiwert f in Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl bestimmt werden. Für die Prozessgasseite wird ein laminar durchströmter, unendlich breiter Spalt angenommen, für den der analytische Ansatz gilt:

$$f = \frac{24}{\text{Re}} \quad (6.104)$$

Mit der Gleichung

$$\Delta p_{\text{WS}} = f \cdot \frac{4}{d_h} \rho \cdot \frac{u^2}{2} \quad (6.105)$$

mit u = Strömungsgeschwindigkeit im Spalt

berechnet sich der Druckverlust des Spaltes. Ebenfalls aus [83] wird der Druckverlust der Ein- und Ausströmung berechnet. Aus den Druckverlustbeiwerten k_e und k_c wird der Druckverlust berechnet:

$$\Delta p_{\text{Ein+Aus}} = \rho \cdot \frac{u^2}{2} \cdot \left[(k_c + 1 + \sigma^2) - (1 - \sigma^2 - k_e) \right] \quad (6.106)$$

mit σ = Strömungsquerschnitt / Frontalfläche

Die Druckänderung aufgrund von Strömungsbeschleunigung und –verzögerung innerhalb des Strömungskanals wird erfasst durch

$$\Delta p_{bes} = \rho \cdot \frac{u^2}{2} \cdot \left[2 \cdot \frac{\rho_{Eintritt}}{\rho_{Austritt}} - 1 \right] . \quad (6.107)$$

Die Druckverluste in der Umlenkung des Wärmeübertragers werden nach [86] berechnet mit

$$\Delta p_{Uml} = \zeta_{Uml} \cdot \rho \cdot \frac{u^2}{2} \quad (6.108)$$

mit $\zeta_{Uml} = 3$

6.1.2 Experimentelle Untersuchungen und Validierung des Modells

Der folgende Abschnitt erläutert kurz die Vorgehensweise bei der experimentellen Untersuchung des Wärmetransportprozesses in einem Kondensator zur Wasserrückgewinnung aus feuchten Prozessgasen. Anschließend werden die aufbereiteten Messergebnisse den theoretischen Resultaten der Modellierung gegenübergestellt und diskutiert.

6.1.2.1 Versuchsaufbau und Auswertung der Messungen

Bild 6.100 zeigt den schematischen Aufbau der wärmetechnischen Messungen. Das Prozessgas wird über eine Mischung von trockener Luft und überhitztem Dampf in einer Mischstrecke erzeugt und dem Wärmeübertrager zugeführt. Kühlluftseitig ist ein Axialventilator über eine Messstrecke mit dem Kondensator verbunden. Die kühlluftseitig zu- und abgeführte Wärmeströme werden mit einer Kühlluftvolumenstrommessung und mit Temperaturmessungen vor und nach dem Wärmeübertrager bilanziert. Eine Messung des Volumenstroms der zugeführten trockenen Luft (Hitzdrahtanemometer TSI 4226-01-01) vor dem Mischbehälter und Temperaturmessungen vor und nach dem Kondensator bilanzieren die Prozessdampfseite. Zusätzlich wird die Temperatur des abgetrennten Kondensats gemessen und über eine Waage (Sartorius LP4200S, 4200 g, 0,01 g reproduzierend) die anfallende Kondensatmenge ermittelt. Um die aus der Kreuzstromkonfiguration resultierenden erheblichen Schwankungen (bis zu 10 K) der Temperatur über den Austrittsströmungsquerschnitten zu erfassen, wurden 6 Temperaturfühler installiert. Der Überdruck wird auf der Prozessgasseite über ein mit Wasser gefülltes U-Rohr und mit einem elektronischen Druckgeber (Wika) gemessen. Auf der Kühlluftseite vor dem Wärmeübertrager sind 4 Entnahmestellen zu einem Druckring zusammengefasst. Der Druck im Ring wird mit einem elektronischen Druckgeber (MKS Baratro 170M-6C) aufgenommen. Die Temperaturen werden mit PT100 oder Thermoelementen Typ K gemessen.

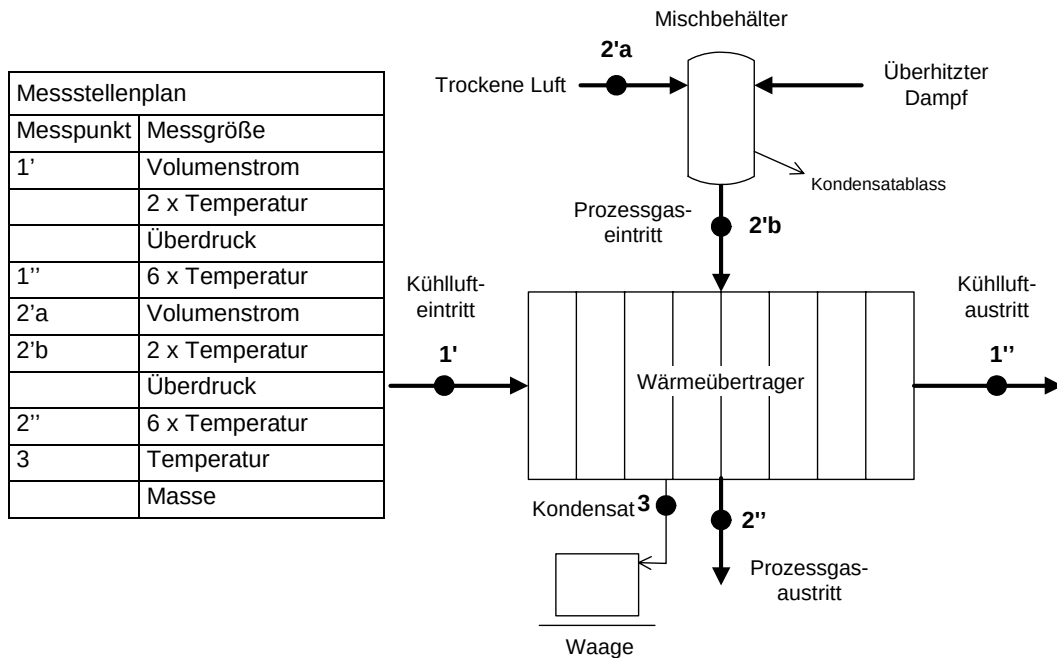


Bild 6.100: Versuchsaufbau und Messstellenplan

Die Messstrecke (Bild 6.101) zur Bestimmung des Kühlluftvolumenstroms besteht aus einem 1 m langen Plexiglasrohr mit einem Innendurchmesser von 190 mm. Auf die eine Seite wurde ein Axialventilator montiert, gefolgt von einem Strömungsgleichrichter bestehend aus 70 Röhrchen (150 mm lang mit einem Innendurchmesser von 16 mm). Der Strömungsgleichrichter sorgt für eine weitgehende Eliminierung des durch den Axialventilator induzierten Dralls. Am anderen Ende der Messstrecke ist in der Mitte des Rohres ein Hitzdrahtanemometer (Höntzsch 10-265GE) eingebracht. Dies misst die Strömungsgeschwindigkeit. Über einen vorher ermittelten Formfaktor wird der Volumenstrom errechnet. Hiermit wird eine nahezu druckverlustfreie Messung des Volumenstroms realisiert.

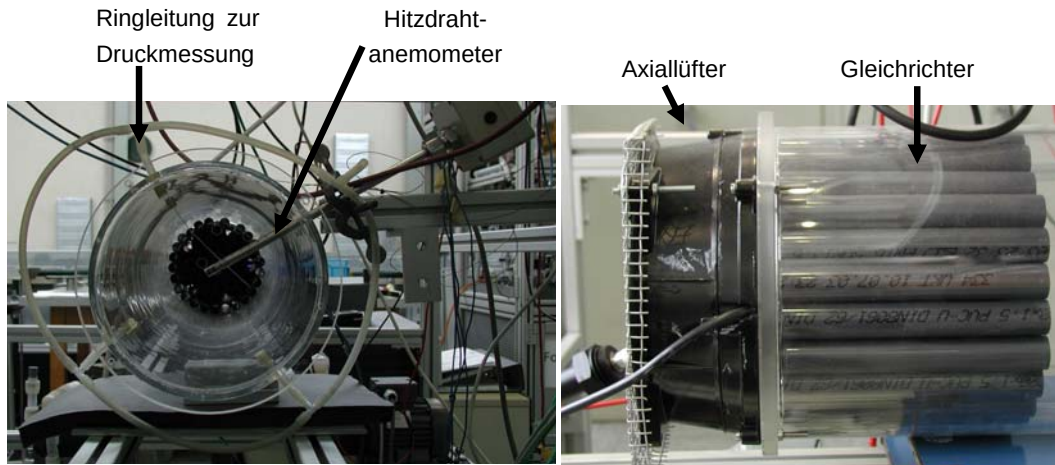


Bild 6.101: Messstrecke des Kühlluftvolumenstroms mit Hitzdrahtanemometer und Gleichrichter

Zur Untersuchung des Wärmeübergangs bei der Kondensation und des Verhaltens von verschiedenen Lamellentypen wurde ein Testkondensator konstruiert und gebaut (Bild 6.102). Die Wärmeübertragerflächen sind mittels austauschbarer Kassetten im Kreuzstrom angeordnet. Das Prozessgas strömt von oben in den Kondensator ein und tritt unten umgelenkt nach oben wieder aus.

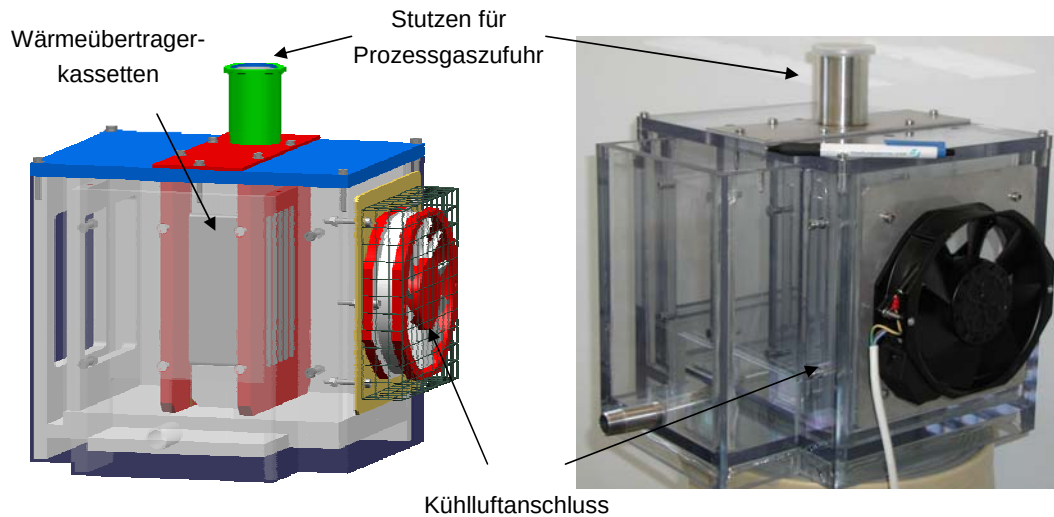


Bild 6.102: Konstruierter Testkondensator aus Plexiglas mit austauschbaren Wärmeübertragerkassetten

Bild 12.163 zeigt die Wärmeübertragerkassetten mit den verschiedenen Lamellentypen. Die Kassetten werden in die Halterungen eingelegt und mit Silikonpaste abgedichtet.

Bild 6.103 zeigt den Aufbau der Prozessgasseite. Durch den Einbau der Kassetten bilden sich für das Prozessgas 4 Kanäle mit einer Höhe von 6 mm und einer Breite von 60 mm. Die Tiefe beträgt 135 mm. Dies ergibt eine Gesamtübertragerfläche auf der Prozessgasseite von 0,065 m². Eine 2-Zug-Schaltung ist im Bild 6.103 rechts dargestellt. Mit Bleicheinsätzen wird die Strömung nur durch zwei Kanäle nach unten geleitet. In der Auffangwanne erfolgt die Umlenkung und das Gas strömt durch die zwei anderen Kanäle nach oben.

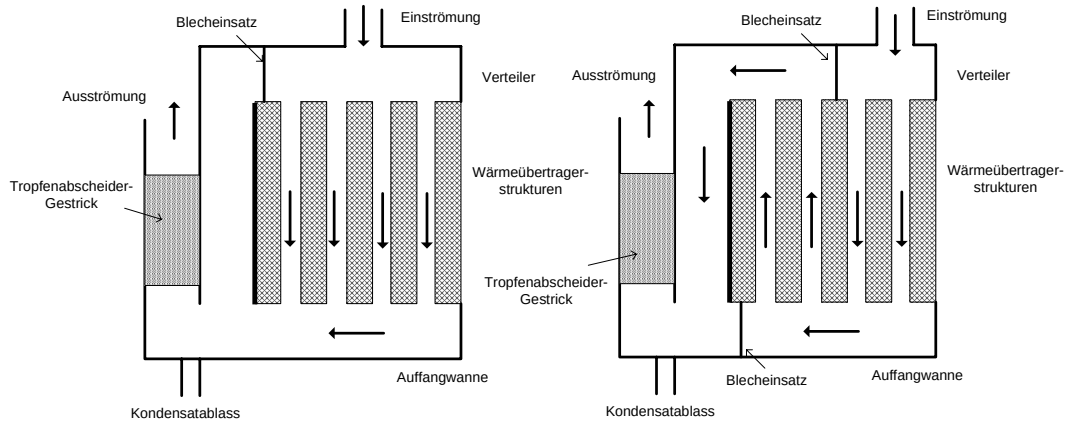


Bild 6.103: Prozessgasseite des Kondensators in 1-Zug- (links) und 2-Zug-Ausführung(rechts)

Über ein Datenerfassungssystem werden alle zwei Sekunden die Messwerte eingelesen und gespeichert. Die Messdauer beträgt etwa 20 Minuten. Die Messwerte werden dann für die gesamte Messdauer gemittelt. Massen- und Wärmebilanzen werden aufgestellt. Redundante Ergebnisse dienen zur Überprüfung der Messergebnisse.

6.1.2.2 Messergebnisse und Validierung des Modells

Eine Rückführung der gemessenen Werte durch eine NTU-Bestimmung und eine Ermittlung der Wärmedurchgangskoeffizienten ist in diesem Fall nicht möglich, da der Wärmekapazitätsstrom auf der Prozessgasseite sich stark in Folge des abnehmenden Wasserdampfgehaltes über die Lauflänge ändert. Daher ist nur ein direkter Vergleich der im Wärmeübertragungsprozess erzielten Austrittstemperaturen des Prozessgases oder der Kühlluft möglich. Bei dem Vergleich der Strömungspfadkonfigurationen wird der übertragene Wärmestrom herangezogen.

In Bild 6.104 ist die Prozessgas-Austrittstemperatur in Abhängigkeit vom Volumenstrom auf der Prozessgasseite dargestellt. Man sieht einen deutlichen Anstieg der Temperatur zwischen 50 und 100 l/min. Zwischen 100 und 150 l/min ist der Anstieg deutlich geringer. Es ist eine gute Übereinstimmung zwischen den Simulationsrechnungen und den experimentellen Daten festzustellen. Die Tendenz der Messwerte wird durch die Simulation wiedergegeben. Die maximale Abweichung liegt mit 5% im Rahmen der in diesem Messaufbau realisierbaren Genauigkeit.

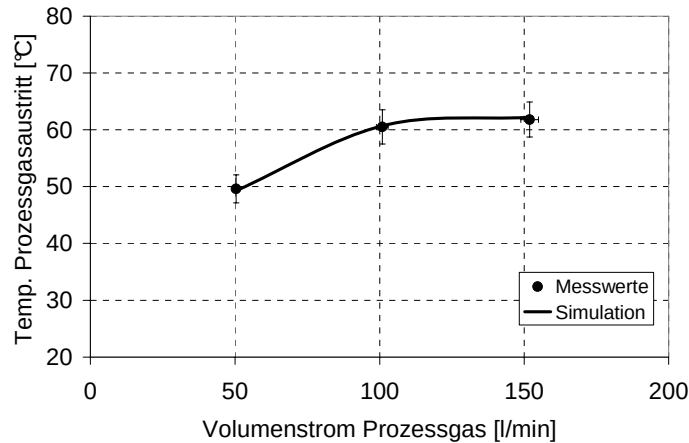


Bild 6.104: Experimentell ermittelte Prozessgasaustrittstemperatur in Abhängigkeit vom Prozessgasvolumenstrom $\dot{V}_{2,a}$ ($\dot{V}_{1'}=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\vartheta_{2,b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$, Struktur D)

Der Verlauf der Prozessgas-Austrittstemperatur in Abhängigkeit von der Prozessgas-Eintrittstemperatur ist in Bild 6.105 dargestellt. Die Erhöhung der Eintrittstemperatur um 20 K hebt die Austrittstemperatur um 30 K. Dies liegt an dem exponentiell mit der Temperatur steigenden Wasserdampfgehalt des Prozessgases. Damit steigt die Wärmelast des Wärmeübertragers ebenso exponentiell an. Der simulierte Kurvenverlauf gibt die Tendenz der Messwerte befriedigend wieder. Zu hohen Temperaturen steigt die Abweichung zwischen den experimentellen Daten und der Simulation. Dies lässt auf steigende Wärmeverluste zur Umgebung bei höheren Temperaturgradienten schließen.

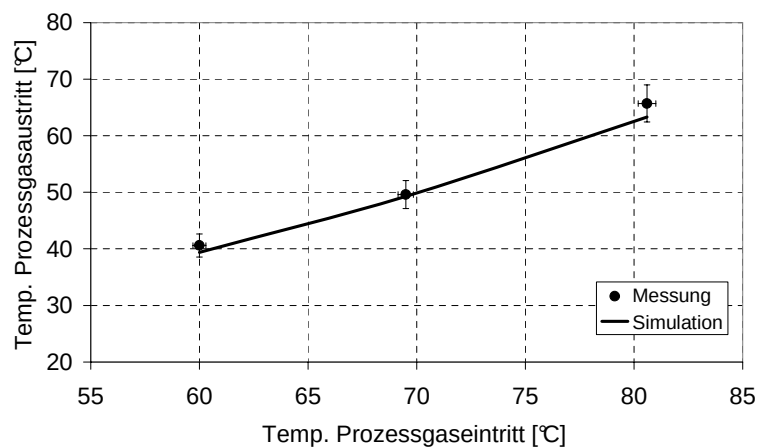


Bild 6.105: Experimentell ermittelte Prozessgasaustrittstemperatur in Abhängigkeit von der Prozessgaseintrittstemperatur $\vartheta_{2,b}$ ($\dot{V}_{1'}=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\dot{V}_{2,a}=50 \text{ l/min}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$, Struktur D)

Eine Variation des Kühlluftvolumenstroms zeigt nur geringen Einfluss auf die Prozessgas-Austrittstemperatur (Bild 6.106). Eine Verdopplung des Kühlluftvolumenstroms führt hier zu einer um 3 K geringeren Austrittstemperatur des Prozessgases. Dies zeigt, dass der Wärmeübergang auf der Kühlluftseite ausreichend ist und der Wärmeübergang auf der Prozessgasseite den Wärmedurchgang dominiert. Zudem steigt der Temperaturgradient im Volumenstrombereich von 120 bis 220 m³/h nur gering. Der Verlauf und die Messwerte werden mit sehr guter Genauigkeit durch die simulierten Daten wiedergegeben.

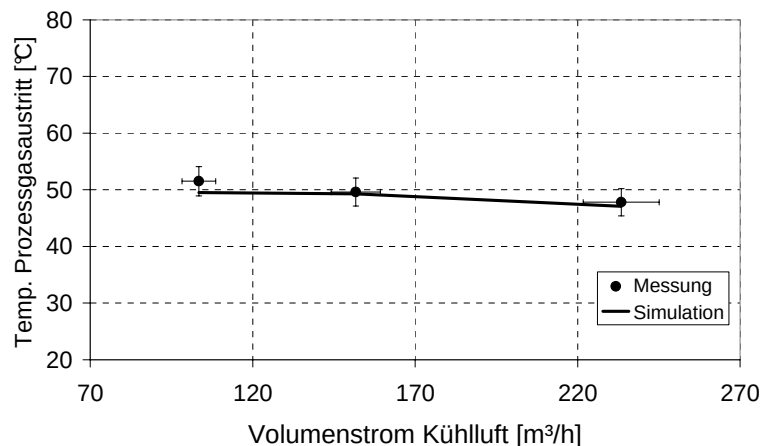


Bild 6.106: Experimentell ermittelte und simulierte Prozessgasaustrittstemperatur in Abhängigkeit vom Kühlluftvolumenstrom ($\dot{V}_1$ ($\dot{V}_{2,a}$) = 50 l/min, $\vartheta_{2,b}$ = 70 °C, ϑ_1 = 25 °C, Struktur D)

Jedoch zeigt die Validation, dass im Rahmen der Genauigkeit des Messaufbaus das mathematische Modell eine ausreichende gute Wiedergabe der Messwerte erlaubt.

In Bild 6.107 werden simulierte und experimentelle Daten bei Variation der Prozessgaseintrittstemperatur von etwa 60 °C bis 80 °C verglichen. Es zeigt sich ebenfalls eine gute Wiedergabe der gemessenen Resultate durch die Modellierung. Bei steigender Prozessgaseintrittstemperatur erhöht sich die Abweichung von der Modellierung in Folge größerer Wärmeverluste zur Umgebung geringfügig.

In Bild 6.108 werden die Wärmeleistungen der 1-Zug- und 2-Zug-Konfiguration miteinander verglichen. Über den dargestellten Bereich des Prozessgasvolumenstroms weist die 2-Zug-Konfiguration eine höhere übertragene Wärmeleistung auf. In Tabelle 6.30 sind die spezifischen Leistungen für die einzügige und zweizügige Anordnung aufgeführt. Durch die 2-Zug-Konfiguration zeigt sich hier eine um 12-19 % höhere Wärmeleistung. Die Re-Zahlen für die 2-Zug-Messung liegen ab 100 m³/h Prozessgasvolumenstrom im Übergangs- beziehungsweise im turbulenten Bereich. Jedoch liegt bei 50 m³/h noch klar laminare Strömung vor. Da auch hier schon ein besserer Wärmeübergang vorliegt und der Unterschied sich bei höheren Volumenströmen weiter verändert, kann die turbulente Strömung als Grund für den Unterschied zum 1-Zug-Betrieb ausgeschlossen werden. Jedoch hat die Reynolds-Zahl auch einen starken Einfluss auf die thermische und

hydraulische Einlaufstrecke. Zudem ist bei der Umlenkung mit einer Zerstörung des Strömungs- und Temperaturprofils zu rechnen. Daher liegen beim 2-Zug-Betrieb auch zwei Einlaufstrecken mit entsprechend hohem Wärmeübergang vor. Zusätzlich ist die Strömungsverteilung bei der 1-Zug-Konfiguration nicht so homogen wie bei der 2-Zug-Schaltung.

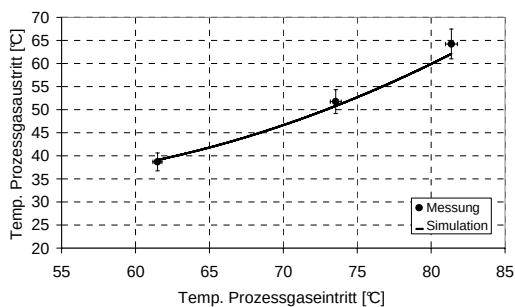


Bild 6.107: Experimentell ermittelte und simulierte Prozessaustrittstemperatur für eine 2-Zug-Konfiguration in Abhängigkeit von der Prozessgaseintrittstemperatur ($\dot{V}_1=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\vartheta_{2b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$, Struktur D)

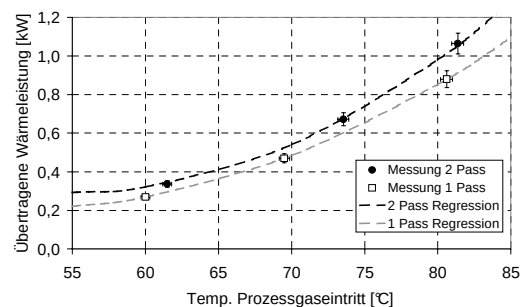


Bild 6.108: Experimentell ermittelte Wärmeleistungen für 1-Zug- und 2-Zug-Konfiguration in Abhängigkeit von der Prozessgaseintrittstemperatur ($\dot{V}_1=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\vartheta_{2b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$, Struktur D)

Tabelle 6.30: Vergleich der 1-Zug und 2-Zug-Konfiguration ($\dot{V}_1=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\dot{V}_{2a}=50 \text{ l/min}$, $\vartheta_{2b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$)

Prozessgas-eintrittstemperatur [°C]	Absolute Verbesserung der übertragenen Wärmeleistung (2-Zug zu 1-Zug) [kW]	Verbesserung der übertragenen Wärmeleistung (2-Zug zu 1-Zug) [%]
60	0,051	19
70	0,057	12
80	0,128	15

Bild 6.109 zeigt den Unterschied zwischen Tropfen- und Filmkondensation in der übertragenen Wärmeleistung. Die in Tabelle 6.31 aufgeführten Daten verdeutlichen die verbesserte Leistungsfähigkeit des Wärmeübertragers bei Tropfenkondensation. Die spezifischen Wärmeleistungen lassen sich mit der Beschichtung der Platten um 11-19 % steigern. Beim Kondensationsvorgang bilden sich Tropfen, die nicht wie bei der Filmkondensation die Wärmeleitung zur Platte behindern. Zudem erfolgt der Abtransport der Flüssigkeit effektiver. Die Tropfen bieten auch kürzere Transportwege für den kondensierenden Wasserdampf. Zusammen führt dies zu einem

besseren Wärmeübergang auf der Prozessgasseite, welches sich in einem höheren Wärmedurchgangskoeffizienten und dadurch erhöhter Wärmeübertragerleistung widerspiegelt.

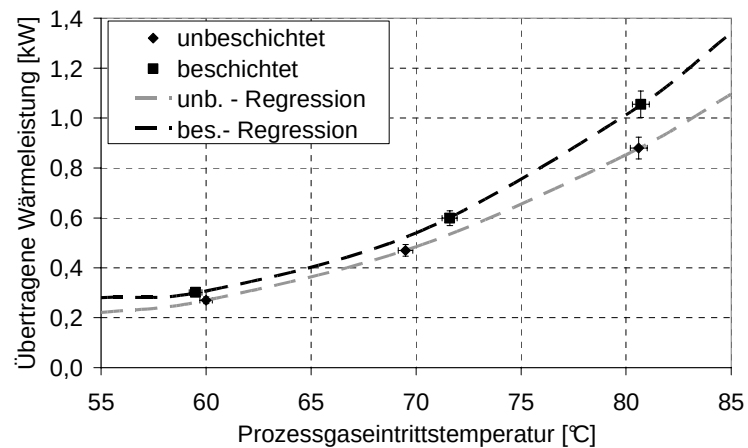


Bild 6.109: Experimentell ermittelte Wärmeleistung bei unbeschichteten und mit Teflon beschichteten Wärmeübertragerplatten in Abhängigkeit von der Prozessgaseintrittstemperatur $\dot{V}_1=150/250 \text{ m}^3/\text{h}$, $\vartheta_{2b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$, Struktur D)

Tabelle 6.31: Vergleich der unbeschichteten und beschichteten Platten ($\dot{V}_1=150 \text{ m}^3/\text{h}$, $\dot{V}_{2a}=50 \text{ l/min}$, $\vartheta_{2b}=70 \text{ °C}$, $\vartheta_1=25 \text{ °C}$)

Prozessgas-eintrittstemperatur [°C]	Absolute Verbesserung der übertragenen Wärmeleistung (2-Zug zu 1-Zug) [kW]	Verbesserung der übertragenen Wärmeleistung (2-Zug zu 1-Zug) [%]
60	0,037	14
70	0,055	11
80	0,160	19

Bild 6.110 zeigt den Druckverlust der Kanäle auf der Prozessgasseite bei Kondensationsbetrieb und bei Durchströmung von trockener Luft. Bei trockener Luft zeigt sich für laminare Strömung ein untypischer Verlauf des Druckverlustes. Dies bedeutet, dass die Umlenkungen und abrupten Veränderungen des Strömungsquerschnitts durch ihren quadratischen Einfluss den Druckverlust dominieren.

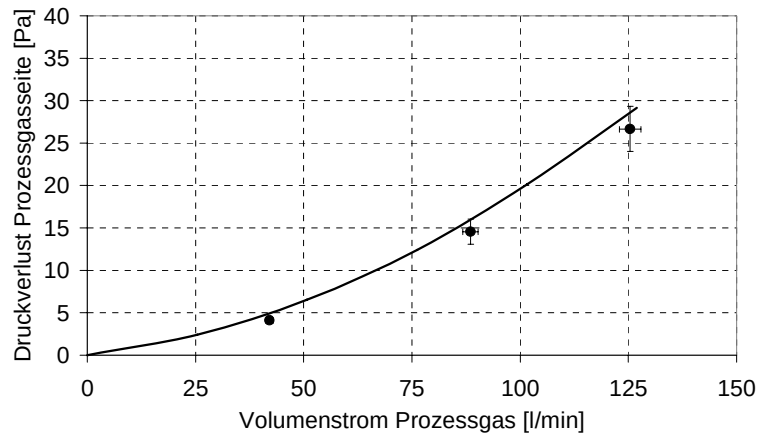


Bild 6.110: Druckverluste auf der Prozessgasseite in Abhängigkeit des Volumenstroms bei Durchströmung mit trockener Luft

6.1.3 Optimierung der konstruktiven Parameter

Mittels des mathematischen Modells des Kondensators wird der Einfluss konstruktiver Parameter auf die spezifischen Leistungen des Kondensators untersucht. Hierzu werden zunächst folgende feste Rahmenbedingungen aufgestellt:

- Festes Bauvolumen entsprechend der Vorgaben vom Scooter mit 190x200x175 mm³ mit 170x170x150 mm³ für Wärmeübertragerfläche
- Kühlluftparameter: 400 m³/h, 20 °C, 1,013 bar
- Prozessgasparameter: 20 m³/h, 70 °C, 1,013 bar (1,5 kW-Stack betrieben mit $\lambda = 5$)
- Offsetlamelle mit Höhe = 8 mm
- Gehäuse, Platten und Lamellen sind aus Aluminium gefertigt

Als Erstes wird für eine einzügige Konfiguration der Einfluss des Plattenabstandes s auf der Prozessgasseite untersucht. Bei festem Bauvolumen kann bei einer Verkleinerung des Plattenabstandes die Anzahl der Kühllamellenkassetten und damit die Gesamtfläche auf der Kühlluftseite vergrößert werden (Bild 6.111).

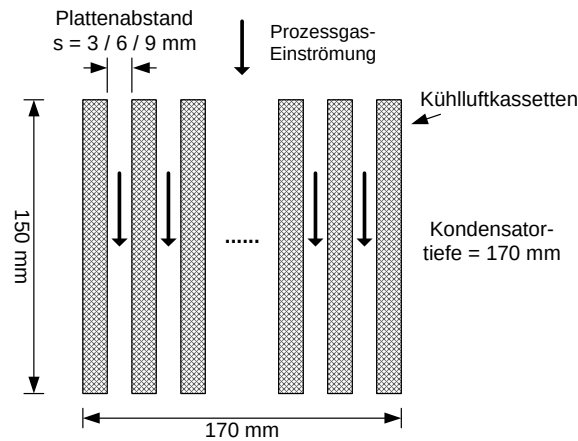


Bild 6.111: Aufbau des Kondensators mit geometrischen Abmessungen

Tabelle 6.32 gibt den jeweiligen Aufbau wieder. Bei einer Verringerung des Plattenabstandes s von 9 auf 3 mm kann die Fläche auf der Kühltluftseite von 2,2 auf 3,3 m² gesteigert werden.

Tabelle 6.32: Aufbau des Kondensators bei Variation des Plattenabstandes auf der Prozessgasseite

Plattenabstand [mm]	Anzahl Prozessgaskanäle	Anzahl Kühltluftkassetten	Fläche Kühltluftseite [m ²]
9	9	10	2,2
6	11	12	2,6
3	14	15	3,3

Die Wärmeleistung wird für Abstände von 9, 6 und 3 mm jeweils für eine einzügige und zweizügige Strömungsführung (Bild 6.103) berechnet. Eine weitere Verringerung des Plattenabstandes würde den Abtransport der Tropfen gefährden und zu einem erhöhten Druckverlust führen. Zusätzlich wird bei einem Plattenabstand von 3 mm eine Kreuzgegenstrom-Konfiguration analysiert. Hier sind drei Züge eingerichtet, die von dem Prozessgas gegenläufig zur Kühltluftströmung durchflossen werden (Bild 6.112). Die im Strömungskanal der Prozessgasseite in Strömungsrichtung eingebrachten Bleche bilden drei separate Kanäle, die nacheinander durchlaufen werden. Die kalte eintretende Kühltluft trifft zuerst auf den letzten und damit kühlfsten Zug der Prozessgasseite. Die im Strömungsverlauf sich aufwärmende Kühltluft durchströmt am Ende den ersten und damit wärmsten Zug der Prozessgasseite. Damit ist eine thermodynamisch günstigere Schaltung verglichen mit der Kreuzstromanordnung gegeben. Die thermodynamisch beste Schaltung, die Gegenstromführung, erfordert großen Aufwand bei der Abdichtung der Gase zueinander und wird deshalb nicht berücksichtigt.

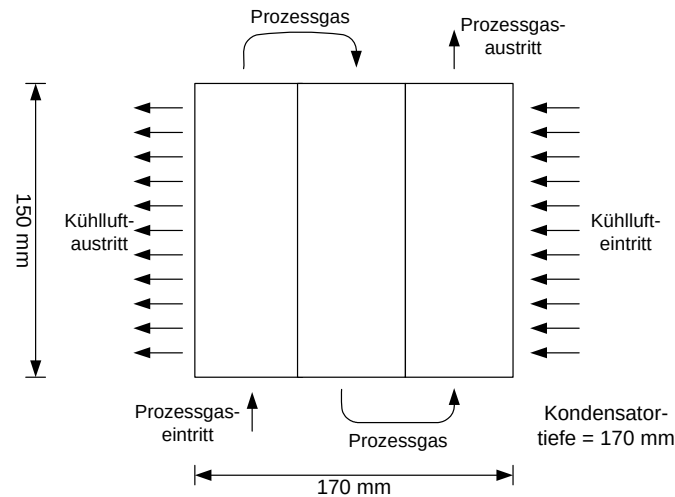


Bild 6.112: Aufbau des Kondensators in Kreuz-Gegenstrom-Konfiguration

In Bild 6.113 und Bild 6.114 sind die ermittelten Werte für die Leistungsdichte und spezifische Leistung dargestellt. Eine Verringerung des Plattenabstandes von 9 auf 3 mm verbessert die volumen-spezifische Leistung bei der einzügigen Anordnung um 62 %. Dies liegt zum einen an der größeren zur Verfügung stehenden Wärmeübertragerfläche. Zum anderen wirken sich ein kleinerer Plattenabstand und damit ein kleinerer hydraulischer Durchmesser positiv auf den Wärmeübergang auf der Prozessgasseite aus. Der geringere Abstand der Kernströmung zur Kondensationszone an der Wand erleichtert den Stofftransport des Wasserdampfes und erhöht damit den kondensierenden Stoffstrom. Dies verbessert nach Gleichung (6.102) den Wärmeübergang.

Der Einfluss der Strömungsführung in einzügiger oder zweizügiger Anordnung hat einen vom Plattenabstand abhängigen Einfluss auf die Wärmeleistung. Je geringer der Plattenabstand desto weniger ist die Mehrleistung einer 2-Zug-Konfiguration. Bei 9 mm Plattenabstand ist eine Vergrößerung der Leistungsdichte um 19 % zu beobachten. Bei $s = 3$ liegt hingegen nur eine Leistungsänderung von 1 % vor. Der Einfluss der Umlenkung auf den Wärmeübergang liegt in der Einlaufstrecke begründet. Nach Gleichung (6.95) ist die Sherwood-Zahl von dem Verhältnis des hydraulischen Durchmessers und der Plattenlänge in Strömungsrichtung abhängig. Bei kleineren Plattenabständen ist die Einlaufstrecke kürzer und somit der Einfluss auf die mittlere Sherwood-Zahl kleiner. Zudem hat bei kleineren hydraulischen Durchmessern eine Änderung der Sherwood-Zahl einen relativ kleineren Einfluss auf den kondensierenden Stoffstrom. Das heißt, bei einem Plattenabstand von 9 mm ist der Hebel „Einlaufstrecke“ stärker als bei einem Plattenabstand von 3 mm. Erfolgt bei einer Erhöhung des Wärmeübergangs der Prozessgasseite auf deutlich höherem Niveau verglichen mit dem Wärmeübergang auf der Kühlluftseite, so fällt die Verbesserung des Wärmedurchgangs gering aus. Die Kühlluftseite wirkt unter diesen Umständen auf den Wärmetransport limitierend.

Die Kreuz-Gegenstrom-Konfiguration zeigt mit 640 W/l eine um 6 % bessere Leistung als der einzügige Kreuzstromwärmeübertrager. Aufgrund der Gegenstromführung der Kühlluft ergibt sich ein höherer mittlerer Temperaturgradient zwischen den Medien und somit eine höhere Wärmeleistung. Bei der spezifischen Leistung liegen die berechneten Werte näher zusammen, da eine höhere Anzahl der Kühlluftkassetten das Gewicht des Wärmeübertragers steigert. Bei einem zweizügigen Aufbau mit einem Plattenabstand von 9 mm zeigt sich mit 1500 W/kg ein ähnlich hoher Wert wie bei einem Plattenabstand von 3 mm. Der Kreuz-Gegenstrom hat mit 1570 W/kg die höchste spezifische Leistung.

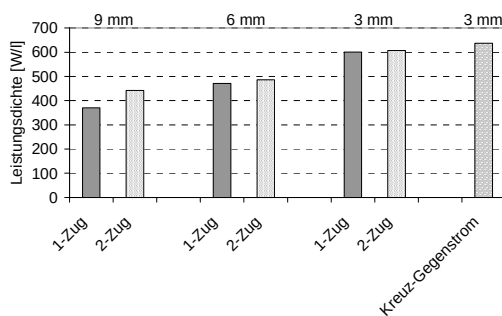


Bild 6.113: Leistungsdichte des Kondensators bei Plattenabständen auf der Prozessgasseite von 3,6 und 9 mm für 1-Zug-, 2-Zug- und Kreuzgegenstrom-Konfiguration (Parameter Tabelle 6.32)

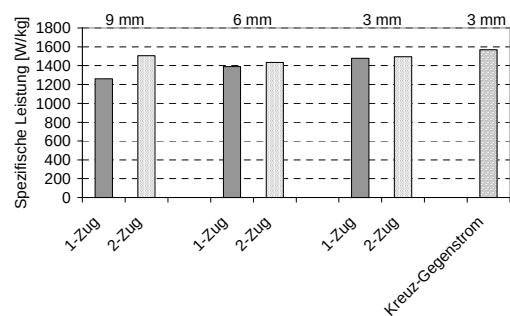


Bild 6.114: Spezifische Leistung des Kondensators bei Plattenabständen auf der Prozessgasseite von 3,6 und 9 mm für 1-Zug-, 2-Zug- und Kreuzgegenstrom-Konfiguration (Parameter Tabelle 6.32)

In einem zweiten Schritt kann als Freiheitsgrad die Wärmeübertragerstruktur optimiert werden. In diesem Fall besteht der Lösungsraum nur aus den in Anhang 12.5 beschriebenen Lamellentypen A-D. Diese sind eine sinnvolle Auswahl aus den in der Industrie gebräuchlichen Lamellentypen. Das Ziel der Optimierung ist es, den Verbrauch des Kühlluftventilators und damit die hydraulische Leistung zu minimieren. Ein höherer Wärmeübergang oder eine größere Übertragerfläche auf der Kühlluftseite verringern bei einer gegebenen Wärmelast den notwendigen Kühlluftvolumenstrom. Gleichzeitig erhöht sich der spezifische Druckverlust. Beides hat einen gegenläufigen Effekt auf die hydraulische Leistung der Kühlluftseite. Daher ergibt sich für bestimmte Rahmenbedingungen eine optimale Struktur mit minimalem hydraulischen Leistungsbedarf.

Folgende Rahmenbedingungen zur Lamellenauswahl gelten:

- Festes Bauvolumen entsprechend der Vorgaben vom Scooter mit 190x200x175 mm³ mit 170x170x150 mm³ für die Wärmeübertragerfläche
- Kühlluftparameter: 20 °C, 1,013 bar
- Prozessgasparameter: 20 m³/h, 70 °C, 1,013 bar (1,5 kW-Stack betrieben mit $\lambda_K = 5$)
- Abkühlung des Prozessgases auf 40 °C
- Strukturhöhe: 8 mm
- Gehäuse, Platten und Lamellen sind aus Aluminium gefertigt

Für die obigen Rahmenbedingungen ist in Abhängigkeit vom Kühlluftvolumenstrom zunächst der notwendige Wärmeübergangskoeffizient auf der Kühlluftseite durch Simulation ermittelt worden (schwarze Kurve in Bild 6.115). Zu hohen Volumenströmen zeigt die Kurve ein Grenzverhalten. Der mittlere Temperaturgradient ändert sich zu hohen Volumenströmen nur noch marginal, da die Aufwärmung des Kühlluftstroms minimal wird. Bei Kühlluftvolumenströmen kleiner 500 m³/h steigt der notwendige Wärmeübergangskoeffizient exponentiell an. Bei einem Grenzvolumenstrom ist es aufgrund zu geringer Temperaturgradienten nicht mehr möglich den geforderten Wärmestrom zu übertragen.

Zusätzlich zeigt das Diagramm (graue Kurven in Bild 6.115) den Wärmeübergangskoeffizienten der verschiedenen Strukturen in Abhängigkeit vom Kühlluftvolumenstrom. Die Schnittpunkte (1-4) zwischen den grauen Kurven und der schwarzen Kurve markiert den Betriebspunkt des Kondensators für die jeweilige Wärmeübertragerstruktur. Mit den Druckverlusten ergeben sich für die Schnittpunkte die notwendigen hydraulischen Leistungen der Kühlluftströmung.

Die hydraulische Leistung ist das Produkt aus Druckverlust und Volumenstrom. Bei den Glattlamellen A und B mit einer schlechteren Wärmeübergangscharakteristik wird die notwendige Wärmeleistung durch eine Erhöhung der Kühlluftmenge erreicht. Dadurch steigt die Temperaturdifferenz zwischen den Stoffströmen, und der höhere Turbulenzgrad verbessert den Wärmeübergang der Glattlamellen. Die Glattlamellen benötigen 2-3-mal mehr Kühlluft als die geschlitzte Lamelle oder die Offset-Lamelle. Gleichzeitig weisen die glatten Kanalstrukturen einen geringeren Druckverlust auf. Der bessere Wärmeübergang der Lamelle B gegenüber A liegt an der deutlich höheren Flächendichte in Folge einer kleineren Teilung. Die Offset-Lamelle und die geschlitzte Lamelle zeigen Strukturen im Strömungskanal, die zum einen den Turbulenzgrad der Strömung erhöhen und zum anderen die sich aufbauenden Grenzschichten an der Oberfläche der Lamellen zerstören. Dadurch ergibt sich eine stark verbesserte Wärmeübergangscharakteristik, die jedoch mit einem erhöhten Druckverlust einhergeht. Gleichzeitig sinkt der Kühlluftverbrauch durch den verbesserten Wärmeübergang. Die geschlitzte Lamelle zeigt einen höheren Druckverlust verglichen mit der Offset-Lamelle. Die hydraulische Leistung ist minimal für die Offset-Lamelle mit 38 W. Die geschlitzte Lamelle benötigt weniger Kühlluftstrom, zeigt aber aufgrund des höheren Druckverlustes eine größere hydraulische Leistung von 41 W. Die Dreiecksglattlamelle liegt mit 46 W wenig höher, bedingt aber einen mit 790 m³/h sehr hohen Kühlluftvolumenstrom. Bei der eckigen Glattlamelle (Struktur A) ergibt sich der höchste Bedarf mit 153 W.

Somit ist bei Einsatz der Offset-Lamelle der parasitäre Verbrauch des peripheren Systems minimal. Zudem liegen das Gewicht und somit auch die Kosten, verglichen mit den anderen Lamellentypen, am niedrigsten.

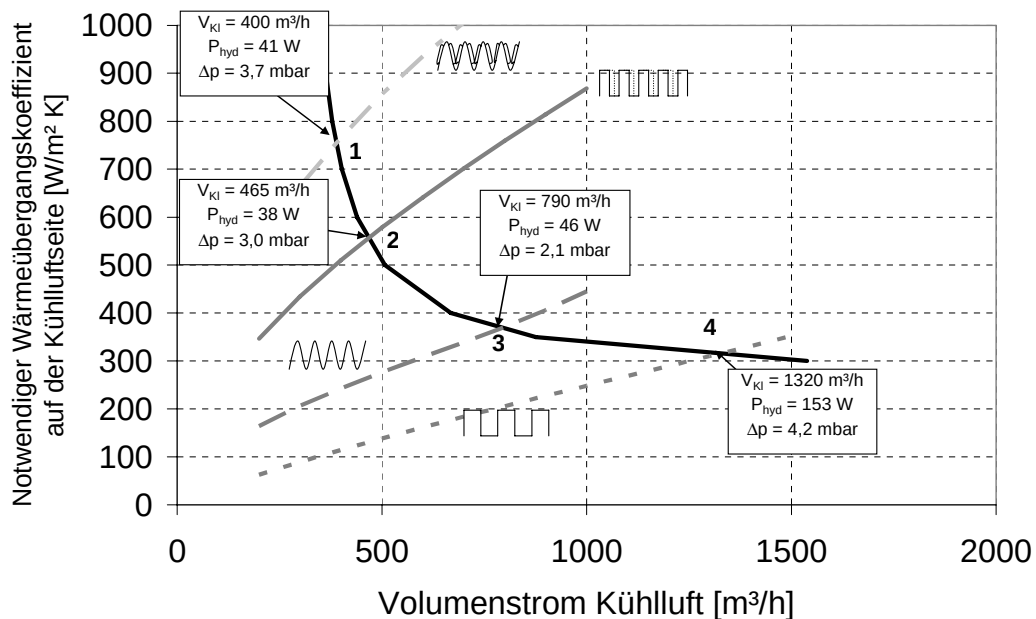


Bild 6.115: Vergleich verschiedener Strukturen

6.1.4 Betrachtung des Kühlluftgebläses

Das Kühlluftgebläse hat gemäß der vorherigen Analyse folgende Förderparameter:

- Druckerhöhung: 3 mbar
- Volumenstrom: 465 m^3/h

Dies ergibt bei einer angenommenen Drehzahl von 6000 min^{-1} eine spezifische Drehzahl von $45,7 \text{ min}^{-1}$. Gemäß der in Bild 12.161 dargestellten Optimalbereiche von Verdichtern ist ein Diagonal- oder Axialgebläse einsetzbar. Für diesen Volumenstrombereich sind Gebläse kommerziell erhältlich [87]. Der Wirkungsgrad kann mit etwa 40 % angenommen werden. Durch eine Drehzahlregelung kann der Volumenstrom an den geforderten Lastzustand angepasst werden. Bei den obigen Förderparametern ergibt sich eine elektrische Leistungsaufnahme des Gebläses von 95 W. Dies entspricht bei einem 1,5-kW-Stack einem Eigenbedarf von 6 %. Somit ist das Kühlluftgebläse der größte Einzelverbraucher im peripheren System.

6.2 Integriertes Anodensystem

Nach dem in Kapitel 4 erarbeiteten neuen verfahrenstechnischen Konzept beinhaltet der Anodenkreislauf keinen Kühler mehr. Die verbleibenden Komponenten wie Verbindungsleitungen, Anschlussstücke, Umwälzpumpe und Gasabscheider bieten die Möglichkeit der Integration in den Stack. Dies hat gegenüber einem extern angeschlossenen Anodensystem folgende Vorteile:

Bessere Medienverteilung – Durch die Integration in die Mitte des Stacks halbieren sich die Wege zu den Zellen. Zudem verdoppelt sich die Anzahl der Versorgungsanschlüsse. Dies homogenisiert die Versorgung der Zellen. Somit können Zielparameter genauer angefahren werden wie zum Beispiel eine optimale Methanolkonzentration. Dies führt zu einem besseren Systemwirkungsgrad (siehe Kapitel 7).

Geringerer Druckverlust – Durch die mittige Anordnung halbiert sich der mittlere Strömungspfad von der Pumpe zu den Zellen und wieder zurück zur Pumpe. Dies bedeutet entweder geringere Druckverluste, insbesondere bei der 2-Phasenströmung im Rücklauf, oder eine kleinere Verteilerstruktur im Stack.

Einkopplung Abwärme der Pumpe – Durch die Integration der Umwälzpumpe verbleibt deren Abwärme im System. Dies erhöht bei gleicher Stacktemperatur den Zuluftvolumenstrom und verbessert die Kathodenversorgung.

Wegfallen von Rohrleitungen und Anschlüssen – Ein extern angeschlossenes Anodensystem benötigt zusätzliche Verbindungselemente um Stack, Abscheider und Pumpe zu einem Anodenkreislauf zu verschalten.

Direkte Rückführung des Anodenabgases in die Kathodenzuluft – Das aus dem integrierten System abgeleitete Anodenabgas kann gemäß des verfahrenstechnischen Konzeptes direkt und platz sparend der Kathodenzuluft beigemischt werden.

Kompakte, saubere Einheit – Die integrierte Einheit erlaubt im Hinblick auf eine Serienfertigung eine einfache und saubere Montage des Anodensystems. Zudem ergibt sich eine sehr kompakte Einheit aus Stack und den Anodenkomponenten.

Nachteilig ist die schlechte Zugänglichkeit der Komponenten im integrierten System. Der Einbau in den Stack erfordert außerdem eine Durchleitung des Stroms durch das Anodensystem. Dies wird durch einen metallischen Werkstoff ermöglicht. Der metallische Werkstoff verlangt jedoch eine korrosionsbeständige Beschichtung der medienberührenden Flächen des Werkstücks.

6.2.1 Konstruktion

Bild 6.116 und Bild 6.117 zeigen die Umsetzung des Integrationsansatzes. Die Stirnflächen des Anodensystems sind in der gleichen Form wie die Zellen gestaltet. Somit dichten die Bipolarplatten der angrenzenden Zellen gegen das Anodensystem ab und ermöglichen den Stromdurchfluss. Die an den Seiten oben und unten angebrachten Versorgungsbohrungen schließen an die anodische Verteilerstruktur des Stacks an und verschalten das Anodensystem mit dem Stack zu einem Kreislauf. Durch vier Auslässe oberhalb des Anodensystems strömt das Anodenabgas. Dieses wird über die in der Ebene der oberen Stackfläche liegende Verteilerröhrchen der einströmenden Kathodenzuluft direkt beigemischt.

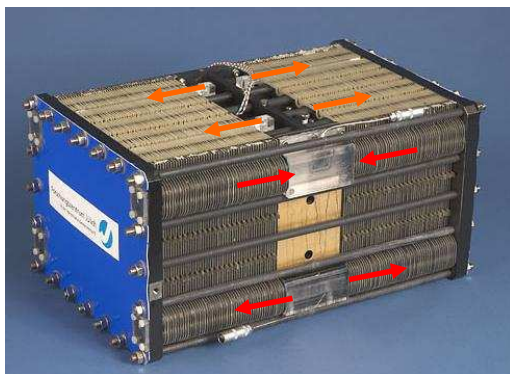


Bild 6.116: Integriertes Anodensystem im Stack

Anodengemisch: →
Anodenabgas : →

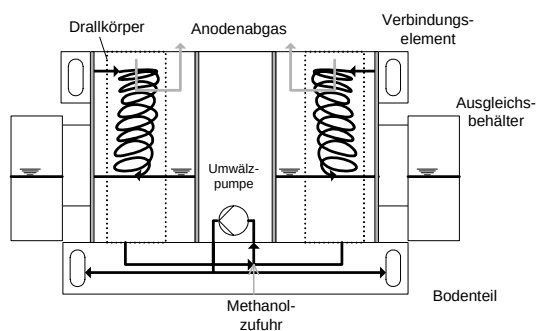


Bild 6.117: Schematische Strömungsführung im Anodensystem (Parameter siehe Tabelle 6.32)

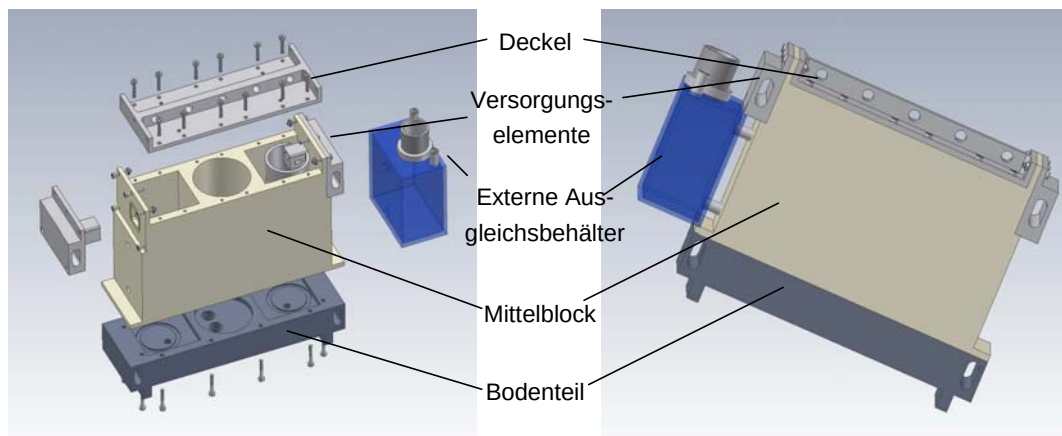


Bild 6.118: Konstruktion des Embedded Systems

Das Anodensystem besteht aus 6 verschiedenen Bauteilen (Bild 6.118):

Mittelblock – Dieser ist der Träger der Konstruktion, mit dem die anderen Bauteile verbunden sind. Das quaderförmige Bauteil ist aus Aluminium gefertigt. Die zwei links und rechts eingebrachten senkrechten Räume mit quadratischem Querschnitt sind drahterodiert worden. Die mittige kreisförmige durchgehende Öffnung ist gebohrt. Die innenliegenden Flächen sind mit einer korrosionsbeständigen etwa 50 µm dicken PTFE-Schicht beschichtet. Seitlich ist der Mittelblock auf beiden Seiten mit zwei Verbindungsbohrungen zum Aufstecken der Ausgleichbehälter versehen. Seitlich oben ist auf beiden Seiten ein quadratischer Durchtritt für die Versorgungselemente eingebracht. Die Stirnflächen des Mittelblocks sind zur Verringerung des Kontaktwiderstandes vergoldet.

Deckel – Der das Bauteil nach oben abschließende Deckel besteht ebenfalls aus beschichtetem Aluminium. Er ist über Schrauben mit dem Mittelblock verbunden. Abgedichtet wird mit einer Silikonflächendichtung. Die mittig verlaufende Versteifungsstrebe enthält Durchgangsbohrungen für die Zugankerbolzen des Stacks. Durch den Deckel sind vier Auslassöffnungen für das Anodengas gebohrt.

Bodenteil – Das Bodenteil ist aus Makrolon gefertigt. Dieser Werkstoff erfordert keine weitere Beschichtung. Darüber hinaus bietet die Durchsichtigkeit des Makrolons die Kontrolle des Anodenstroms bei Betrieb. Der Bodenteil ist ebenfalls mit dem Mittelblock verschraubt. Abgedichtet wird mit einer Silikonflächendichtung. Das Bodenteil enthält die Verteilerkanäle des Anodensystems und ermöglicht durch eine untenliegende Bohrung die Zufuhr von Brennstoff.

Versorgungselemente – Die aus Makrolon gefertigten Versorgungselemente sind mit dem Mittelblock verschraubt und über einen Dichtring abgedichtet. Sie haben die Aufgabe, die Strömung aus dem Stackverteiler kommend zu bündeln, umzulenken und tangential in den Drallkörper einzuleiten.

Externer Ausgleichsbehälter – Die von außen eingesteckten Ausgleichbehälter sind aus Makrolon gefertigt und bieten oben eine Aufnahmevorrichtung für Levelsensoren. Über zwei Rohrverbindungen können sie mit dem Mittelblock Flüssigkeiten austauschen.

Drallkörper – In die quadratischen Öffnungen des Mittelblocks sind zylindrische Drallkörper aus Makrolon eingebracht. In diese strömt das 2-phasige Anodengemisch tangential ein, dadurch wird eine Drallströmung aufgebaut, die den Abscheidungsprozess unterstützt. Bild 6.116 zeigt die Abführung des Anodengases durch ein senkrecht nach oben offenes Rohr, das mittig in dem Drallkörper steht. Mit dieser Anordnung wird das Mitführen von Flüssigkeit durch die Anodengasabsaugung verhindert.

Pumpe – Die Pumpe ist eine Flügelzellenpumpe, die mit den Anschlussöffnungen nach unten in die mittige Bohrung des Mittelkörpers eingeschoben wird (siehe Bild 6.119). Die Stirnfläche des Pumpenkopfes wird im eingebauten Zustand über zwei Spannschrauben auf das Bodenteil gedrückt

und ist so ausgerichtet, dass die Verbindungsbohrungen des Bodenteils mit der Ein- und Auslassbohrung fluchten. Zwei eingelegte Dichtungsringe dichten die Pumpenanbindung ab. Zwei weitere O-Ringe dichten den Pumpenkörper zum Mittelblock ab. Dies isoliert zusätzlich den Pumpenmotorblock von dem Anodensystem, um eine Kontamination des Anodenkreislaufes zu verhindern.

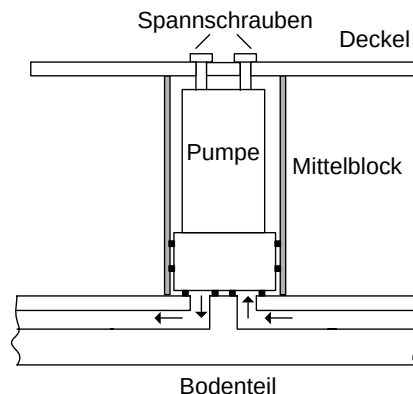


Bild 6.119: Einbau, Anschluss und Abdichtung der Pumpe

6.2.2 Dimensionierung der externen Ausgleichsbehälter

Der mit der Atmosphäre verbundene Abscheider muss die unterschiedlichen Gasvolumina im Stack abpuffern. Bild 6.120 zeigt dies schematisch bei verschiedenen Betriebszuständen. Ist die Pumpe aus, gleicht sich der Füllstand zwischen Stack und Abscheider aus. Es befindet sich daher ein Gasanteil im Anodensystem des Stacks. Bei Anfahren der Pumpe wird dies nun durch die Strömung in den Abscheider verdrängt. Der Füllstand sinkt entsprechend im Abscheider auf einen Mindestwert. Nimmt der Stack nun Last auf, reichert sich aufgrund der Kohlendioxidproduktion wiederum ein Gasvolumen im Stack an, das von der Last wie auch von der anodischen Durchflussrate abhängt. Das Gas verdrängt die Anodenflüssigkeit im Stack, das in den Abscheider fließt und den Füllstand ansteigen lässt.

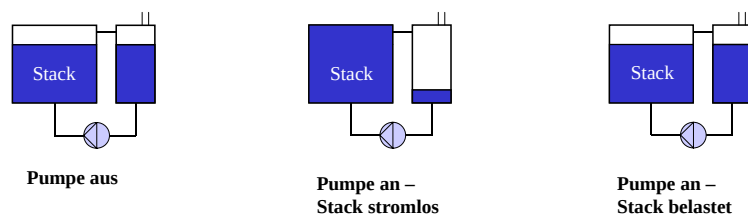


Bild 6.120: Füllstand im Anodenkreislauf bei unterschiedlichen Betriebszuständen des Systems

Das Puffervolumen des Abscheiders sollte nun so dimensioniert sein, dass der Füllstandsanstieg von Leerlauf bis zur maximalen Last nicht zu einem Überlaufen des Abscheiders führt. Das Volumen der Anode des Stacks teilt sich dabei in folgende Bereiche auf:

- Untere zuführende Leitungen $\rightarrow V_{zu} = 90 \text{ cm}^3$
- Verteilerstruktur über der elektrochemisch aktiven Fläche $\rightarrow V_{verteiler} = 2000 \text{ cm}^3$
- Obere abführende Leitungen $\rightarrow V_{ab} = 90 \text{ cm}^3$

Für die Berechnung des durch Gas verdrängten Volumens wird angenommen, dass die Stromdichteverteilung über die Zellfläche homogen ist. Somit beträgt der mittlere Gasanteil in den anodischen Verteilerkanälen genau die Hälfte des Gasanteils am Anodenaustritt. Die zuströmende Anodenflüssigkeit wird idealerweise als gasfrei angenommen. Die oberen Leitungen führen den Gasanteil $x_{Gas,A}$, der sich am Austritt der Verteilerstruktur einstellt. Der Gasvolumenstrom berechnet sich nach:

$$\dot{V}_{Gas} = \frac{\dot{V}_{CO_2}}{1 - \frac{p_{Satt, H_2O}(T)}{p_{Anode}}} \quad (6.109)$$

wobei der Kohlendioxidvolumenstrom mit Hilfe des Faraday'schen Gesetzes und der idealen Gasgleichung bestimmt wird. Der Gasanteil $x_{Gas,A}$ bestimmt sich zu:

$$x_{Gas,A} = \frac{\dot{V}_{Gas}}{\dot{V}_{Gas} + \dot{V}_{Fl, Umwälz}} \quad (6.110)$$

Bild 6.121 zeigt das verdrängte Volumen in Abhängigkeit von Umwälzrate und Druck im 1,5 kW-Stack mit 100 Zellen, betrieben bei 60 °C.

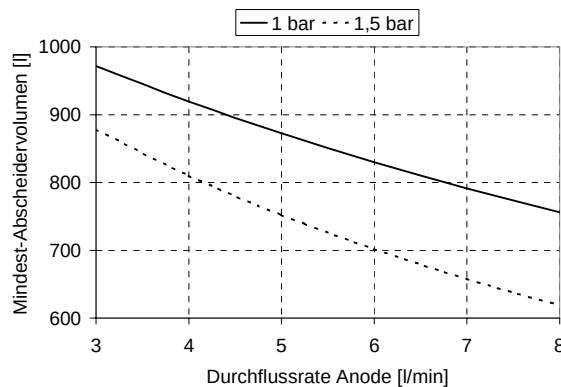


Bild 6.121: Mindestvolumen des Abscheiders in Abhängigkeit von der Durchflussrate auf der Anode bei maximaler Last von 50 A

Der Druck und die Umwälzrate haben einen großen Einfluss auf das verdrängte Volumen. Eine höhere Umwälzrate auf der Anodenseite führt zu einem kleineren Pufferbehälter. Bei 1 bar Betriebsdruck verringert sich das Mindestvolumen des Abscheiders von 920 ml auf 760 ml, bei einer Verdopplung des anodischen Volumenstroms von 4 auf 8 l/min. Eine Druckerhöhung auf 1,5 bar

ergibt, entsprechend dem idealen Gasgesetz, ebenfalls eine Verkleinerung des Abscheiders. Bei einer Umwälzrate von 6 l/min lässt sich der Behälter um ca. 16 % verkleinern.

Um das benötigte Volumen im integrierten System anzupassen, sind Ausgleichsbehälter vorgesehen. Sie sind von außen an den Abscheideraum angekoppelt. Dadurch liegen die Ausgleichsbehälter nicht im Strömungspfad. Dies verringert die Trägheit des Anodensystems im Hinblick auf die Anpassung der Methanolkonzentration bei unterschiedlichen Betriebszuständen des Brennstoffzellensystems.

6.2.3 Funktionsüberprüfung des Anodensystems

Die Messungen am isolierten Anodensystem zeigen die Abscheideleistung und die Durchflussrate. Dazu wird über zwei Stackendplatten das Anodensystem verpresst und abgedichtet. Über die eine Endplatte wird ein externer Kreislauf gemäß Bild 6.122 links angeschlossen. In diesen Kreislauf sind ein Druckgeber und ein Volumenstrommessgerät integriert. Eine Luftzumischung, gespeist von einer Druckluftleitung, erzeugt das 2-phasige Gemisch bevor es wieder in das System eintritt. Der Luftvolumenstrom wird ebenfalls erfasst. Über das durchsichtige Bodenteil kann der Gasgehalt der austretenden Strömung geprüft werden.

Die in Bild 6.122 dargestellten Messergebnisse wurden bei einer Speisespannung der Umwälzpumpe von 20 beziehungsweise 24 V aufgenommen. Bei 20 V beträgt die Umwälzrate 5,3 l/min und erhöht sich bei 24 V auf 6 l/min. Das Diagramm zeigt den Abscheidegrad im Anodensystem in Abhängigkeit von der zugemischten Luftmenge. Bei 6 l/min Durchflussrate bietet der Abscheider eine 100-prozentige Abscheidung des Gases bis zu einer Zumischmenge von 10 l/min, bei einer geringeren Durchflussrate von 5,3 l/min lassen sich bis zu 12 l/min sauber abtrennen. Der Stack erzeugt bei seiner Auslegungsleistung von 1,3 kW bei 40 A etwa 7 l/min Kohlendioxid. Unter Einbeziehung des zusätzlichen Wasserdampfes im Anodenabgas reicht die Kapazität des Abscheiders für den Betrieb des Stacks bei 1,3 kW aus. Des Weiteren zeigt sich eine vom Gasgehalt abhängige Abscheidekapazität. Je höher der Gasgehalt ist, desto höher ist die Abscheiderate.

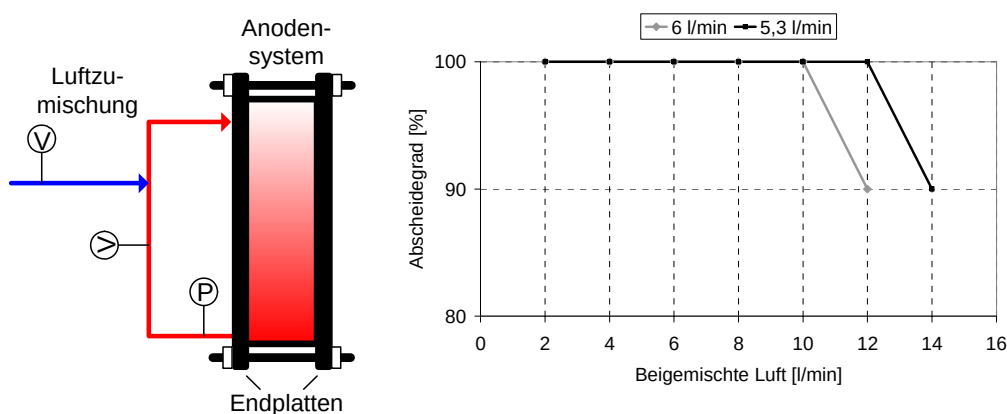


Bild 6.122: Messaufbau und gemessener Abscheidegrad in Abhängigkeit von der beigemischten Luftmenge

6.3 Brennstoffzufuhr

Die externe Verdünnung erfolgt in einem Umwälzkreislauf, um das Lösungsmittel im System zu halten. Als Lösungsmittel bietet sich deionisiertes Wasser an, da für die anodische Teilreaktion Wasser benötigt wird. Des Weiteren könnte zum Beispiel Toluol Verwendung finden. Für die Methanolkonzentration gibt es je nach Betriebsbedingungen und Zellcharakteristik einen optimalen Arbeitsbereich in Bezug auf Effizienz und Leistungsdichte. Um den Methanolgehalt in einem bestimmten optimalen Bereich zu halten, ist eine gesteuerte oder geregelte Zudosierung notwendig.

Somit bleibt für das vorliegende Stackkonzept nur die Möglichkeit des Betriebs mit einer stark verdünnten Methanollösung in der Umwälzung. Die Brennstoffzufuhr in den Umwälzkreislauf kann aktiv über eine Dosierpumpe oder über ein passives System erfolgen.

Dosierpumpe

Eine elektrisch oder hydraulisch angetriebene Pumpe fördert das Methanol in den Anodenkreislauf. Über Drehzahl, Kolbenhub oder Rücklaufsteuerung wird der Fluidstrom den Betriebsbedingungen angepasst. In DMFC-Systemen besteht die besondere Möglichkeit der Nutzung des Anodenabgases als hydraulische Antriebsenergie für eine Dosierpumpe. Durch Anstauen des auf der Anode entstehenden Kohlendioxids kann ein Druckaufbau erreicht werden. Der resultierende Gasdruck kann in einem mit der Pumpe mechanisch verbundenen Expander abgebaut werden. Da die Kohlendioxidmenge direkt mit dem Methanolverbrauch korreliert, ist durch die Kopplung gleichzeitig eine geeignete Mengensteuerung realisiert.

Passive Systeme

Hierbei wird das Methanol über ein passives Element zugeführt. Das heißt, das Element weist keine bewegten Teile auf und benötigt keinen elektrischen oder hydraulischen Antrieb. Als treibende Kraft kann Folgendes in Frage kommen:

- **Schwerkraft**

Hier muss der Tank entsprechend des Druckes in der Zudosierstelle und des benötigten Druckgefälles oberhalb der Zudosierstelle angeordnet werden. Für die Mengenregulierung ist ein Ventil notwendig. Da der Förderstrom von der Füllstandshöhe des Methanols und des Vordruckes abhängig ist, ist eine genaue Methanoldosierung nicht möglich.

- **Gradient im chemischen Potenzial**

Zum Beispiel durch Einsatz einer trennenden Membran zwischen dem Methanol und dem Anodenkreislauf kann eine Zudosierung von Methanol erreicht werden. Ein nicht erwünschter Nebeneffekt ist der ebenso mögliche Wasserübertritt, da auch hier ein Konzentrationsgradient vorliegt. Der Wassertransport führt zu einer fortschreitenden Verdünnung des im Tank befindlichen Methanols, und muss deshalb unterbunden werden. Daher sollte die Membran wasserundurchlässig sein.

- **Strömungskräfte**

Durch Einsatz eines Injektors im Anodenkreislauf wird ein Unterdruck in der Dosierleitung erzeugt, der Methanol in den Anodenkreislauf zieht. Nachteilig ist dabei der erhöhte Druckverlust im Anodenkreislauf.

- **Kapillarkräfte**

Über einen Docht oder ein Kapillarröhrchen kann Methanol dem Anodenkreislauf zugeführt werden. Auch hierbei ist es wichtig, kein Wasser zurück in den Tank zu transportieren. In [32] ist ein passives Brennstoffzufuhrsystem basierend auf dem Prinzip einer Kapillarpumpe vorgestellt. Hier wird durch eine geschickte Anordnung der Wassertransport unterbunden. Des Weiteren ist eine Stelleinheit notwendig, um die Brennstoffzufuhr zu regulieren.

Die passiven Systeme finden momentan nur bei Systemen mit kleinen Leistungen (< 1 Watt) Anwendung. Zum einen ist in dieser Leistungsklasse eine Miniaturisierung einer Dosierpumpe nur begrenzt möglich oder zu aufwändig. Zum anderen ist die Brennstoffverteilung auf die aktive Fläche bei einer punktuellen Zufuhr über eine Pumpe schwierig. Passive Systeme können hier großflächig den Brennstoff einbringen. Nachteilig ist die nur begrenzte Regelbarkeit der Brennstoffzufuhr bei passiven Systemen. Daher wird hier für ein DMFC-System der kW-Klasse eine Lösung mit Dosierpumpe bevorzugt. In Kapitel 5.2 werden verschiedene Dosierpumpentypen betrachtet.

Die Brennstoffzufuhr eines Brennstoffzellensystems ersetzt die verbrauchte Methanolmenge im Anodenkreislauf. Die Betriebsparameter Temperatur und vor allem der Laststrom beeinflussen den Methanolverbrauch. Daher ist es notwendig, die Brennstoffzufuhr anzupassen. Eine Regelung der Methanolkonzentration verfolgt den Ansatz, gemäß einem Sollwert die Methanolkonzentration im Anodenkreislauf konstant einzustellen. Eine Strategie, die jeweils die entsprechend der Last und somit der Stromdichte geringste Methanolkonzentration einregelt, führt zu einer Minimierung der Methanolpermeation und so zu einer Maximierung des Systemwirkungsgrades [88]. Die Umsetzung dieser Regelaufgabe erfordert einen komplexen Regler, um eine bleibende Regelabweichung zu kompensieren [89]. Mögliche Veränderungen des Verhaltens einer DMFC während des Betriebs können jedoch zu Verschiebungen der optimalen Methanolkonzentration führen, die zudem auch noch von der Temperatur abhängig ist. Der Regler würde nun die Brennstoffzelle im suboptimalen Bereich fahren.

Eine weitere Möglichkeit der Brennstoffzufuhr ist eine parameterabhängige Steuerung der Dosierrate der Methanolpumpe. Dies bedeutet eine Vorgabe des Faraday'schen Wirkungsgrades, bei dem die DMFC betrieben wird. Die Methanolkonzentration ist in diesem Falle eine Zwischengröße, die die Methanolquelle und -senken ausgleicht. Ist der Methanolverbrauch geringer als die über die Dosierrate der Pumpe eingestellte Methanolzugabe, erhöht sich die Konzentration. Dies bewirkt eine Zunahme der Methanolpermeation. Wenn sich der Methanolverbrauch in Folge der Permeationszunahme der Zugabe angepasst hat, stabilisiert sich die Methanolkonzentration im Anodenkreislauf. Bild 6.123 zeigt den Aufbau einer Steuerung mit den Betriebsparametern Laststrom und Temperatur.

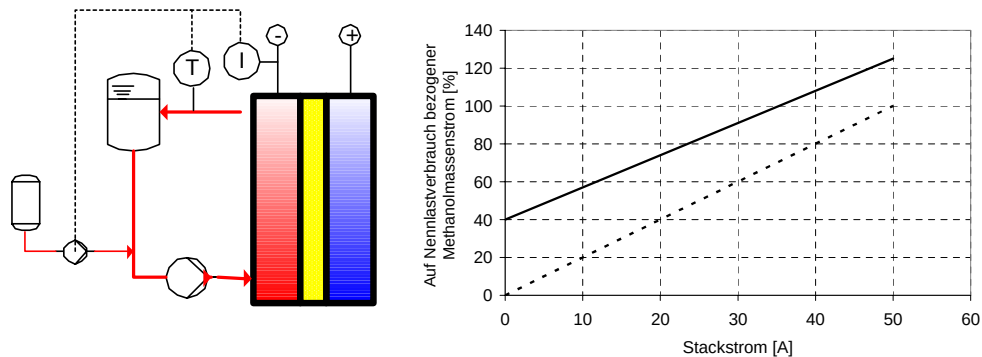


Bild 6.123: Steuerung der Dosierleistung der Methanolkammer nach den Parametern Laststrom und Temperatur im Anodenkreislauf.

Das Diagramm zeigt die vorgegebene Dosierleistung in Abhängigkeit vom Laststrom. Die Gerade wird festgelegt durch den Nennpunkt (hier bei 50 A) und den Leerlauf. Bei Nennlast ist ein Faraday'scher Wirkungsgrad von 80 % vorgegeben. Tests am 10-Zeller zeigen, dass bei diesem Wert eine stabile Brennstoffversorgung gewährleistet ist. Der Nulldurchgang der Dosiergerade ist so gewählt, dass die Methanolkonzentration möglichst konstant bleibt. Dies gibt dem Stack die Fähigkeit, kurzzeitig auf höhere Lastanforderungen stabil zu reagieren.

In Bild 6.124 ist ein Lastzyklus dargestellt, der experimentell am 10-Zeller-System mit den obigen Steuerparametern gefahren wurde. Das Diagramm auf der rechten Seite in Bild 6.124 zeigt die Methanolkonzentration auf der Anodenseite während des Lastzyklusses. Über einen Zeitraum von einer knappen Stunde hält sich die Konzentration stabil zwischen 0,4 M und 0,5 M. Das Absacken am Anfang unter 0,4 M ist durch ein Auffüllen des Anodenkreislaufes mit Kondensat bedingt.

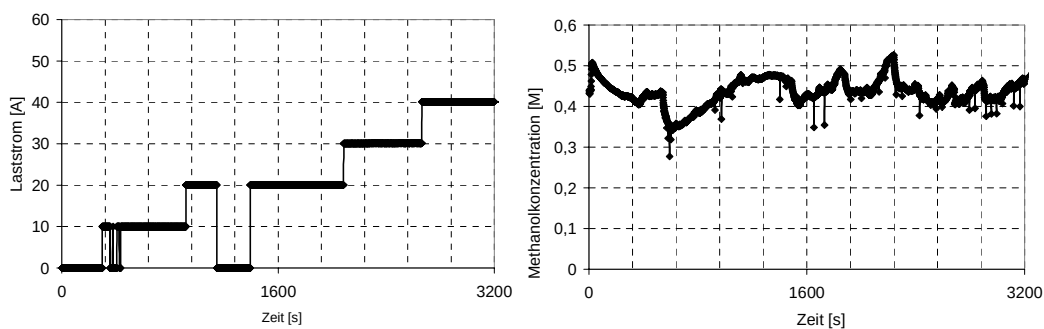


Bild 6.124: Experimentell ermittelter Verlauf der Methanolkonzentration bei zeitlicher Änderung des Laststromes

Mit der gesteuerten Brennstoffzufuhr lässt sich ein DMFC-System sicher und stabil betreiben. Die Methanolpermeation ist für den Nennpunkt minimiert. Bei Teillast wird ein erhöhter Brennstoffverlust in Kauf genommen, um das System für dynamische Lastwechsel bereit zu halten und die Betriebstemperatur konstant zu halten.

6.4 Elektrische Kopplung von Akkumulator und Brennstoffzelle

Die anliegende Klemmspannung ändert sich entsprechend der U/I-Kennlinie der Zelle mit unterschiedlicher Stromstärke oder Leistung. Zur Versorgung elektrischer Geräte muss meistens ein enges Spannungsfenster eingehalten werden. Daher ist eine Konditionierung der bereitgestellten elektrischen Leistung des Brennstoffzellenstacks notwendig.

Zwei Möglichkeiten der Konditionierung des Leistungssignals wurden identifiziert:

Elektrische Wandler haben einen Leistungseingang, der mit einem weiten Spannungsbereich betrieben werden kann. Dieser Eingang mit variabler Spannung wird durch die Leistungselektronik in ein Ausgangssignal mit nahezu konstanter Spannung gewandelt. Dabei kann sowohl Gleichstrom als auch Wechselstrom erzeugt werden. Wandler spezieller Bauart lassen darüber hinaus eine Regelung der Stromstärke am Ausgang zu. Hiermit kann die den Stack belastende elektrische Leistung begrenzt werden. Der Wirkungsgrad der Wandler liegt bei momentan am Markt erhältlichen Geräten zwischen 80-90 %. Wandler der nächsten Generation mit über 90 % Wirkungsgrad sind in der Entwicklung.

Ein **parallel geschalteter Akkumulator** bestimmt durch seinen im Vergleich zur Brennstoffzelle geringen Innenwiderstand die Klemmenspannung. Dadurch kann eine Leistung nahezu konstanter Spannung, wie von Akkumulatoren bekannt, abgegeben werden [45]. Entsprechend der vom Verbraucher angeforderten Leistung teilt sich der Strom auf Akkumulator und Stack auf. Durch diese Schaltung wird zusätzlich der Stack vor Überlastung geschützt. Der Akkumulator stützt die Spannung des Stacks.

Die elektrische Kopplung einer Brennstoffzelle mit einem Akkumulator bietet eine einfache Konfiguration zur Konditionierung des Spannungsbereichs bei Leistungsabgabe. Der Leistungseingang der Leistungselektronik des „Scooters“ erfordert einen Spannungsbereich von 32-45 V. Der Spannungsbereich des DMFC-Stacks liegt jedoch zwischen 80 V bei Leerlauf und 30 V bei maximaler Leistung. Zusätzlich kann der Akkumulator die Lastspitzen abdecken. Somit kann die teure Komponente Brennstoffzelle kleiner ausgelegt werden.

Bild 6.125 zeigt eine elektrisch parallel mit einem Akkumulator betriebene Brennstoffzelle. Der Akkumulator bestimmt mit seinem geringen Innenwiderstand die Höhe der Versorgungsspannung des Motors.

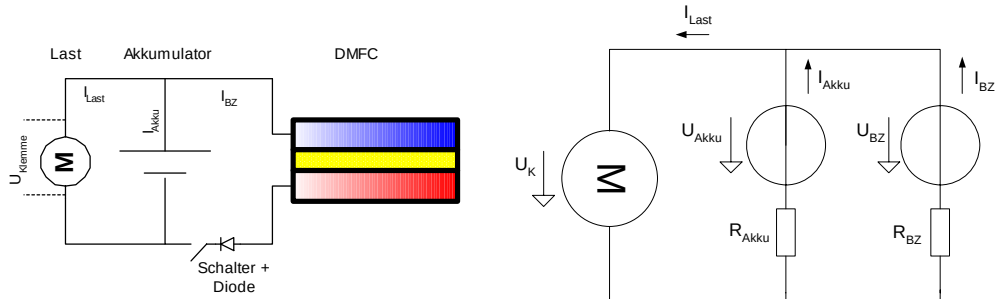


Bild 6.125: Kopplung Brennstoffzelle mit Akkumulator mit Ersatzschaltbild (rechts)

Für die Klemmenspannung U_K gilt nach der Maschenregel:

$$U_K = U_{BZ,0} - R_{BZ} \cdot I_{BZ} \quad (6.111)$$

$$U_K = U_{Akk,0} - R_{Akk} \cdot I_{Akk} \quad (6.112)$$

Aus der Knotenregel folgt:

$$I_{Last} = I_{BZ} + I_{Akk} \quad (6.113)$$

Einsetzen und Auflösen auf die Klemmenspannung ergibt:

$$U_K = \frac{U_{BZ,0} \cdot R_{Akk} + U_{Akk,0} \cdot R_{BZ} - I_{Last} \cdot R_{BZ} \cdot R_{Akk}}{R_{Akk} + R_{BZ}} \quad (6.114)$$

Für $R_{BZ} \gg R_{Akk}$ ergibt sich nach Gleichung (6.114) sowohl für den Leerlauf ($I_{Last} = 0$ A) als auch für den Lastfall ($I_{Last} = 50$ A) nahezu die Akkumulatorspannung (siehe Bild 6.126). Der Akkumulator prägt dem System sein Spannungsniveau auf.

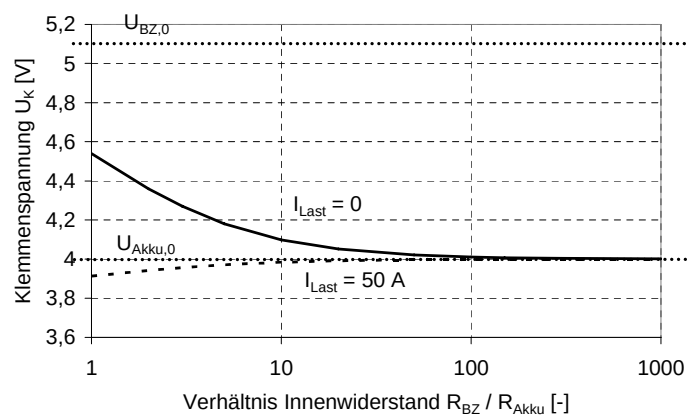


Bild 6.126: Verlauf der Klemmenspannung in Abhängigkeit des Verhältnisses der Innenwiderstände R_{BZ} / R_{Akk}

Bild 6.127 zeigt die idealisierte U/I-Kennlinie eines 10-Zellen-DMFC-Stacks bei 60 °C Stacktemperatur nach den gemessenen Werten aus Bild 3.20. Die nicht-linearen Bereiche für $I_{BZ} \rightarrow 0$ und $I_{BZ} \rightarrow I_{Grenz}$ werden dabei nicht berücksichtigt, da die Brennstoffzelle in diesen Bereichen nur selten betrieben wird. Die linearisierte Kennlinie hat einen Innenwiderstand von 35 mOhm mit einer Ruhespannung von etwa 5,1 V. Zusätzlich ist die Lade/Entlade-Kennlinie eines Lithium-Ionen-Akkumulators eingezeichnet. Der Akkumulator hat einen Innenwiderstand von 3 mOhm bei einer Ruhespannung von 4 V. Diese Ruhespannung ist, anders als bei der Brennstoffzelle, von dem Ladegrad des Akkumulators abhängig. Man erkennt an dem flacheren Verlauf der Kennlinie den geringeren Innenwiderstand des Akkumulators. Die durchgezogene Linie markiert das Verhalten des aus den parallel geschalteten Komponenten des bestehenden Systems. Die Systemkennlinie entspricht der um den Stackanteil nach rechts verschobenen Kennlinie des Akkumulators. Das System versorgt den Motor somit im Leerlauf bis zur Vollast bei etwa 50 A mit einem Spannungsbereich von 4,1 bis 3,9 V. Dieser Spannungsbereich folgt dem Ladegrad des Akkumulators. In diesem Fall ist die Akkumulatorruhespannung 4 V. Das heißt, bei dieser Spannung liegt der Wendepunkt für den Akkumulatorstrom. Liegt der vom Motor aufgenommene Strom unterhalb von 32 A, steigt die Systemspannung über 4 V, somit wird gleichzeitig der Motor versorgt und der Akkumulator aufgeladen. Liegt der Strom oberhalb von 32 A, sinkt die Systemspannung unter 4 V, somit wird der Motor versorgt und der Akkumulator entladen.

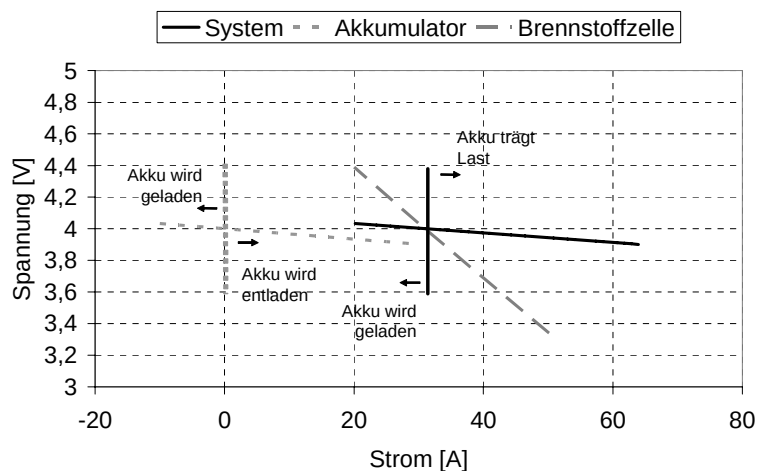


Bild 6.127: Kennlinie von 10-Zeller, Akkumulator und kombinierter Kennlinie ($R_{BZ} = 25 \text{ mOhm}$)

Das Leistungsverhältnis von Stack und Akkumulator bei Last wird von dem Verlauf der Einzelkennlinien bestimmt. Die Kennlinie des Brennstoffzellenstacks kann in diesem Rahmen durch die Betriebsparameter und die Zellenanzahl beeinflusst werden. Die Kennlinie des Akkumulators hängt wesentlich von der Nennspannung und der Bauart ab. Ein Lithium-Ionen-Akku mit einer Nennspannung von 3,6 V soll hier betrachtet werden. Eine Abstimmung der Kennlinien erfolgt mit Hilfe der Zellenanzahl des Stack. In Bild 6.128 sind die Stackkennlinien für eine Variation der Zellenzahl von 9 bis 11 dargestellt. Durch Erhöhung der Zellenzahl wird die Stackkennlinie um die resultierende größere Stackleistung zu höheren Strömen verschoben. Die Steigung bleibt jedoch konstant. Dies bedeutet eine Leistungsverlagerung vom Akkumulator zur Brennstoffzelle. Die

Leistungsaufteilung zwischen Stack und Akkumulator bei einer bestimmten Last ändert sich hierdurch. Bild 6.129 zeigt in Abhängigkeit vom Laststrom die Systemleistung und die Stackleistung im Verhältnis zur Systemleistung. Bei Werten größer 100 % liefert der Stack die Lastleistung und lädt zusätzlich den Akku auf. Bei Werten kleiner 100 % liefert der Akkumulator Leistung an den externen Verbraucher. Durch die Hinzunahme von Zellen im Stack bleibt die Leistungsgerade nahezu unbeeinflusst, da sich die Spannung des Akkumulators nur sehr schwach mit dem Entladestrom ändert. Sie verschiebt sich mit konstanter Steigung zu höheren Systemleistungen. Sehr stark verschiebt sich jedoch der jeweilige Anteil des Stacks an der Systemleistung.

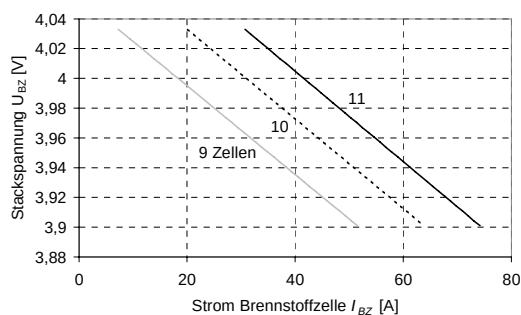


Bild 6.128: Verschiebung der Brennstoffzellen-Kennlinien bei Variation der Zellenanzahl des Stacks von 9-11 Zellen.

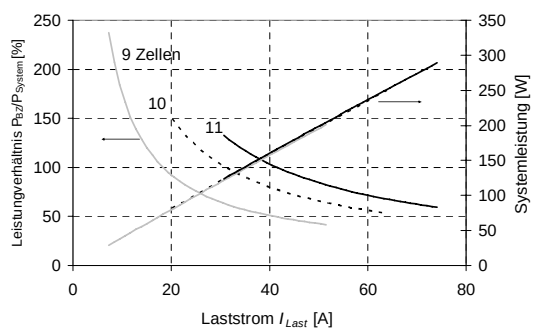


Bild 6.129: Stackleistungsanteil und Systemleistung bei Variation der Zellenanzahl von 9-11 Zellen bei Kopplung mit einem Lithium-Ionen-Akku mit $U_{Akku,0} = 4 \text{ V}$

Aus dem Bild 6.129 kann nun für einen geforderten Leistungsanteil des Stacks die entsprechende Zellzahl abgelesen werden. Ein Hybridsystem sollte so ausgelegt werden, dass die durchschnittliche Leistung, resultierend aus dem Lastprofil der Anwendung von der Brennstoffzelle abgedeckt werden kann. Der Energiespeicher deckt dabei die Lastspitzen ab und kann bei Schwachlast von der Brennstoffzelle wieder aufgeladen werden. Beim „Scooter“ ist der Einsatz eines Hybridsystems besonders sinnvoll. Die Beschleunigungsleistung wird von dem Akkumulator unterstützt, während die Brennstoffzelle das Fahren mit einer konstanten Geschwindigkeit abdeckt. Somit soll im Auslegungspunkt (Ruhespannung des Akkumulators: 4 V) die Brennstoffzelle die gesamte Nennlast abdecken und der Ladestrom des Akkumulators null sein. Tabelle 6.33 zeigt die für die unterschiedlichen Zellenzahlen aus Bild 6.129 abgelesenen Werte bei 100 % Stackleistungsanteil.

Tabelle 6.33: Leistungswerte bei Variation der Zellenzahl

Zellenzahl	Systemleistung bei 100 % Stackleistungsanteil [W]
9	70
10	125
11	165

Für den „Scooter“ liegt der Leistungsbedarf bei Konstantfahrt bei ca. 1 kW. Setzt man den parasitären Verbrauch bei 300 W an, muss der Stack im Hybridsystem die Leistung von 1,3 kW erbringen. Da die

Kopplung mit einem 10-Zeller durchgeführt wird, ist die entsprechend benötigte Systemleistung um den Faktor 10 herunterskaliert und muss 130 W betragen.

Dies entspricht der Variante mit 10 Zellen mit einer Systemleistung von 125 W. Somit ist dies die beste Abstimmung für die elektrische Kopplung von Brennstoffzellenstack und Akkumulator. Eine Kopplung des Akkus mit einem 9-Zeller würde entweder nur zu einer Leistung von 70 W bei 100 % Stackleistungsanteil bedeuten, oder der Stackleistungsanteil betrüge nur ca. 60 % bei einer Systemlast von 130 W. Ein 11-Zeller würde bei Nennleistung noch zusätzlich Strom in den Akkumulator einspeisen und wäre damit zu groß ausgelegt.

Des Weiteren kann man an den oben beschriebenen Zusammenhängen gut erkennen, dass durch die Kopplung die Brennstoffzelle im Betrieb geschützt wird. Bei Betriebsparametern, die den Stackbetrieb beeinträchtigen, wie zum Beispiel geringe Temperaturen beim Starten oder eine schlechte Versorgung mit Methanol verschiebt sich die Brennstoffzellenkennlinie so, dass der Stackleistungsanteil sich verringert. Damit wird bei gleicher Systemleistung der Stack weniger belastet. Dies sichert ohne regelungstechnischen Aufwand abweichende Betriebsbedingungen wie zum Beispiel Anfahren im kalten Zustand ab. Auch bei der Aufschaltung des Stacks auf den Akkumulator ist eine gleitende Belastung des Stacks zu erwarten.

Bild 6.130 zeigt Messungen an einem DMFC-Stack mit 10 Zellen gekoppelt mit einem Lithium-Ionen-Akku bei verschiedenen Betriebstemperaturen des Stacks. Das System wird mit bis zu 50 A externer Last beaufschlagt. Dargestellt sind die Ströme des Stacks und des Akkumulators. Sinkt die Betriebstemperatur des Stacks ergibt sich eine geringe Belastung der Zellen. Bei 50 A externer Last sinkt der Leistungsanteil des Stacks von 90 % bei 60 °C auf etwa 50 % bei 40 °C.

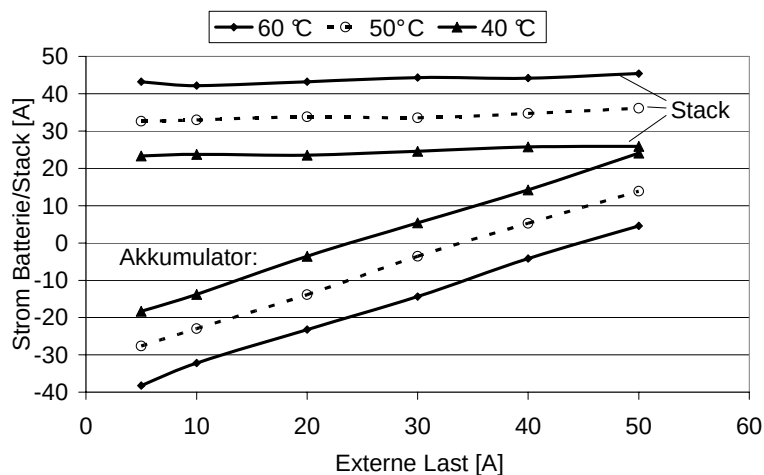


Bild 6.130: Experimentell ermittelte Akkumulator- und Brennstoffzellenströme in Abhängigkeit vom Systemstrom bei paralleler elektrischer Kopplung

Man erkennt den relativ konstanten Verlauf der Stackleistung bei sich ändernder externer Last. Wenn die externe Last abnimmt, ersetzt diese der zusätzliche Ladestrom des Akkumulators. Dies ergibt

eine erhebliche Vereinfachung der Steuerung der Brennstoffzelle, insbesondere der Brennstoffversorgung. Schnelle Laständerungen sind fast ausgeschlossen.

Problematisch ist jedoch die bei einer Störung des Stacks mögliche Stromumkehr. Wenn der Stack die Akkumulatorspannung nicht mehr aufbringt, treibt der Spannungsgradient einen Strom durch den Stack, der zu einer Zerstörung der Zellen führen kann. Dies ist mit einer Diode abgesichert (Bild 6.125).

Die elektrische Leistung der Brennstoffzelle, die nicht direkt von der externen Last abgenommen wird, wird im Akkumulator mit Verlusten zwischengespeichert. Die Speicherverluste setzen sich aus den Überspannungen beim Lade- und Entladevorgang zusammen. Die Höhe der Überspannungen kann dabei als proportional zur Stromstärke angenommen werden. Die Verluste und damit die Überspannungen sind beim Ladevorgang erheblich größer als beim Entladevorgang. Der getestete Lithium-Ionen-Akku zeigt einen 8-mal höheren Verlust beim Laden verglichen mit den Entladeverlusten. Der Speicherwirkungsgrad des Akkumulators kann mit den Überspannungen ζ_{Lade} und $\zeta_{Entlade}$ definiert werden:

$$\eta_{Akku} = \frac{\text{beim Entladen entnommene elektr. Leistung}}{\text{beim Laden eingebrachte elektr. Leistung}} = \frac{1 - \zeta_{Entlade} / U_{Akk,1}}{1 + \zeta_{Lade} / U_{Akk,0}} \quad (6.115)$$

Der Index „0“ bedeutet während der Ladephase und „1“ bei der Entladephase. Bild 6.131 zeigt den Speicherwirkungsgrad bei einer mittleren Akkumulatorspannung von 4 V in Abhängigkeit der Stromstärke. Es wird dabei von gleichen Entlade- und Ladeströmen ausgegangen. Der Speicherwirkungsgrad fällt proportional mit der Stromstärke. Bei moderaten Stromstärken kleiner 15 A liegt der Speicherwirkungsgrad über 90 % und fällt bei 50 A auf unter 75 %.

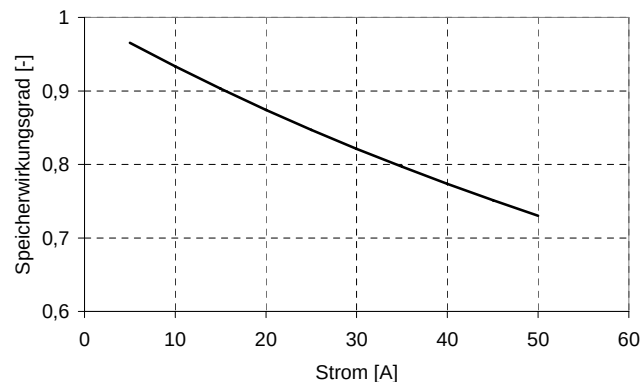


Bild 6.131: Speicherwirkungsgrad der Lithium-Ionen-Akkus bei einer Ruhespannung von 4 V

6.5 Zusammenfassung

Mit dem vorgestellten Ansatz einer thermohydraulischen Modellierung lässt sich das Verhalten des Kondensators hinreichend genau beschreiben. Ein Vergleich mit experimentell ermittelten Daten zeigt eine gute Übereinstimmung mit den simulierten Werten.

Eine experimentelle Betrachtung von 1-Zug- und 2-Zug-Wärmeübertragerkonfigurationen zeigt eine etwa 15 % höheren übertragenen Wärmestrom bei der 2-Zug-Schaltung. Dies liegt an dem verbesserten Wärmeübergang auf der Prozessgasseite durch den Einfluss der Einlaufstrecke. Die Beschichtung der prozessgasseitigen Übertragerplatten mit PTFE ist ebenfalls experimentell untersucht worden. Hier zeigt sich ebenfalls im Vergleich mit einer unbeschichteten Basisvariante eine Verbesserung des übertragenen Wärmestroms von etwa 15 %. Die Beschichtung führt zu einer Tropfenkondensation, die gegenüber der Filmkondensation einen besseren Wärmeübergang ermöglicht.

Eine mit dem Modell vorgenommene Optimierung ausgewählter konstruktiver Parameter, führt zu einer Kreuzgegenstromkonstruktion mit einem Plattenabstand von 3 mm. Ein Vergleich mehrerer Übertragerprofile zeigt bei der Offsetlamelle den geringsten Eigenbedarf für das Kühlluftgebläse. Der auf die Stackleistung bezogene Eigenbedarf beträgt etwa 6 % bei Verwendung dieser Lamelle und bei einem Gebläsewirkungsgrad von 40 %.

Das Anodensystem lässt sich nahezu komplett in den Stack integrieren. Ein in die Mitte des Stacks eingepasster Aluminiumblock beinhaltet die Leitungen, Gasabscheidung, Umwälzpumpe und Anodengasabführung. Von außen aufgesteckte Ausgleichsbehälter begrenzen die Fluktuation des Flüssigkeitspegels. Eine Funktionsüberprüfung zeigt eine 100 % Gasabscheiderleistung bis zu einem Volumenstrom von 6 l/min.

Eine in Abhängigkeit von der Stromdichte und der Stacktemperatur gesteuerte Methanolzufuhr ermöglicht den Betrieb der DMFC in einem engen Konzentrationsbereich ohne direkte Messung der Methanolkonzentration. Die experimentelle Untersuchung bei unterschiedlichen Lastzuständen zeigt ein stabiles Systemverhalten.

Die direkte Kopplung von einer Brennstoffzelle und einem Lithium-Ionen-Akkumulator ist grundsätzlich möglich. Über die Zellen- und Batterieanzahl lassen sich die Systemkennlinie und die Leistungsverteilung zwischen Brennstoffzelle und Akkumulator einstellen. Durch die Parallelschaltung wird der Stack wirksam gegen Überlastung geschützt. Der Wirkungsgrad der Leistungspufferung ist abhängig von den Austauschströmen. Bei Strömen unter 15 A liegt der Wirkungsgrad bei über 90 %.

7 Statische Systemmodellierung

Die Systemmodellierung dient zum einen der Auslegung des Systems und zum anderen der Optimierung der Betriebsparameter. Die Aufgabenfelder Wärmemanagement, Wassermanagement und die Luftversorgung können im systemtechnischen Zusammenhang betrachtet werden. Ziel der Betrachtung ist es, in dem durch die verfahrenstechnische Schaltung und deren Komponenten festgelegten Rahmen ein Optimum für folgende Schlüsselkennwerte zu finden:

- Elektrische Leistung
- Wirkungsgrad
- Leistungsdichte

Als feste Komponente ist der in Kapitel 3 beschriebene Stack nach Jülicher Design mit 100 Zellen modelliert. Die von den Betriebsparametern abhängige Auslegung der peripheren Komponenten wie Gebläse und Kondensator wird entsprechend berücksichtigt.

Nach Betrachtung der Systemverschaltung und des Berechnungsverfahrens werden zuerst die Implikationen, die sich aus Wärme- und Wassermanagement auf die Betriebsparameter ergeben, mittels Simulationsrechnungen, erläutert. Danach werden die Abhängigkeiten der Stackleistung und Zellwirkungsgrad untersucht. Der abschließende Abschnitt diskutiert die charakterisierenden Kennzahlen des Systems auf Grundlage der Systemrechnungen. Als Resultat liegen Parameteroptima für die einzelnen Kenngrößen Wirkungsgrad, Systemleistung und Leistungsdichte vor.

7.1 Systemschaltung (Stoff- und Wärmeströme)

Gemäß Bild 7.132 sind die Berechnungsmodule in Matlab zu einem System verschaltet worden. Jeder nummerierte Punkt markiert einen Berechnungspunkt in der Simulation, der durch einen Zustandsvektor beschrieben wird. Der Vektor beinhaltet Temperatur, Druck, Molenstrom und Zusammensetzung des Fluides.

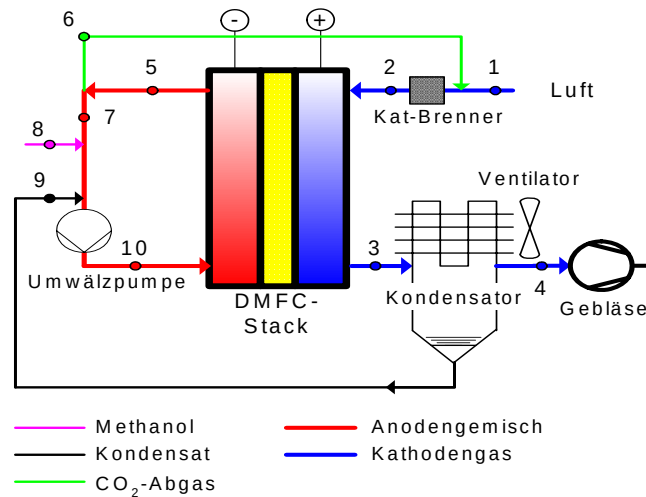


Bild 7.132: Systemschaltung und Simulationspunkte

Für eine Systemrechnung müssen folgende Prozessparameter fest vorgegeben werden (Bild 7.133):

- Zustandsvektor 5: Temperatur, Druck, Molenstrom am Austritt Stack Anode
- Zustandsvektor 1: Temperatur, Druck, Molenstrom am Lufteintritt
- Zellspannung

Implizit im Zustandsvektor 5 ist eine Annahme über die Stromdichte enthalten. Dies ist notwendig, um nach der Initialisierung den Anodenabgasmolenstrom und -zusammensetzung (Zustandsvektor 6) zu bestimmen und die Zumischung zur Zuluft zu berechnen. Die katalytische Schicht am Eintritt des Stacks wird vereinfacht durch einen vorgeschalteten Katalytbrenner abgebildet. Über die Zumischung und katalytische Umsetzung des im CO_2 -Abgas enthaltenen Methanols kann der Zustand der Eintrittsluft (Punkt 2) ermittelt werden. Das folgende Stackmodul berechnet die Zustandsvektoren 3 und 10, den Stackstrom, die elektrische Leistung und die Wärmebilanz um den Stack. Im stationären Zustand muss die Bilanz null ergeben. Zusätzliche Kreislaufelemente bilden die Methanol- und Kondensatzumischung und die Umwälzpumpe ab. Mit der berechneten Stromstärke geht das Simulationsprogramm über eine Iterationsschleife zurück und bildet den Zustandsvektor 5 erneut. Bei Übereinstimmung der vorgegebenen und der berechneten Stromstärke wird die Iteration verlassen und das Kondensatormodul aufgerufen. Das Modul ermittelt entsprechend des Wasserbedarfs der Anode den Austrittsvektor 4. Daraus bestimmt sich die Wärmeleistung des Kondensators. Zusammen mit der Kondensatorübertragerfläche ergibt sich der Kühlluftvolumenstrom. Damit lässt sich die elektrische Leistungsaufnahme des Kühlluftventilators und des Kathodengebläses berechnen.

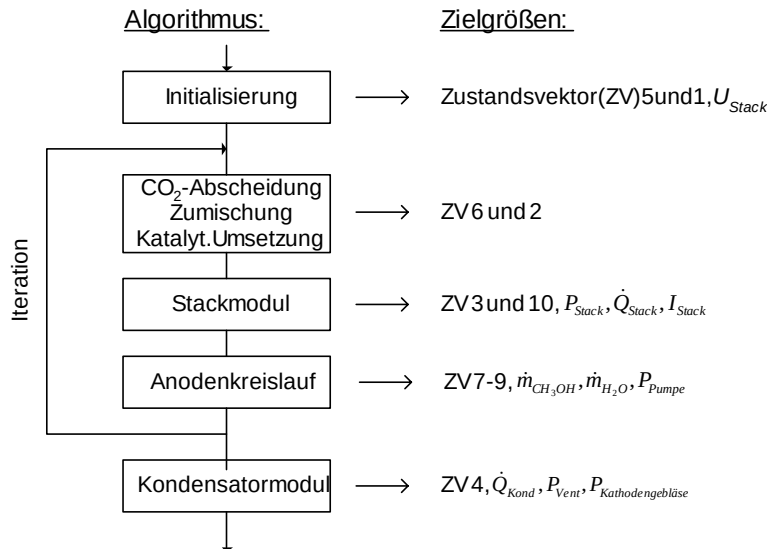


Bild 7.133: Berechnungsalgorithmus und Zielgrößen

Für die Simulationsrechnungen ist der Stack gemäß der Spezifikation in Kapitel 3 abgebildet. Der Kondensator ist gemäß den Vorgaben aus Kapitel 6.1 im Kreuzgegenstrom mit zwei Umlenkungen ausgeführt. Die Kondensatorübertragerfläche bildet den geometrischen Freiheitsgrad für die Auslegungsrechnung. Die Anzahl der Wärmeübertragerplatten und somit die Flächengröße wird linear zum Kathodenvolumenstrom berechnet.

7.2 Ergebnisse der Simulationsrechnungen

7.2.1 Begrenzung der Betriebsparameter durch wärmeautarken Betrieb

Nach der Schaltung in

Bild 7.132 hat die kathodische Luftversorgung nicht nur die Aufgabe den Stack mit Oxidans zu versorgen, sondern führt zusätzlich die thermische Energie ab. Bild 7.134 zeigt in logarithmischer Auftragung die notwendige Luftzahl zur Einhaltung der Wärmebilanz des Systems in Abhängigkeit von den Betriebsparametern Zellspannung, Methanolkonzentration, und Stacktemperatur. Die Luftzahl verändert sich exponentiell mit der Stacktemperatur. Bei Temperaturen unter 60 °C muss für den betrachteten Methanolkonzentrationsbereich mit Luftzahlen weit über 10 gefahren werden. Dies hat großen Einfluss auf das Wassermanagement. Die Höhe der Methanolkonzentration verschiebt durch Erhöhung des Abwärmestroms aufgrund der Methanolpermeation die Kurven nahezu parallel zueinander. Je kleiner die Stacktemperatur, desto größer ist der Einfluss der Methanolkonzentration auf den Luftbedarf. Die Zellspannung beeinflusst die Luftzahl zum einen über die Abwärme der elektrochemischen Reaktion, zum anderen steigt bei kleinerer Zellspannung die Stromdichte und somit sinkt die Methanolpermeation. Dadurch verringert sich die Abwärmeproduktion auf der Kathode. Dies übertrifft die Änderung der Abwärme aus der elektrochemischen Reaktion. Daher zeigt die kleinste Zellspannung den geringsten relativen Luftbedarf.

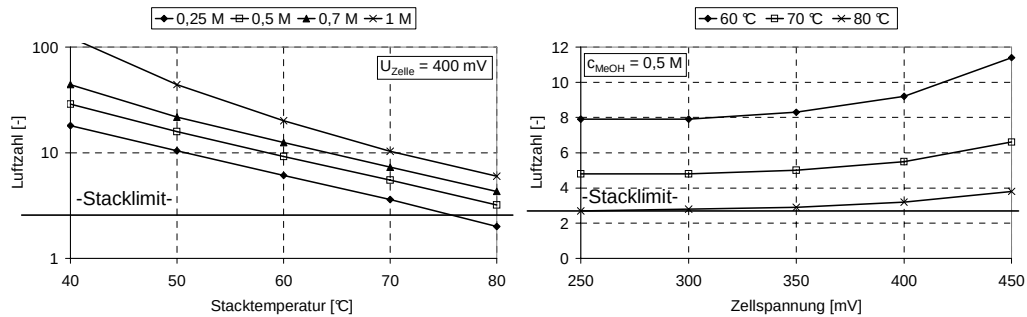


Bild 7.134: Luftzahlen in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Die im Modell nicht abgebildeten Effekte wie zum Beispiel die Versorgungsunterschiede zwischen den einzelnen Zellen eines Stacks sowie die Blockierung der Kanalströmung durch Tropfenbildung müssen jedoch berücksichtigt werden. Bei Messungen zeigt sich bei Luftzahlen um 3 ein deutliches Absinken der Zellspannung einzelner Zellen, während die meisten Zellen konstant bleiben. Zum stabilen Betrieb des Stacks ist daher eine Luftzahl größer drei notwendig. Somit ergibt sich aus der Wärmebilanz des Systems eine von der Methanolkonzentration abhängige Obergrenze für die Stacktemperatur. Für eine Methanolkonzentration von 0,5 M kann bei der Grenzluftzahl von 3 der Stack nur eine maximale Temperatur von 80 °C erreichen. Eine höhere Temperatur kann nur durch Anheben der Methanolpermeation respektive Methanolkonzentration erreicht werden. Eine verfahrenstechnische Option zur Anhebung der Betriebstemperatur ist eine Wärmeschaukel, die latente oder sensible Wärme von dem Kathodenabgas auf die Zuluft überträgt.

7.2.2 Auswirkungen des wasserautarken Betriebs

Der Wasserverlust im Anodenkreislauf muss durch Wasserrückgewinnung aus dem Kathodenabgas ausgeglichen werden. Der auszugleichende Wasserverlust auf der Anode ist stark von der Stacktemperatur abhängig (Bild 7.135). Die Stromdichte und der Drag-Faktor steigen bei konstanter Zellspannung mit der Stacktemperatur. Dies ergibt einen höheren Wasserpermeationsstrom. Erhöht sich die Stacktemperatur von 60 °C auf 80 °C, steigt der Wasserverlust um mehr als 50 % ($U_{\text{Zelle}} = 400 \text{ mV}$). Der Einfluss der Methanolkonzentration beschränkt sich auf den zunehmenden diffusiven Wassertransport mit steigender Luftzahl. Dies zeigt auch der Einfluss der Stacktemperatur auf den Gradienten der Kurve. Der temperaturabhängige Sattdampfdruck des Wassers bestimmt das den Diffusionstransport treibende Konzentrationsgefälle zwischen Membran und dem Kathodenkanal. Die mit der sinkenden Zellspannung steigende Stromdichte ergibt einen fast linearen Anstieg des Wasserverlustes. Der auf die Leistung bezogene Wasserverlust steigt bei sinkender Zellspannung und somit steigender Stromdichte.

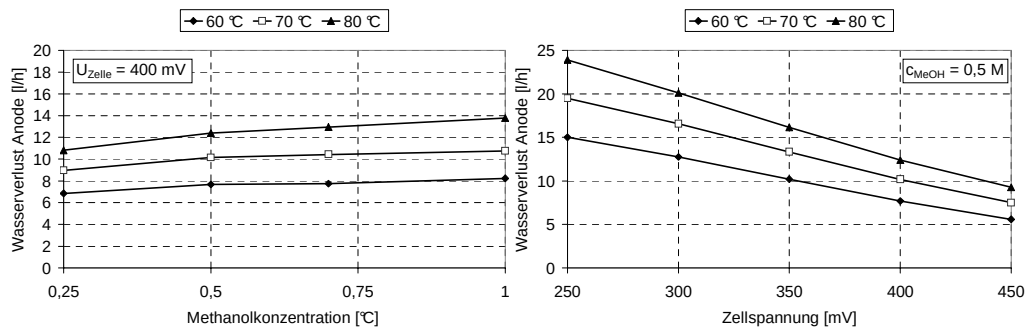


Bild 7.135: Wasserverlust auf der Anode in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Der Kondensator kühlt den Stoffstrom soweit ab, dass der Wasserstrom auskondensiert und abgeschieden werden kann, um den Wasserverlust auf der Anode ausgleichen zu können. Je höher die Luftzahl beim Stackbetrieb ist, desto weiter muss der Stoffstrom abgekühlt werden, damit das System wasserautark bleibt. Die berechnete Zieltemperatur der Abkühlung wird als Autarkietemperatur bezeichnet und ist in Bild 7.136 für die Betriebsparameter Temperatur, Methanolkonzentration und Zellspannung dargestellt. Es besteht eine starke Abhängigkeit von der Stacktemperatur, da diese, wie aus der Wärmebilanzrechnung hervorgeht, wesentlichen Einfluss auf die Luftzahl hat. Eine Erhöhung der Methanolkonzentration führt zu einer höheren Luftzahl und somit zu einer kleineren Autarkietemperatur. Dabei wird die zusätzliche Wasserproduktion auf der Kathodenseite durch die erhöhte Methanolpermeation überkompensiert. Bei einer Variation der Zellspannung ergibt sich ein nahezu konstanter Verlauf der Autarkietemperatur.

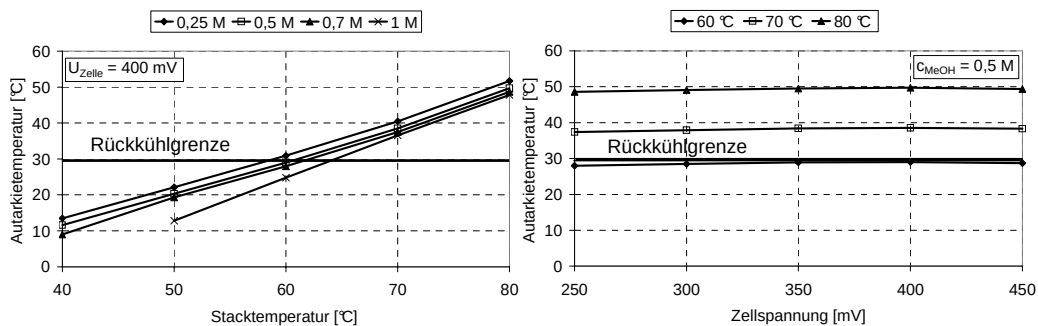


Bild 7.136: Autarkietemperatur in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Die in Bild 7.136 eingezeichnete Rückkühlgrenze bei 30 °C begrenzt den Arbeitsbereich des Systems nach unten. Dabei ist zur Auslegung eine maximale Umgebungstemperatur von 20 °C angenommen

worden. Ein Abkühlen des Kathodenabgases unter 30 °C ist mit einer Kühlluft Eintrittstemperatur von 20 °C nur mit sehr hohen Kühlluftvolumenströmen und Wärmeübertragerflächen möglich. Zusammen mit dem oberen Limit aus der Wärmebilanzbetrachtung ergibt sich damit ein Temperaturbereich zum Betreiben des Stacks von 60 bis 80 °C, der im Folgenden fokussiert wird.

Bild 7.137 zeigt die notwendige Wärmeübertragerleistung des Kondensators. Es besteht eine nahezu lineare Abhängigkeit zur Methanolkonzentration über deren Kopplung zur Methanolpermeation. Die Steigung der Geraden und deren Nulldurchgang geben dabei die Temperaturabhängigkeit der Methanolpermeation wieder. Zudem ergibt sich bei höheren Temperaturen eine höhere elektrische Leistung, die die Kondensationsleistung ansteigen lässt. Dieser Effekt lässt sich auch bei der Variation der Zellspannung beobachten.

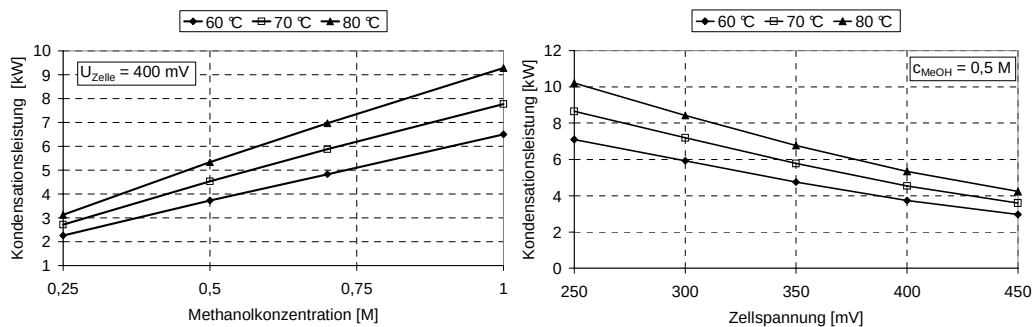


Bild 7.137: Kondensationsleistung in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links bei $U_{Zelle} = 400$ mV) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts bei $c_{MeOH} = 0,5$ M)

Über die geforderte Wärmeübertragerleistung und die konstruktiven Vorgaben lässt sich nun der Kondensator auslegen. Die Übertragerfläche und der Kühlluftvolumenstrom bilden die beiden Freiheitsgrade. Die Übertragerfläche bestimmt die Baugröße des Kondensators und damit des Systems. Der Kühlluftvolumenstrom fließt sowohl in die Baugröße als auch in die elektrische Leistungsaufnahme des Ventilators ein. Dies beeinflusst die Systemleistung und den Systemwirkungsgrad. Im Grenzfall eines Kondensators mit unendlich großer Fläche ist der Eigenbedarf des Lüfters minimal und damit die Systemleistung und der Wirkungsgrad maximal. Im Grenzfall einer unendlich kleinen Übertragerfläche ist die Lüfterleistung maximal und damit die Systemleistung und der Wirkungsgrad minimal. Daher besteht ein Optimum bezüglich der Leistungsdichte, die Baugröße und Systemleistung beinhaltet. Für jeden Lastpunkt sind die Parameter Volumenstrom und Kondensatorübertragerfläche im Hinblick auf die maximale Leistungsdichte optimiert. Alternativ kann dies für die Kosten pro Leistungseinheit erfolgen. Die aus der Optimierung resultierende relative Wärmeübertragerfläche ist in Bild 7.138 dargestellt. Der Betriebspunkt mit 0,5 M und 70 °C bei 400 mV bildet den Basispunkt (=100 %). Eine Erhöhung der Betriebstemperatur von 70 °C auf 80 °C bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M führt zu einer Verkleinerung des Kondensators um circa 40 %. Eine Anhebung der Methanolkonzentration von 0,5 M auf 1 M bei 70 °C ergibt mehr als eine Verdopplung der Kondensatorfläche. Bei der

Verringerung der Zellspannung steig die Kondensatorfläche in Abhängigkeit von der Stacktemperatur an. Bei 60 °C zeigt sich eine Steigerung um 250 %, bei Verringerung der Zellspannung von 450 mV auf 250 mV. Für 80°C liegt der Anstieg nur bei etwa 100 %.

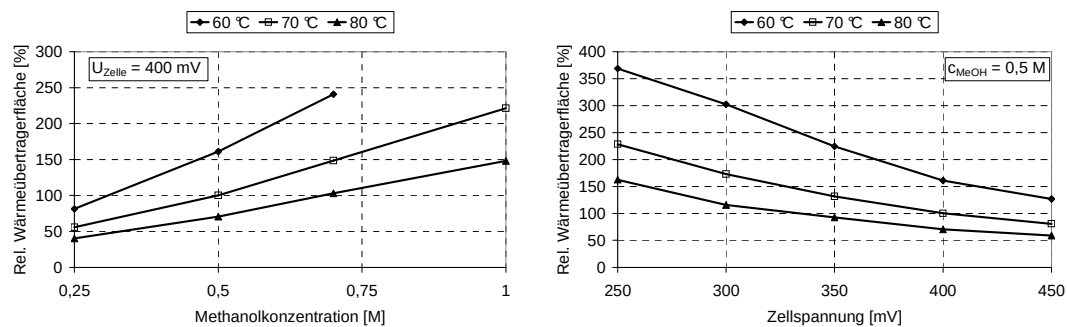


Bild 7.138: Relative Kondensatorgröße in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Die zu übertragende Wärmeleistung, aber auch der Wärmedurchgang und das treibende Temperaturgefälle bestimmen den Kühlluftvolumenstrom. Zusammen mit dem Druckverlust des Kondensators ergibt sich die Leistungsaufnahme des Kühlluftventilators (Bild 7.139). Hier ist die elektrische Leistungsaufnahme des Ventilators auf die elektrische Leistung des Stacks bezogen. Die Sensitivität gegenüber der Methanolkonzentration ist abhängig von der Stacktemperatur. Bei Temperaturen von 70 °C und 80 °C ergibt sich eine Vervierfachung des Eigenbedarfs zwischen einer Methanolkonzentration von 0,25 M und 1 M. Dies liegt an der höheren Abwärmeleistung des Stacks in Folge einer höheren Methanolpermeation. Bei einer Stacktemperatur von 60 °C ergibt sich daher ein noch stärkerer Einfluss der Methanolkonzentration, da die Luftzahlen deutlich höher ausfallen und damit das Abgas sehr weit abgekühlt werden muss. Das rechte Diagramm in Bild 7.139 zeigt den Einfluss der Zellspannung bei Temperaturen von 60 °C bis 80 °C. Eine höhere Zellspannung wirkt sich positiv auf den Eigenbedarf aus. Bei höheren Zellspannungen verringert sich einerseits die Abwärmeleistung und andererseits fließt bezogen auf die Stackleistung weniger Strom. Daher sinkt bei gleicher Luftzahl der Luftbedarf hinsichtlich der Stackleistung. Daraus ergibt sich eine Verringerung des Eigenbedarfs. Eine höhere Stacktemperatur und die damit verbundenen geringeren Luftzahlen führen ebenfalls zu einer deutlichen Verringerung des Eigenbedarfs. Eine Temperaturerhöhung von 60 °C auf 80 °C verringert die Leistungsaufnahme von 7 % auf 4 %. Zum einen spiegelt dies den verbesserten Wärmeübergang und zum anderen die geringere notwendige Abkühlung wider. Zusätzlich sinkt der prozentuale Eigenbedarf, da bei zunehmender Stacktemperatur auch die elektrische Leistungsabgabe des Stacks steigt.

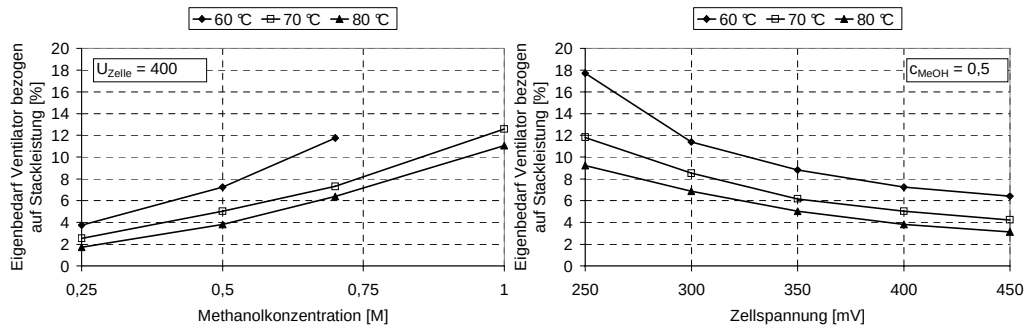


Bild 7.139: Elektrische Leistungsaufnahme des Ventilators in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

7.2.3 Stackleistung und -wirkungsgrad

Unter den vom Wärme- und Wassermanagement gesteckten systemtechnischen Rahmenbedingungen ergeben sich nun die Leistungsdaten für den Stack. In Bild 7.140 wird der Verlauf der elektrischen Leistung in Abhängigkeit von Temperatur, Methanolkonzentration und Zellspannung wiedergegeben. Die Leistungssensitivität gegenüber der Stacktemperatur ist bis circa 70 °C sehr stark und schwächt sich bei weiterer Erwärmung ab. Zwischen 40 °C und 70 °C ergibt sich fast unabhängig von der Methanolkonzentration eine Leistungszunahme von 200 W pro Dekade. Der Leistungsgradient zwischen 70 °C und 80 °C halbiert sich und führt dann nur noch zu einer zusätzlichen Leistung von 100 W. Die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leistung steigt mit fallender Zellspannung. Daher ergibt sich ein höherer Einfluss der Zellspannung auf die Leistung bei höheren Temperaturen.

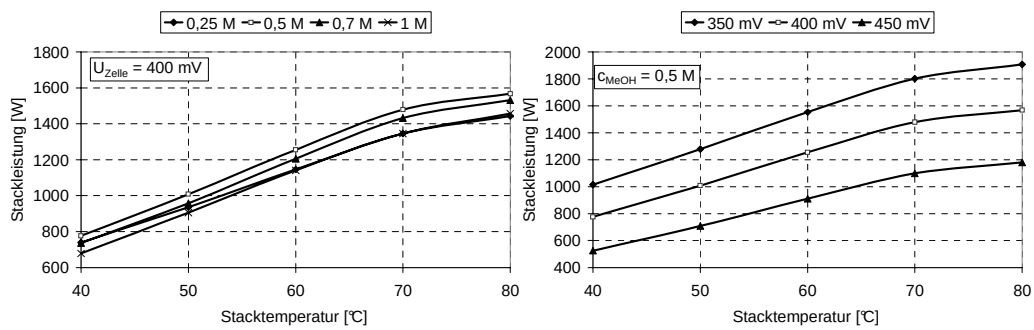


Bild 7.140: Elektrische Stackleistung in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 350 mV bis 450 mV (rechts)

Die wirkungsgradvermindernde Wirkung der Methanolpermeation zeigt sich in Bild 7.141. Bei der Methanolkonzentration zeigt sich der Grenzfall bei einer minimalen Methanolpermeation mit einem Faraday'schen Wirkungsgrad von fast 100 %. Hier kann ein Zellwirkungsgrad von fast 32 % erreicht werden. Eine Methanolkonzentration von 0,5 M ergibt einen Zellwirkungsgrad von 23 %. Bei höheren Methanolkonzentrationen bis 1 M sinkt der Zellwirkungsgrad deutlich durch Abnahme des Faraday'schen Wirkungsgrades auf unter 15 %. Für die Zellspannung lässt sich in Bild 7.141 ein Kurvenverhalten mit einem Optimum bei 400 mV für den betrachteten Temperaturbereich von 60 °C bis 80 °C erkennen. Bei niedrigen Zellspannungen sinkt der Spannungswirkungsgrad. Bei höheren Stacktemperaturen sinkt der Faraday'sche Wirkungsgrad aufgrund steigender Methanolpermeation bei konstanter Methanolkonzentration.

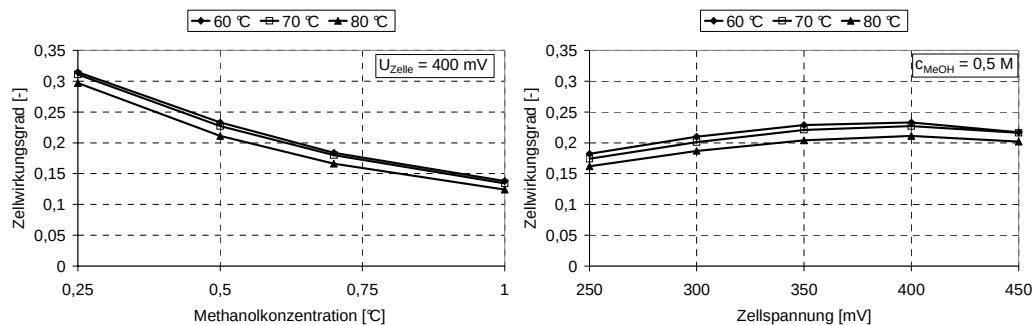


Bild 7.141: Zellwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

7.2.4 Optimierung von Systemleistung, -wirkungsgrad und der Systemleistungsdichte

In die Systemeigenschaften fließen zusätzlich die Beschaffenheit und das Verhalten der Hilfskomponenten mit ein. Im Wesentlichen sind dies der Bauraum und der Eigenbedarf der Wasserrückgewinnung im Kondensator. Dies verschiebt die Systemoptima bezüglich der Leistung und des Wirkungsgrades verglichen mit dem Stackverhalten.

Bild 7.142 zeigt die elektrische Leistung des Gesamtsystems unter Berücksichtigung des Eigenbedarfs des Kathodengebläse, der Umwälzpumpe und des Kühlluftgebläses. Für den Verbrauch der Umwälzpumpe wurden 30 W angenommen. Der Verbrauch des Kathodengebläses und des Kühlluftgebläses ist für jeden Berechnungspunkt ausgehend von der Leistung zur Volumenänderung der Gase ermittelt worden. Dabei wurde für das Kathodenradialgebläse ein Wirkungsgrad von 25 % und für das axiale Kühlluftgebläse ein Wirkungsgrad von 40 % angenommen. Die Gebläse und die Umwälzpumpe werden über ein DC/DC-Wandler mit 80 % Wirkungsgrad mit einer konstanten Spannung versorgt.

Man erkennt bei einer Zellspannung von 400 mV ein Leistungsoptimum bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M, das weitgehend unabhängig von der Stacktemperatur ist. Der

Einfluss der Wasserrückgewinnung verschiebt das Optimum der Stackleistungskurve zu kleineren Methanolkonzentrationen. Das Optimum in Abhängigkeit von der Zellspannung liegt bei 300 mV. Bei Stacktemperaturen über 60 °C verschiebt sich das Optimum geringfügig zu kleineren Zellspannungen.

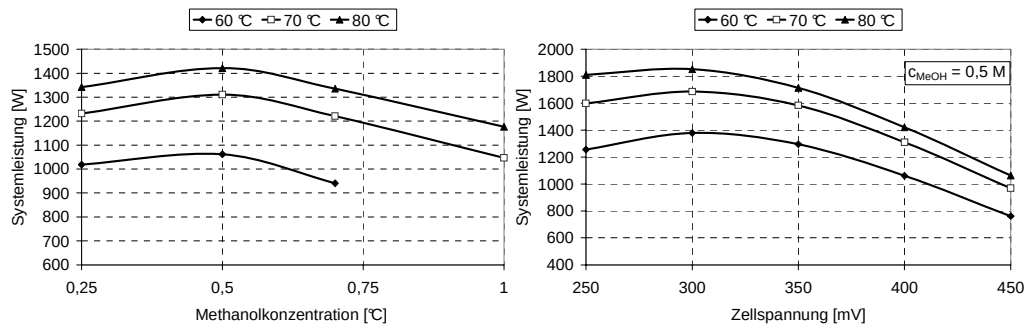


Bild 7.142: Elektrische Leistung des Systems in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Über die Abhängigkeit des Zellwirkungsgrades von der Methanolkonzentration fällt auch der Systemwirkungsgrad stark mit steigender Methanolkonzentration (Bild 7.143). Steigt die Methanolkonzentration von 0,25 M auf 1 M, fällt der Systemwirkungsgrad auf ein Drittel des Ausgangswertes. Für die Methanolkonzentration ergibt sich ein Randoptimum bezüglich des Systemwirkungsgrades. Je kleiner die Methanolkonzentration zum Betrieb des Brennstoffzellensystems gewählt werden kann, desto höher liegt der Systemwirkungsgrad. Betrachtet man den Parameter Zellspannung, zeigt sich bei 400 mV ein Bestpunkt bezüglich des Systemwirkungsgrades, der sich weitgehend temperaturinvariant verhält.

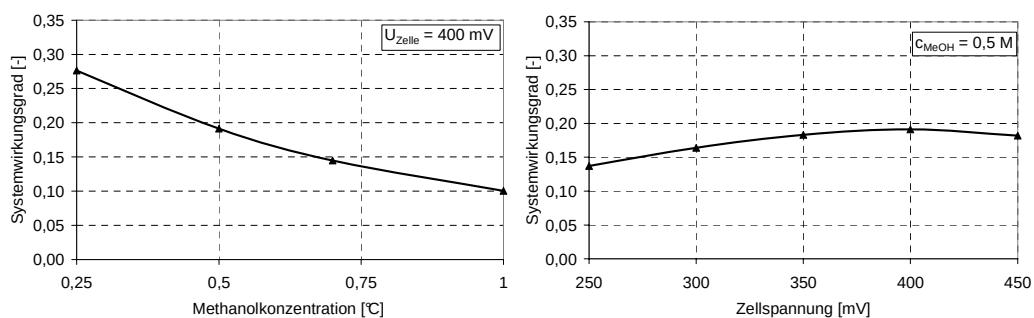


Bild 7.143: Systemwirkungsgrad bei 80 °C in Abhängigkeit von Methanolkonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Der Systemwirkungsgrad zeigt bei konstanter Zellspannung von 400 mV und einer Methanolkonzentration von 0,5 M nur eine geringe Abhängigkeit von der Stacktemperatur (siehe 154

Bild 7.144). Man erkennt ein Maximum zwischen 65 °C und 70 °C mit etwa 20,1 % Systemwirkungsgrad. Zu kleineren Temperaturen ist der Gradient der Kurve geringer als bei Temperaturen oberhalb des Optimums. Dies ist in der Zunahme der Methanolpermeation mit der der Stacktemperatur begründet. Bei Temperaturen unterhalb des Optimums steigt der spezifische Luftbedarf und damit sinkt der periphere Wirkungsgrad.

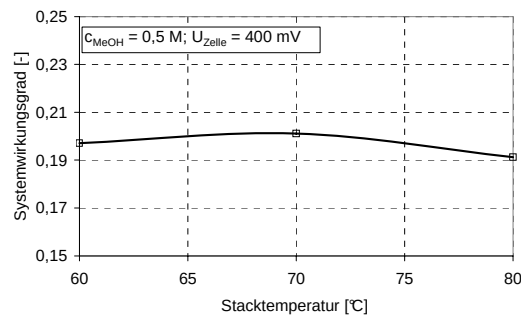


Bild 7.144: Systemwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Stacktemperatur bei einer Methankonzentration von 0,5 M und einer Zellspannung von 400 mV

Bezüglich der Leistungsdichte ergibt sich ein Randoptimum für die Methankonzentration und einen Bestpunkt für die Zellspannung, der sich wiederum in Abhängigkeit von der Temperatur verschiebt (Bild 7.145). Bei 60 °C Stacktemperatur liegt das Maximum der Leistungsdichte mit 32 W/l bei einer Zellspannung von 350 mV. Die Leistungsdichte erhöht sich auf 55 W/l bei 80 °C Stacktemperatur bei einer Zellspannung von 310 mV.

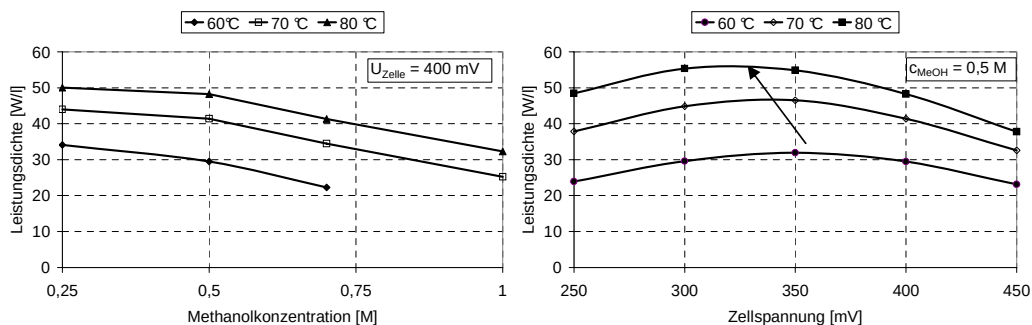


Bild 7.145: Leistungsdichte in Abhängigkeit von der Stacktemperatur für Methankonzentrationen von 0,25 M bis 1 M (links) und für Zellspannungen von 250 mV bis 450 mV (rechts)

Die Leistungsdichte steigt monoton mit der Stacktemperatur (Bild 7.146). Ein Anheben der Temperatur um 20 K von 60 °C auf 80 °C bewirkt eine Zunahme der Leistungsdichte von 29 W/l auf über 48 W/l. Dies liegt einerseits an der größeren Leistungsdichte des Stacks, andererseits an der geringeren Baugröße der Wasserrückgewinnung.

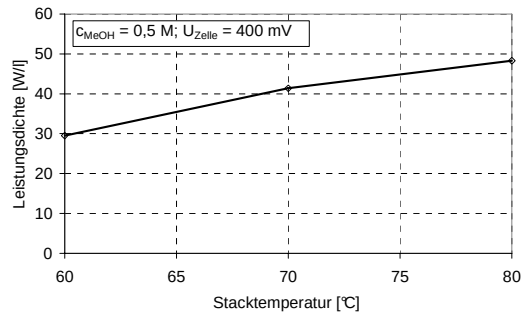


Bild 7.146: Leistungsdichte in Abhängigkeit von der Stacktemperatur bei einer Methanolkonzentration von 0,5 M und einer Zellspannung von 400 mV

7.3 Zusammenfassung

Die Methanolkonzentration stellt für den Wirkungsgrad und die Leistungsdichte des Systems einen wichtigen Parameter dar. Bezüglich der Stackleistung gibt es eine optimale Methanolkonzentration in Abhängigkeit von der Stromdichte und somit der Zellspannung. Unterhalb der optimalen Konzentration verringert eine Zunahme der anodischen Überspannungen die Stromdichte. Oberhalb der optimalen Konzentration bedingt die erhöhte Methanolpermeation sowohl eine schlechte Sauerstoffversorgung der Kathode und als auch eine stärkere Mischpotenzialbildung. Dadurch sinkt ebenfalls die Stromdichte. Die Ausprägung des Konzentrationsoptimums ist dabei abhängig von den Betriebsparametern. Bei niedrigen Stromdichten und hohen Zellspannungen ergibt sich ein klares Optimum. Bei hohen Stromdichten und niedrigen Zellspannungen zeigt die Leistungskurve zu höheren Konzentrationen einen flacheren Verlauf. Hier halten sich über einen weiten Konzentrationsverlauf die gegenläufigen Effekte auf der Kathode und auf der Anode die Waage. Betrachtet man den Einfluss der Methanolkonzentration auf die Systemleistung, ergibt sich eine Verschiebung des Optimums zu kleineren Konzentrationen. Der Leistungsabfall bei Konzentrationen oberhalb des Bestpunktes ergibt sich aus dem erhöhten Eigenbedarf für die kathodische Luftversorgung und die Wasserrückgewinnung. Für die Systemleistung ergibt aus der Simulation ein Optimum bei 0,5 M und 400 mV Zellspannung.

Für den Wirkungsgrad und die Leistungsdichte ergibt sich im Rahmen des betrachteten Konzentrationsbereichs ein Randoptimum bei 0,25 M. Hier tritt nur noch eine geringe Methanolpermeation auf. Unter Berücksichtigung der Verteilungseffekte im Stack, die im Modell nicht abgebildet werden, ist dieser Grenzfall jedoch nicht umsetzbar. Im Falle des getesteten 10-Zellers liegt die niedrigste Methanolkonzentration bei stabilem Betrieb mit einer Zellspannung von 350 mV bis 400 mV bei 0,4 M (siehe Abschnitt 3.3.6 und 3.3.7).

Die Stacktemperatur hat einen signifikanten Einfluss auf die Stackleistung bis etwa 70 °C. Bei Temperaturen oberhalb von 70 °C lässt der Einfluss der Stacktemperatur auf die Stackleistung jedoch deutlich nach. Die Systemleistung steigt etwas stärker als die Stackleistung, da hier eine Temperaturerhöhung den Eigenbedarf für die kathodische Luftversorgung und die Wasserrückgewinnung verringert. Der geringere Bauraumbedarf der Wasserrückgewinnung verstärkt den Temperatureinfluss auf die Leistungsdichte zusätzlich. Bei 80 °C ergibt sich wiederum ein

Randoptimum für die Systemleistung und Leistungsdichte. Bei höheren Betriebsdrücken wäre eine weitere Anhebung der Stacktemperatur möglich.

Der Stackwirkungsgrad erreicht bezüglich der Temperatur ebenfalls ein Randoptimum. Die Temperaturabhängigkeit der Methanolpermeation führt zu einer stetigen Zunahme des Stackwirkungsgrades bei fallender Temperatur. Der Einfluss des Eigenbedarfs der kathodischen Luftversorgung und der Wasserrückgewinnung führen zu einem Temperaturoptimum bezüglich des Systemwirkungsgrades bei ca. 70 °C.

Die Zellspannung hat für alle drei Zielgrößen unterschiedliche Optima. Die Systemleistung ist maximal bei einer Zellspannung von 280 mV bis 300 mV. Der Einfluss der Baugröße der Wasserrückgewinnung verschiebt den Bestpunkt für die Leistungsdichte zum Bereich zwischen 330 mV und 350 mV. Je höher die Zellspannung, desto geringer ist der spezifische Luftbedarf des Stacks. Damit sinken der spezifische Bauraumbedarf und der elektrische Eigenbedarf der kathodischen Luftversorgung und der Wasserrückgewinnung. Der Einfluss des Zellwirkungsgrades bewirkt eine weitere Verschiebung des Bestpunktes. Der maximale Systemwirkungswirkungsgrad wird bei 400 mV erreicht.

Tabelle 7.34 zeigt zusammenfassend die aus der jeweiligen Zielgrößenoptimierung resultierenden Parameter.

Tabelle 7.34: Parameteroptima			
Parameter	Systemleistung	Systemwirkungsgrad	Systemleistungsdichte
Methanolkonzentration (bei 400 mV)	0,5 M	0,25 M	0,25 M
Zellspannung (bei 0,5 M)	300 mV	400 mV	330-350 mV
Stacktemperatur	80 °C	70 °C	80 °C

Für die System ist keine universelle Auslegung möglich. Das System lässt sich nur bezüglich einzelner Zielgrößen optimieren. Bei Anwendung der optimalen Parameter ergeben sich die in Tabelle 7.35 aufgeführten Werte für die Systemleistung, den Systemwirkungsgrad und die Leistungsdichte. Unter Berücksichtigung der eingeschränkten Übertragbarkeit der Ergebnisse der Zellsimulation auf das reale Stackverhalten wird die minimale Methanolkonzentration auf 0,5 M festgelegt. Eine weiterführende Grenzoptimierung muss am realen System durchgeführt werden.

Bei einer Systemoptimierung bezüglich der elektrischen Leistung des Systems führt der Betrieb bei einer Zellspannung von 300 mV und 80 °C zu einer Systemleistung von 1850 W bei einem Wirkungsgrad von 16,4 %. Dabei wird eine Leistungsdichte bezogen auf den Stack, das Kathodengebläse und die Wasserrückgewinnung von 55 W/l erreicht.

Tabelle 7.35: Vergleich der charakterisierenden Kennzahlen für unterschiedliche Betriebsparameterkonfigurationen (Methanolkonzentration = 0,5 M)

Konfiguration	Systemleistung [W]	Wirkungsgrad [%]	Leistungsdichte [W/l] (bezogen nur auf Stack-, Gebläse- und Kondensatorvolumen)
Max. Leistung (300 mV, 80 °C)	1850 (100 %)	16,4 (82 %)	55 (100 %)
Max. Wirkungsgrad (400 mV, 70 °C)	1310 (71 %)	20,1 (100 %)	41 (75 %)
Kompromiss (350 mV, 70 °C)	1580 (85 %)	19,4 (97 %)	47 (85 %)

Das Wirkungsgradoptimum von 20,1 % stellt sich bei einer Zellspannung von 400 mV und einer Stacktemperatur von 70 °C ein. Die Leistungsdichte beträgt mit 41 W/l nur noch 75 % des Leistungsdichteoptimums und die Systemleistung mit 1310 W nur noch 71 % vom Leistungsbestpunkt. Ein Kompromiss der beiden Optimierungsstrategien stellt der dritte Fall dar, bei dem die Zellspannung gegenüber der Wirkungsgradoptimierung um 50 mV abgesenkt ist. Die Stacktemperatur verbleibt bei 70 °C. Dadurch werden 85 % der maximal erreichbaren Systemleistung und Leistungsdichte erreicht. Der Wirkungsgrad liegt mit 19,4 % nur 0,7 Prozentpunkte unterhalb des Wirkungsgradmaximums.

8 Umsetzung am Projektbeispiel „Scooter“

In diesem Kapitel wird die Umsetzung der Lösungsansätze bezüglich der Implementierung eines DMFC-Systems in einem elektrisch angetriebenen Scooter beschrieben. Die Aufgabestellung ist folgende

- Ersetzen der Bleiakkumulatoren
- Einpassen des DMFC-Systems in den Scooter ohne größere bauliche Änderungen am Scooter
- Keine Leistungseinbußen des Antriebssystems
- Verlängerung der Betriebsdauer des Scooters mit einer Tankfüllung
- Betankung nur mit Methanol

Das DMFC-System ist gemäß den in den Vorkapiteln ausgearbeiteten theoretischen und experimentellen Erkenntnissen ausgelegt und konstruiert:

- Systemkonzept nach Verfahrensentwurf in Kapitel 4
- Optimierung und Festlegung der Prozessgrößen sowie der Regelstrategien gemäß der Komponentenuntersuchungen in Kapitel 3 und 4 und den Systemrechnungen in Kapitel 7
- Auslegung und Bau neuer Komponenten nach Kapitel 6
- Auswahl und Beschaffung von am Markt verfügbaren Komponenten gemäß Kapitel 5

Nach einer Beschreibung des DMFC-Systems werden die erreichten charakteristischen Kennzahlen diskutiert. Danach erfolgt eine Analyse des Systemverhaltens bei Teillast und veränderter Umgebungstemperatur.

8.1 Beschreibung des Systems

Bild 8.147 zeigt das in Kapitel 4 entwickelte verfahrenstechnische Konzept erweitert um Messstellen und Steuersignalleitungen sowie Prozessgrößen. Das System wurde im Bereich maximalen Wirkungsgrades ausgelegt. Dies führt zu einer Zellspannung von 400 mV und einer Stacktemperatur von 70 °C. Die Methanolkonzentration liegt bei 0,5 M. Die Stackleistung beträgt 1480 W. Es werden 20 m³/h Luft zugeführt und etwa 1 kg/h Methanol verbraucht. Während des Nennbetriebs werden 10,2 l/h Wasser in den Anodenkreislauf zurückgepumpt.

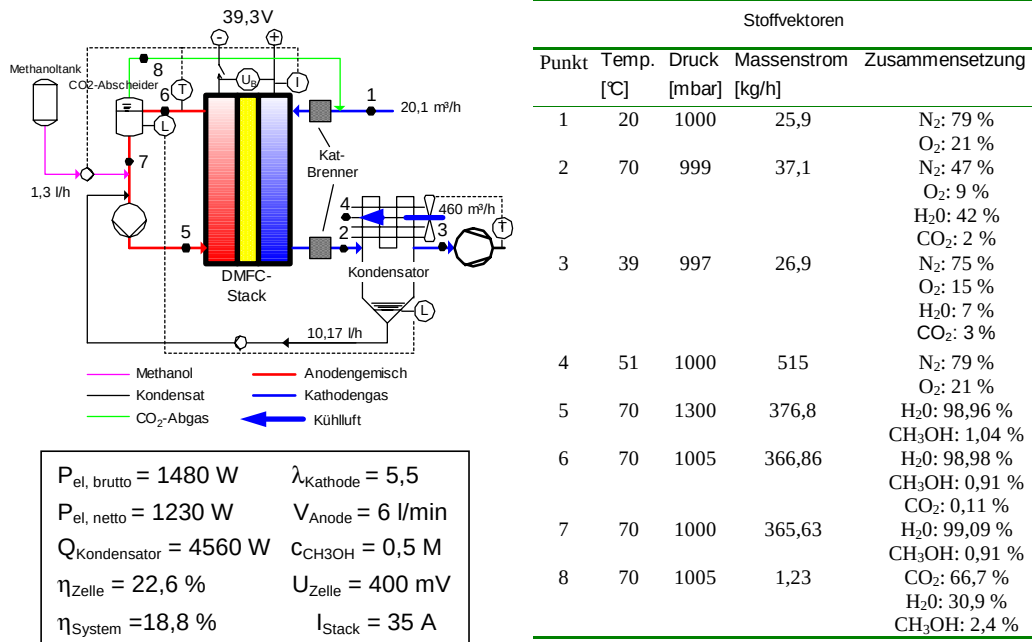


Bild 8.147: Schematische Darstellung des DMFC-Systems und Prozessdaten im Auslegungspunkt

Die Luftversorgung erfolgt über ein saugend am Ende des kathodischen Strömungspfad liegendes Radialgebläse (siehe Bild 8.148). Da es saugend angeordnet ist und auch als Tropfenabscheider verwendet wird, ist das Aluminiumgehäuse mit PTFE beschichtet. Die Abwärme des Stacks bei Betrieb wird allein über die Verdunstung des Wassers auf der Kathode abgeführt. Ein luftgekühlter Kondensator ermöglicht die Rückgewinnung des Wassers aus dem Kathodenabgas. Der Kondensator ist mit einer hydrophoben Beschichtung versehen. Eine Membranpumpe fördert das Kondensat zurück zur Anode. Innerhalb des Stacks wird über eine katalytische Beschichtung der Flowfields eine katalytische Reinigung der Kathodengase am Ein- und Austritt durchgeführt.

Der Anodenkreislauf besteht nur aus einem Abscheidebehälter und der Umwälzpumpe, die gemäß Kapitel 6.2 in den Stack integriert sind. Die Umwälzpumpe ist eine Flügelzellenpumpe. Im Abscheidebehälter wird unterstützt durch Fliehkräfte das Anodenabgas abgetrennt und vor dem Stack der Zuluft beigemischt. Über eine Innenzahnradpumpe wird Brennstoff in den Anodenkreislauf gefördert. Elektrisch parallel zum Stack ist ein Lithium-Ionen-Akkumulator geschaltet.

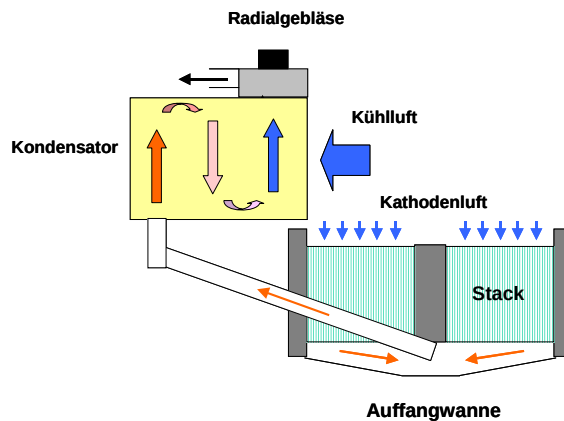


Bild 8.148: Schematische Darstellung des Luftpfades des DMFC-Systems im Scooter

Im Weiteren sind Verfahren zum vereinfachten Betrieb des Systems beschrieben, die einen robusten und automatisierten Betrieb des Systems ermöglichen.

Methanolzuführung in Abhängigkeit von Temperatur und Strom

Die Methanolversorgung erfolgt gemäß der in Kapitel 6.3 beschriebenen Prozedur mit einer Steuerung des Faraday'schen Wirkungsgrades. Zusätzlich wird in Abhängigkeit der Stacktemperatur die zudosierte Methanolmenge angepasst. Bei Temperaturen unterhalb der Auslegungstemperatur wird zusätzliches Methanol in den Kreislauf gepumpt. Dies führt zu einer beschleunigten Aufwärmphase, bei der auf der Kathode oxidierendes Permeationsmethanol als Wärmequelle dient. Ist der Nenntemperaturbereich von 60 °C bis 70 °C erreicht wird ein Faraday'scher Wirkungsgrad von ca. 70 % angesteuert.

Warmfahren des Stacks mit direkt gekoppeltem Lüfter

Um den Stack bei Stacktemperaturen unter 40 °C kontrolliert zu belasten, wird zunächst der Axiallüfter direkt auf den Stack geschaltet. Ein kontrollierter Stromfluss schützt den Stack zum einen vor einer Überbelastung, aber ermöglicht zum anderen eine Beschleunigung der Aufwärmphase gegenüber einem nicht belasteten Stack.

Zuluftregelung in Abhängigkeit von der Stacklast

Die Zuluftmenge wird über den Laststrom gesteuert. Dabei wird eine Rampenfunktion gewählt, da bei kleinen Stromstärken aufgrund stark erhöhter Methanolpermeation die Zuluftmenge nicht mehr proportional zum Laststrom gesenkt werden kann.

Steuerung der Zuschaltung des Stacks nach dem Ladegrad der Batterie

Die Höhe der Batteriespannung respektive des Ladegrades der Batterie steuert das Umschalten des DMFC-Systems auf den Laststromkreis. Hierbei ist eine Hysterese eingebaut, die ein häufiges Hin- und Herschalten vermeidet. Fällt die Batteriespannung unter einen Grenzwert U_{zu} , wird das DMFC-System zugeschaltet und übernimmt zugleich die Versorgung des Antriebsmotors sowie die

Aufladung des Akkumulators. Steigt die Batteriespannung wiederum über den Grenzwert U_{ab} wird die Brennstoffzelle über den Leistungsschalter von Last und Batterie getrennt und im Leerlauf betrieben.

8.2 Charakteristische Kennzahlen

Bei einer Stackleistung von 1480 W ergibt sich eine Nettoleistung für das System von etwa 1230 W im Auslegungspunkt. Die parasitäre Leistungsaufnahme des Systems beträgt 250 W. Damit wird ein Wirkungsgrad des peripheren Systems von 83 % erreicht. Der Systemwirkungsgrad beträgt 18,8 % bezogen auf den oberen Heizwert. Auf den unteren Heizwert (Heizwertspannung: 1,18 V) bezogen liegt der Systemwirkungsgrad bei 20 %. In Bild 8.149 sind die einzelnen Verluste auf Zellspannungsbasis dargestellt. Ausgangspunkt ist die Heizwertspannung von 1,254 V, die auf dem oberen Heizwert der Methanoloxidation basiert. Die thermodynamischen Verluste durch Entropieänderungen ergeben einen thermodynamischen Wirkungsgrad von 97 % und einen Spannungsabfall von 45 mV. Die elektrochemischen Verluste aufgrund von Unterschieden zu den Standardbedingungen und bei Stromfluss auftretenden Irreversibilitäten summieren sich zu einem Spannungsverlust von 810 mV. Dies ergibt einen Spannungswirkungsgrad von 33 %. In diesen Verlusten sind die elektrochemischen Einflüsse durch die Methanolpermeation bereits enthalten. Der eigentliche Brennstoffverlust kann durch einen weiteren aber fiktiven Spannungsabfall ausgedrückt werden. Bei einem Faraday'schen Wirkungsgrad von 73,3 % ergibt sich ein Spannungsabfall um weitere 107 mV. Der Methanolverlust über das Anodenabgas bewirkt eine Spannungsabsenkung um 9 mV ($\eta_F^A = 97 \%$). Die Spannungseinbußen durch den parasitären Verbrauch der Komponenten des peripheren Systems summieren sich zu 48 mV. Schlussendlich beträgt die fiktive Zellspannung bei der Energiewandlung 236 mV.

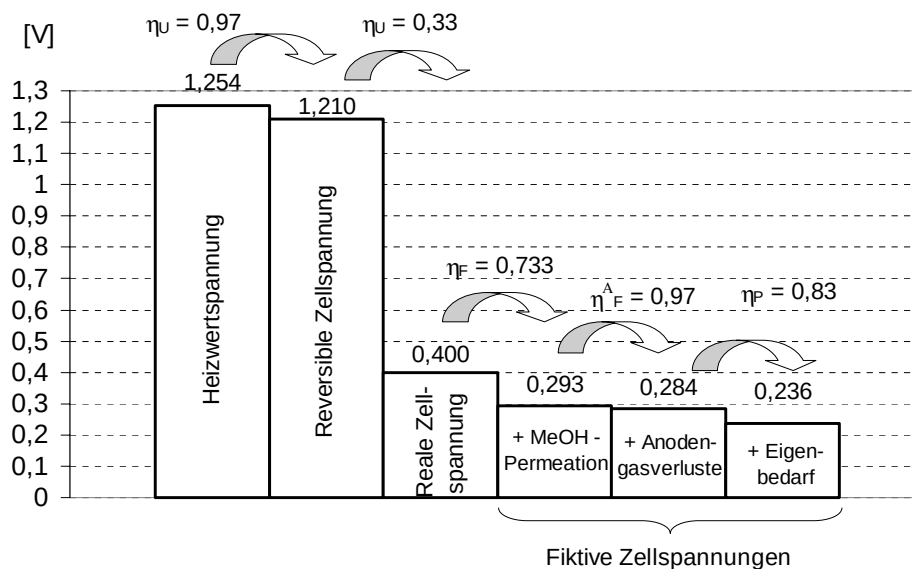


Bild 8.149: Zellspannungsverluste für das DMFC-System im Auslegungspunkt

Die Aufteilung des parasitären Verbrauchs auf die peripheren Komponenten ist in Bild 8.150 gezeigt. Größter Verbraucher ist der Kühlluftventilator mit etwa 34 % Anteil am parasitären Verbrauch. Auf Pumpen und Gebläse entfallen 62 % des Eigenbedarfs. Die Verluste im DC/DC-Konverter (Wirkungsgrad von 80 %) sind gesondert aufgeführt. Sie ergeben etwa 18 % des gesamten Eigenbedarfs.

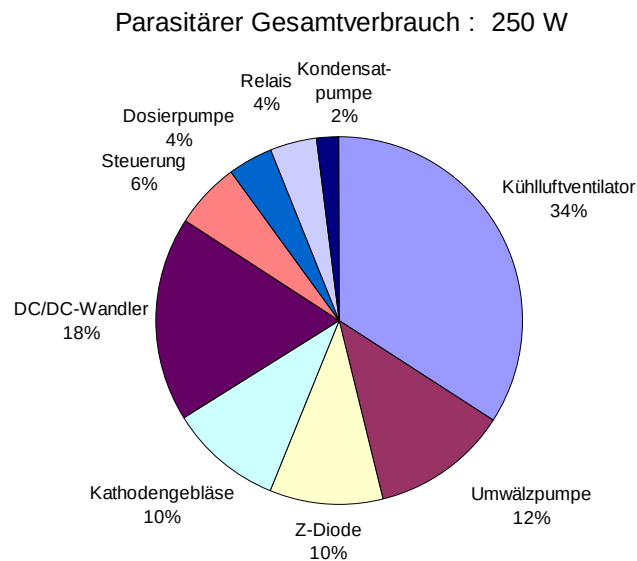
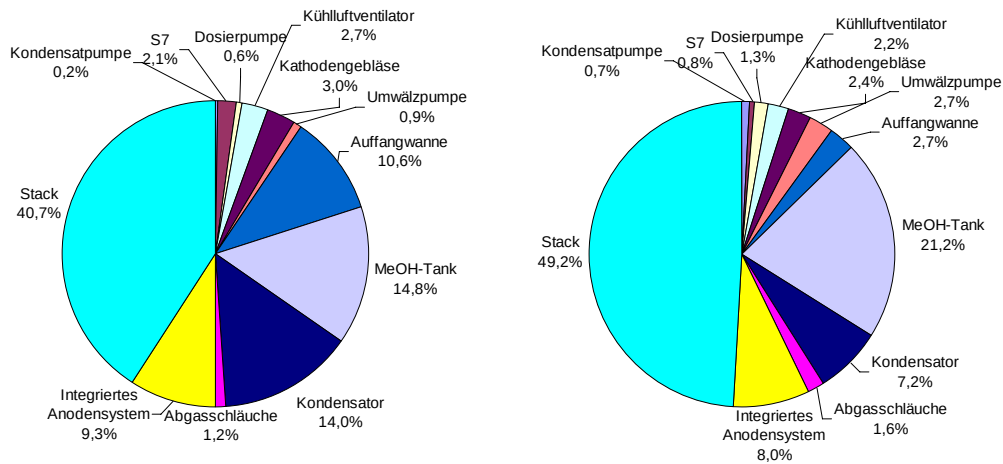


Bild 8.150: Aufteilung des parasitären Verbrauchs

In Bild 8.151 ist eine Volumen- und Gewichtsbilanz für das DMFC-System mit gefüllten 7 l-Tank dargestellt. Das System nimmt ein Volumen von 43,4 l ein. Das Gewicht beträgt 34,2 kg. Mit 41 % des Gesamtvolumens und 49 % des Gesamtgewichts fallen jeweils die größten Anteile auf den Stack. Beim peripheren System zeigen Methanoltank und Kondensator den größten Volumenanteil mit 15 % beziehungsweise 14 % vom Gesamtvolumen. Es folgen die Auffangwanne und das integrierte Anodensystem mit Anteilen von 11 % respektive 9 %. Bei der Gewichts Betrachtung weist der volle Methanoltank mit 21 % den höchsten Anteil aus.



DMFC-Systemvolumen: 47,4 l
 Volumen der Akkus: 4 l
 Gesamtvolumen: 51,4 l

DMFC-Systemgewicht: 37,4 kg
 Gewicht der Akkus: 8,2 kg
 Gesamtvolumen: 45,6 kg

Bild 8.151: Volumen- und Gewichtsanteile der Einzelkomponenten und Gesamt volumen

Die sich daraus ergebenden volumen- und gewichtsbezogenen Kennzahlen sind in Tabelle 8.32 aufgeführt.

Tabelle 8.36: Leistungsdichte und spezifische Leistung der Komponenten und des Gesamtsystems

	Leistungsdichte [W/l]	Spezifische Leistung [[W/kg]	Energiedichte [Wh/l]	Spezifische Energie [Wh/kg]
DMFC-Stack	63,7	66,8	-	-
Peripheres System	43,8	64,8	-	-
Gesamt o. Batterien	25,9	32,9	185,1	146,0
Gesamt mit Batterien	23,9	27,0	151,8	134,8

Verglichen mit den publizierten Leistungsdichten und spezifischen Leistungen anderer ausgeführter DMFC-Systeme (siehe Abschnitt 2.2) liegt das hier entwickelte DMFC-System sehr gut. Um die DOE-Ziele von 200 W/kg zu erreichen, muss die spezifische Leistung nahezu verfünffacht werden. Die DOE-Werte gelten für Notstromaggregate und leichte mobile Anwendungen wie zum Beispiel Motorroller. Für andere Nischenanwendungen können die Leistungswerte jedoch schon ausreichend sein.

8.3 Betriebsverhalten des Systems

Bild 8.152 zeigt das Wirkungsgradverhalten des DMFC-Systems bei einer vom Nennpunkt abweichenden elektrischen Leistung. Die Kurve zeigt den berechneten System- und Faraday'schen Wirkungsgrad bei einer konstanten Stacktemperatur von 70 °C und einer Methanolkonzentration von

0,5 M. Die auf den Auslegungspunkt optimierte Methanolkonzentration wird bei Teillast nicht angepasst, da die Steuerung zu träge auf Lastsprünge reagiert und es zu Instabilitäten bei einzelnen Zellen kommen kann.

Es zeigt sich eine leichte Abnahme des Systemwirkungsgrades bis etwa 75 % Teillast von 18,9 % auf etwa 17 %. Dann sinkt der Wirkungsgrad mit weiter abnehmender Last stark ab auf einen Wert von 8 % bei etwa 25 % Teillast. Ein geringerer Laststrom bewirkt bei gleicher Methanolkonzentration eine steigende Methanolpermeation. Dieses zeigt der Verlauf des Faraday'schen Wirkungsgrades ebenfalls in Bild 8.152. Er sinkt von über 73,3 % bei Nennlast auf etwa 30 % bei 25 % Teillast. Einen ebenfalls negativen Einfluss auf das Teillastverhalten hat das periphere System. Der periphere Wirkungsgrad sinkt, da nur die Leistung von Kühlgebläse und Kathodengebläse der Last angepasst wird. Die elektrische Leistungsaufnahme der übrigen Komponenten ist konstant und bildet einen Sockel, der den peripheren Wirkungsgrad und somit auch den Systemwirkungsgrad herabsetzt.

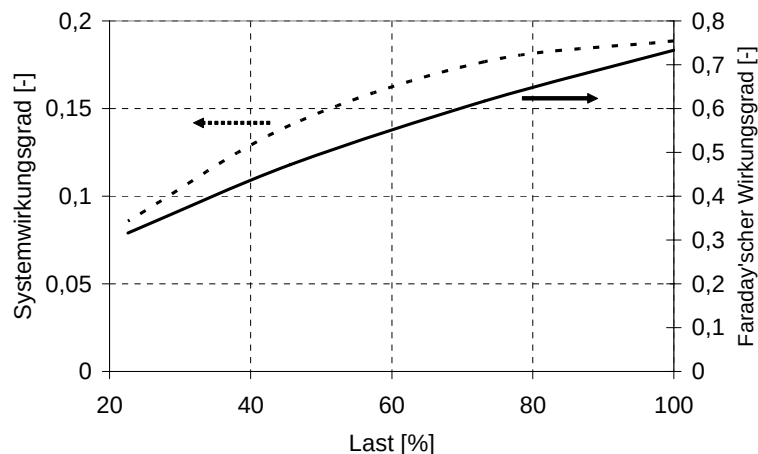


Bild 8.152: Systemwirkungsgrad und Faraday'scher Wirkungsgrad im Teillastbetrieb des DMFC-Systems

Für die Auslegung des Systems ist eine Umgebungstemperatur von 20 °C angenommen worden. In Bild 8.153 ist der Systemwirkungsgrad und die auf den Auslegungspunkt bezogene Kühlgebläseleistung in Abhängigkeit von der Umgebungstemperatur dargestellt. Bei Temperaturen unterhalb der Auslegungstemperatur sinkt die Kühlgebläseleistung aufgrund des größeren Temperaturgefälles zwischen Kühlluft und Kathodenabgas. Somit verringert sich der notwendige Kühlluftmassenstrom. Bei 10 °C Umgebungstemperatur erreicht die Kühlgebläseleistung etwa 60 % des Auslegungswertes und der Systemwirkungsgrad steigt um einen halben Prozentpunkt. Bei Umgebungstemperaturen über 20 °C erhöht sich dementsprechend der notwendige Kühlluftmassenstrom. Die Kühlgebläseleistung steigt stark an und erreicht bei einer Temperatur von 30 °C fast den siebenfachen Auslegungswert. Der Systemwirkungsgrad sinkt auf 12 %. Die Weiterführung der Kurve bei Umgebungstemperaturen über 20 °C ist jedoch fiktiv. Das reale Gebläse ist für eine maximale Temperatur für 20 °C dimensioniert. Bild 8.154 zeigt die Wasserbilanz des DMFC-Systems bei einer konstanten Gebläseleistung in Abhängigkeit von der

Umgebungstemperatur. Bei Temperaturen oberhalb der Auslegungstemperatur ist die Bilanz negativ. Bei 30 °C gehen dem System fast 2 l/h Wasser verloren. Unterhalb von 20 °C zeigt sich eine positive Bilanz. Bei 10 °C werden dem System 0,6 l/h Wasser zugeführt. Bei einer negativen Wasserbilanz muss entweder Wasser nachgetankt werden, oder es wird die Systemleistung zurückgefahren bis sich ein positiver Wasserbilanzstrom einstellt.

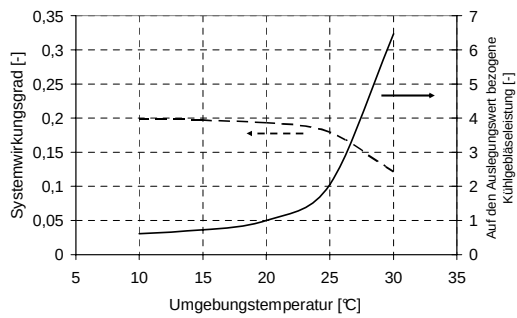


Bild 8.153: Systemwirkungsgrad und relative Kühlgebläseleistung in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur bei Systemnennleistung

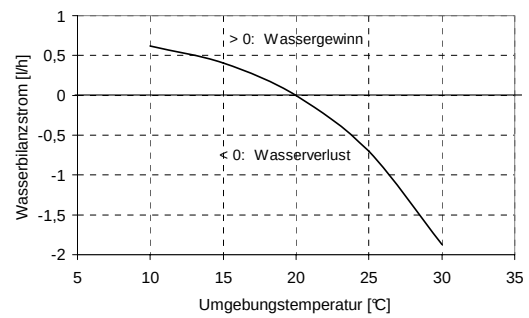


Bild 8.154: Wasserbilanz des DMFC-Systems in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur bei Systemnennleistung

9 Zusammenfassung und Ausblick

Die notwendige Kompaktierung und Vereinfachung eines DMFC-Systems ist nur durch ein integriertes Konzept zu realisieren, das das periphere System und den Stack ideal miteinander kombiniert. Dabei ist eine genaue Analyse des Stacks und der peripheren Komponenten eine wichtige Voraussetzung für ein optimiertes Design. Über eine Modellierung des Gesamtsystems kann das Potenzial eines Systemkonzepts erschlossen werden.

Im Stand der Technik werden die theoretischen Grundlagen der direkten Verstromung von Methanol in einer Brennstoffzelle erläutert. Die charakterisierenden Kennzahlen von Stack und System werden diskutiert und der Stand der Entwicklung aufgezeigt. Eine wichtige Zielvorgabe ist die weitere Kompaktierung und Vereinfachung des Systems.

Den Ausgangspunkt zur Systementwicklung bilden die ausführliche Betrachtung der DMFC und die Modellierung des Stackverhaltens. Der Einfluss der wichtigsten Betriebsparameter wie Stacktemperatur, Zellspannung, Stromdichte, Luftzahl und Methanolkonzentration sind mit ausreichender Genauigkeit vom Modell erfasst und experimentell validiert worden. Dies bildet den Grundrahmen für die folgende Entwicklung eines optimierten Systementwurfs. Hier werden für die definierten Aufgaben des peripheren Systems Alternativen untersucht und die optimale Lösung ausgewählt. Daraus ergibt sich ein optimaler Entwurf für das Gesamtsystem. Grundlegender Vorteil des Systementwurfs ist die erzielte Vereinfachung des Systems. Das Wärmemanagement wird an das Wassermanagement gekoppelt. Ein zusätzlicher Kühler im Anodenkreislauf ist nicht notwendig. Dies ermöglicht erst die Integration des Anodenkreislaufs in den Stack. Durch die Einspeisung des Anodenabgases vor der Kathode wird der Stack als Katalytbrenner genutzt. Dadurch können ohne systemtechnischen Aufwand die Emissionsgrenzwerte eingehalten werden. Die saugende Anordnung des Kathodengebläses vereinfacht das Luftmanagement erheblich. Ein Verteilerhaube am Eintritt des Stacks entfällt ebenso wie ein Tropfenabscheider hinter dem Kondensator. Zudem erzeugt die Saugströmung im Stack eine homogene Verteilung des Luftstroms auf die einzelnen Zellen.

Bei der Charakterisierung der Fluidenergiemaschinen werden anhand des Systementwurfs und der besonderen Anforderungen an die Komponenten in einem DMFC-System die am Markt verfügbaren Pumpen und Gebläse untersucht. Mit der konsequenten Anwendung der spezifischen Drehzahl gelingen eine Ordnung und eine Vorauswahl der verfügbaren Maschinentypen. Für den Einsatz in der Umwälzung im Anodenkreislauf sind eine Kreisel- und Flügelzellenpumpe am besten geeignet. Der Wirkungsgrad der Kreiselpumpe kann mit 33 % in dieser Leistungsklasse angegeben werden. Der Eigenbedarf der Flügelzellenpumpe im Scooter-System liegt bei etwa 2 %. Ein Einsatzkennfeld für eine gemeinsame Optimierung von Pumpe und Anodenumwälzung des Stacks ist erarbeitet worden. Für die Auswahl eines Kathodengebläses ergibt sich für den Bereich unter 20 mbar kathodischen

Druckverlust nur der Einsatz eines Radialgebläses, das Wirkungsgrade bis zu 40 % erreichen kann. Bei kathodischen Druckverlusten bis zu 100 mbar lassen sich am besten Seitenkanal- und Hochdruckradialgebläse einsetzen. Hier liegen die Wirkungsgrade im Bereich von 25 % bis 30 %. Für die Auswahl einer geeigneten Methanoldosierpumpe ist eine Analyse des Förderbereiches und der Kennliniengenauigkeit vorgenommen worden.

In Kapitel 6 ist die Neuentwicklung von Komponenten beschrieben. Die Untersuchung und die Modellierung des Abgaskondensators führen zu einem optimierten Designentwurf für das Scooter-DMFC-System. Des Weiteren ist die Integration des Anodenkreislaufes bestehend aus Versorgungsleitungen, Umwälzpumpe, Anodengasabscheider mit Anodenabgasleitungen in den Stack gelungen. Das Verfahren zur stabilen Brennstoffversorgung wird erläutert und experimentell untersucht. Dabei ist die Brennstoffversorgung mit den Prozessgrößen Stromdichte und Stacktemperatur gesteuert. Hiermit ist es möglich zum einen die Methanolkonzentration in einem Bereich von 0,4 M bis 0,6 M zu halten, und zum anderen beim Anfahren durch eine temperaturabhängige Zusatzdosierung von Methanol die Aufwärmung des Systems auf Nenntemperatur zu beschleunigen. Die Parallelschaltung des Stacks mit einem Lithium-Ionen-Akkumulator wird als Möglichkeit der Konditionierung der elektrischen Leistungsabgabe untersucht. Der Stack kann durch die Kopplung vor Überlastung geschützt werden. Die theoretische Betrachtung der Parallelschaltung ermöglicht eine optimierte Auslegung von Stack und Akkumulator. In experimentellen Untersuchungen wurden die Funktionsweise und das Zusammenspiel der beiden Komponenten dokumentiert. Der Wirkungsgrad der Energiespeicherung in einem Lithium-Ionen-Akku liegt bei moderaten Lastströmen bei über 90 %.

Bei der statischen Systemmodellierung ist der Einfluss der Betriebsparameter auf die charakterisierenden Kennzahlen elektrische Leistung, Wirkungsgrad und Leistungsdichte herausgearbeitet worden, ebenso die Implikationen der Verknüpfung von Wärme- und Wassermanagement. Das System lässt sich erst bei Betriebstemperaturen oberhalb von 70 °C kompakt ausführen, da bei kleineren Stacktemperaturen eine erhöhte Luftzahl zur Wärmeabfuhr notwendig ist. Dies verringert das Temperaturniveau im Kondensator beträchtlich und führt zu höheren Kühlluftvolumenströmen und Kondensatorflächen.

Bei weiterer Erhöhung der Stacktemperatur steigt die Verdunstungsrate und damit sinkt die Luftzahl unterhalb des Sauerstoffversorgungslimits. Hier lässt sich der Stack nur bei gleichzeitiger Anhebung des Betriebsdruckes betreiben. Dieses erhöht aber den Eigenbedarf und erfordert eine aufwändigere und teurere Luftversorgung.

Bei der Parameteroptimierung zeigt sich, dass für das System keine universelle Auslegung möglich ist. Das System lässt sich nur bezüglich einzelner Zielgrößen optimieren. Zum Beispiel sind für einen maximalen Systemwirkungsgrad eine Zellspannung von 400 mV und eine Stacktemperatur von 70 °C ermittelt worden.

Bei der Systembetrachtung haben gegenüber der Einzelstackbetrachtung das Wasser- und Wärmemanagement und damit die Kondensatoreinheit die größte Relevanz. Der Eigenbedarf des Kondensatorkühlluftgebläses ist der markante Parameter des peripheren Systems. Der aus der Einzelstackbetrachtung bekannte große Einfluss der Methanolpermeation wird durch das

Peripherieverhalten noch weiter verstärkt, ebenso wie die Forderung nach einer homogenen Verteilung der zugeführten Edukte.

Das Kapitel 8 beschreibt die Entwicklung einer Stromversorgung für einen Scooter. Hierfür ist ein kompaktes System mit einer elektrischen Nettoleistung von 1230 W realisiert worden. Der Systemwirkungsgrad beträgt 18,8 %. Das Gesamtgewicht und –volumen ohne Lithium-Ionen-Akkus liegt bei 37,4 kg beziehungsweise 47,4 l. Dies ergibt eine spezifische Leistung von 32,9 W/kg und eine Leistungsdichte von 25,9 W/l. Mit einem 7-l-Tank lässt sich das System 5 Stunden unter Nennlast betreiben, welches einer Energiedichte von 185,1 Wh/l entspricht.

Eine Untersuchung des Teillastverhaltens ergibt ein starkes Abfallen des Systemwirkungsgrades unterhalb 60 % Teillast. Die Umgebungstemperatur hat ebenfalls starken Einfluss auf den Systemwirkungsgrad und die Wasserbilanz des Systems.

Der Schwerpunkt der Weiterentwicklung des Gesamtsystems liegt im Stack. Eine weitere Verringerung der Edelmetallbelegung und eine Erhöhung der Leistungsdichte sind wichtig. Im Hinblick auf eine weitere Erhöhung des Systemwirkungsgrades ist die Senkung der Methanolpermeation vor allem in Teillast eine wichtige Stellschraube. Hierbei kommt der homogenen und vielleicht auch individuellen Versorgung der Zellen eine enorme Bedeutung zu. Je weiter die Methankonzentration und Luftzahl zur Wirkungsgraderhöhung abgesenkt werden, desto stärker ist der Bedarf einer individuellen Konditionierung der Einzelzellen im Stack. Systemtechnisch bedeutet dies eine Verlagerung der Versorgungsaufgaben in den Stack und eine Realisierung einer Einzelversorgung der Zellen im Stack.

Des Weiteren ist systemtechnisch eine Weiterentwicklung der Anodengasbehandlung sinnvoll. Die elektrochemische Umsetzung in einer mit Anodenabgas gespeisten DMFC ist viel versprechend. Ebenso würde eine Anodenabgasreinigung mittels Gaswäsche einen deutlichen Wirkungsgradgewinn ermöglichen. Hier muss ein kompaktes und integriertes Design nachgewiesen werden.

Das integrierte Anodensystem ist erster konstruktiver Entwurf. Hier liegt Potenzial in der Auswahl eines besseren Materials im Hinblick auf Materialbeständigkeit, Fertigung und Gewicht. Die Integration einer Kreislumpumpe könnte den Eigenverbrauch absenken. Magnetische Antriebe ermöglichen Lösungen mit einem vollständig im Anodenkreis integrierten Pumpenkörpers. Ein außen liegender Antrieb könnte über eine magnetische Kupplung die Leistung überragen. Für eine weitere Optimierung des Abgaskondensators könnten in Zukunft neue Materialien wie Graphitschäume zu einem kompakteren und effizienteren Design führen.

10 Literaturverzeichnis

- [1] K. Kordesch, G. Simader: „Fuel Cells and their Application“; VCH; 1996
- [2] C.H Hamann, W. Vielstich: „Elektrochemie I“, 1.Auflage, Wiley-VCH, 1975
- [3] J. Larminie, D. Andrew: „Fuel Cell Systems explained“, Wiley-VCH, 2000
- [4] T. Danks, R. Slade, J. Varcoe: “Comparison of PVDF- and FEP-based radiation-grafted alkaline anion-exchange membranes for use in low temperature portable DMFC”, Journal of Material Chemistry, 3371-3373, 12, 2002
- [5] K. Kordesch, V. Hacker, U. Bachiesl: „Direct methanol-air fuel cells with membranes plus circulating electrolyte“, Journal of Power Sources, 200-023, 96, 2001
- [6] S. Andrian: „Verfahrensanalyse eines Direkt-Methanol-Brennstoffzellen-Systems für mobile Anwendungen“; Dissertation RWTH-Aachen, Berichte des Forschungszentrums Jülich Nr. 3869; 2001
- [7] Erfindungsmeldung FZ-Julich , 2003
- [8] A. Siebke: „Modellierung und numerische Simulation der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle “; Dissertation Universität Stuttgart, Fortschr.-Ber. VDI-Reihe 3 Nr. 786, Düsseldorf, VDI-Verlag 2003
- [9] R. Dillon, A. S. Arico, S. Srinivasan, V. Antonucci: “International activities in DMFC R&D: status of technologies and potential applications”; Journal of Power Sources, 127, S.112-126, 2004
- [10] H. Wang, H. Baltruschat: "CO-ad coverage and current efficiency of methanol oxidation studied by DEMS and potential step" ,Direct Methanol Fuel Cells, S. Narayanan, T. Zawodzinski, S. Gottesfeld (eds), Electrochemical Society Proceedings, Pennington 2001, PV 2001-4, p. 50
- [11] H. Wang, C. Wingender, H. Baltruschat, M. Lopez, M. T. Reetz
"Methanol oxidation on Pt, PtRu, and colloidal Pt electrocatalysts: a DEMS study of product formation";J. Electroanal. Chem. 2001,509, 163
- [12] A. S. Arico, S. Srinivasan, V. Antonucci: „DMFCs: From Fundamental Aspects to Technology Development“, Fuel Cells ,1, No 2, S. 133-161, 2001
- [13] M. Neergat, K. A. Friedrich, U. Stimming: “New Materials for DMFC MEAs”; Kapitel 63, Volume 4, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Application, Wiley, 2003
- [14] T. Bewer: „Massenströme und Stromdichteverteilung in flüssig gespeisten Direkt-Methanol-Brennstoffzellen“; Dissertation RWTH-Aachen, Berichte des Forschungszentrums Jülich Nr. 4029; 2003
- [15] H. Dohle, K. Wippermann: „Experimental evaluation and semi-empirical modelling of U/I characteristics and methanol permeation of a direct methanol fuel cell“, Journal of

- Power Sources 135 (2004) 152-164
- [16] Ballard Power Systems; Press Release 02/2006; www.ballard.com
 - [17] X. Ren, S. Gottesfeld: „Electro-osmotic Drag of Water in Poly(perfluorosulfonic acid) Membranes“, J. of Electrochemical Society, 148 (1) A87-A93 (2001)
 - [18] U. Pasaogullari, C.Y. Wang: „Liquid Water Transport in Gas Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cells“, J. Electrochem. Soc., 151 (3) (2004), 399-406
 - [19] R. M. Moore, P. Badrinarayanan, J. M. Cunningham, C. Diniz: „System Analysis as a guide in optimizing DMFC membrane properties “, Fuel Cell Vehicle Modeling Project, University of California, Davies CA USA, 2004
 - [20] C. Y. Wang: “Two-phase flow and transport”; Kapitel 29, Volume 3, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Application, Wiley, 2003
 - [21] H. Dohle: „Entwicklung und Modellierung von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen“; Dissertation RWTH-Aachen, Berichte des Forschungszentrums Jülich Nr. 3752; 2000
 - [22] G. Q. Lu, C. Y. Wang: “Electrochemical and flow characterization of a direct methanol fuel cell”; Journal of Power Sources, 134, S.33-40, 2004
 - [23] K. Tüber, D. Pocza, C. Hebling: “Visualization of water buildup in the cathode of a transparent PEM fuel cell”; Journal of Power Sources, 124, S.403-414, 2003
 - [24] S. R. Narayanan, T. I. Valdez: “Portable direct methanol fuel cell systems”; Kapitel 81, Volume 4, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Application, Wiley, 2003
 - [25] Produktinfo Juli 2005, Firma MTI MicroFuelCells,
 - [26] Toshiba Review Vol. 60 No.7, 2005
 - [27] Piotr Zelenay: “Direct Methanol Fuel Cells”, Hydrogen, Fuel Cells & Infrastructure Technologies, Annual Review, Philadelphia, Pennsylvania, May 19-22, 2003
 - [28] S.R. Narayanan, T.I. Valdez, N. Rohatgi: “DMFC system design for portable applications”; Kapitel 65, Volume 4, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Application, Wiley, 2003
 - [29] Jürgen Mergel: “DMFC-System – Stand und Perspektiven”, Vortrag 9. Fachkongress Zukunftsenergien, 15.03.2005 in Essen
 - [30] P. Zelenay : „Direct Methanol Fuel Cells“, DOE Hydrogen Program FY 2005 Progress Report, 2006
 - [31] Produktinfo Juli 2005, Firma Thinxxs, www.thinxxs.com
 - [32] Z. Guo, Y. Cao : “A passive fuel delivery system for portable direct methanol fuel cells”; Journal of Power Sources, 2004
 - [33] DOE USA: „Proceedings of Workshop Fuel Cells for Portable Power“, Januar 2002, Phoenix, USA
 - [34] Patent US 6527943 B1: „Fuel Cell Concentration Sensor“; Ballard Power Systems; 1999
 - [35] Patent WO 01/28021 A1: „Method and Device for Determining the Concentration of Fluid Fuels to be Used in Fuel Cells“; Siemens AG; 2000
 - [36] A. Lamm, J. Müller; “System design for transport applications”; Kapitel 64, Volume 4, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Application, Wiley, 2003

- [37] A. Kindler, T. Valdez, C. Cropley, S. Stone, E. Veksler "Development of a 1 kW Direct Methanol Fuel Cell System" – Proceedings of 199th meeting of Electrochemical Society, Washington, 2001
- [38] Patent DE 1 383 191 A1: „Verfahren zur Abtrennung von Kohlendioxid aus einem Gemisch von Wasser und Brennstoff sowie zugehörige Vorrichtung“; Siemens AG; 2000
- [39] Patent WO 02/15306 A2: „Method for Separating Fuel out of a Waste Gas, and Corresponding Device“; Siemens AG; 2001
- [40] Patent EP 1 383 191 A1: „Fluidtrennvorrichtung“; SFC Smart Fuel Cell AG; 2004
- [41] S. Adachi: "Fuel Cell System for Motorcycles" Yamaha Technical Review 2004-3 NO.37
- [42] H. Dohle, H. Janssen, J. Mergel, M. Noelke, D. Stolten: „DMFC Systems 2.5 kW class compact design“; Proceedigs Fuel Cell Seminar 2002; 357-370; Palm Springs (USA)
- [43] H. Dohle: „Recent Developments of the Measurement of the Methanol Permeation in a Direct Methanol Fuel Cell“, Journal of Power Sources 105 (2002) 274-284
- [44] Vectrix Prospekt
- [45] Patent EP 1376724 A1: "Hybridenergiequelle"; SFC Smart Fuel Cell AG; 2002
- [46] Bericht Umweltbundesamt
- [47] Autorenkollektiv: Richtlinie zur Feststellung und Beurteilung von Geruchsimmissionen, (Geruchsimmissions-Richtlinie) GIRL, Stand 13.5.1998; LAI (Länderausschuss für Immissionsschutz 96. Sitzung), S. 5-8, 17-18.
- [48] Firmenprospekte Yamaha und Honda, 2005
- [49] Produktinfo Juli 2005, Firma Ball Aerospace Technology Corp., www.ballaerospace.com
- [50] M. Müller et al.: "Progress in DMFC Stack Development and System Integration at Forschungszentrum Jülich", 3rd European PEFC Forum, Luzern 2005
- [51] E. D. Gilles et al.: "Dynamische Simulation komplexer chemischer Prozesse", Chemie-Ingenieur-Technik, 58, 268-278, 1986
- [52] M. Finkenrath: "Modelling the Dynamic Behaviour of a Planar SOFC CHP System", Proceedings of the 6th European SOFC Forum, Luzern, Schweiz, 569-578, 2004
- [53] Scott, K.; Taama, W.; Cruickshank, J. Power Sources 65 (1997), 159
- [54] Scott, K.; Taama, W.; Cruickshank, J. Appl. Electrochemistry 28 (1998), 289
- [55] A.Kulikovsky Electrochemistry Communications, 5 (2003), 530
- [56] F.N. Büchi, G. G. Scherer: „Investigation of Transversal Water Profile in Nafion® Membranes in Polymer Electrolyte Fuel Cells“, J. of Electrochemical Society, 148 (3) A183-A188 (2001)
- [57] A.Kulikovsky, Fuel Cells, 1(2), 162-169, 2001
- [58] J.G. Wijmans, R.W. Baker: "The solution-diffusion model: a review“, Journal of Membrane Science 107, 1-21, 1995
- [59] T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, J. of Electrochemical Society, 138 (8) 2334-2342 (1991)
- [60] S. Motupally, A. Becker, J. Weidner: "Diffusion of Water in Nafion® 115 Membranes“, J. of Electrochemical Society, 147 (9) 3171-3177 (2000)

-
- [61] J. Yi, T. Nguyen: "An Along-the-Channel Mode for Proton Exchange Membrane Fuel Cells", J. of Electrochemical Society, 145 (4) 1149-1159 (1998)
- [62] S. Dutta, A. Shimpalee, J.W. Van Zee: "Three-dimensional numerical simulation of straight channel PEM fuel cells", J. Appl. Electrochemistry 30 135-146, 2000
- [63] S. Um, C.Y. Wang: „Three-dimensional analysis of transport and electrochemical reactions in polymer electrolyte fuel cells“, J. Power Sources 125 (2004), 40-51
- [64] T.Nguyen, R.E. White: „A Water and Heat Management Model for Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells“, J. of Electrochemical Society, 140 (8) 2178-2186 (1993)
- [65] J. Divisek, J. Fuhrmann, K. Gärtner, R. Jung: „Performance Modelling of a Direct Methanol Fuel Cell“, J. of Electrochemical Society, 150 (6) 811-825 (2003)
- [66] G. Eigenberger, F. Meier: „Transport parameters for the modelling of water transport in ionomer membranes for PEM-fuel cells“, Electrochimica Acta, 49 1731-1742, 2004
- [67] D. Natarajan, T.V. Nguyen, J. Electrochem. Soc. 148 S. 1324 (2001)
- [68] T.E. Springer, M.S. Wilson and S. Gottesfeld, J. Electrochem. Soc., 140 (1993), 3513-3526
- [69] J. Hinatsu, M. Mizuhata and H. Takenaka, J. Electrochem. Soc., 141 (1994), 1493-1498
- [70] A.A. Kulikovsky: „The voltage-current curve of a direct methanol fuel cell: exact and fitting equations“, Electrochem. Communications 4, (2002) 939-946
- [71] R. H. Perry: „Perry's Chemical Engineers' Handbook“, McGraw Hill, 1999
- [72] F.L.A. Ganzevles, "Drainage and condensate heat resistance in dropwise condensation of multicomponent mixtures in a plastic plate heat exchanger", PhD. Thesis, TU Eindhoven, 2002
- [73] R.K. Shah, A.L. London: „Laminar Flow Forced Convection in Ducts “, Academic Press, 1979
- [74] E. Blaß: „Entwicklung verfahrenstechnischer Prozesse: Methoden, Zielsuche, Lösungssuche, Lösungsauswahl; 2. Auflage, Springer Verlag; 1997
- [75] H. Dohle: „Heat and Power Management of a DMFC System “ , Journal of Power Sources 111 (2002) 268-282
- [76] K. Kauder, J. Temming: „Stationäres Betriebsverhalten eines Schraubenmaschinen Lader-Expander Systems für ein automobiles Brennstoffzellenfahrzeug“, Schraubenmaschinen Nr. 10, ISSN 0945-1870, S. 117-126, Universität Dortmund, 2002
- [77] Beiratsbericht FZ-Jülich 2004
- [78] Patent WO 00/63990: "Device and Method for Humidifying a Fuel Cell Membrane and Fuel Cell"; Mannesmann AG; 2000
- [79] A. Bejan: "Heat Transfer"; Wiley, New York, 1993
- [80] T. Bewer: „Massenströme und Stromdichteverteilung in flüssig gespeisten Direkt-Methanol-Brennstoffzellen“; Pp. 103; Dissertation RWTH-Aachen, Berichte des Forschungszentrums Jülich Nr. 4029; 2003
- [81] W. Pohlenz: „Pumpen für Flüssigkeiten“, 4. Auflage, VEB Verlag Technik Berlin, 1984
- [82] G. Vetter: „Handbuch Dosieren“, S. 100, Vulkan-Verlag Essen, 1994

- [83] W.M. Kays, A.L. London: „Compact Heat Exchangers“, McGraw-Hill, 1984
- [84] „VDI-Wärmeatlas“, 7. Auflage, VDI-Verlag, 1994
- [85] H.D. Baehr, K. Stephan: „Wärm- und Stoffübergang“, 3. Auflage, Springer-Verlag, 1998
- [86] W. Wagner: „Strömung und Druckverlust“, 5. Auflage, Vogel-Verlag, 2001
- [87] Produktkatalog ebmpapst 2004
- [88] R.M. Moore, S. Gottesfeld, P. Zelenay: “ A Fuel Control Strategy that Optimizes the Efficiency of a Direct-Methanol Fuel Cell in an Automotive Application”; SAE Technical Paper Series 1999-01-2913; 1999
- [89] C. Knobel: „Untersuchungen zum dynamischen Verhalten von DMFC-Systemen zur Optimierung der Betriebsführung“, Diplom-Arbeit, Universität Paderborn, 2003
- [90] P. W. Atkins “Physikalische Chemie”; 1990
- [91] J. Gmehling, B. Kolbe: “Thermodynamik”; 2. Auflage; VCH, 1992
- [92] H. Moczala: „Elektrische Kleinstmotoren und ihr Einsatz“ expert-verlag, 1979
- [93] H. Rentzsch: „Elektromotoren“, ABB Drives AG, 1992
- [94] Persönliche Kommunikation mit ebmpapst
- [95] Herstellerkataloge ebmpapst, Bosch, Ametek, Faulhaber, Bühler, Minebea 2004
- [96] B. Denmark: „Drehzahlregelung von Lüftern – Teil 1“, Elektronik Industrie 5-2001 50-56
- [97] W. Schöneberger: „Rotierende Verdrängerpumpen – Übersicht und Definitionen, Bauarten, Einsatzgebiete, Kavitation“, Pumpen Kompressoren Vakuumpumpen, 1993
- [98] D.-H. Hellmann: „Vergleich und Einsatzbereiche verschiedener Pumpenbauarten“, Wasser und Abwasser Praxis, Ausgabe 4, August 1997, 30-33
- [99] W. Bohl: „Pumpen und Pumpenanlagen – Auswahl und Betrieb von Flüssigkeitspumpen“, 3. Auflage, expert-verlag, 1982
- [100] J. Blaha: “Klassifikation der Pumpenarten nach den spezifischen Drehzahlen”; Maschinenmarkt, Würzburg, Jg. 81, Heft 18, 1975
- [101] G. Grabow: „Optimalbereiche von Fluidenergiemaschinen – Pumpen und Verdichter“, Forschung im Ingenieurwesen 67 (2002) 100-106, Springer-Verlag
- [102] O. Cordier: „Ähnlichkeitsbetrachtungen für Strömungsmaschinen“, BWK Bd. 5 Nr. 10, 1953
- [103] G. Grabow: „Betrachtung von Strömungsmaschinen am erweiterten Cordier-Diagramm“, Maschinenmarkt, Würzburg 102 (1996) 44
- [104] G. Grabow: „Erweitertes Cordier-Diagramm für Verdrängermaschinen“, Maschinenmarkt, Würzburg 102 (1996) 17
- [105] DIN 24 163 Teile 1-3: Ventilatoren, Leistungsmessung, Normkennlinien. Hrsg. Deutscher Normungsausschuss, Ausgabe Januar 1985
- [106] G. Vetter: „Verdichter Handbuch“, Vulkan-Verlag Essen, 1990
- [107] C. Hoffmann, G. Pfitzer: „Ventilatoren“, IKARUS Teilprojekt 8 Querschnittstechniken, Forschungszentrum Jülich, 1994
- [108] S. Fink, F. Ilmberger, A. Saller: „Kompressionsmaschinen“, IKARUS Teilprojekt 8 Querschnittstechniken, Forschungszentrum Jülich, 1996

- [109] S. Fink, F. Ilmberger, A. Saller: „Pumpen“, IKARUS Teilprojekt 8
Querschnittstechniken, Forschungszentrum Jülich, 1996

11 Nomenklatur

Lateinische	Formelzeichen	Einheit
A_Q	Querschnittsfläche	[m ²]
a	Aktivität	[-]
α_{Kat}	Durchtrittsfaktor	[-]
c_p	isobare Wärmekapazität	[J/(kgK)]
c_{CH_3OH}	Molare Methanolkonzentration	[M]
i	Stromdichte	[A/cm ²]
i_n	lokale Stromdichte	[A/cm ²]
i_{Kat}^*	Austauschstromdichte	[A/cm ³]
i_{Perm}	Permeationsstromdichte	[A/cm ²]
I	Stromstärke	[A]
f	Reibbeiwert	[-]
f_i^g	Fugazität	[-]
f_n	Fitfaktoren	[-]
F	Faraday'sche Konstante	[C/mol]
d_h	hydraulischer Durchmesser	[m]
D	Diffusionskoeffizient	[m ² /s]
ΔG_R	freie Reaktionsenthalpie	[kJ/mol]
ΔH_R	Reaktionsenthalpie	[kJ/mol]
Δh_{vap}	Verdampfungswärme	[kJ/mol]
L	Kanallänge	[m]
l_{Platte}	Dicke der Wärmeübertragerplatte	[m]
l_{Mem}	Membrandicke	[μm]
$J(s)$	Sättigungsfunktion	[-]
k	Wärmedurchgangskoeffizient	[W/(m ² K)]
k_r	relative Permeabilität	[-]
K	Permeabilität	[m ²]
$\dot{m}$	Massenstrom	[kg/s]
$\bar{m}$	Spezifische Leistung	[W/kg]
M	Molmasse	[g/mol]

n_q	spezifische Drehzahl	[min ⁻¹]
n	Drehzahl	[min ⁻¹]
$\dot{n}$	Molenstromdichte	[mol/s cm ²]
$\dot{N}$	Molenstrom	[mol/s]
p	Druck	[bar]
p_c	Kapillardruck	[bar]
P	Leistung	[W]
$\hat{P}_{Zelle}$	Leistungsdichte	[W/cm ²]
$\dot{q}$	Wärmestromdichte	[W/cm ²]
$\dot{Q}$	Wärmestrom	[W]
R	allgemeine Gaskonstante	[J/mol K]
R_{BZ}	Innenwiderstand Brennstoffzelle	[Ohm]
R_{Akku}	Innenwiderstand Akkumulator	[Ohm]
s	Sättigung	[-]
ΔS_R	Reaktionsentropie	[kJ/mol K]
T	Temperatur	[°C]
t_{Trans}	Transportzahl	[-]
u	Strömungsgeschwindigkeit im Kanal	[m/s]
U	Spannung	[V]
U_{th}	Thermoneutrale Spannung	[V]
U_{rev}	Reversible Zellspannung	[V]
U_{HW}	Heizwertspannung	[V]
$\dot{V}$	Volumenstrom	[m ³ /h]
$\bar{V}$	Leistungsdichte	[W/l]
w	senkrechte Fließgeschwindigkeit	[m/s]
y	Molanteil im Gas	[-]
Y	Förderarbeit	[J/kg]
x	Molanteil in der Flüssigkeit	[-]
$Z_{Wechsel}$	Raumwechselzahl	[-]
Griechische	Formelzeichen	Einheit
α	Wärmeübergangskoeffizient	[W/(m ² K)]
β	Stoffübergangskoeffizient	[m ² /(s m)]
δ_{Mem}	Trockene Dichte der Membran	[kg/m ³]
δ	Durchmesserzahl	[-]
ε	Porosität	[-]
ϕ	Ackermann-Korrekturfaktor	[-]

Nomenklatur

γ_i	Aktivitätskoeffizient	[-]
γ_{Kat}	Reaktionsordnung	[-]
η_{An}	Anodische Überspannung	[V]
η_F	Faraday'sche Wirkungsgrad	[-]
η_F^A	Anodischer Faraday'scher Wirkungsgrad	[-]
η_{th}	Thermodynamischer Wirkungsgrad	[-]
η_P	Wirkungsgrad des peripheren Systems	[-]
η_U	Spannungswirkungsgrad	[-]
η	dynamische Viskosität	[kg/(sm)]
φ	Fugazitätskoeffizient	[-]
λ	Wärmeleitfähigkeit	[W/(mK)]
λ_K	Luftzahl	[-]
λ_w	Wassergehalt in der Membran, Anzahl der Moleküle pro Sulfonsäuregruppe	[-]
ν	kinematische Viskosität	[m ² /s]
ρ	Dichte	[kg/m ³]
θ	Kontaktwinkel des porösen Körpers	[°]
σ_{Mem}	Leitfähigkeit der Membran	[S/cm]
σ	Oberflächenspannung des Wassers	[N/m]
σ_S	Schnelllaufzahl	[-]
ζ	Ackermann-Korrekturfaktor / Druckverlustbeiwert	[-]

Indizes

0	Standardbedingung
An	Anode
EOD	Elektroosmotischer Drag
g	gasförmig
ges	gesamt
Hyd	Hydraulisch
is	isentrop
K	Kompressor
K	Kathode
Kat	Katalysatorschicht
Kond	Kondensat
Konv	Konvektion
l	flüssig
n	Lokale Größe
P	Pumpe
Peripherie	Peripheres Teil des Brennstoffzellensystems

Rf	Referenz
Verd	Verdunstung
Zelle	Zelle eines Brennstoffzellenstapels
Δ	Differenz

Akronyme

CCM	Catalyst Coated Membrane
DMFC	Direkt-Methanol-Brennstoffzelle
JPL	Jet Propulsion Lab
LANL	Los Alamos National Lab
MEA	Membran-Elektroden-Einheit
PEFC	Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzelle
PEM	Polymer-Elektrolyt-Membran
PEEK	
ppm	parts per million (volumenbezogen)
PTFE	

12 Anhang

12.1 Standardbildungsenthalpien und -entropien

Tabelle 12.37: Standardbildungsenthalpien und -entropien [90]		
Stoff	Enthalpie h^0 [kJ/mol]	Entropie s^0 [J/mol K]
CH ₃ OH (l)	-238,7	126,8
H ₂ O (l)	-285,8	69,9
H ₂ O (g)	-241,8	188,8
CO ₂	-393,5	213,7
O ₂	0	205,1

12.2 Berechnung der thermodynamische Phasengleichgewichte im DMFC-System

Im thermodynamischen Gleichgewicht ist für jede Komponente des Gemisches die Fugazität der flüssigen gleich der der gasförmigen Phase:

$$f_i^l(T, p, x_i) = f_i^g(T, p, y_i) \quad (12.116)$$

Die Fugazität einer Komponente i in einer Dampf- oder Gasphase berechnet sich nach

$$f_i^g(T, p, y_i) = y_i p \varphi_i(T, p, y_i) \quad (12.117)$$

Der Fugazitätskoeffizient φ gibt die Abweichung vom idealen Gaszustand infolge höherer Drücke an. Bei kleinen Drücken ≤ 1 bar kann die Gasphasenkorrektur vernachlässigt werden, das heißt φ kann für jede Komponente gleich 1 gesetzt werden.

Die Fugazität einer Komponente i in einer Flüssigkeit ergibt sich aus:

$$f_i^l(T, p, \bar{x}) = x_i \gamma_i(T, \bar{x}) f_{0,i}^l(T, p) \quad (12.118)$$

Die Bezugsfugazität $f_{0,i}$ der reinen Flüssigkeit wird vereinfacht zu:

$$f_{0,i}^l(T, p) = p_{s,i}(T) \quad (12.119)$$

Die Flüssigkeit setzt sich zusammen aus Wasser, Methanol und gelöstem Kohlendioxid, welches jedoch in der thermodynamischen Betrachtung vernachlässigt wird. Aufgrund der Polarität der Wasser- und Methanolkoleküle kann nicht von einer idealen Flüssigkeit ausgegangen werden. Als Ansatz zur Berechnung der Aktivitätskoeffizienten γ_i wird der UNIQUAC-Ansatz [91] ausgewählt. Es

ergibt sich aus den Gleichungen 1.4-1.7 zur Berechnung der Gasanteile von Methanol und Wasserdampf:

$$y_i = \frac{x_i \gamma_i p_{s,i}(T)}{p} \quad \text{mit } i = H_2O; CH_3OH \quad (12.120)$$

12.3 Elektrische Antriebe

Die Fluidenergiemaschinen sind mit elektrischen Antrieben gekoppelt. Die Antriebe werden von dem Stack direkt oder über einen DC/DC-Wandler gespeist. Bei der Direktkopplung muss der Antrieb den relativen großen Gleichspannungshub der Zellen abdecken. Bei einer Schaltung mit einem DC/DC-Wandler liegt eine konstante Gleichstromspannung an. Bei einer Anwendung mit Wechselstrom-Ausgang besteht die Möglichkeit des Einsatzes von Wechselstrommotoren.

Im Folgenden werden nur Gleichstromantriebe und deren Einsatzpotenzial für ein DMFC-System betrachtet. Bei Antrieben mit einer Leistung unter 1 kW wird von Kleinstmotoren gesprochen [92]. Bild 12.155 zeigt eine strukturierte Übersicht von den möglichen elektrischen Antrieben für ein DMFC-System.

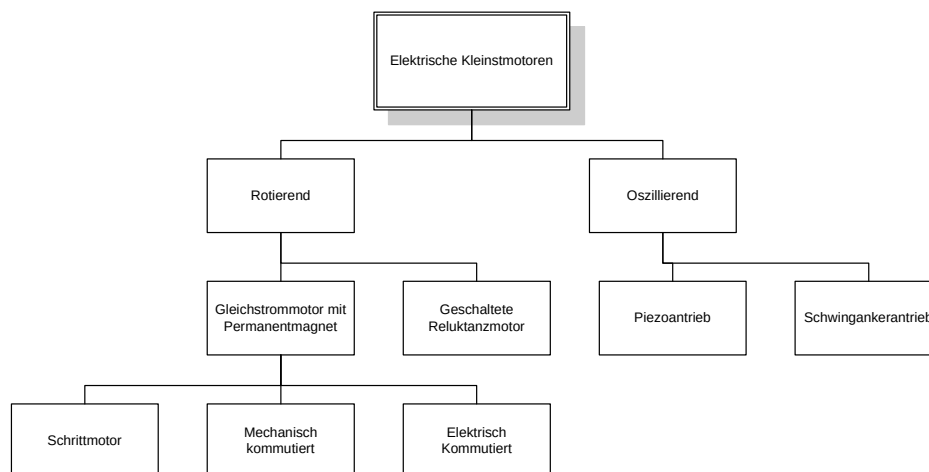


Bild 12.155: Übersicht Gleichstromkleinstantriebe

Rotierende Gleichstrommotoren

Als Antrieb für Pumpen und Gebläse in dieser Leistungsklasse werden hauptsächlich Motoren mit Permanentmagneterregung eingesetzt. Diese Bauweise bietet einen einfachen und kompakten Aufbau und wegen der wegfallenden Erregerleistung einen besseren Wirkungsgrad verglichen mit einer elektromagnetischen Erregung. Kostengünstigster und vorwiegend im Massenmarkt eingesetzter Magnetwerkstoff ist Ferrit. Andere deutlich teurere Magnetwerkstoffe wie Alnico oder SeCo führen zu höheren Wirkungsgraden und Leistungsdichten des Motors [93]. Bei den mechanisch kommutierten Gleichstrommotoren wenden Bürstenkontakte (zumeist Graphit) die Polung der Spulen. Das bei diesen Typen auftretende Bürstenfeuer macht eine explosionsgeschützte Ausführung praktisch unmöglich. Die elektrische Kommutierung erfolgt über eine sensorgesteuerte Umpolung

durch eine zusätzliche Elektronik. Die somit bürstenlosen Antriebe bieten eine höhere Lebensdauer und höhere Drehzahlen, sind aber teurer in der Herstellung verglichen mit Bürstenmotoren. Bei einem Stellmotor wird über am Umfang verteilte schaltbare Pole der Rotor in einer stabilen Lage gehalten. Die Anzahl der Pole bestimmt die Genauigkeit der Positionierung des Rotors. Ein Impulssignal steuert die Bewegung des Schrittmotors. Je höher die Frequenz des Signals desto höher ist die Drehzahl des Motors. Schrittmotoren zeichnen sich durch das hohe Drehmoment, die genau einstellbare Drehzahl und die Möglichkeit der Positionierung aus. Daher ist der Schrittmotor sehr gut für Dosieraufgaben geeignet.

Der geschaltete Reluktanzmotor ist mit stark genuteten Ständer und Läufer ausgestattet. Wicklungen sind nur im Ständer konzentriert untergebracht, um ausgeprägte Pole zu erzeugen. Der Rotor besteht aus Blechpaketen, die entsprechend ihrem genuteten Aufbau den Fluss der Ständerspulen durch eine Änderung des magnetischen Widerstandes (Reluktanz) beeinflussen. Dadurch wirkt ein Moment auf den Läufer, der sich entsprechend der Spulen ausrichtet. Um eine Drehbewegung zu realisieren, müssen die einzelnen Spulen entlang des Ständers geschaltet werden. Reluktanzmotoren haben vergleichbare Wirkungsgrade zu Permanentmagnet oder erregten Motoren. Aufgrund des leichten und kompakten Aufbaus des Rotors lassen sich mit Reluktanzmotoren jedoch sehr hohe Drehzahlen erreichen.

Oszillierende Gleichstrommotoren

Beim Schwingankerantrieb bewegt sich ein Kolben im elektromagnetischen Feld einer Spule. Beim Ausschalten des Feldes drückt eine Feder den Kolben in seine ursprüngliche Position. Die oszillierende Bewegung treibt den Pumpenkopf einer Membran- oder Kolbenpumpe. Diese direkte Kopplung sorgt für geringen Platzbedarf. Pumpen mit diesem Antrieb benötigen keine Wellendichtungen.

Der Piezoantrieb nutzt den Piezoeffekt. Bei Anlegen einer Spannung an ein Piezoelement dehnt sich dieses aus. Nach Spannungsunterbrechung wird der ursprüngliche Zustand wieder eingenommen. Als Pumpenantrieb wird das Piezoelement auf eine eingespannte Membran aufgeklebt. Die Längenänderung des Piezoelements bewirkt dadurch eine Variation des Volumens der Pumpenkammer.

Wirkungsgrad von elektrischen Antrieben

Verglichen mit Wechselstrom-Kleinstmotoren liegen die Wirkungsgrade von ausgeführten Gleichstrommotoren wegen der hohen Kosten für Batterieenergie höher. Bild 12.156 zeigt typische Wirkungsgrade von Gleichstrommotoren von ausgeführten Modellen von verschiedenen Herstellern. Man erkennt eine klare Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Leistung des Motors. Bei kleinen Antrieben (<50 W) liegen die durchschnittlichen Wirkungsgrade zwischen 50 % und 70 %. Bei größeren Motoren (> 200 W) werden Werte zwischen 70 % und 80 % erreicht. Potenzial im Wirkungsgrad besteht durch den Einsatz von „Selten Erden“ als Permanentmagneten. Sie erhöhen

durch stärkeres Magnetfeld die Motorleistung aber auch den Wirkungsgrad um ca. 5-10%-Punkte [94].

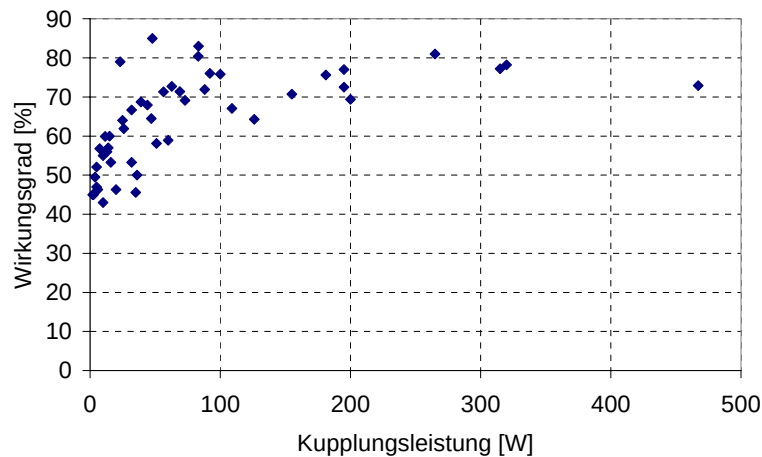


Bild 12.156: Wirkungsgrade von Gleichstrommotoren im Nennpunkt [95]

Drehzahlregelung von elektrischen Antrieben

Zur effizienten Anpassung der Gebläse- und Pumpenleistung muss die Drehzahl des Antriebes variabel einzustellen sein. Bei den Permanentmagnetgleichstrommotoren und den Reluktanzmotoren geschieht dies über eine Änderung der Versorgungsspannung. Dies kann unterschiedlich realisiert werden:

- **Linearsteuerung** – Bei konstanter Eingangsspannung fällt ein variabler Anteil der Spannung in der Linearsteuerung ab, so dass der Antrieb mit einer kleineren Spannung als die Eingangsspannung versorgt wird. Dabei agiert die Steuerung wie ein variabler Widerstand. Die Verlustleistung bildet sich aus dem Produkt des Spannungsabfalls und dem Motorstrom. Entsprechend niedrig ist der Wirkungsgrad bei Teillast. Außerdem ist der Steuerbereich nach unten durch die Stillstandsspannung und Anlaufspannung begrenzt (ca. 40 % der Nennspannung). Der Vorteil besteht in dem einfachen Aufbau des Stellers.
- **Direkte Puls-Weiten-Modulation** – Die Spannungsversorgung wird mit einer festen Frequenz ein- und ausgeschaltet. Die Steuerung der Drehzahl geschieht über eine Veränderung des Tastverhältnisses. Die Modulationsfrequenzen liegen im Bereich von 20 – 160 Hz [96]. Die Vorteile liegen im einfachen Aufbau, in der guten Anlaufeigenschaften (aufgrund des Anliegens der vollen Eingangsspannung) und in den geringen Leistungsverlusten. Nachteilig ist die erhöhte Belastung des Antriebs durch höhere elektrische Ströme. Jeder Ein- und Ausschaltvorgang induziert zusätzliche Ströme, die sich dem Laststrom überlagern. Das fluktuierende Drehmoment führt ebenfalls zu höheren Belastungen in der Arbeitsmaschine.
- **Getakteter Spannungswandler** – Über eine geschaltete Eingangsspannung wird eine unter der Eingangsspannung liegende nahezu konstante Ausgangsspannung erzeugt, deren Höhe von

der Einschaltdauer der Eingangsspannung abhängt. Der Schalter kann durch ein PWM-Signal getätigt werden. Somit wird über das Tastverhältnis die Höhe der Ausgangsspannung und damit die Drehzahl des Antriebes gesteuert. Der Vorteil des getakteten Wandlers liegt in dem sehr guten Wirkungsgrad (bis 95 % [97]). Nachteilig sind wie bei der Linearsteuerung die Begrenzung nach unten und der komplexere Aufbau.

Piezo, Schritt- und Schwingankerantrieb werden direkt mit der Frequenz der Versorgungsspannung in der Drehzahl gesteuert. Dadurch ist eine nahezu stufenlose Verstellbarkeit möglich. Diese Antriebe sind daher sehr gut geeignet für Dosieraufgaben.

Kennzahlen und Anwendungsgebiet in einem DMFC-System

In Tabelle 12.38 sind die einzelnen Antriebstypen aufgelistet hinsichtlich ihrer Einsatzmöglichkeit in einem DMFC-System. Die Schwinganker- und Piezoantrieb sind als kompakte Arbeitsmaschinen in Verbindung mit oszillierenden Verdrängerpumpen zur Förderung von kleinen Volumenströmen am besten geeignet. Insbesondere der Piezomotor ist aufgrund des einfachen Aufbaus ein wichtiges Element der Mikrosystemtechnik. Der Schwingankermotor findet als Massenprodukt zum Beispiel als Kondensatpumpe in Wäschetrocknern Anwendung.

Der bürstenlose Motor verdrängt zunehmend den Bürstenmotor, da die Steuerelektronik immer günstiger in der Herstellung wird. Bei Strömungsmaschinen wie zum Beispiel Kreispumpen oder Ventilatoren ist der bürstenlose Antrieb Standard. Die Lebensdauer ist beträchtlich länger. Die höheren Drehzahlen bieten die Möglichkeit die Leistungsdichte der Strömungsmaschinen zu erhöhen. Dies ist auch ein wichtiges Kriterium für den Einsatz eines Reluktanzmotors. Mit Hilfe der extrem hohen Drehzahl können zum Beispiel Radialgebläse einstufig statt bisher zweistufig bei gleicher Druckerhöhung ausgelegt werden.

Tabelle 12.38: Elektrische Arbeitsmaschinen und ihre mögliche Anwendung in einem DMFC-System

Motortyp	Maximale Drehzahl [min ⁻¹]	Regelbarkeit	Lebensdauer	Anwendung
Mechanisch kommutiert	3000	Gut über Versorgungsspannung und PWM	4000 h	Umwälzpumpe Dosierpumpe Kondensatpumpe
Elektrisch kommutiert	20000	Gut über Versorgungsspannung und PWM	Bis zu 40000 h	Umwälzpumpe Dosierpumpe Gebläse
Reluktanz	Bis 100000	Gut über Versorgungsspannung und PWM		Gebläse
Schwinganker		Sehr gut über Frequenz		Dosierpumpe Kondensatpumpe
Piezoantrieb		Sehr gut über Frequenz		Dosierpumpe
Schrittmotor	3000	Sehr gut über Frequenz		Dosierpumpe

12.4 Kennzahlen zur Auswahl der Fluidenergiemaschinen

Im Folgenden werden die Kennzahlen für Fluidenergiemaschinen herausgearbeitet. Dies ist Ausgangspunkt für die Auswahl einer geeigneten Maschinentyps.

12.4.1 Pumpen

Pumpen sind Fluidenergiemaschinen, die einer Flüssigkeit Energie in Form von Druckenergie, kinetischer Energie und Wärme zuführen. In den meisten Fällen ist es Ziel, einen möglichst hohen Teil der Energie als Druckerhöhung einzukoppeln.

Die notwendige hydraulische Förderleistung einer Pumpe ist das Produkt aus Förderstrom $\dot{V}$ und Druckerhöhung Δp :

$$P_{hyd} = \dot{V} \cdot \Delta p. \quad (12.1)$$

Der Kupplungswirkungsgrad einer Pumpe ist definiert als Verhältnis der hydraulischen Leistung und des Leistungsbedarfs an der Pumpenwelle:

$$\eta_{P,K} = \frac{P_{Hyd}}{P_{Welle}} \quad (12.2)$$

Der Kupplungswirkungsgrad beinhaltet die Strömungs- und inneren Reibungsverluste, Spaltverluste, und die mechanischen Verluste. Der Gesamtwirkungsgrad einer Pumpe berücksichtigt zusätzlich die Verluste im Antrieb mit dem Motorwirkungsgrad η_{Motor} :

$$\eta_{P,Ges} = \eta_{P,K} \cdot \eta_{Motor} = \frac{P_{hyd}}{P_{elektrisch}} \quad (12.3)$$

In Bild 12.157 sind Pumpen nach dem Förderprinzip eingeteilt aufgeführt:

Hydrostatische Pumpen – hier wird mit Hilfe des statischen Druckes Kraft und Leistung auf das ruhend eingeschlossene Fluid übertragen. Die Druckkraft wird dabei durch einen Verdränger aufgebaut. Nach Art des Verdrängerkörpers wird unter **rotierendem** Verdränger (Zähne, Flügel, Spindel) und **oszillierendem** Verdränger (Kolben) unterschieden. Die Kolbenmaschinen sind besser für hohe Drücke aufgrund der kleineren Fertigungstoleranzen des Kolbens geeignet.

Hydrodynamische Pumpen – eine kontinuierlich die Pumpe durchströmende Flüssigkeit nimmt kinetische und Druckenergie dadurch auf, dass rotierende Schaufelkanäle die Flüssigkeit verdrängen und beschleunigen.

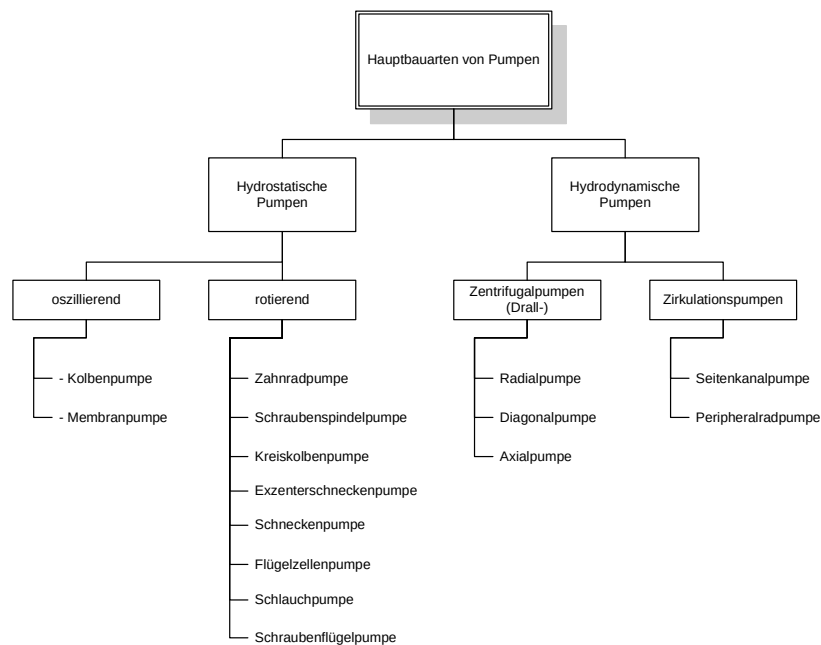


Bild 12.157: Hauptbauarten von Pumpen

Für die Erläuterung der Wirkprinzipien sei auf die Literatur [97-99] verwiesen. Unterschiedliches typisches Verhalten von Verdränger und Kreislumpumpe kann an der Volumenstrom/Druck-Kurve (Bild 5.74) verdeutlicht werden. Während der geförderte Volumenstrom der Verdrängerpumpe bei höherem Gegendruck nur schwach sinkt, reagiert die Kreislumpumpe mit starken Volumenstromänderungen. Den Bestpunkt bezogen auf den Wirkungsgrad hat die Kreislumpumpe im Bereich um $\frac{2}{3}$ des maximalen Volumenstroms. Die Verdrängerpumpe hat den höchsten Wirkungsgrad zu höheren Drücken und niedrigen Volumenströmen hin verschoben.

Zur Auswahl einer geeigneten Pumpe ist für Strömungsmaschinen die von der Ähnlichkeitsmechanik abgeleitete Schnelllaufzahl σ_s entwickelt worden. Die Prozessgrößen Druckerhöhung Δp und Förderstrom V sind zusammen mit der Pumpendrehzahl n auf die Schnelllaufzahl σ_s zurückgeführt:

$$\sigma_s = 2\sqrt{\pi} \cdot n \frac{\dot{V}^{1/2}}{(2 \cdot Y)^{3/4}} \quad (12.4)$$

mit der Förderarbeit

$$Y = \frac{\Delta p}{\rho} \quad (12.5)$$

Gebräuchlicher ist die dimensionsbehaftete spezifische Drehzahl n_q , die mit

$$n_q = 158 \cdot \sigma \quad [\text{min}^{-1}] \quad (12.6)$$

mit $\dot{V}$ in $[\text{m}^3/\text{s}]$
 n in $[\text{s}^{-1}]$
 Y in $[\text{J}/\text{kg}]$

ermittelt wird. Die spezifische Drehzahl kann als Drehzahl einer geometrisch ähnlichen Strömungsmaschine mit dem Volumenstrom $\dot{V} = 1 \text{ m}^3/\text{s}$ bei der Förderhöhe $H = 1 \text{ m}$ aufgefasst werden. In [100] wird gezeigt, dass hydrodynamische und hydrostatische Maschinen eine gemeinsame physikalische Basis haben und sich somit die Gültigkeit der spezifischen Drehzahl auf die Verdrängerpumpen ausdehnen lässt. Dadurch ist mit der spezifischen Drehzahl eine sinnvolle Abgrenzung zwischen den einzelnen Maschinenarten möglich. Trägt man die Kupplungswirkungsgrade aus statistischen Untersuchungen und durchgeführten Analysen der einzelnen Maschinentypen über der spezifischen Drehzahl auf (Bild 12.158), lassen sich Einsatz- und Optimalbereiche eines Pumpentyps ableiten.

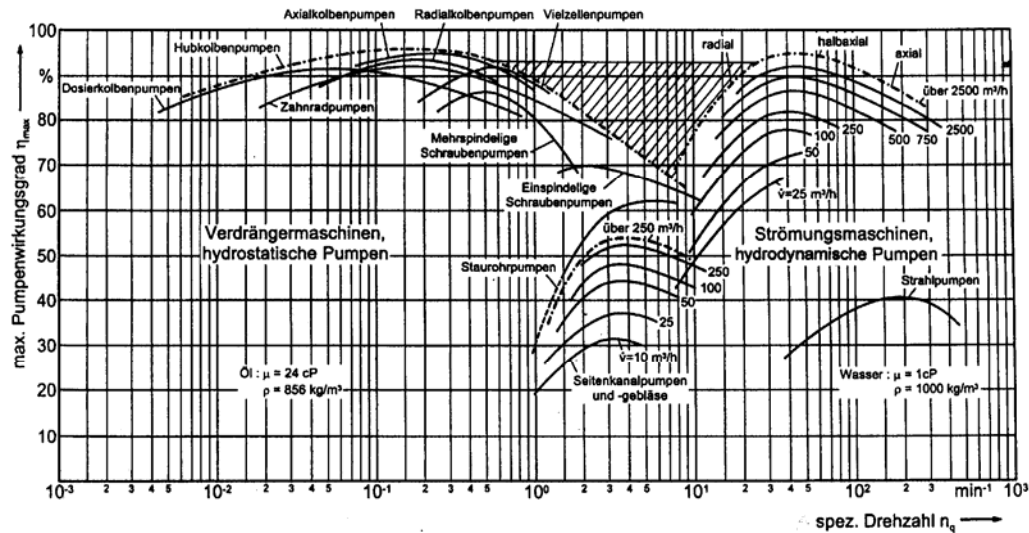


Bild 12.158: Optimalbereiche für Flüssigkeitspumpen [101]

Bei Förderaufgaben mit im Verhältnis zur Förderhöhe H kleinen Förderströmen $\dot{V}$ ($\rightarrow$ kleine n_q) werden Verdrängerpumpen, bei im Verhältnis zur Förderhöhe H großen Förderströmen $\dot{V}$ ($\rightarrow$ große n_q) Kreiselpumpen eingesetzt. Bei sehr kleinen spezifischen Drehzahlen ($< 0,1 \text{ min}^{-1}$) verschiebt sich der Einsatzbereich von rotierende zu oszillierenden Verdrängern. Im Bereich startend ab 10 min^{-1} bis 300 min^{-1} folgt der Übergang von den Radialpumpen über die Diagonal- bis zu den Axialpumpen. Die Seitenkanalmaschinen bilden den Übergang zwischen Verdrängern und Strömungsmaschinen im Bereich 1 min^{-1} bis 10 min^{-1} . Gut erkennbar ist der bessere Wirkungsgrad der Verdrängermaschinen gegenüber den Strömungsmaschinen. Ein Grund liegt in der unmittelbaren Energieübertragung durch die Wirkelemente der hydrostatischen Pumpen. Des Weiteren weist die Kreiselpumpe einen starken Maßstabseffekt auf. Mit steigender Größe der Pumpe und Volumenstrom erhöht sich der Wirkungsgrad. Der Maximalbereich liegt zwischen $n_q = 35 \text{ min}^{-1}$ und 50 min^{-1} . Im Bereich von $n_q = 1 \text{ min}^{-1}$ bis 10 min^{-1} gibt die schraffierte Fläche einen Bereich an, für den noch kein geeignetes Wirkprinzip mit hohem Wirkungsgrad entwickelt werden konnte.

Mit Hilfe des Cordier-Diagramms [102] ist es möglich für die geforderten spezifischen Drehzahlen (resultierend aus Fördermenge, Förderdruck und Pumpendrehzahl) die Bauart einer Strömungsmaschine (Pumpe oder Gebläse) und seine Hauptbemessungsgröße, den Laufraddurchmesser D festzulegen. Dabei wird die Durchmesserzahl δ als Kennzahl eingeführt:

$$\delta = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \frac{(2 \cdot Y)^{0,25}}{\dot{V}^{0,5}} \cdot D \quad (12.7)$$

In [103] und [104] wird gezeigt, dass sich dieses auf der Ähnlichkeitsbetrachtung basierende Diagramm auch auf die Verdrängermaschinen ausdehnen lässt. Dabei ist eine eindeutige Definition des Durchmessers einer Arbeitsmaschine notwendig. Diese Definitionen sind in Tabelle 12.39 zusammengefasst.

Tabelle 12.39: Durchmesserdefinition der Verdrängermaschinen nach [103] und [104]

Arbeitsmaschine	Durchmesserbezug
Kolben/Membran	Kurbelkreisdurchmesser (= Kolbenhub)
Zahnrad	Kopfkreisdurchmesser des Zahnrads
Schraube	Außendurchmesser des Schraubenläufers
Vielzellen	Gehäuseinnendurchmesser

Bild 12.159 zeigt nun das erweiterte Cordier-Diagramm, gültig für Strömungsmaschinen und Verdrängermaschinen. Die daraus gewonnenen geometrischen Daten können für Verdränger jedoch nur eine qualitative Abschätzung geben.

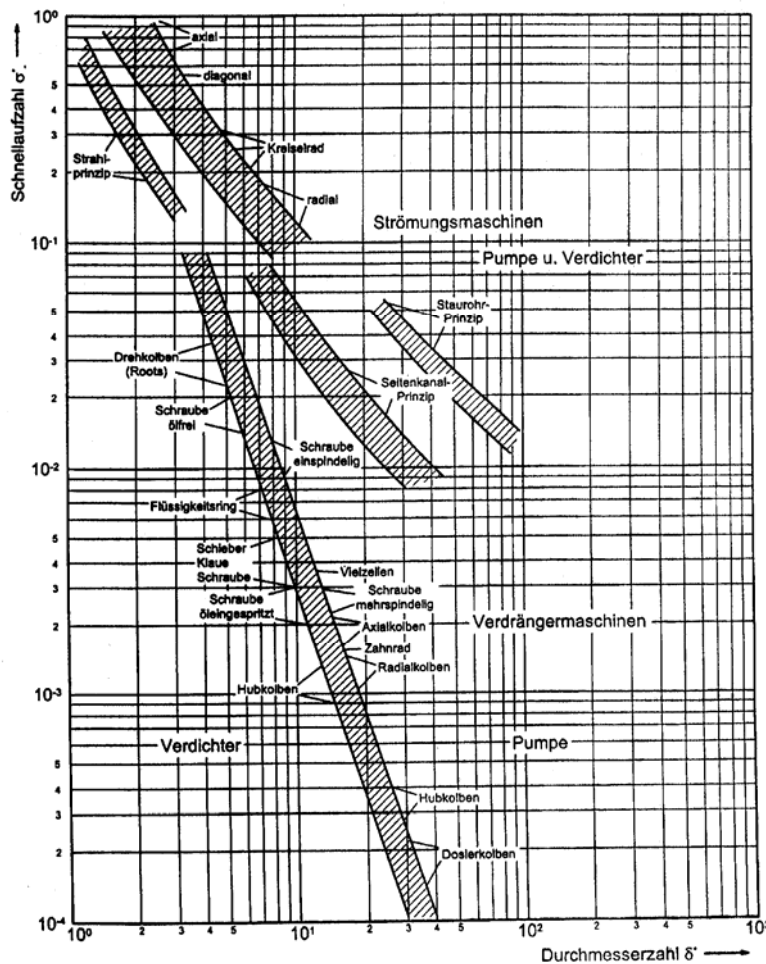


Bild 12.159: Erweitertes Cordier-Diagramm für Flüssigkeitspumpen/Kompressoren [101]

Die Anwendung der Kennzahlen und der Diagramme in Bild 12.158 und Bild 12.159 gestaltet sich nach der Art der Vorgaben unterschiedlich:

Vorgabe von Volumenstrom, Druckerhöhung und Drehzahl der Arbeitsmaschine:

Die Berechnung der spezifischen Drehzahl/Schnelllaufzahl folgt den Gleichungen (12.4)-(12.6). Bild 12.158 und Bild 12.159 ergeben dann die optimale Bauart der Arbeitsmaschine und die zugehörige Durchmesserzahl δ . Gegebenenfalls sind mehrere Optionen möglich. Aus der Durchmesserzahl δ und mit Gleichung (12.7) lässt sich der Wirkkörperdurchmesser D errechnen.

Vorgabe von Volumenstrom, Drehzahl und der spezifischen Drehzahl/Schnelllaufzahl einer Arbeitsmaschine:

Erst erfolgt eine Berechnung der mit dieser Arbeitsmaschine zu realisierenden Druckerhöhung durch Umstellen und Auflösen der Gleichungen (12.4)-(12.6):

$$\Delta p = \frac{\rho}{2} \cdot \sqrt[3]{\frac{\dot{V}^2}{\left(\frac{\sigma}{n \cdot \sqrt{4\pi}}\right)^4}} \quad (12.8)$$

Mit der Schnelllaufzahl und der Bauart der Arbeitsmaschine wird aus Bild 12.159 die zugehörige Durchmesserzahl δ bestimmt. Aus der Durchmesserzahl δ und mit Gleichung (12.7) lässt sich der Wirkkörperdurchmesser D errechnen.

Mit der ersten Methode können ausgehend von festen Vorgaben aus dem Anwendungsfall die dafür einsetzbaren Pumpentypen bestimmt werden. Die letztere Methode gibt den Arbeitsbereich einer bestimmten Pumpe an. Durch Einbezug dieses Arbeitsbereiches in die Systemauslegung können Druckverlustanforderungen an die Systemkomponenten abgeleitet werden.

12.4.2 Kompressoren

Mit Kompressoren werden Arbeitsmaschinen bezeichnet, die gasförmige Arbeitsmedien von einem Druckniveau auf ein höheres befördern. Kompressoren teilen sich nach [105] in Ventilatoren und Verdichter auf. Ventilatoren sind danach Strömungsmaschinen mit einem Totaldruckverhältnis von kleiner 1,3. Ventilatoren mit Nennvolumenströmen von 0,003 bis 0,3 m³/s und einem Verhältnis der statischen Drücke von unter 1,03 sind Kleinventilatoren und werden auch als Lüfter bezeichnet [105]. Bild 12.160 zeigt die Hauptbauarten von Kompressoren. Analog zu den Flüssigkeitspumpen lassen sich Kompressoren nach dem Wirkprinzip (hydrostatisch/hydrodynamisch) in Verdränger und Strömungsmaschinen einordnen.

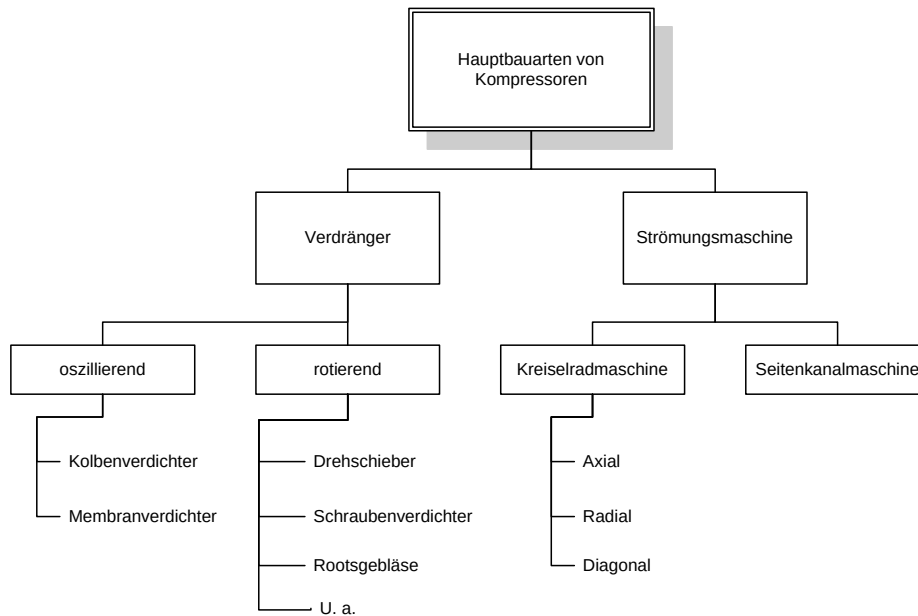


Bild 12.160: Hauptbauarten von Kompressoren

Für die Erläuterung der Wirkprinzipien sei auf die Literatur [106-108] verwiesen.

Zur Auswahl eines geeigneten Kompressortyps dient wie bei den Flüssigkeitspumpen die spezifische Drehzahl nach Gleichung (12.6). Bei isentroper Expansion von Gasen gilt für die spezifische Förderarbeit

$$Y_{is} = \frac{\chi}{\chi - 1} \cdot R \cdot T_s \cdot \left[\left(\frac{p_D}{p_s} \right)^{\frac{\chi}{\chi - 1}} - 1 \right] \quad (12.9)$$

Die isentrope Verdichterleistung folgt aus

$$P_{is} = \frac{\chi}{\chi - 1} \cdot p_s \cdot T_s \cdot \left[\left(\frac{p_D}{p_s} \right)^{\frac{\chi}{\chi - 1}} - 1 \right] \quad (12.10)$$

Der Kupplungswirkungsgrad eines Kompressors ist definiert als Verhältnis der isentropen Verdichtungsleistung zum Leistungsbedarf an der Kompressorwelle:

$$\eta_{K,K} = \frac{P_{is}}{P_{Welle}} \quad (12.11)$$

Der Kupplungswirkungsgrad beinhaltet die Strömungs- und inneren Reibungsverluste, Spaltverluste, und die mechanischen Verluste. Der Gesamtwirkungsgrad eines Kompressors berücksichtigt zusätzlich die Verluste im Antrieb mit dem Motorwirkungsgrad η_{Motor} :

$$\eta_{K,Ges} = \eta_{K,K} \cdot \eta_{Motor} = \frac{P_{is}}{P_{elektrisch}} \quad (12.12)$$

In Bild 12.161 sind die erreichbaren isentropen Kupplungswirkungsgrade über der spezifischen Drehzahl n_{q-s} aufgetragen. Die Kolbenverdichter sind im Bereich $n_{q-s} = 0,02$ bis 1 min^{-1} einsetzbar und haben einen maximalen Wirkungsgrad von 83 % bei ca. $0,2 \text{ min}^{-1}$. Rotationsverdichter in Zellen, Klauen- und Schraubenausführung überdecken einen Bereich von $0,6$ bis 9 min^{-1} . Das Wirkungsgradoptimum beträgt 72 %. Kreisradkompressoren liegen in radialer, axialer oder diagonaler Ausführung im Bereich $n_{q-s} = 10$ bis über 200 min^{-1} . Ähnlich wie bei den Kreiselpumpen liegt das Optimum in den Grenzen von 40 min^{-1} bis 60 min^{-1} . Das Wirkungsgradniveau ist hier mit 85 % vergleichbar mit den Kolbenverdichtern. Die Seitenkanalverdichter liegen zwischen den Verdränger- und Kreisradmaschinen ($3 - 5 \text{ min}^{-1}$). Der Kupplungswirkungsgrad ist 50 % vergleichsweise gering. Die einhüllenden Kurven zeigen das Betriebskennfeld von Verdränger- und Strömungsmaschinen. Analog zu den Flüssigkeitspumpen liegt zwischen diesen beiden Hauptwirkprinzipien ein Bereich mit einem niedrigen Wirkungsgradniveau.

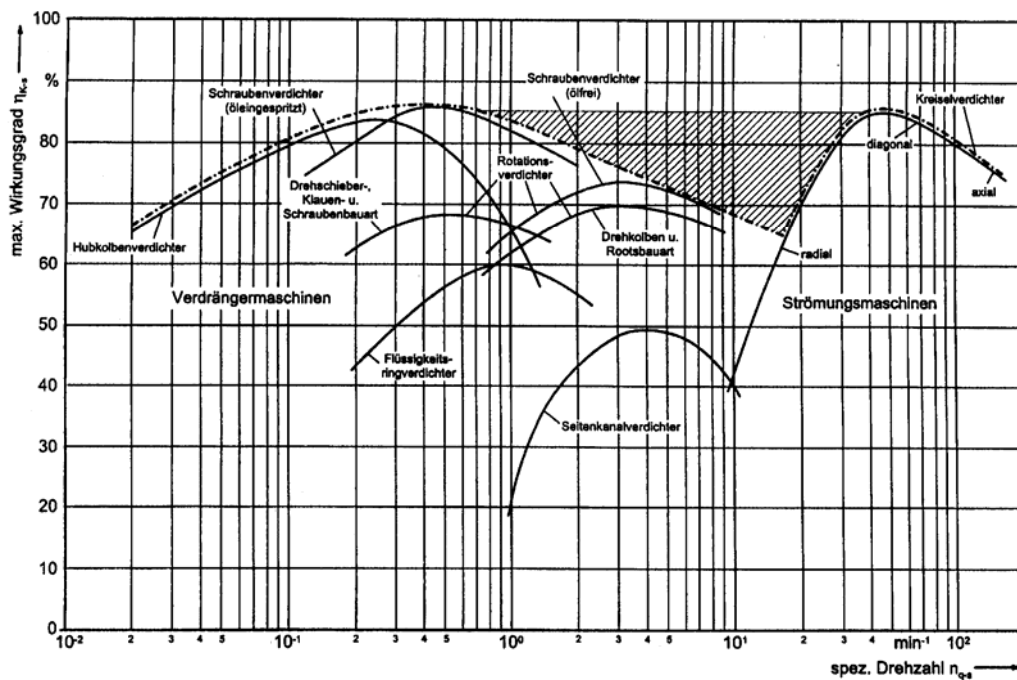


Bild 12.161: Optimalbereiche von Kompressoren [101]

12.5 Untersuchte Wärmeübertragerstrukturen

Die Wärmeübertragerstrukturen sind eingefasst zwischen zwei Platten mit 1 mm Stärke zu jeweils fünf Kassetten mit einer Höhe von 10 mm. Das Material der Platten und der Strukturen ist Aluminium. Die Platten haben Abmaße von 135 mm x 80mm. Die Lamellen haben eine Stärke von 0,22 mm.

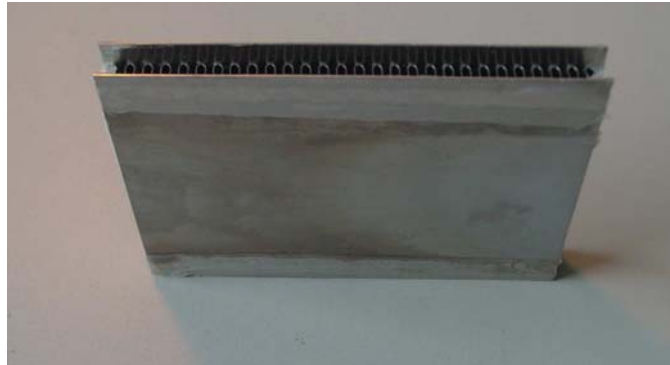


Bild 12.162: Wärmeübertragerkassette

Bei Struktur A handelt es sich um eine glatte Rechteck-Lamelle. Die Gesamtoberfläche beträgt 0,36 m². Damit ergibt sich eine Flächendichte von 670 m²/m³. Der Druckverlust der Lamelle ist am geringsten.

Struktur B ist vergleichbar mit Struktur A. Die Teilung ist jedoch höher und die Kanten sind abgerundet. Die Flächendichte liegt bei 1092 m²/m³.

Struktur C ist als so genannte Offset-Lamelle ausgeführt. Die Lamellenstruktur ist in Strömungsrichtung unterbrochen und wird versetzt weitergeführt. Dies soll den Strömungspfad stören und Turbulenzen erzeugen. Damit wird der Wärmeübergang verbessert. Die Flächendichte liegt bei 1080 m²/m³.

Eine geschlitzte Dreieck-Lamelle dient als Struktur D. Entlang der Lamellenoberfläche sind Schlitze eingefügt, die die laminare Unterschicht stören und zu Ablösungen führen. Dies verbessert den Wärmeübergang. Hier wird der höchste Druckverlust erwartet. Die Gesamtoberfläche ist mit 0,56 m² am größten. Die Flächendichte liegt bei 1000 m²/m³.

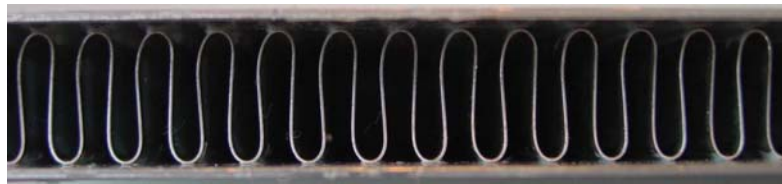
Struktur A:

Glattlamelle - rechteckig
Flächendichte = $670 \text{ m}^2/\text{m}^3$
Teilung = 9 mm
Dichte: $750 \text{ kg}/\text{m}^3$



Struktur B:

Glattlamelle – rund
Flächendichte = $1092 \text{ m}^2/\text{m}^3$
Teilung = 4,5 mm
Dichte: $897 \text{ kg}/\text{m}^3$



Struktur C:

Offset-Lamelle – rechteckig
Flächendichte = $1080 \text{ m}^2/\text{m}^3$
Teilung = 4,5 mm
Dichte: $802 \text{ kg}/\text{m}^3$



Struktur D:

Geschlitzte Lamelle –
dreieckig
Flächendichte = $1000 \text{ m}^2/\text{m}^3$
Teilung = 4,5 mm
Dichte: $925 \text{ kg}/\text{m}^3$



Bild 12.163: Wärmeübertragerkassetten mit verschiedenen Lamellentypen

1. **Fusion Theory**
Proceedings of the Seventh European Fusion Theory Conference
edited by A. Rogister (1998); X, 306 pages
ISBN: 978-3-89336-219-6
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: 978-3-89336-225-7
3. **Energieforschung 1998**
Vorlesungsmanuskripte des 4. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 20. bis 26. September 1998 im Congressentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, K. Kugeler u. a. (1998),
500 Seiten
ISBN: 978-3-89336-226-4
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: 978-3-89336-227-1
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: 978-3-89336-228-8
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: 978-3-89336-231-8
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: 978-3-89336-211-0

8. **Liberalisierung des Energiemarktes**
Vortragsmanuskripte des 5. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 27. September bis 1. Oktober 1999 im Congrescentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, A. Kraft, K. Kugeler u. a. (1999), 350 Seiten
ISBN: 978-3-89336-248-6
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: 978-3-89336-258-5
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: 978-3-89336-259-2
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: 978-3-89336-263-9
12. **Zukunft unserer Energieversorgung**
Vortragsmanuskripte des 6. Ferienkurs „Energieforschung“
vom 18. September bis 22. September 2000 im Congrescentrum Rolduc und
im Forschungszentrum Jülich
herausgegeben von J.-Fr. Hake, S. Vögele, K. Kugeler u. a. (2000),
IV, 298 Seiten
ISBN: 978-3-89336-268-4
13. **Implementing Agreement 026**
For a Programme of Research, Development and Demonstration on Advanced
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: 978-3-89336-275-2
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: 978-3-89336-276-9

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: 978-3-89336-259-2
16. **Technische Auslegungskriterien und Kostendeterminanten von SOFC- und PEMFC-Systemen in ausgewählten Wohn- und Hotelobjekten**
von S. König (2001), XII, 194 Seiten
ISBN: 978-3-89336-284-4
17. **Systemvergleich: Einsatz von Brennstoffzellen in Straßenfahrzeugen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2001), 185 Seiten
ISBN: 978-3-89336-285-1
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: 978-3-89336-291-2
19. **Brennstoffzellensysteme für mobile Anwendungen**
von P. Biedermann, K. U. Birnbaum, Th. Grube u. a. (2002)
PDF-Datei auf CD
ISBN: 978-3-89336-310-0
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: 978-3-89336-311-7
21. **Materials for Advanced 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: 978-3-89336-312-4
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: 978-3-89336-313-1

23. **Einsparpotenziale bei der Energieversorgung von Wohngebäuden durch Informationstechnologien**
von A. Kraft (2002), XII, 213 Seiten
ISBN: 978-3-89336-315-5

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: 978-3-89336-317-9

25. **Lebensdaueranalysen von Kraftwerken der deutschen Elektrizitätswirtschaft**
von A. Nollen (2003), ca. 190 Seiten
ISBN: 978-3-89336-322-3

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: 978-3-89336-332-2

27. **Radioactive Waste Products 2002 (RADWAP 2002)**
Proceedings
edited by R. Odoj, J. Baier, P. Brennecke and K. Kühn (2003), VI, 420 pages
ISBN: 978-3-89336-335-3

28. **Methanol als Energieträger**
von B. Höhle, T. Grube, P. Biedermann u. a. (2003), XI, 109 Seiten
ISBN: 978-3-89336-338-4

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: 978-3-89336-351-3

30. **Benchmarking-Methodik für Komponenten in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**
von Matthias Gebert (2004), 194 Seiten
ISBN: 978-3-89336-355-1

31. **Katalytische und elektrochemische Eigenschaften von eisen- und kobalthaltigen Perowskiten als Kathoden für die oxidkeramische Brennstoffzelle (SOFC)**
von Andreas Mai (2004), 100 Seiten
ISBN: 978-3-89336-356-8

32. **Energy Systems Analysis for Political Decision-Making**
edited by J.-Fr. Hake, W. Kuckshinrichs, R. Eich (2004), 180 pages
ISBN: 978-3-89336-365-0
33. **Entwicklung neuer oxidischer Wärmedämmschichten für Anwendungen in stationären und Flug-Gasturbinen**
von R. Vaßen (2004), 141 Seiten
ISBN: 978-3-89336-367-4
34. **Neue Verfahren zur Analyse des Verformungs- und Schädigungsverhaltens von MCrAlY-Schichten im Wärmedämmschichtsystem**
von P. Majerus (2004), 157 Seiten
ISBN: 978-3-89336-372-8
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: 978-3-89336-378-0
36. **Entwicklung und Untersuchung von Katalysatorelementen für innovative Wasserstoff-Rekombinatoren**
von I.M. Tragsdorf (2005), 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-384-1
37. **Bruchmechanische Untersuchungen an Werkstoffen für Dampfkraftwerke mit Frischdampftemperaturen von 500 bis 650°C**
von L. Mikulová (2005), 149 Seiten
ISBN: 978-3-89336-391-9
38. **Untersuchungen der Strukturstabilität von Ni-(Fe)-Basislegierungen für Rotorwellen in Dampfturbinen mit Arbeitstemperaturen über 700 °C**
von T. Seliga (2005), 106 Seiten
ISBN: 978-3-89336-392-6
39. **IWV-3 Report 2005. Zukunft als Herausforderung**
(2005), 115 Seiten
ISBN: 978-3-89336-393-3
40. **Integrierter Photodetektor zur Längenmessung**
von E. Bunte (2005), XI, 110 Seiten
ISBN: 978-3-89336-397-1
41. **Microcrystalline Silicon Films and Solar Cells Investigated by Photoluminescence Spectroscopy**
by T. Merdzhanova (2005), X, 137 pages
ISBN: 978-3-89336-401-5

42. **IWV-3 Report 2005. Future as a challenge**
(2005), 115 pages
ISBN: 978-3-89336-405-3
43. **Electron Spin Resonance and Transient Photocurrent Measurements on Microcrystalline Silicon**
by T. Dylla (2005), X, 138 pages
ISBN: 978-3-89336-410-7
44. **Simulation und Analyse des dynamischen Verhaltens von Kraftwerken mit oxidkeramischer Brennstoffzelle (SOFC)**
von M. Finkenrath (2005), IV, 155 Seiten
ISBN: 978-3-89336-414-5
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 pages
ISBN: 978-3-89336-418-3
46. **Entwicklung und Modellierung eines Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapels der 5 kW Klasse**
von T. Wüster (2005), 211 Seiten
ISBN: 978-3-89336-422-0
47. **Die Normal-Wasserstoffelektrode als Bezugselektrode in der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle**
von M. Stähler (2006), VI, 96 Seiten
ISBN: 978-3-89336-428-2
48. **Stabilitäts- und Strukturmodifikationen in Katalysatordispersionen der Direktmethanolbrennstoffzelle**
von C. Schlumbohm (2006), II, 211 Seiten
ISBN: 978-3-89336-429-9
49. **Eduktvorbereitung und Gemischbildung in Reaktionsapparaten zur autothermen Reformierung von dieselähnlichen Kraftstoffen**
von Z. Porš (2006), XX, 182, XII Seiten
ISBN: 978-3-89336-432-9
50. **Spektroskopische Untersuchung der poloidalen Plasmarotation unter dem Einfluß statischer und dynamischer Ergodisierung am Tokamak TEXTOR**
von C. Busch (2006), IV, 81 Seiten
ISBN: 978-3-89336-433-6
51. **Entwicklung und Optimierung von Direktmethanol-Brennstoffzellenstapeln**
von M. J. Müller (2006), 167 Seiten
ISBN: 978-3-89336-434-3

52. **Untersuchung des reaktiven Sputterprozesses zur Herstellung von aluminiumdotierten Zinkoxid-Schichten für Silizium-Dünnschichtsolarzellen**
von J. Hüpkes (2006), XIV, 170 Seiten
ISBN: 978-3-89336-435-0
53. **Materials for Advanced Power Engineering 2006**
Proceedings of the 8th Liège Conference
Part I, II and III
edited by J. Lecomte-Beckers, M. Carton, F. Schubert, P. J. Ennis (2006),
Getr. Pag.
ISBN: 978-3-89336-436-7
54. **Verdampfung von Werkstoffen beim Betrieb von Hochtemperaturbrennstoffzellen (SOFC)**
von M. Stanislawski (2006), IV, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-438-1
55. **Methanol as an Energy Carrier**
edited by P. Biedermann, Th. Grube, B. Höhle (2006), XVII, 186 pages
ISBN: 978-3-89336-446-6
56. **Kraftstoffe und Antriebe für die Zukunft**
Vorlesungsmanuskripte des 1. Herbstseminars „Kraftstoffe und Antriebe für die Zukunft“ vom 9.-13. Oktober 2006 an der TU Berlin
herausgegeben von V. Schindler, C. Funk, J.-Fr. Hake, J. Linßen (2006), VIII,
221 Seiten
ISBN: 978-3-89336-452-7
57. **Plasma Deposition of Microcrystalline Silicon Solar Cells: Looking Beyond the Glass**
by M. N. van den Donker (2006), VI, 110 pages
ISBN: 978-3-89336-456-5
58. **Nuclear Energy for Hydrogen Production**
by K. Verfondern (2007), 186 pages
ISBN: 978-3-89336-468-8
59. **Kraft-Wärme-Kopplung mit Brennstoffzellen in Wohngebäuden im zukünftigen Energiesystem**
von C. H. Jungbluth (2007), XI, 197 Seiten
ISBN: 978-3-89336-469-5
60. **Finite Element Simulation of Stress Evolution in Thermal Barrier Coating Systems**
by P. Bednarz (2007), XIV, 121 pages
ISBN: 978-3-89336-471-8

61. **Modellierung der Prozesse in katalytischen Rekombinatoren**
von J. Böhm (2007), VI, 116 Seiten
ISBN: 978-3-89336-473-2
62. **Entwicklung einer Heliumstrahldiagnostik zur Messung der Elektronendichte und – temperatur mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung**
von U. Kruezi (2007), IV, 151 Seiten
ISBN: 978-3-89336-476-3
63. **IEF-3 Report 2007. Von Grundlagen bis zum System**
(2007), ca 170 Seiten
ISBN: 978-3-89336-479-4
64. **Entwicklung eines Direkt-Methanol-Brennstoffzellensystems der Leistungsklasse kleiner 5 kW**
von M. Nölke (2007), 194 Seiten
ISBN: 978-3-89336-481-7

Die Attraktivität der Verstromung des flüssigen Brennstoffes Methanol in einer Brennstoffzelle besteht in der einfachen Speicherung bei hoher Energiedichte. Daher eignen sich Direkt-Methanol-Brennstoffzellen (DMFC) für den Einsatz in portablen Systemen und mobilen Anwendungen der kW-Klasse. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, ein gegenüber dem Stand der Technik verbessertes und optimiertes peripheres System zum Betrieb eines DMFC-Stacks der kW-Klasse zu entwickeln und für eine mobile Anwendung zu demonstrieren. Die mobile Anwendung besteht in dem Umbau der Energieversorgung eines „Scooters“. Hierbei sollen die Bleibatterien gegen ein DMFC-System ausgetauscht werden, das den elektrischen Motor mit Strom versorgt.

Autor:

Marcus Nölke hat an der Technischen Universität Hamburg-Harburg Maschinenbau studiert. Innerhalb dieser Zeit absolvierte er außerdem ein Master-Programm an der Cornell University, USA. Erste gut dreijährige industrielle Berufserfahrungen sammelte er bei der Siemens AG Power Generation in Mülheim a.d. Ruhr. Im Oktober 2001 kam er als Doktorand zum Forschungszentrum Jülich. Seine stark projektorientierten Arbeiten beschäftigten sich mit Konzeption und Optimierung eines Direkt-Methanol-Brennstoffzellensystems für mobile Anwendungen. Der Inhalt dieses Buches wurde von der RWTH Aachen als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Ingenieurwissenschaften genehmigt. Marcus Nölke ist seit Dezember 2004 bei der Siemens AG Power Generation in Duisburg beschäftigt.

Institut:

Die Forschungsaufgaben des Instituts für Energieforschung Brennstoffzellen (IEF-3) sind auf die Realisierung von Hoch- und Niedertemperatur-Brennstoffzellen sowie von entsprechenden Stacks oder Systemen für stationäre 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 unterstützt.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft

