

Franz Bernd Wede, BSc

Konzept für eine 10 kW SOEC-Elektrolyseanlage

Masterarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades eines

Diplom-Ingenieur

in

Technischer Chemie

[gemeinsames Studium im Rahmen von NAWI Graz]

eingereicht an der

Technischen Universität Graz

Betreuer:

Assoc.Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Viktor Hacker

Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik

Graz, September 2013

Eidesstattliche Erklärung

Ich erkläre an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen/Hilfsmittel nicht benutzt, und die den benutzten Quellen wörtlich und inhaltlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Graz, am _____

(Unterschrift)

Danksagung

Ich möchte mich bei Assoc.Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Viktor Hacker für die Betreuung meiner Masterarbeit bedanken. Durch seine Vorlesungen, sowie meiner Arbeit am Institut für Chemische Verfahrenstechnik und Umwelttechnik wurde mein Interesse an den Themen erneuerbare Energien und Brennstoffzellen erst geweckt.

Mein Dank gilt auch Dipl.-Ing. Jürgen Rechberger, der es mir ermöglichte meine Masterarbeit bei AVL List zu schreiben und mir somit auch einen Einblick in das Unternehmen lieferte.

Ich möchte mich bei meinen Eltern, Franz und Edeltraud Wede, bedanken, da sie mir das Studium ermöglichten und mich die gesamte Zeit über unterstützten.

Mein Dank gilt auch Martina Helm, da sie mich während des gesamten Studiums über unterstützt hat und mir immer zur rechten Zeit die nötige Motivation lieferte.

Außerdem bedanke ich mich bei Jörg Mathé und Michaela Rittenschober für die gemeinsame Zeit im Labor.

Schlussendlich möchte ich mich auch bei allen anderen AVL Mitarbeitern bedanken, die mir während meiner Arbeit vor Ort geholfen haben.

Zusammenfassung

Die Hochtemperaturelektrolyse von Wasser mittels Festoxidelektrolysezellen (englisch: Solid Oxide Electrolyzer Cell, SOEC) ist eine lokal emissionsfreie und energieeffiziente Methode zur Gewinnung von Wasserstoff, die auch dazu genutzt werden kann, um elektrische Energie aus periodischen erneuerbaren Energiequellen in Form von chemischer Energie zu speichern.

In dieser Diplomarbeit werden ein Überblick über den Stand der Technik der einzelnen Zellkomponenten der Festoxidelektrolysezellen und der Degradationsmechanismen während der Hochtemperaturelektrolyse geliefert, zwei Systemmodelle für eine 10 kW SOEC-Elektrolyseanlage erstellt und Laborversuche mit einer anodengestützten Festoxidbrennstoffzelle (englisch: Solid Oxide Fuel Cell, SOFC) durchgeführt.

Die Einzelzellmessungen sind in einem Teststand der Firma AVL List vorgenommen worden, wobei das reversible Verhalten der SOFC mittels Versuchen im Brennstoff- und Elektrolysezellenbetrieb nachgewiesen und der Einfluss der Dampfausnutzung und der Temperatur auf die Leistung der Hochtemperaturelektrolysezelle untersucht wurden.

Mittels MatLab wurde ein Modell für die Hochtemperaturelektrolysezelle erstellt, aufbauend auf diesem SOEC-Modell wurden zwei Systemmodelle für eine 10 kW SOEC-Elektrolyseanlage mittels Simulink konzipiert. Bei Modell 1 erfolgte die Wasserdampferzeugung und die Erwärmung der Gase auf Betriebstemperatur durch die Verbrennung eines Teils des Produktwasserstoffs, während bei Modell 2 der Wasserdampf durch ein externes Abgas erzeugt wurde. Es wurde der Einfluss der Dampfausnutzung und der Rezyklierung des Produktgases auf den Gesamtwirkungsgrad der beiden Elektrolyseanlagen untersucht.

Abstract

High temperature steam electrolysis with solid oxide electrolyzer cells (SOEC) is a local emission-free and energy-efficient method of producing hydrogen, that can also be used to store electric energy from intermittent renewable energy sources in the form of chemical energy.

In this master thesis, a review about the state of the art of the cell components of solid oxide electrolyser cells and the degradation mechanisms during high temperature electrolysis is given, two system models for a 10kW SOEC electrolyzer facility were designed, and measurements with an anode supported solid oxid fuel cell (SOFC) were performed.

The single cell tests were performed in a testing facility from the company AVL List. The reversible behavior of a SOFC was proven with measurements in the fuel cell mode and the electrolyzer cell mode. The influence of the steam conversion rate and the temperature on the performance of the high temperature electrolyzer cell was analysed.

A model of a high temperature electrolyzer cell was built with MatLab. Based on this SOEC model two system models for a 10 kW SOEC electrolyzer facility were designed with Simulink. The steam production and the heating of the gases to operating temperature in Model 1 was carried out by burning a part of the produced hydrogen, whereas in Model 2 the steam was produced with an external exhaust gas. The influence of the steam conversion rate and the rate of recycled product gas on the overall efficiency of both facilities was analysed.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| 1. Einleitung | 11 |
| 2. Stand der Technik | 13 |
| 2.1. SOFC | 13 |
| 2.2. SOEC | 15 |
| 2.2.1. Parameter der SOEC | 16 |
| 2.2.2. Thermodynamik | 18 |
| 2.2.3. Elektrolyt, Elektroden und Interkonnektoren | 19 |
| 2.2.4. Aufbau der Zellen | 22 |
| 2.3. Degradation bei SOEC | 24 |
| 2.4. Technologien zur Wasserstofferzeugung | 25 |
| 2.4.1. Reformierung | 26 |
| 2.4.2. Wassergas-Shift-Reaktion (WGS) | 27 |
| 2.4.3. Wasserstoff als Nebenprodukt | 28 |
| 3. Versuchsaufbau | 29 |
| 3.1. Zelle | 29 |
| 3.2. Aufbau des Teststandes | 30 |
| 3.3. Aufbau des Cell Housings | 33 |
| 3.4. Messplan | 38 |
| 3.5. Aktivierung der Zelle | 41 |

| | |
|---|-----------|
| 4. Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage | 42 |
| 4.1. Erstellung eines SOEC-Modells | 42 |
| 4.2. Erstellung eines Systemmodells einer 10 kW SOEC-Anlage | 45 |
| 4.2.1. Auslegung des Elektrolyseurs | 45 |
| 4.2.2. Auslegung des Systems und der Komponenten | 45 |
| 4.2.3. SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr | 47 |
| 4.2.4. SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr | 50 |
| 4.2.5. Simulationen | 52 |
| | |
| 5. Ergebnisse | 53 |
| 5.1. Einzelzellmessungen | 53 |
| 5.2. Simulationen | 62 |
| 5.2.1. Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr | 63 |
| 5.2.2. Systemmodell mit externer Wärmezufuhr | 64 |
| 5.2.3. Vergleich der beiden Modelle | 66 |
| | |
| 6. Diskussion | 70 |
| 6.1. Einzelzellmessungen | 70 |
| 6.2. Simulationen | 71 |
| | |
| A. Anhang | 74 |
| A.1. Simulationsdaten | 74 |
| A.1.1. SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr | 74 |
| A.1.2. SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr | 81 |

Abbildungsverzeichnis

| | |
|---|----|
| 2.1. Funktionsprinzip einer SOFC | 14 |
| 2.2. Funktionsprinzip einer SOEC | 16 |
| 2.3. Theoretischer Verlauf der Gesamtenergie, des thermischen und elektrischen Anteils für die Elektrolyse von Wasser in Abhängigkeit von der Temperatur [22] | 20 |
| 2.4. Skizzen der unterschiedlichen Zelltypen: a) anodengestützte Zelle, b) elektrolytgestützte Zelle, c) röhrenförmige Zelle, d) metallgestützte Zelle . . . | 23 |
| 3.1. Eine SOFC-Brennstoffzelle der Firma Haldor Topsoe | 29 |
| 3.2. Skizze des Katalysators für die Wasserdampferzeugung | 31 |
| 3.3. Skizze der Gaszufuhr des gesamten Teststands | 32 |
| 3.4. Der Teststand nach der Durchführung der Testreihen | 33 |
| 3.5. Komponenten des Cell Housings von links nach rechts: Oberteil, Unterteil mit Platinnetzen, Rahmen, Nickelstempel mit Nickelnetzen | 35 |
| 3.6. Skizze des Cell Housings | 36 |
| 3.7. Das Cell Housing nach den Versuchsreihen im Teststand | 37 |
| 4.1. Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr . . . | 49 |
| 4.2. Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr . . . | 51 |
| 5.1. UI-Kennlinien bei 750 °C im Brennstoffzellen- und Elektrolysebetrieb . . . | 53 |
| 5.2. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen im Brennstoffzellen- und Elektrolysebetrieb | 54 |

| | |
|---|----|
| 5.3. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 650 °C | 55 |
| 5.4. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 700 °C | 56 |
| 5.5. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 750 °C | 57 |
| 5.6. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 800 °C | 58 |
| 5.7. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 40 % | 59 |
| 5.8. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 50 % | 59 |
| 5.9. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 60 % | 60 |
| 5.10. UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 70 % | 61 |
| 5.11. Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % ohne externe Wärmezufuhr | 63 |
| 5.12. Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei unterschiedlichen Rezyklierungsraten ohne externe Wärmezufuhr | 64 |
| 5.13. Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % mit externer Wärmezufuhr | 65 |
| 5.14. Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei unterschiedlichen Rezyklierungsraten mit externer Wärmezufuhr | 66 |
| 5.15. Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 20 % bei beiden Modellen | 67 |
| 5.16. Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 60 % bei beiden Modellen | 67 |

| | |
|---|----|
| 5.17. Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % bei beiden Modellen | 68 |
|---|----|

1. Einleitung

Der weltweite Primärenergieverbrauch wurde im Jahr 2009 zu 81 % mittels fossiler Rohstoffe gedeckt [1]. Deren begrenzte Verfügbarkeit und ungleichmäßige Verteilung sowie die Auswirkungen der beim Verbrauch entstehenden Emissionen auf die Umwelt haben zu einer Entwicklung kohlenstofffreier erneuerbarer Energieträger geführt [1, 2, 3].

Wasserstoff als alternativer Energieträger, vor allem zur Erzeugung von elektrischer Energie, erzielte in den letzten Jahren gesteigertes Interesse und steht weltweit auch im Mittelpunkt zahlreicher Forschungsaktivitäten, allerdings wird zur Zeit der Großteil des weltweit erzeugten Wasserstoffs aus fossilen Rohstoffen gewonnen [1, 2, 4, 5]. Eine lokal emissionsfreie Alternative ist die Elektrolyse von Wasser, die auch den Vorteil besitzt, dass der erzeugte Wasserstoff über eine sehr hohe Reinheit verfügt und es somit nicht nötig ist, Verunreinigungen zu entfernen, bevor man ihn z. B. zum Betrieb einer Brennstoffzelle verwendet [4, 6].

Kommerziell ist zur Zeit die Niedertemperaturelektrolyse mittels alkalischen oder Polymerelektrolytmembran-Elektrolyseuren (PEM) verfügbar [4, 7]. Diese Systeme haben allerdings den Nachteil, dass sie bei hohen Spannungen betrieben werden und eine niedrige elektrische Effizienz haben [4, 7]. Besonderes Interesse besteht daher an der sich noch in der Entwicklung befindenden Hochtemperaturelektrolyse mittels Festoxidelektrolysezellen (englisch: Solid Oxide Electrolyzer Cell, SOEC) [4, 8]. Im Vergleich zu den kommerziellen Systemen besitzen SOECs den Vorteil, dass sich aufgrund der hohen Betriebstemperatur der Bedarf an benötigter elektrischer Energie reduziert und sie somit eine effizientere Methode zur Wasserstofferzeugung darstellen [4, 7, 8, 9].

Ein Vorteil der Wasserelektrolyse besteht darin, die elektrische Energie von periodi-

schen erneuerbaren Energien, wie z. B. Windkraft oder Photovoltaik, in Form chemischer Energie zu speichern [7]. SOECs haben schnelle Anlauf- und Abschaltzeiten, reagieren gut auf Laständerungen und eignen sich daher besonders für eine solche Kombination [2].

Da Hochtemperaturelektrolysezellen bei Temperaturen zwischen 650 und 1000 °C verwendet werden, besteht auch die Möglichkeit, die Abwärme von Kraftwerken oder industriellen Prozessen zur Aufrechterhaltung des Elektrolysebetriebs zu nutzen [4, 5, 9, 10, 11, 12].

Mit SOECs ist es ebenfalls möglich, mittels Co-Elektrolyse von Wasserdampf und Kohlendioxid direkt Synthesegas herzustellen, um dieses dann z. B. für die Produktion synthetischer Treibstoffe zu nutzen [3, 13, 14, 15].

Auch wenn bei der Elektrolyse von Wasser selbst keine CO₂-Emissionen freigesetzt werden, muss darauf geachtet werden, wie der dafür benötigte elektrische Strom erzeugt wird. Verwendet man Strom aus einem Kohlekraftwerk, entstehen um ein Vielfaches mehr CO₂-Emissionen als bei der Gewinnung von Wasserstoff aus Erdgas [1]. Daher ist die Erzeugung von Wasserstoff mit sehr geringen Treibhausgasemissionen nur dann möglich, wenn der Strom für die Elektrolyse aus erneuerbaren Energiequellen, wie z. B. Sonne, Wind oder Wasser, stammt [1, 2, 4].

In der Literatur wird immer wieder berichtet, dass die Elektrizität und Abwärme von Atomkraftwerken für die Hochtemperaturelektrolyse genutzt werden soll [3, 5, 9, 10, 16, 17, 18]. Aufgrund der Probleme, die mit dieser Technologie einhergehen, stellt sich aber die Frage, wie nachhaltig eine solche Wasserstoffproduktion tatsächlich ist.

Zur Zeit werden 51 % des weltweit erzeugten Wasserstoffs für die Ammoniakherstellung mittels Haber-Bosch-Verfahren und 35 % für Raffinerieprozesse verwendet [19]. Zukünftige Anwendungen für Wasserstoff sind die Stromerzeugung durch Brennstoffzellen im mobilen und stationären Bereich, die direkte Verwendung als Kraftstoff oder bei der Herstellung synthetischer Treibstoffe durch das Fischer-Tropsch-Verfahren für mobile Anwendungen [1]. Die Elektrolyse von Wasser kann für die Stabilisierung des Stromnetzes eingesetzt werden.

2. Stand der Technik

Festoxidbrennstoffzellen (englisch: Solid Oxide Fuel Cell, SOFC) können reversibel betrieben werden – das bedeutet, dass man sie sowohl als Brennstoffzelle als auch als Elektrolysezelle verwenden kann. Daher basiert auch ein Großteil der in der Literatur veröffentlichten Studien zum Thema Hochtemperaturelektrolyse auf SOFC-Technologien. Dies betrifft die Elektroden- und Elektrolytmaterialien, die Zellherstellungsmethoden und das Stack- und Systemdesign [9].

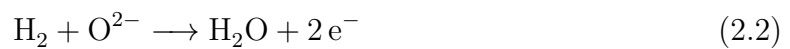
2.1. SOFC

Brennstoffzellen sind Energiewandler, die in der Lage sind, chemisch gebundene Energie direkt in elektrische Energie umzuwandeln. Die Hochtemperaturbrennstoffzelle besteht aus der Sauerstoffelektrode, dem Elektrolyten und der Wasserstoff- bzw. Brennstoffelektrode. Die Elektroden müssen porös, ionen- und elektronenleitend sein, der Elektrolyt gasdicht, elektrisch isolierend und ionenleitend.

Die Betriebstemperatur der SOFC liegt zwischen 650 und 1000 °C. Als Elektrolyt wird hauptsächlich Yttriumoxid (Y_2O_3) stabilisiertes Zirconiumoxid (ZrO_2) (YSZ) eingesetzt. Durch die Dotierung mit Yttriumoxid entstehen Leerstellen im Sauerstoffuntergitter des Zirconiumoxids und dies führt zur Sauerstoffanionenleitfähigkeit der Keramik. Lanthan-Strontium-Manganat (LSM) mit YSZ wird häufig als Sauerstoffelektrode verwendet, die im Brennstoffzellenbetrieb als Kathode fungiert. Ein Cermet aus Nickel und YSZ dient meist als Brennstoffelektrode, die bei einer SOFC die Anode darstellt.

Im Brennstoffzellenbetrieb wird der Kathode Sauerstoff oder Luft zugeführt und der

Anode Wasserstoff oder ein anderes Brenngas, wie z. B. Kohlenmonoxid oder Kohlenwasserstoffe. An der Anode reagiert Wasserstoff mit den durch den Elektrolyt transportierten Sauerstoffanionen zu Wasser, wobei zwei Elektronen für den äußeren Stromkreis freigesetzt werden. Kathodenseitig reagieren diese dann mit Sauerstoff zu Sauerstoffanionen. Die Reaktionsgleichungen der Kathode und der Anode sowie die Gesamtreaktion der Hochtemperaturbrennstoffzelle sind in den Gleichungen 2.1, 2.2 und 2.3 dargestellt.



Die Abbildung 2.1 zeigt die Funktionsweise der Hochtemperaturbrennstoffzelle.

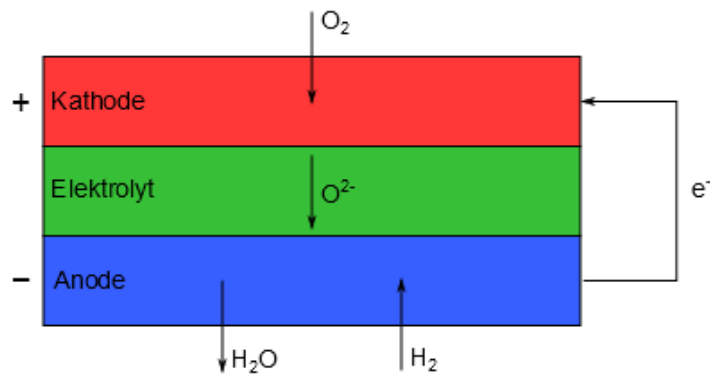


Abbildung 2.1.: Funktionsprinzip einer SOFC

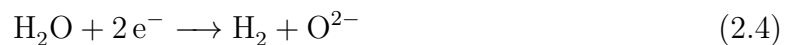
Die Reaktionen finden an der so genannten Drei-Phasen-Grenze (englisch: Triple Phase Boundary, TPB) statt. Dies ist jener Bereich, an dem das Reaktionsgas, der Elektrolyt und der Katalysator miteinander in Kontakt stehen. Es finden keine Reaktionen in Bereichen statt, in denen kein Gas, kein Elektrolyt oder kein Katalysator vorhanden

bzw. die nicht elektrisch kontaktiert sind. Bei einer SOFC dienen die Materialien der Elektroden als Katalysatoren.

2.2. SOEC

Die Elektrolysezelle ist das Gegenteil einer Brennstoffzelle, da sie elektrische Energie in Form von gebundener chemischer Energie speichert. Da die Elektrolyse nicht freiwillig abläuft, wird die Reaktion durch einen aufgeprägten Stromfluss erzwungen. Der Aufbau der Hochtemperaturelektrolysezelle ist derselbe wie bei der SOFC, allerdings dient nun die Brennstoffelektrode als Kathode und die Sauerstoffelektrode als Anode.

Bei der Hochtemperaturelektrolyse wird Wasserdampf zur Kathode geleitet, wo er mit zwei Elektronen zu Wasserstoff und Sauerstoffanionen reagiert. Die Sauerstoffanionen wandern durch den Elektrolyten zur Anode, wobei dort unter Abgabe zweier Elektronen Sauerstoff gebildet wird. Während der Elektrolyse wird zur Sauerstoffelektrode Luft zugeführt, um den produzierten Sauerstoff zu entfernen; theoretisch benötigt man keine Gaszufuhr zur Anode. Die Reaktionsgleichungen der Kathode und Anode sowie die Gesamtreaktion der Hochtemperaturelektrolysezelle sind in den Gleichungen 2.4, 2.5 und 2.6 dargestellt.



Das Funktionsprinzip einer Hochtemperaturelektrolysezelle ist in Abbildung 2.2 ersichtlich.

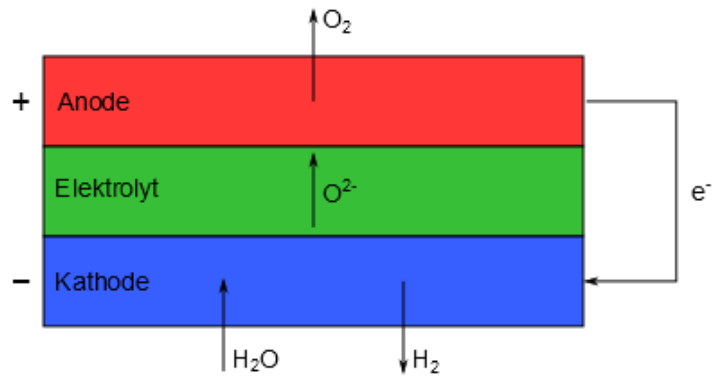


Abbildung 2.2.: Funktionsprinzip einer SOEC

2.2.1. Parameter der SOEC

Die Menge an produziertem Wasserstoff ist von der angelegten Stromstärke und der Dauer der Elektrolyse abhängig; dieser Zusammenhang wird durch das Faraday-Gesetz ausgedrückt (siehe Gleichung 2.7).

$$n = \frac{I t}{z F} \quad (2.7)$$

| | |
|-----------|----------------------------------|
| $n \dots$ | Stoffmenge [mol] |
| $I \dots$ | Stromstärke [A] |
| $t \dots$ | Zeit [s] |
| $z \dots$ | Ladungszahl |
| $F \dots$ | Faraday-Konstante [96 485 C/mol] |

Ein wichtiger Begriff in der Hochtemperaturelektrolyse ist die Dampfausnutzung (englisch: Steam Conversion, SC). Sie gibt an, wie viel Prozent des zugeführten Wasserdampfs bei einer bestimmten Stromstärke umgesetzt werden. Die Berechnung dafür ist in Gleichung 2.8 dargestellt.

$$SC = \frac{n_{\text{H}_2\text{aus}}}{n_{\text{H}_2\text{O}_{\text{ein}}}} \times 100\% \quad (2.8)$$

| | |
|---|---|
| $SC \dots$ | Dampfausnutzung [%] |
| $n_{\text{H}_2\text{aus}} \dots$ | Stoffmenge produzierter Wasserstoff [mol] |
| $n_{\text{H}_2\text{O}_{\text{ein}}} \dots$ | Stoffmenge zugeführter Wasserdampf [mol] |

Die Elektrolyse von Wasser ist eine endotherme Reaktion, wobei die molare Reaktionsenthalpie $\Delta_R H$ bei 800 °C 248,3 kJ/mol beträgt. Allerdings kann eine Hochtemperatur-elektrolysezelle sowohl endotherm, exotherm als auch autotherm betrieben werden. Bei niedrigen Stromdichten ist die Wärmestromdichte der Zelle negativ, da der Wärmebedarf der endothermen Reaktion überwiegt, jedoch wird sie bei hohen Stromdichten positiv, da in diesem Bereich die Abgabe von ohmscher Wärme durch den Widerstand der Zelle dominiert [17]. Jene Spannung, an der der Wärmebedarf und die Wärmeabgabe gleich groß sind, wird als thermoneutrale Spannung U_{th} bezeichnet [20]. Sie ist von der molaren Reaktionsenthalpie und somit auch von der Temperatur abhängig und kann mit Gleichung 2.9 bestimmt werden.

$$U_{th} = \frac{\Delta_R H}{z F} \quad (2.9)$$

| | |
|--------------------|-----------------------------------|
| $U_{th} \dots$ | thermoneutrale Spannung [V] |
| $\Delta_R H \dots$ | molare Reaktionsenthalpie [J/mol] |
| $z \dots$ | Ladungszahl |
| $F \dots$ | Faraday-Konstante [96 485 C/mol] |

Mit der thermoneutralen Spannung ist es auch möglich, die Wärmeentwicklung der Elektrolysezelle nach Gleichung 2.10 zu bestimmen. Die Klemmenspannung U_{KI} entspricht der gemessenen Zellspannung, die sich bei einem gewissen Stromfluss einstellt.

$$Q = I (U_{Kl} - U_{th}) \quad (2.10)$$

| | |
|----------------|--------------------------------|
| $Q \dots$ | Wärmeentwicklung der Zelle [W] |
| $I \dots$ | Stromstärke [A] |
| $U_{Kl} \dots$ | Klemmenspannung [V] |
| $U_{th} \dots$ | thermoneutrale Spannung [V] |

2.2.2. Thermodynamik

Der große Vorteil der Hochtemperaturelektrolyse gegenüber alkalischen oder PEM-Systemen ist, dass der Bedarf an elektrischer Energie für die Umsetzung von Wasser zu Wasserstoff und Sauerstoff reduziert wird. Die molare Reaktionsenthalpie $\Delta_R H$ steht für die gesamte Energie, die mindestens benötigt wird, um Wasser zu spalten, und setzt sich aus der elektrischen, der freien molaren Reaktionsenthalpie $\Delta_R G$ und der thermischen Komponente $T \Delta_R S$ zusammen [21]. Dieser Zusammenhang ist in Gleichung 2.11 dargestellt.

$$\Delta_R H = \Delta_R G + T \Delta_R S \quad (2.11)$$

| | |
|--------------------|---|
| $\Delta_R H \dots$ | molare Reaktionsenthalpie [J/mol] |
| $\Delta_R G \dots$ | freie molare Reaktionsenthalpie [J/mol] |
| $T \dots$ | Temperatur [K] |
| $\Delta_R S \dots$ | molare Reaktionsentropie [J/mol K] |

$T \Delta_R S$ steht für jenen Teil der Gesamtenergie der Reaktion, der durch die Wärme ΔQ abgedeckt wird. Da bei der Elektrolyse von Wasser die molare Reaktionsentropie $\Delta_R S$ positiv ist, nimmt dieser Anteil mit steigender Temperatur zu, wie man in Gleichung 2.12 sehen kann [21].

$$\Delta Q = T \Delta_R S \quad (2.12)$$

| | |
|--------------------|------------------------------------|
| $\Delta Q \dots$ | Wärme [J/mol] |
| $T \dots$ | Temperatur [K] |
| $\Delta_R S \dots$ | molare Reaktionsentropie [J/mol K] |

Gleichung 2.13 stellt den Zusammenhang zwischen der freien molaren Reaktionsenthalpie $\Delta_R G$ und der offenen Zellspannung (englisch: Open-Circuit Voltage, OCV) dar. Die OCV einer Zelle stellt sich ein, wenn kein elektrischer Strom fließt.

$$\Delta_R G = -z F U_0 \quad (2.13)$$

| | |
|--------------------|---|
| $\Delta_R G \dots$ | freie molare Reaktionsenthalpie [J/mol] |
| $z \dots$ | Ladungszahl |
| $F \dots$ | Faraday-Konstante [96 485 C/mol] |
| $U_0 \dots$ | offene Zellspannung [V] |

Nachdem der Anteil der theoretisch aufzubringenden elektrischen Energie an der benötigten Gesamtenergie bei der Wasserelektrolyse mit steigender Temperatur abnimmt, nimmt auch die Zellspannung bei höheren Temperaturen ab.

Der Verlauf der Gesamtenergie sowie des thermischen und des elektrischen Anteils mit der Temperatur ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

2.2.3. Elektrolyt, Elektroden und Interkonnektoren

Bei den meisten in der Literatur veröffentlichten Studien zum Thema SOEC wurden SOFCs reversibel betrieben. Es wird aber auch an neuen, für die Elektrolyse besser geeigneten Materialien geforscht, da die meisten Zellen bei der Elektrolyse eine schlechtere

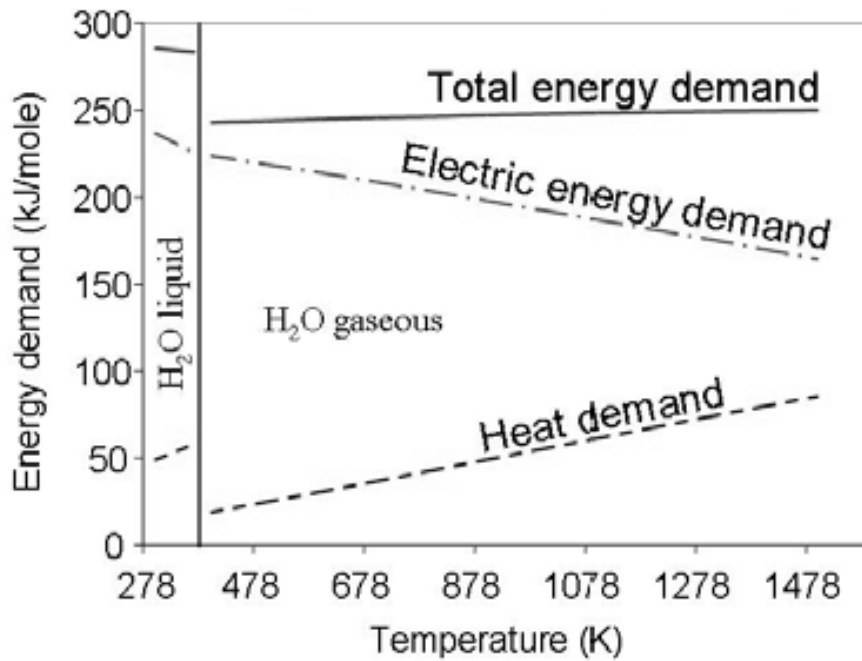


Abbildung 2.3.: Theoretischer Verlauf der Gesamtenergie, des thermischen und elektrischen Anteils für die Elektrolyse von Wasser in Abhängigkeit von der Temperatur [22]

Leistung zeigen. Aufgrund der hohen Betriebstemperatur werden hohe Ansprüche an die verwendeten Materialien gestellt.

Elektrolyt

Beim Großteil der vermessenen Zellen und Stacks wurde ein YSZ-Elektrolyt verwendet [2, 4, 5, 7, 9, 10, 11, 23, 24]. Weitere Elektrolytmaterialien sind Scandiumoxid (Sc_2O_3) stabilisiertes Zirconiumoxid (ScSZ) [3, 25] bzw. Strontium und Mangan dotiertes Lanthan-Galliumoxid (LSGM) [3].

Elangovan et al. [3] zeigten, dass bei der Verwendung von Zellen mit LSGM-Elektrolyt der flächenspezifische Widerstand im Elektrolysemodus niedriger ist als im Brennstoffzellenbetrieb.

Brennstoffelektrode

Als Material für die Brennstoffelektrode wird hauptsächlich Nickel-YSZ eingesetzt [2, 3, 4, 5, 9, 10, 11, 23, 24, 25], es werden aber auch andere Nickelcermet-Verbindungen wie Nickel-Gadoliniumoxid (Gd_2O_3) dotiertes Ceroxid (CeO_2) (GDC) [4, 7] oder Nickel/Ruthenium-GDC [4] verwendet.

Bevor die Zelle vermessen wird, liegt das Nickel noch nicht in metallischer Form vor, sondern als Nickeloxid (NiO). Erst durch die Reduktion mit Wasserstoff entsteht die aktivierte Elektrode. Während des Betriebs muss Wasserstoff als Reduktionsgas im Eingangsgasstrom mitgeführt werden, damit es nicht zur Oxidation des Nickels kommt.

Kim-Lohsoontorn et al. [4] stellten fest, dass Nickel-GDC- und Nickel/Ruthenium-GDC-Elektroden im Gegensatz zu Nickel-YSZ-Elektroden eine vergleichbare Aktivität im SOFC- und im SOEC-Betrieb zeigen und diese auch eine besserer Leistung liefern. Allerdings stieg die Überspannung der GDC-Elektroden mit steigendem Wasserdampfanteil an, während sie bei den Nickel-YSZ-Elektroden sank.

Sauerstoffelektrode

Die verwendeten Materialien für die Sauerstoffelektroden einer SOEC haben eine Perowskit-Struktur, wobei meist eine LSM-YSZ-Elektrode eingesetzt wird [4, 9, 10, 23, 24]. Weitere Verbindungen, die dazu verwendet werden, sind Lanthan-Strontium-Ferrit (LSF) [2, 4, 23], Lanthan-Strontium-Cobalt-Ferrit (LSCF) [4, 7, 11, 23], Samarium-Strontium-Cobaltit (SSC) [5, 25] und Barium-Strontium-Cobalt-Ferrit (BSCF) [4].

Zwischen der Sauerstoffelektrode und dem Elektrolyten wird oft eine Zwischenschicht z. B. aus mit Samariumoxid (Sm_2O_3) dotiertem Ceroxid (SDC) [23], mit Gadoliniumoxid dotiertem Ceroxid (GDC) [4, 5, 25] oder mit Yttriumoxid dotiertem Ceroxid (YDC) [7, 11] aufgetragen, damit es nicht zu Reaktionen zwischen den Materialien der Zellkomponenten kommt.

Literaturergebnisse aus vermessenen Knopfzellen mit LSF-, LSCF- und LSM-Sauerstoffelektroden zeigen, dass Zellen mit LSCF-Elektroden die höchste Leistung und die beste Stabilität während der Elektrolyse aufwiesen, wohingegen solche mit LSM-Elek-

troden sowohl bei Leistung als auch Stabilität die schlechtesten Ergebnisse erzielten [23].

Auch Kim-Lohsoontorn et al. [4] berichten, dass beim Vergleich von LSCF-, LSF- und LSM-Sauerstoffelektroden die Leistung von LSCF-Elektroden am besten und die von LSM-Elektroden am schlechtesten war. Es zeigte sich aber auch, dass es bei allen drei Materialien, im Vergleich zum Brennstoffzellenmodus, zu einer Verschlechterung der Aktivität im Elektrolysebetrieb kam.

Interkonnektoren

Die Interkonnektoren (oder auch Bipolarplatten) haben die Aufgabe, in einem Zellstack die Elektroden mit Gasen zu versorgen und den Strom abzunehmen. Bei Hochtemperaturanwendungen ist es sehr wichtig, dass die Wärmeausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materialien jenen der Keramiken sehr ähnlich sind.

Der Großteil der Interkonnektoren wird aus Metallen hergestellt, wobei aus Kostengründen oft ferritischer Edelstahl verwendet wird [3, 7]. Metallische Interkonnektoren haben den Nachteil, dass sie zum Teil eine begrenzte Hochtemperaturbeständigkeit aufweisen, was zu einer maximalen Betriebstemperatur führt [2]. Außerdem unterscheiden sich ihre Wärmeausdehnungskoeffizienten meist von jenen der Keramiken.

Es werden aber auch auf Lanthan basierende Keramik-Interkonnektoren eingesetzt, die den Vorteil haben, dass die Zellen dann bei höheren Temperaturen betrieben werden können, da die Wärmeausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materialien sehr ähnlich sind [2, 10]. Der Nachteil keramischer Interkonnektoren besteht darin, dass sie eine schlechtere elektrische Leitfähigkeit aufweisen.

2.2.4. Aufbau der Zellen

Bei SOFCs und SOECs kann man prinzipiell zwischen röhrenförmigen und planaren Zellen unterscheiden, wobei sich die letzteren noch in anoden- (englisch: Anode Supported Cell, ASC), elektrolyt- (englisch: Electrolyte Supported Cell, ESC) und metallgestützte (englisch: Metal Substrate Supported Cell, MSC) Zellen einteilen lassen. Die Anode bezieht sich in diesem Fall auf die Brennstoffzelle. Bei röhrenförmigen Zellen wird die

mechanische Stabilität durch eine dickere Sauerstoffelektrodenröhre gewährleistet, während bei planaren Zellen der dickere Elektrolyt bzw. die dickere Brennstoffelektrode dafür sorgen. Bei metallgestützten Zellen liefert das poröse metallische Trägermaterial die mechanische Stabilität, die Elektroden und der Elektrolyt werden in dünnen Schichten darauf aufgetragen. Die unterschiedlichen Zellen sind in Abbildung 2.4 dargestellt.

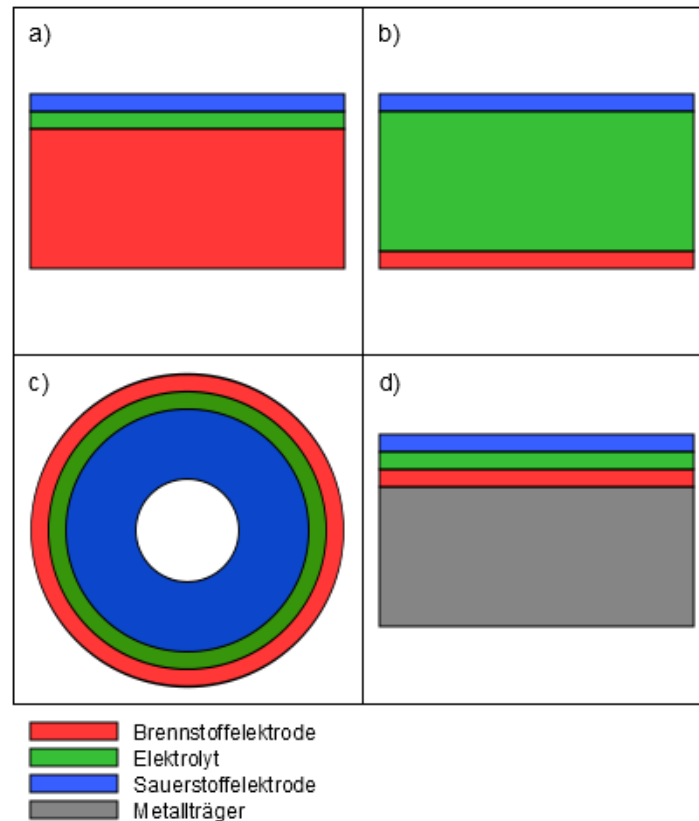


Abbildung 2.4.: Skizzen der unterschiedlichen Zelltypen: a) anodengestützte Zelle, b) elektrolytgestützte Zelle, c) röhrenförmige Zelle, d) metallgestützte Zelle

Die am häufigsten verwendeten Zellen sind planare anodengestützte Zellen, die auch die höchsten Leistungen liefern [2, 3, 7, 23]. Sie haben gegenüber elektrolytgestützten Zellen den Vorteil, dass sie aufgrund des dünneren Elektrolyten einen geringeren inneren Widerstand aufweisen.

Das NASA Glenn Research Center (GRC) hat eine so genannte bi-elektroden-gestützte Zelle (englisch: Bi-electrode Supported Cell, BSC) entwickelt, bei der beide Elektroden

einen dünnen Elektrolyten stützen [2].

2.3. Degradation bei SOEC

Bei der Hochtemperaturelektrolyse wurden bisher Degradationserscheinungen für beide Elektroden, den Elektrolyten und die Grenzfläche zwischen Elektrolyt und Sauerstoffelektrode gefunden und es scheint, dass die Degradationsraten im Elektrolysemodus vor allem bei höheren Stromstärken größer sind als im Brennstoffzellenbetrieb [7]. Die Verschlechterung der Zelleistung ist auch von der Dampfausnutzungsrate abhängig, da die Degradation bei höheren Werten schneller erfolgt [11]. Die Degradation, die im SOEC-Betrieb stattfindet, ist permanent und kann nicht durch das Betreiben der Zelle im Brennstoffzellenmodus rückgängig gemacht werden [4].

In der Literatur wird berichtet, dass die im Brennstoffzellenbetrieb vorherrschenden Degradationsmechanismen auch im Elektrolysemodus auftreten. Es sind vor allem die Vergrößerung der Nickelpartikel in der Brennstoffelektrode [3, 4, 8, 11, 12, 26], die Oxidation der Interkonnectoren [3] und die Chrom- und Siliziummigration aus den Interkonnectoren, die zur Vergiftung der Sauerstoffelektrode führen [3, 7, 12, 23, 27].

Die Vergrößerung der Nickelpartikel tritt vor allem dann auf, wenn der Wasserdampfanteil im Eingangsgasstrom sehr hoch ist. Dies hat zur Folge, dass es zur Verkleinerung der Drei-Phasen-Grenze kommt. Bei hohem Wasserdampfgehalt besteht außerdem die Gefahr, dass es zur Oberflächenoxidation des Nickels kommt und somit zur Ausbildung einer weniger aktiven Schicht [4].

Wenn es zur Oxidation der Interkonnectoren kommt, entstehen Korrosionsschichten mit einem höheren Widerstand. Dadurch erhöht sich der Kontaktwiderstand in der Zelle, was wiederum zu einer Verschlechterung der Zelleistung führt [7, 23].

Minh et al. [23] haben festgestellt, dass die Degradation der Zellen während Elektrolyselangzeittests hauptsächlich an der Sauerstoffelektrode stattfindet. Als Grund für die Verschlechterung der Leistung wird die Ausbildung von Materialschichten mit höherem elektrischen Widerstand angegeben. LSM kann mit YSZ zu $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ und SrZrO_3

reagieren. Dass diese Materialien verstärkt im Elektrolysebetrieb gebildet werden, ist wahrscheinlich auf die Aktivität des Sauerstoffs zurückzuführen. Während im Brennstoffzellenbetrieb die Sauerstoffaktivität an der Drei-Phasen-Grenze abnimmt, steigt sie bei der Wasserdampfelektrolyse, da Sauerstoff erzeugt wird. Daher steigt auch die treibende Kraft hinter der oxidativen Formierung dieser Substanzen. Durch die schnellere Bildung kommt es so auch schneller zu einer Erhöhung des elektrischen Widerstands und somit auch zur schnelleren Degradation der Zelle.

Die Delaminierung der Sauerstoffelektrode vom Elektrolyten ist ein weiterer Faktor zur Verschlechterung der Zelleistung. Die Ursache für diesen Effekt ist nicht genau geklärt, allerdings dürfte abermals die Erzeugung von Sauerstoff an der Drei-Phasen-Grenze der Grund sein. Da es bei der Bildung des Sauerstoffs lokal zu einem Anstieg des Drucks kommen kann, führt dies über einen längeren Zeitraum zur Delamination der Elektrode [4, 7, 11, 23]. Es wird aber auch berichtet, dass durch die Einbringung einer Zwischenschicht zwischen Elektrolyt und Sauerstoffelektrode die Delamination verhindert werden kann [7].

Ein Grund, warum die Zellen im Brennstoffzellenbetrieb geringere Verluste aufweisen, ist, dass Wasserstoff und Wasserdampf unterschiedliche Diffusionsneigungen haben. Da der Stofftransport durch die Elektrode hauptsächlich auf Diffusion beruht, benötigen die schwereren Wassermoleküle länger, um zur Drei-Phasen-Grenze zu gelangen [4, 9].

Für eine gute Leistung des Hochtemperaturelektrolysesystems ist es auch sehr wichtig, dass die Gasdichtheit gewährleistet ist, da ein Entweichen des Wasserstoffs den Output verringert und ein Risiko zur Überhitzung darstellt [11].

2.4. Technologien zur Wasserstofferzeugung

Da Wasserstoff auf der Erde nur in Verbindungen vorkommt, ist es nötig, Primärenergie für seine Erzeugung zu verwenden. Zur Zeit werden etwa 96 % des weltweit produzierten Wasserstoffs aus fossilen Rohstoffen gewonnen [19], wobei die Reformierung fossiler Kohlenwasserstoffe großtechnisch am weitesten verbreitet ist [1]. Ungefähr 40 % des Was-

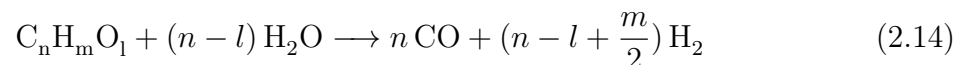
serstoffs entstehen als Nebenprodukt bei industriellen Prozessen [1].

2.4.1. Reformierung

Es gibt drei Verfahren zur Reformierung von Kohlenwasserstoffen: Dampfreformierung, Partielle Oxidation und Autotherme Reformierung. Diese Verfahren besitzen die höchsten Wirkungsgrade zur Wasserstoffherstellung und sind auch die wirtschaftlichsten, jedoch wirken sich die anfallenden CO₂-Emissionen negativ auf den Treibhauseffekt aus [1].

Dampfreformierung (DR)

Bei der Dampfreformierung handelt es sich um eine endotherme katalytische Umsetzung von Kohlenwasserstoffen mit Wasserdampf zu Synthesegas. Die Reaktion ist in Gleichung 2.14 dargestellt.

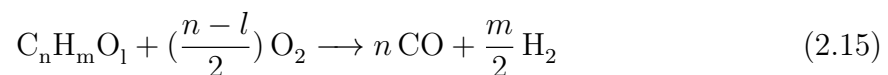


Die Umsetzung findet bei einer Temperatur von 600 bis 900 °C statt und es werden meist Nickel-Katalysatoren eingesetzt. Der Systemwirkungsgrad des Verfahrens liegt zwischen 70 und 85 % [28].

Die Dampfreformierung von Erdgas ist die am weitesten verbreitete Herstellungsmethode für Wasserstoff [1, 3].

Partielle Oxidation (POX)

Bei der Partiellen Oxidation handelt es sich um eine exotherme Umsetzung von Kohlenwasserstoffen mit Sauerstoff zu Synthesegas. Die Reaktion ist der Gleichung 2.15 zu entnehmen.



Dieses Verfahren kann auf zwei Arten durchgeführt werden: Bei der thermischen POX werden Kohlenwasserstoffe bei einer Temperatur zwischen 1200 und 1600 °C ohne Katalysator umgesetzt, während bei der katalytischen POX die Reaktion bei einer Temperatur von 700 bis 900 °C erfolgt und Nickelkatalysatoren eingesetzt werden. Die Systemwirkungsgrade der Verfahren liegen zwischen 60 und 75 % [28].

Autotherme Reformierung (ATR)

Bei der Autothermen Reformierung handelt es sich um ein Verfahren, das eine Kombination aus der Dampfreformierung und der Partiellen Oxidation darstellt. Dabei soll die für die Dampfreformierung benötigte Wärme durch die Partielle Oxidation zur Verfügung gestellt werden. Der Wirkungsgrad des Verfahrens liegt zwischen 60 und 75 % [28].

2.4.2. Wassergas-Shift-Reaktion (WGS)

Bei der Wassergas-Shift-Reaktion handelt es sich um eine exotherme katalytische Umsetzung von Kohlenmonoxid mit Wasserdampf zu Kohlendioxid und Wasserstoff. Die Reaktion ist in Gleichung 2.16 dargestellt.



Dieses Verfahren wird verwendet, um nach der Reformierung den Wasserstoffanteil des Produktgases zu erhöhen. Die Umsetzung erfolgt zumeist zweistufig. Beim Hochtemperatur-WGS erfolgt die Reaktion bei einer Temperatur von 300 bis 500 °C; es werden meist Eisen-Katalysatoren verwendet [28]. Dieser Schritt zeichnet sich durch seine schnelle Reaktionsgeschwindigkeit aus, allerdings liegt eine schlechte Gleichgewichtslage vor. Beim Niedertemperatur-WGS erfolgt die Reaktion bei Temperaturen von 150 bis 250 °C und es werden meist Kupfer-Katalysatoren eingesetzt. Zwar ist die Reaktions-

geschwindigkeit bei diesem Schritt langsamer, dafür weist er aber eine gute Gleichgewichtslage auf.

2.4.3. Wasserstoff als Nebenprodukt

Wasserstoff wird in Raffinerien als Nebenprodukt der Benzinreformierung und der Ethenproduktion hergestellt und vor Ort bei der Entschwefelung und beim Hydrocracking verwendet [1].

Ein weiteres großtechnisches Verfahren, bei dem Wasserstoff entsteht, ist die Chlor-Alkali-Elektrolyse [1]. Die Gesamtreaktion ist in Gleichung 2.17 abgebildet.



3. Versuchsaufbau

3.1. Zelle

Bei den Versuchen wurde eine SOFC-Brennstoffzelle der Firma Haldor Topsoe verwendet (siehe Abbildung 3.1). Es handelte sich dabei um eine anodengestützte Zelle, deren aktive Oberfläche 16 cm^2 betrug. Die Abmaße der Anode und des Elektrolyts waren $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ und die der Kathode $4\text{ cm} \times 4\text{ cm}$. Die Zelle setzte sich aus einer LSM-YSZ-Sauerstoffelektrode, einem YSZ-Elektrolyten und einer Nickel-YSZ-Wasserstoffelektrode zusammen.

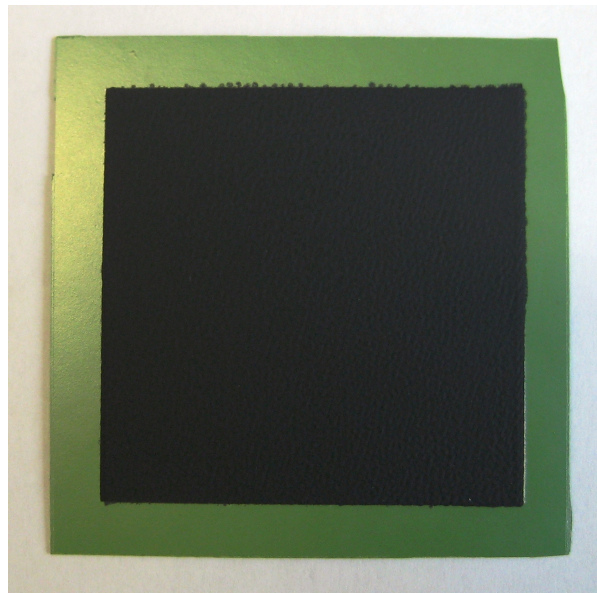


Abbildung 3.1.: Eine SOFC-Brennstoffzelle der Firma Haldor Topsoe

3.2. Aufbau des Teststandes

Die Versuche wurden in einem Teststand der Firma AVL List durchgeführt, der aus einem Ofen, einer elektronischen Last (E-Last) für Brennstoffzellenversuche, einem Netzgerät für Elektrolyseversuche, Gasleitungen und einem Verdampfer bestand. Bis auf das Netzgerät konnte der gesamte Teststand mittels Simulink-Oberfläche vom Computer aus gesteuert werden.

Da der Prüfstand nur auf die Vermessung von Zellstacks ausgelegt war, wurden einige Anpassungen für Einzelzellmessungen durchgeführt. Es wurden neun neue Massedurchflussregler (englisch: Mass Flow Controller, MFC) eingebaut und zu jedem MFC eine Gasleitung verlegt. In Tabelle 3.1 ist aufgelistet, für welche Gase und Durchflüsse die MFCs ausgelegt waren.

Tabelle 3.1.: Liste der eingebauten Massedurchflussregler

| Gase | max. Durchfluss [NL/h] |
|---------------------|------------------------|
| Wasserstoff | 12 |
| Luft | 20 |
| Luft | 100 |
| Stickstoff | 20 |
| Stickstoff | 10 |
| Kohlenmonoxid | 30 |
| Kohlenmonoxid | 100 |
| Schwefeldioxid | 5 |
| Schwefelwasserstoff | 5 |

Die Versorgung der Sauerstoffelektrode erfolgte über den Luft-MFC mit dem maximalen Durchfluss von 100 NL/h. Der Kohlenmonoxid-MFC mit dem maximalen Durchfluss von 100 NL/h wurde für die Zuleitung von Wasserstoff verwendet. Um den richtigen Durchfluss einzustellen, musste der gewünschte Wert an Wasserstoff mit 0,98 multipliziert werden [29].

Die MFCs für Schwefeldioxid, Schwefelwasserstoff, Stickstoff und Kohlenmonoxid mit dem maximalen Durchfluss von 30 NL/h sind bei den Elektrolysetests nicht benötigt worden, wurden aber eingebaut, um nach Beendigung der Testreihen die Zelle weiter verwenden zu können [30, 31].

Da der Verdampfer nicht in der Lage war, die benötigten Mengen an Wasserdampf zu erzeugen, wurde dieser mittels Verbrennung von Luftsauerstoff und Wasserstoff in einem Katalysator hergestellt. Der Katalysator bestand aus drei übereinander liegenden Edelstahlrohren. Im innersten Rohr konnte Wasserstoff bzw. ein Gemisch aus Wasserstoff und Stickstoff zugeleitet werden. Im mittleren Rohr, an dessen Ende sich ein Nickelnetz befand, wurde Luft zugeführt. Der durch die Verbrennung am Nickelnetz entstandene Wasserdampf gelangte über das äußerste Rohr wieder Richtung Zelle. Der Aufbau des Katalysators ist in Abbildung 3.2 skizziert.

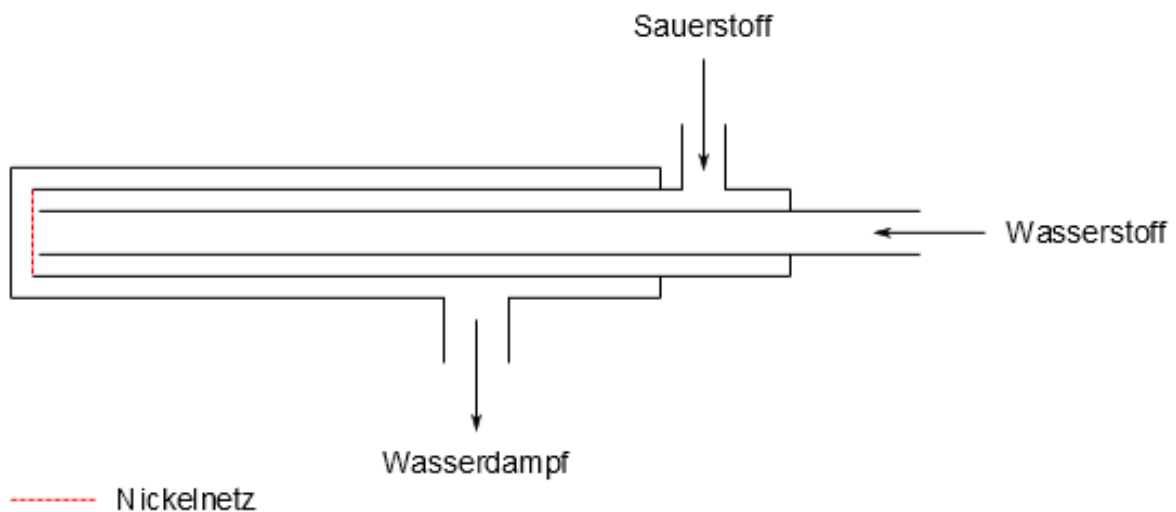


Abbildung 3.2.: Skizze des Katalysators für die Wasserdampferzeugung

Für die Gaszuleitungen zum Katalysator wurden Teflonschläuche verwendet, vom Katalysator bis kurz vor Eintritt in den Ofen Edelstahlrohre. Die Zuführung der anderen Gase, die für die Elektrolysetests nicht verwendet wurden, erfolgte über Teflonschläuche. Die beiden Zuleitungen wurden zusammengeführt und gingen dann in ein Keramikrohr über, das die Gase in den Ofen leitete. Um das Auskondensieren des erzeugten Wasserdampfs

zu verhindern, wurde die Zuleitung zur Wasserstoffelektrode nach dem Katalysator bis zum Eintritt in den Ofen mit Heizbändern versehen und mit Dämmmaterial isoliert. Die Heizbänder sorgten dafür, dass die Gastemperatur nicht unter 120 °C fiel. Die Luftzufuhr zur Sauerstoffelektrode erfolgte über eine Edelstahlleitung, die dann in ein weiteres Keramikrohr überging. Diese Leitung musste nicht beheizt werden, da der Gasstrom bei den verwendeten Durchflüssen im Ofen auf Temperatur gebracht werden konnte. Um die Zelle während eines Stromausfalls weiterhin versorgen zu können, gab es für beide Elektroden eine Purgeleitung. Auf der Sauerstoffseite diente Luft als Schutzgas, auf der Wasserstoffseite Arcal, ein Gemisch aus 10 % Wasserstoff in Stickstoff. In Abbildung 3.3 ist die gesamte Gaszufuhr zur Zelle abgebildet und Abbildung 3.4 zeigt den Teststand nach der Durchführung der Testreihen.

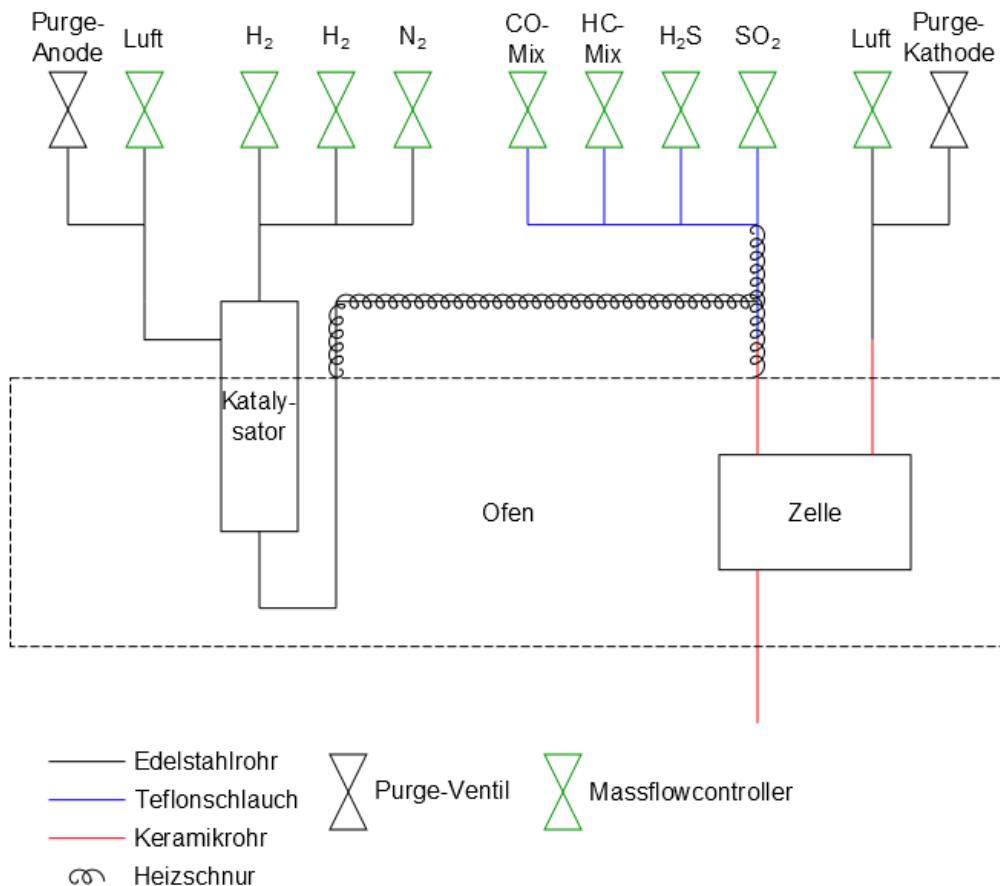


Abbildung 3.3.: Skizze der Gaszufuhr des gesamten Teststands



Abbildung 3.4.: Der Teststand nach der Durchführung der Testreihen

3.3. Aufbau des Cell Housings

Das Cell Housing wurde von der Firma FuelCon zur Verfügung gestellt und bestand aus den in Tabelle 3.2 aufgelisteten Bestandteilen. Die Bezeichnungen Anode und Kathode beziehen sich in diesem Fall auf den Brennstoffzellenbetrieb.

Der erste Schritt beim Aufbau des Cell Housings bestand darin, das grobe Platinnetz auf den Unterteil zu legen, wobei darauf zu achten war, dass sich die Drähte in den Gaskanälen befanden. Nachdem das feine Platinnetz auf dem groben platziert war, konnte nun der Rahmen auf den Unterteil gelegt werden, wobei dieser nicht durch die Platinnetze angehoben werden sollte. Die Zelle musste nun so auf dem Rahmen platziert werden, dass sie den gesamten Freiraum abdeckte und die Sauerstoffelektrode auf dem

Tabelle 3.2.: Bestandteile des Cell Housings

| Bestandteile | Material |
|------------------------|---|
| Unterteil | Al_2O_3 |
| Oberteil | Al_2O_3 |
| Rahmen | Al_2O_3 |
| Nickelstempel | Nickel |
| Stromstange Anode | Inconel 600 |
| Stromstange Kathode | Inconel 600 |
| Keramikrohr | Al_2O_3 |
| Platinnetz grob | Platin |
| Platinnetz fein | Platin |
| Nickelnetz grob | Nickel |
| Nickelnetz fein | Nickel |
| Keramikstäbchen | Al_2O_3 |
| Keramikhülse | Al_2O_3 |
| Keramikstab | Al_2O_3 |
| Adapter | Edelstahl (1.4571) |
| Spannungsabgriff Anode | Al_2O_3 -Rohr mit Platindraht |

Platinnetz aufliegen konnte. Danach wurde auf die Wasserstoffelektrode zuerst das feine und dann das grobe Nickelnetz gelegt. Auf das grobe Netz wurde der Nickelstempel positioniert, wobei darauf zu achten war, dass die eingefrästen Gaskanäle parallel zu jenen des Unterteils verliefen. Der letzte Schritt bestand aus dem Aufsetzen des Oberteils. Aufgrund der Tatsache, dass das Cell Housing nur über plane Flächen abdichtete, musste darauf geachtet werden, die einzelnen Bestandteile exakt anzuordnen und frei von Verunreinigungen zu halten. Abbildung 3.5 zeigt die Komponenten des Cell Housings.

Da das Cell Housing auf eine von unten kommende Gaszufuhr und -abfuhr ausgelegt und dies beim vorliegenden Teststand nicht möglich war, musste ein Keramickessel konstruiert werden, der diese Aufgabe übernahm. Die Gaszufuhr zu den Elektroden

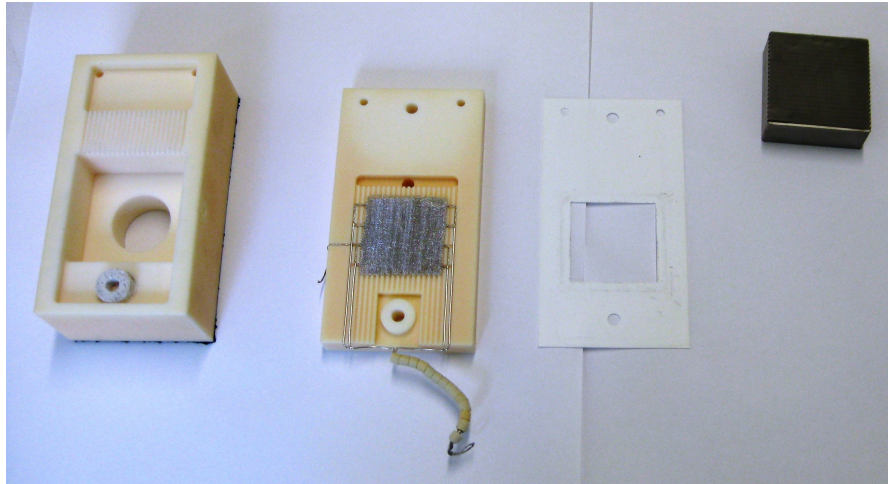


Abbildung 3.5.: Komponenten des Cell Housings von links nach rechts: Oberteil, Unterteil mit Platinnetzen, Rahmen, Nickelstempel mit Nickelnetzen

sowie die Gasabfuhr von der Wasserstoffseite erfolgte über drei Keramikrohre, die mit einem Keramikkleber im Sockel befestigt wurden. Durch Bohrungen im Sockel wurden die Gase zu den Elektroden geleitet und auch wieder abgeführt. Auf der Sauerstoffseite erfolgte die Abfuhr der Produkte nicht über ein Rohr, da das Abgas direkt in den Ofen strömte. Um das Cell Housing exakt zu platzieren und ein Verrutschen zu verhindern, wurde es mit zwei Keramikstäbchen am Sockel positioniert. Um die Gastemperatur im Sockel zu bestimmen, waren drei Löcher gebohrt worden, in die Temperatursensoren geklebt wurden.

Durch die Decke des Ofens wurde das Keramikrohr in den Oberteil geführt und in dieses die Stromstange für die Anode gesteckt, die den Nickelstempel kontaktierte. Um sicherzugehen, dass sich die Stange zentriert im Rohr befand, wurde zuvor die Keramikhülse mittels Keramikstab an ihr befestigt. Über die Anodenstromstange wurde der Adapter in das Keramikrohr gesteckt und mittels einer Überwurfmutter daran festgeschraubt. In Abbildung 3.6 ist der Aufbau des Cell Housings skizziert.

Um die Dichtheit des Aufbaus zu verbessern, wurden folgende Maßnahmen getroffen: Damit zwischen Unterteil, Rahmen und Oberteil keine Spalten entstehen konnten, wurden Metallstücke mit einem Gesamtgewicht von ca. 4 kg auf das Oberteil gelegt. Am oberen Ende besaß die Anodenstromstange ein Innengewinde, mit dem ein ca. 7 kg

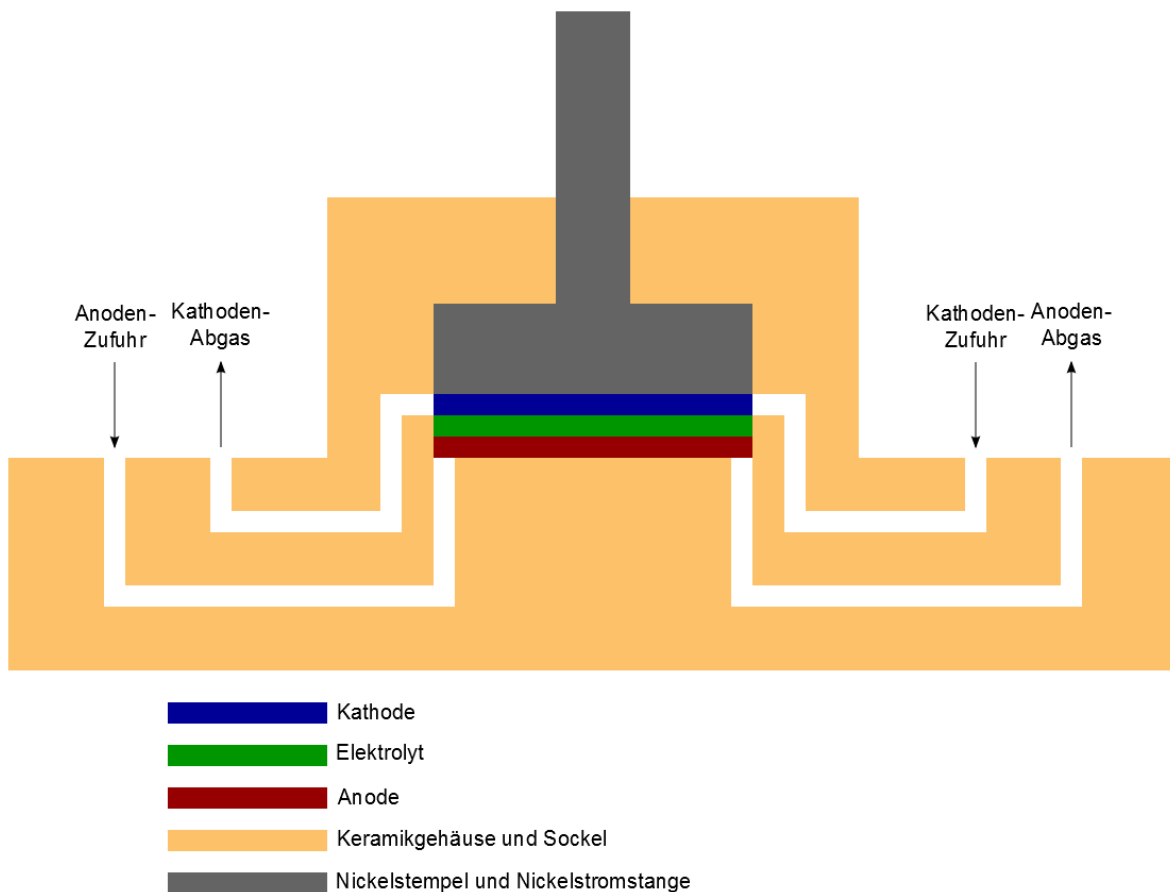


Abbildung 3.6.: Skizze des Cell Housings

schweres Gewicht befestigt wurde, um einerseits die beiden Gasräume besser abzudichten und andererseits den elektrischen Kontakt zu verbessern. Weiters wurde der Übergang Keramikrohr zu Stromstange mit Teflonband abgedichtet. Abbildung 3.7 zeigt ein Bild des Cell Housings im Teststand.

Die Stromabnahme erfolgte auf der Wasserstoffseite über die Nickelnetze, den Nickelstempel und die Anodenstromstange. An dieser wurde außerhalb des Ofens ein Kupferkabel befestigt, das dann mit der E-Last bzw. dem Netzteil kontaktiert werden musste. Auf der Sauerstoffseite erfolgte die Stromabnahme über das grobe Platinnetz. An diesem war ein Platindraht befestigt, der durch den Auslass für das Abgas hinausstand und dann mit einer Schraube an der Kathodenstromstange befestigt werden konnte, die durch die Ofendecke hindurch auf dem Sockel stand. An der Stange wurde wieder-

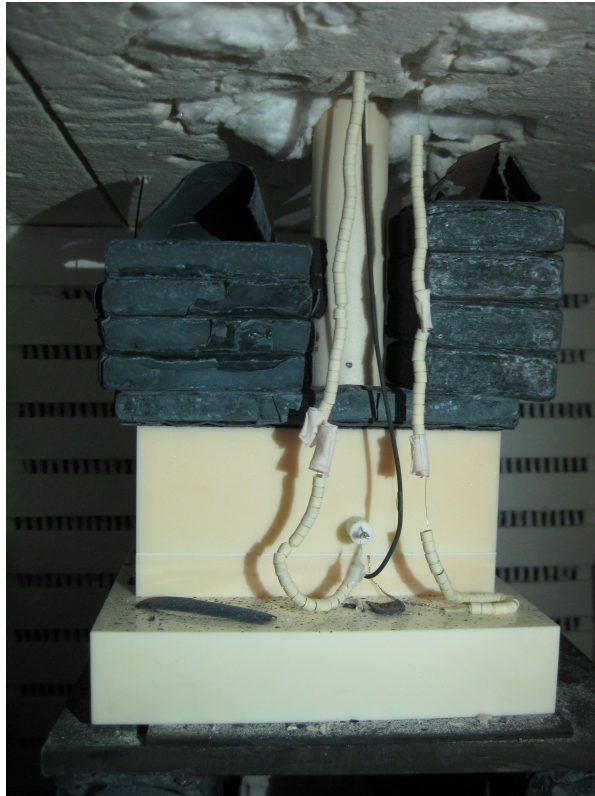


Abbildung 3.7.: Das Cell Housing nach den Versuchsreihen im Teststand

um ein Kupferkabel befestigt, das an der E-Last bzw. am Netzteil kontaktiert wurde. Die Spannungsmessung bei der Wasserstoffelektrode erfolgte über ein Keramikröhrchen, durch das drei Platindrähte führten. Durch Bohrungen im Oberteil und im Nickelstempel konnte das Röhrchen in den Oberteil gesteckt werden, sodass die Enden der Drähte den Stempel kontaktierten. Auf der Außenseite wurden die Drähte mit einem ca. 1 m langen und sehr dünnen Platindraht verdrillt, der dann aus dem Ofen führte. Bei der Sauerstoffelektrode erfolgte die Spannungsmessung über das grobe Platinnetz. Es besaß einen weiteren Platindraht, der aus einer kleinen Bohrung aus dem Unterteil führte. Dieser wurde ebenso mit einem ca. 1 m langen Platindraht verdrillt. Die beiden Spannungsleitungen, auch Sense-Leitungen genannt, wurden außerhalb und innerhalb des Ofens mit Keramikhülsen elektrisch isoliert und später an Kupferkabel gelötet, die dann an der E-Last befestigt wurden. Ebenfalls wurden außerhalb des Ofens die beiden Stromstangen und das ca. 7 kg schwere Gewicht elektrisch isoliert.

3.4. Messplan

Die zu vermessende Zelle wurde mit verschiedenen Strom-Spannungskennlinien (UI-Kennlinien) charakterisiert. Die zwei Parameter, die bei den Tests variiert wurden, waren die Temperatur und die Dampfausnutzung (englisch: Steam Conversion, SC). Es sollte untersucht werden, wie sich die Veränderungen der Parameter auf die Leistung der Zelle auswirken.

Die UI-Kennlinien wurden bis zu einer Stromdichte von $0,5 \text{ A/cm}^2$ aufgenommen – dies entspricht einer Stromstärke von 8 A. Auf diesen Wert der Stromstärke beziehen sich auch die Werte der Dampfausnutzung: Eine Dampfausnutzung von 50 % bedeutet, dass bei einer Stromstärke von 8 A 50 % des zugeführten Wasserdampfs zu Wasserstoff reagieren. Um eine UI-Kennlinie aufzuzeichnen, wurde die Stromstärke stufenweise um 0,8 A erhöht. Bei jedem Messpunkt wurde mehrere Minuten gewartet, bis sich die Spannung stabilisiert hatte. Aus den Spannungswerten der letzten Minute wurde der Mittelwert berechnet. Die Erhöhung der Stromstärke erfolgte im Brennstoffzellenbetrieb mit $0,01 \text{ A/s}$ und im Elektrolysebetrieb mit ca. $0,05 \text{ A/s}$. Die Messungen wurden abgebrochen, wenn die Spannung einen Wert kleiner $0,65 \text{ V}$ bzw. größer $1,55 \text{ V}$ erreichte.

Es wurden Elektrolysemessungen bei Dampfausnutzungen von 40 %, 50 %, 60 % und 70 % und bei Temperaturen von 650°C , 700°C , 750°C und 800°C durchgeführt. Zusätzlich wurde die Zelle auf ihre Reversibilität getestet, dazu sind UI-Kennlinien im Elektrolyse- und im Brennstoffzellenbetrieb bei gleicher Gaszusammensetzung aufgenommen worden. Das Gasgemisch bestand aus der Wasserdampfmenge bei einer SC von 50 % und der gleichen Menge an Wasserstoff. Dieser Versuch wurde immer vor den Elektrolysemessungen bei 750°C und der jeweiligen Testtemperatur durchgeführt. In weiterer Folge wird dieser Test als SC 50 % + H_2 bezeichnet. In Tabelle 3.3 ist der Messplan aufgelistet.

Tabelle 3.3.: Messplan

| Messung | Temperatur [°C] | SC [%] |
|---------|-----------------|---------------------|
| 1 | 750 | 50 + H ₂ |
| 2 | 750 | 40 |
| 3 | 750 | 50 |
| 4 | 750 | 60 |
| 5 | 750 | 70 |
| 6 | 750 | 50 + H ₂ |
| 7 | 700 | 50 + H ₂ |
| 8 | 700 | 40 |
| 9 | 700 | 50 |
| 10 | 700 | 60 |
| 11 | 700 | 70 |
| 12 | 750 | 50 + H ₂ |
| 13 | 650 | 50 + H ₂ |
| 14 | 650 | 40 |
| 15 | 650 | 50 |
| 16 | 650 | 60 |
| 17 | 650 | 70 |
| 18 | 750 | 50 + H ₂ |
| 19 | 800 | 50 + H ₂ |
| 20 | 800 | 40 |
| 21 | 800 | 50 |
| 22 | 800 | 60 |
| 23 | 800 | 70 |
| 24 | 750 | 50 + H ₂ |

Beim Betrieb im Elektrolysemodus wurde darauf geachtet, dass an der Wasserstoffelektrode immer eine reduzierende Atmosphäre vorherrschte, damit diese nicht oxidiert werden konnte – deshalb befanden sich im zugeführten Gasstrom an der Zelle immer ca. 10 % Wasserstoff. Bei der für die Erzeugung des Wasserdampfs nötigen Luft wurde der Sauerstoffanteil mit 21 % angenommen. Die daraus entstandenen Durchflüsse zum Katalysator, zur Wasserstoffelektrode und die prozentuellen Anteile der Gase an der Elektrode sind in den Tabellen 3.4, 3.5 und 3.6 aufgelistet. Zur Sauerstoffelektrode wurden zu jeder Zeit 100 NL/h Luft zugeführt.

Tabelle 3.4.: Durchflüsse zum Katalysator bei verschiedenen Dampfausnutzungen

| SC [%] | H ₂ [NL/h] | Luft [NL/h] | Gesamt [NL/h] | O ₂ [NL/h] | N ₂ [NL/h] |
|---------------------|-----------------------|-------------|---------------|-----------------------|-----------------------|
| 50 + H ₂ | 13,37 | 15,92 | 29,29 | 3,34 | 12,58 |
| 40 | 11,03 | 19,90 | 30,93 | 4,18 | 15,75 |
| 50 | 8,83 | 15,92 | 24,75 | 3,34 | 12,58 |
| 60 | 7,36 | 13,27 | 20,63 | 2,79 | 10,48 |
| 70 | 6,30 | 11,37 | 17,67 | 2,39 | 8,98 |

Tabelle 3.5.: Durchflüsse zur Brennstoffelektrode bei verschiedenen Dampfausnutzungen

| SC [%] | H ₂ [NL/h] | H ₂ O [NL/h] | N ₂ [NL/h] | Gesamt [NL/h] |
|---------------------|-----------------------|-------------------------|-----------------------|---------------|
| 50 + H ₂ | 6,69 | 6,68 | 12,58 | 25,95 |
| 40 | 2,67 | 8,36 | 15,75 | 26,78 |
| 50 | 2,15 | 6,68 | 12,58 | 21,41 |
| 60 | 1,78 | 5,58 | 10,48 | 17,84 |
| 70 | 1,52 | 4,78 | 8,98 | 15,28 |

Tabelle 3.6.: Prozentueller Anteil der Gase an der Wasserstoffelektrode bei verschiedenen Dampfausnutzungen

| SC [%] | H ₂ [%] | H ₂ O [%] | N ₂ [%] |
|---------------------|--------------------|----------------------|--------------------|
| 50 + H ₂ | 25,78 | 25,74 | 48,48 |
| 40 | 9,97 | 31,22 | 58,81 |
| 50 | 10,04 | 31,20 | 58,76 |
| 60 | 9,98 | 31,28 | 58,74 |
| 70 | 9,95 | 31,28 | 58,77 |

3.5. Aktivierung der Zelle

Die Aktivierung der Zelle erfolgte nach den Anweisungen der Firma Haldor Topsoe. Zuerst wurde der Ofen mit der Heizgeschwindigkeit von ungefähr 1 K/min auf 850 °C vorgeheizt. Während dieser Phase und bis zwei Stunden nach dem Erreichen der gewünschten Temperatur wurde auf der Wasserstoffseite ein Durchfluss von 20 NL/h eingestellt. Das Gasgemisch bestand aus Stickstoff mit 9 % Wasserstoff. Auf der Sauerstoffseite bestand der Durchfluss aus 40 NL/h Luft. Danach wurde auf der Wasserstoffelektrode der Durchfluss auf reinen Wasserstoff umgestellt. Nach einer Stunde war somit der Reduktionsvorgang abgeschlossen.

Es begann nun das Abkühlen auf 750 °C; in weiterer Folge wurde die Brennstoffzelle in den nächsten sechs Tagen abwechselnd stromlos und unter Last sowie mit reinem Wasserstoff und einem Gemisch aus Wasserstoff und Wasserdampf betrieben.

Während dieser Zeit stellte sich heraus, dass der Kontakt der Sense-Leitung an der Wasserstoffelektrode sehr schlecht und die Spannungsmessung daher fehlerhaft war. Deshalb musste der Ofen nochmals abgekühlt und der Kontakt neu hergestellt werden. Die Zelle überstand diese ungeplante Unterbrechung gut und zeigte keinerlei Degradationserscheinungen.

4. Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage

Das Modell für eine Hochtemperaturelektrolysezelle wurde aufbauend auf einem schon vorhandenen Modell einer Hochtemperaturbrennstoffzelle mit MatLab erstellt. Das Modell wurde sehr einfach gehalten und beschreibt das Verhalten einer idealen Elektrolysezelle. Man ging davon aus, dass es zu keinen elektrischen Verlusten kommt und somit die gesamte zugeführte elektrische Energie zur Herstellung von Wasserstoff zur Verfügung steht. Weiters sind sämtliche Nebenreaktionen, wie z. B. die Elektrolyse von Kohlendioxid zu Sauerstoff und Kohlenmonoxid, ausgeschlossen worden und alle Gase wurden als ideal angenommen.

4.1. Erstellung eines SOEC-Modells

Als erste Anpassung an ein Elektrolysemodell musste die Menge des erzeugten Wasserstoffs in mol/s berechnet werden. Dies geschah durch die Umformulierung des Faradayschen Gesetzes.

$$H_{2prod} = \frac{I}{zF} \times N_{Ocell} \quad (4.1)$$

| | |
|-----------------|----------------------------------|
| H_{2prod} ... | produzierter Wasserstoff [mol/s] |
| I ... | Stromstärke einer Zelle [A] |
| z ... | Ladungszahl [2] |
| F ... | Faraday-Konstante [96 485 C/mol] |
| N_{Ocell} ... | Anzahl der Zellen |

Mit H_{2prod} konnten nun die Ausgangsströme von Wasserstoff, Wasserdampf und Sauerstoff bestimmt werden.

$$H_{2aus} = H_{2ein} + H_{2prod} \quad (4.2)$$

$$H_2O_{aus} = H_2O_{ein} - H_{2prod} \quad (4.3)$$

$$O_{2aus} = O_{2ein} + \frac{H_{2prod}}{2} \quad (4.4)$$

| | |
|------------------|-----------------------------------|
| H_{2aus} ... | Ausgangsstrom Wasserstoff [mol/s] |
| H_{2ein} ... | Eingangsstrom Wasserstoff [mol/s] |
| H_2O_{aus} ... | Ausgangsstrom Wasserdampf [mol/s] |
| H_2O_{ein} ... | Eingangsstrom Wasserdampf [mol/s] |
| O_{2aus} ... | Ausgangsstrom Sauerstoff [mol/s] |
| O_{2ein} ... | Eingangsstrom Sauerstoff [mol/s] |

Eine weiterer Bestandteil des Modells betraf die Berechnung der Dampfausnutzung.

$$SC = \frac{H_{2prod}}{H_{2O_{ein}}} \times 100 \% \quad (4.5)$$

$SC \dots$ Dampfausnutzung [%]

Die nächste Anpassung betraf die Bestimmung der thermoneutralen Spannung U_{th} .

$$U_{th} = \frac{\Delta_R H}{z F} \quad (4.6)$$

$U_{th} \dots$ thermoneutrale Spannung [V]

$\Delta_R H \dots$ molare Reaktionsenthalpie [J/mol]

Mit der thermoneutralen Spannung konnte nun die Wärmeentwicklung Q der Elektrolysezelle berechnet werden.

$$Q = N_{ocell} I (U - U_{th}) \quad (4.7)$$

$Q \dots$ Wärmeentwicklung der Zelle [W]

$U \dots$ Spannung der Zelle [V]

Alle weiteren Berechnungen des Modells wurden direkt vom SOFC-Modell übernommen und werden deshalb auch nicht aufgelistet. Die einzige weitere Veränderung war, dass das thermische Modell der Elektrolysezelle von einer gleichmäßigen Verteilung der Wärmeentwicklung ausging.

4.2. Erstellung eines Systemmodells einer 10 kW SOEC-Anlage

Ausgehend von dem erstellten SOEC-Modell wurden zwei Systemmodelle für eine 10 kW SOEC-Elektrolyseanlage mittels Simulink erstellt. Das erste Modell simuliert eine Anlage ohne externe Wärmezufuhr, bei der die benötigte thermische Energie zur Verdampfung des Wassers und zur Erwärmung der Eintrittsgase durch Verbrennung des produzierten Wasserstoffs mit Luft erzeugt wird. Das zweite Modell stellt eine Anlage dar, bei der die Verdampfung des Wassers durch eine zugeführte Wärmequelle erfolgt.

Die Modelle stellen nicht den Anspruch, in die Realität umgesetzt zu werden. Sie sollen jedoch zeigen, welche Auswirkungen auf den Wirkungsgrad einer Elektrolyseanlage entstehen können, wenn an gewissen Parametern Änderungen vorgenommen werden.

4.2.1. Auslegung des Elektrolyseurs

Der Elektrolyseur sollte eine elektrische Leistung von 10 kW besitzen und bei einer Temperatur von 800 °C bei der thermoneutralen Spannung betrieben werden. Diese beträgt bei dieser Temperatur 1,287 V. Die Stromdichte wurde auf 0,4 A/cm² ausgelegt und die Zellen sollten eine aktive Oberfläche von 127 cm² besitzen. Dies führte zu der Auslegung des Elektrolyseurs mit 153 Zellen und einer Stromstärke von 50,8 A pro Zelle. Die Auslegung und die Betriebspunkte sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

4.2.2. Auslegung des Systems und der Komponenten

Um die Betriebstemperatur von 800 °C zu erreichen, wurden die Eingangsgase mittels Gegenstromwärmetauscher auf Temperatur gebracht. Die Temperatur des Gasstroms zur Erwärmung durfte dabei nicht höher als 900 °C sein, da dies die obere Grenze für Wärmetauscher darstellt.

Bei der Auslegung der Modelle musste berücksichtigt werden, dass das Abgas einen

Tabelle 4.1.: Auslegung und Betriebspunkte des Elektrolyseurs

| Parameter | Auslegung/Betriebspunkt |
|------------------------------|-------------------------|
| Elektrische Leistung | 10 kW |
| Betriebstemperatur | 800 °C |
| Betriebsspannung | 1,287 V |
| Anzahl der Zellen | 153 |
| aktive Oberfläche der Zellen | 127 cm ² |
| Stromstärke pro Zelle | 50,8 A |
| Stromdichte | 0,4 A/cm ² |

höheren Druck besitzt als die Umgebung (1,013 bar). Das System wurde daher so unter Druck gesetzt, dass das Abgas noch einen Überdruck von ca. 1000 Pa aufwies. Die für die einzelnen Komponenten angenommenen Druckverluste sind in Tabelle 4.2 aufgelistet.

Tabelle 4.2.: Druckverluste der einzelnen Komponenten

| Komponente | Druckverlust [Pa] |
|---------------|-------------------|
| Wärmetauscher | 5000 |
| Brenner | 5000 |
| Kondensator | 5000 |
| Anode | 5000 |
| Kathode | 2000 |

Da sich bei der Elektrolyse von Wasser mittels SOECs mit dem Wasserdampf immer auch einige Prozent Wasserstoff im Eingangsstrom befinden, um eine reduzierende Atmosphäre für die Kathode zu schaffen, musste dies auch bei den Modellen berücksichtigt werden. Der benötigte Wasserstoff wurde durch Rezyklierung des Produktgases dem Eingangsstrom beigemischt.

Das Verhältnis der Gasvolumina der beiden Eingangsströme wurde so gewählt, dass sie ungefähr gleich groß waren.

Die Gase sollten mit einer Geschwindigkeit zwischen 30 und 50 m/s durch die Anlage strömen, daher mussten die Innendurchmesser der Rohrleitungen und die Querschnitte der Ein- und Ausgänge der einzelnen Komponenten für jede Simulation neu berechnet werden.

Alle zugeführten Medien hatten einen Druck von 1,013 bar. Die Temperatur des zugeführten flüssigen Wassers betrug 15 °C und jene der zugeführten Luft 20 °C. Für die Berechnungen wurde eine Luftzusammensetzung von 80 % Stickstoff und 20 % Sauerstoff gewählt.

Um den Wasserdampf aus dem Produktgas zu entfernen, wurde er mittels Kondensator abgeschieden. Es wurde ein Wasserdurchfluss von 0,5 kg/s Wasser eingestellt und die Wasserpumpe vor dem Kondensator hatte ein Drucksteigerungsverhältnis von 1,1.

4.2.3. SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr

Bei diesem Systemmodell wird die gesamte Energie, die benötigt wird, um den Wasserdampf zu erzeugen und die Eingangsströme auf Temperatur zu bringen, durch Verbrennung eines Anteils des erzeugten Wasserstoffs zur Verfügung gestellt.

Es ist anzumerken, dass alle Wärmetauscher als Gegenstromwärmetauscher funktionieren. Dies ist in den jeweiligen Abbildungen der Systemmodelle nicht ersichtlich, da sie exakt dem Simulink-Schaltbild nachempfunden sind. Das Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr (siehe Abbildung 4.1) ist wie folgt aufgebaut:

Auf der Kathodenseite wird das flüssige Wasser über eine Wasserpumpe zum Verdampfer transportiert. Der Verdampfer, im Grunde ein Wärmetauscher, erzeugt Wasserdampf mit einer Temperatur von 150 °C. Danach wird dem Dampf rezykliertes Produktgas zugemischt, damit sich der benötigte Wasserstoff im Eingangsstrom befindet. Das Gasgemisch passiert dann einen Wärmetauscher, in dem es auf die benötigte Temperatur von 800 °C erhitzt wird, bevor es in der SOEC zur Reaktion kommt. Das Produktgas besteht aus erzeugtem Wasserstoff und nicht umgesetztem Wasserdampf. Ein Teil davon wird abgezweigt und mittels Gebläse dem Eingangsstrom zugeführt. Der Rest des

Gases gelangt in einen Kondensator, in dem der überschüssige Wasserdampf entfernt wird. Der erzeugte Wasserstoff wird daraufhin in zwei Teile aufgeteilt: Der eine wird zur Verbrennung benötigt und der andere ist der Produktwasserstoff.

Anodenseitig wird Luft mittels Gebläse einem Wärmetauscher zugeführt, in dem der Eingangsstrom auf Temperatur gebracht wird, bevor er in die SOEC gelangt. Das Anodenabgas besteht aus der zugeführten Luft und dem erzeugten Sauerstoff und wird nun mit dem abgezweigten Wasserstoff vermischt. Bevor der Wasserstoff verbrannt werden kann, wird über ein Gebläse Luft zugeführt. Dies hat den Zweck, dass der Gasstrom nach der Verbrennung nicht mehr als $900\text{ }^{\circ}\text{C}$ aufweist und er groß genug ist, um die Erhitzung der Eingangsströme und das Verdampfen des Wassers zu gewährleisten.

Im Brenner kommt es zur Reaktion des Wasserstoffs mit Sauerstoff und es entsteht somit ein Gasgemisch aus Wasserdampf, Sauerstoff und Stickstoff. Dieses Gasgemisch wird dann in zwei gleich große Teile geteilt und zu den beiden Wärmetauschern geführt, in denen sie die Eingangsströme erhitzen. Nachdem die beiden Gasströme die Wärmetauscher passiert haben, werden sie wieder zusammengeführt und in den Verdampfer geleitet. Dort sollen sie noch genügend Energie besitzen, um Wasserdampf mit $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ zu erzeugen. Nach dem Passieren des Verdampfers verlässt der Gasstrom als Abgas die Anlage, wobei er eine Temperatur von $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ und einen Überdruck von ungefähr 1000 Pa aufweisen soll.

Es ist anzumerken, dass in der Praxis keine zwei Luftgebläse verwendet werden, da ein weiteres Gebläse höhere Kosten bedeuten würde. Stattdessen würde die Luft, die vor der Verbrennung zugeführt wird, über einen Bypass zugeleitet werden, bevor sie anodenseitig den Wärmetauscher durchläuft. Da es energetisch keinen Unterschied macht, ob die Luft über ein oder zwei Gebläse gefördert wird, und das Modell dadurch einfacher gestaltet werden konnte, sind die Modelle mit zwei Gebläsen erstellt worden.

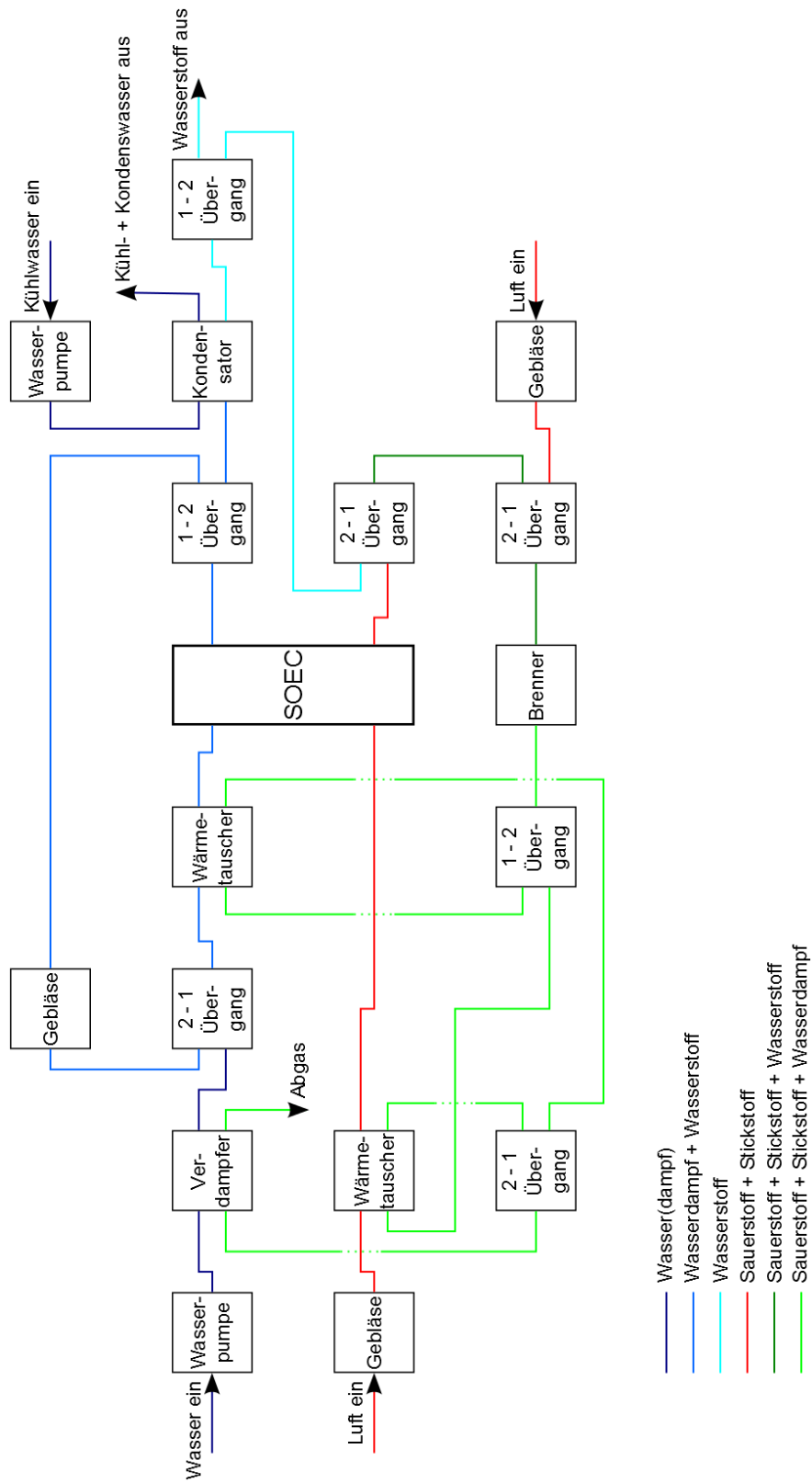


Abbildung 4.1.: Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr

4.2.4. SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr

Dieses Systemmodell (siehe Abbildung 4.2) ist gleich aufgebaut wie jenes ohne externe Wärmezufuhr, mit dem Unterschied, dass zur Verdampfung des Wassers ein externes Abgas (z. B. von einer Gasturbine) verwendet wird. Das Abgas besitzt eine Temperatur von 300 °C und ist in so großer Menge verfügbar, um Wasserdampf mit einer Temperatur von 300 °C zu erzeugen, ohne dabei abzukühlen. Nach dem Passieren des Verdampfers verlässt das externe Abgas die Anlage wieder.

Aufgrund dieser Änderung im Aufbau des Modells werden die Gasströme zur Erhitzung der Eingangsströme nach Durchlaufen der Wärmetauscher nicht mehr zusammengeführt, sondern verlassen als Abgas die Anlage. Beide sollten dabei einen Überdruck von ca. 1000 Pa aufweisen.

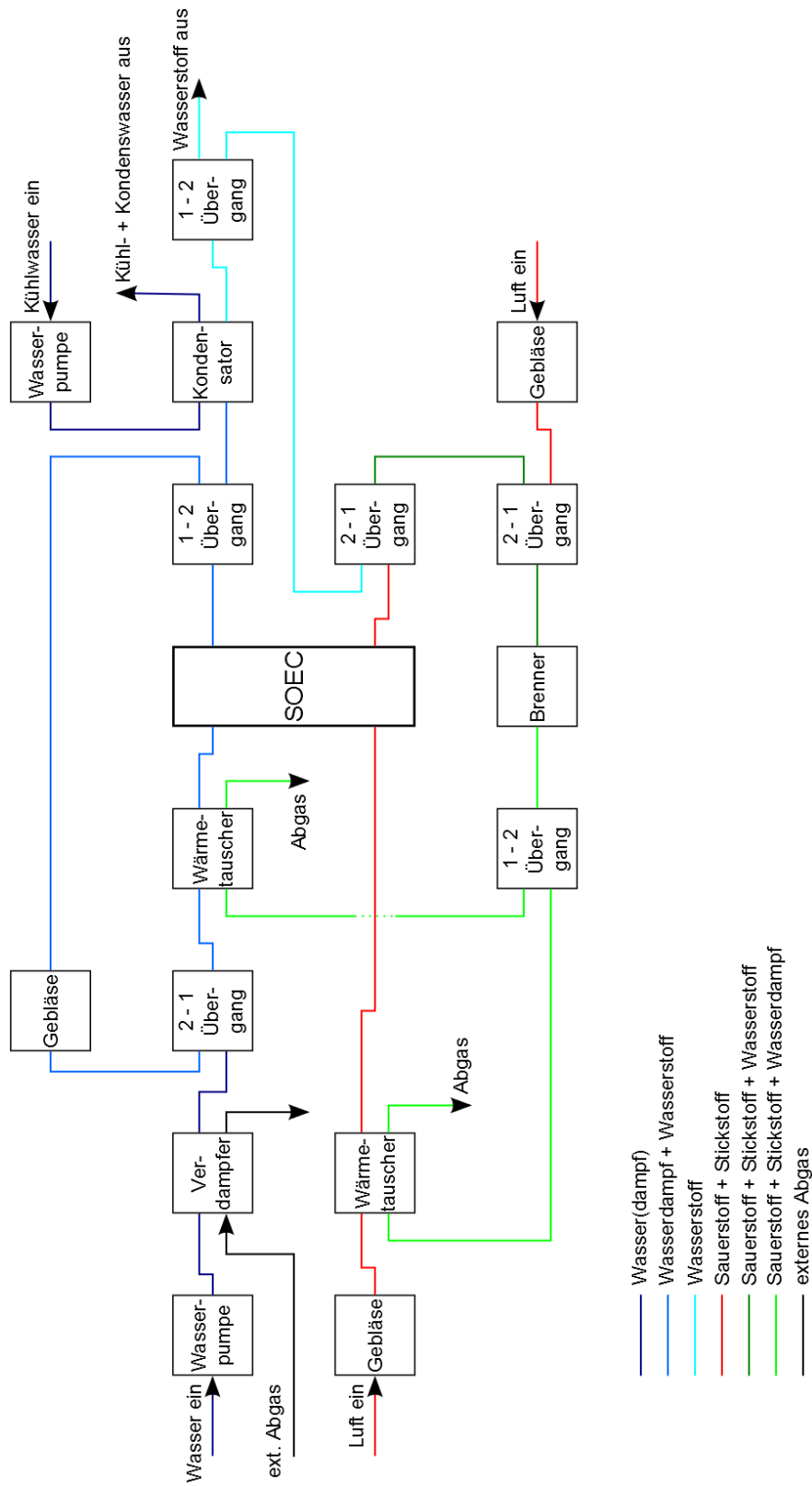


Abbildung 4.2.: Systemmodell einer 10 kW SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr

4.2.5. Simulationen

Durch die durchgeführten Simulationen sollte untersucht werden, wie sich der Gesamtwirkungsgrad des Systems mit unterschiedlichen Dampfausnutzungs- und Rezyklierungsraten verändert. Daher wurden mit beiden Modellen drei Simulationsreihen durchgeführt: Bei der ersten wurde eine Dampfausnutzung von 50 % eingestellt und die Rezyklierungsrate verändert, bei den zwei weiteren wurde eine Rezyklierungsrate von 20 % bzw. 60 % vorgegeben und die Dampfausnutzung variiert. Die Einstellungen sind in Tabelle 4.3 aufgelistet.

Tabelle 4.3.: Die vorgegebenen Einstellungen bei den durchgeführten Simulationen

| Simulation | SC [%] | Rezyklierung [%] |
|------------|--------|------------------|
| 1 | 50 | 10 |
| 2 | 50 | 20 |
| 3 | 50 | 30 |
| 4 | 50 | 40 |
| 5 | 50 | 50 |
| 6 | 50 | 60 |
| 7 | 40 | 20 |
| 8 | 50 | 20 |
| 9 | 60 | 20 |
| 10 | 70 | 20 |
| 11 | 80 | 20 |
| 12 | 50 | 60 |
| 13 | 60 | 60 |
| 14 | 70 | 60 |
| 15 | 80 | 60 |

5. Ergebnisse

Nach der Durchführung der Untersuchungen an der Zelle wurden die erhaltenen Ergebnisse als Strom-Spannungskennlinien graphisch ausgearbeitet und im folgenden Abschnitt als Abbildungen dargestellt.

5.1. Einzelzellmessungen

In Abbildung 5.1 sind die bei einer Temperatur von 750 °C aufgenommenen UI-Kennlinien der SC 50 % + H₂-Tests aufgetragen.

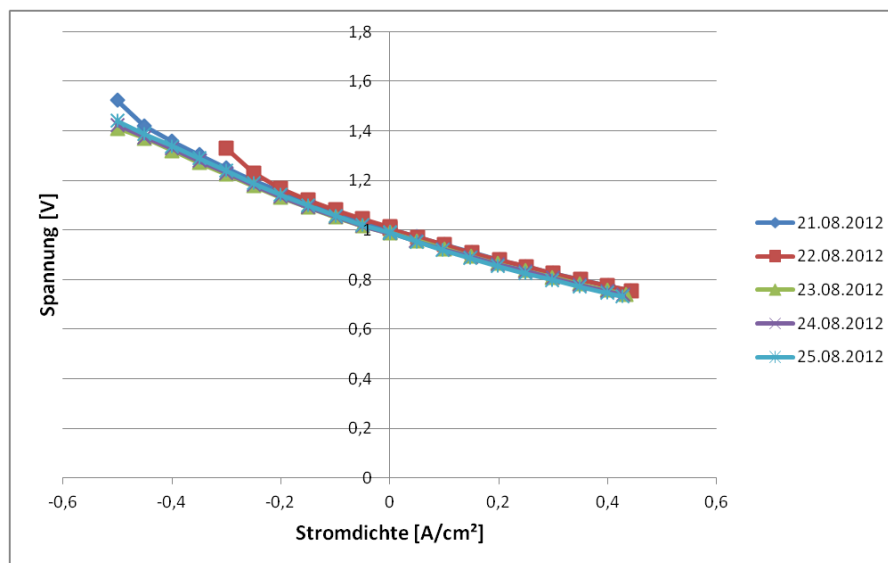


Abbildung 5.1.: UI-Kennlinien bei 750 °C im Brennstoffzellen- und Elektrolysebetrieb

Aus den Strom-Spannungskennlinien ist ersichtlich, dass die Leistung der Zelle während

der gesamten Messdauer unverändert blieb. Im Brennstoffzellenbetrieb waren keinerlei Unterschiede bei den verschiedenen Messungen ersichtlich, im Elektrolysemodus kam es zu zwei Abweichungen.

Die Ursache für den Abbruch der Messung am 22.08.2012 lag höchstwahrscheinlich an einem Defekt des Luft-Massedurchflussreglers für die Wasserdampferzeugung. Schon während der Aktivierungsphase der Zelle kam es zu Problemen mit diesem Gerät und nur wenige Tage nach Beendigung der Testreihen ging es endgültig kaputt.

Es ist auch zu erkennen, dass die Steigungen der Kennlinien im Elektrolysebetrieb etwas steiler sind – dies lässt darauf schließen, dass die Zelle besser als Brennstoffzelle gearbeitet hat.

Abbildung 5.2 zeigt die aufgenommenen Strom-Spannungskennlinien der SC 50 % + H₂-Tests bei unterschiedlichen Temperaturen.

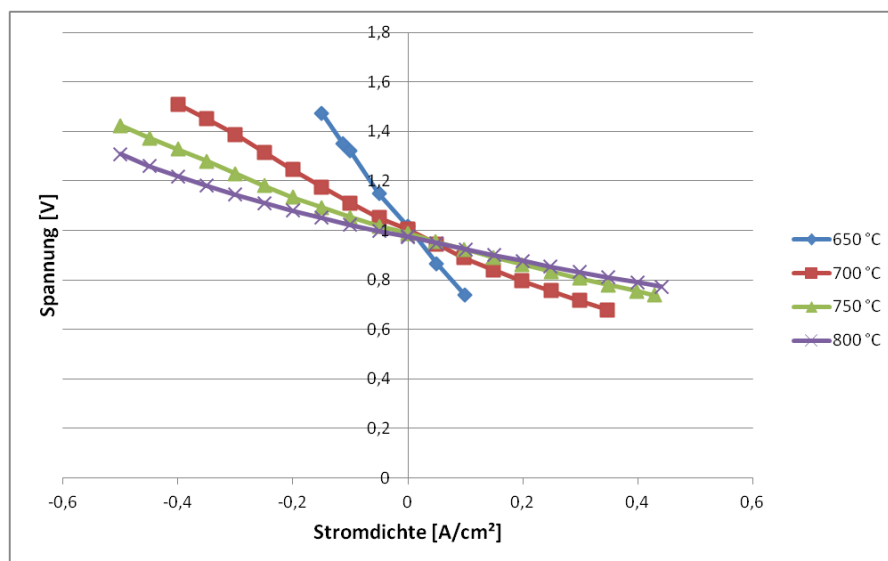


Abbildung 5.2.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen im Brennstoffzellen- und Elektrolysebetrieb

Aus den erhaltenen Daten ist die Temperaturabhängigkeit der Leistung der Zelle – sowohl im Brennstoffzellen- als auch im Elektrolysebetrieb – eindeutig zu erkennen. Während bei einer Temperatur von 650 °C nicht einmal Stromdichten von 0,2 A/cm² erreicht

wurden, war die Leistung der Zelle bei einer Temperatur von 800 °C eindeutig am höchsten.

Weiters ist den Daten zu entnehmen, dass die Steigungen der Kennlinien im Brennstoffzellenmodus abermals flacher sind und dass die Leistung der Zelle im Elektrolysebetrieb stärker temperaturabhängig war.

In Abbildung 5.3 sind die bei einer Temperatur von 650 °C und unterschiedlichen Dampfausnutzungen aufgenommenen UI-Kennlinien aufgetragen.

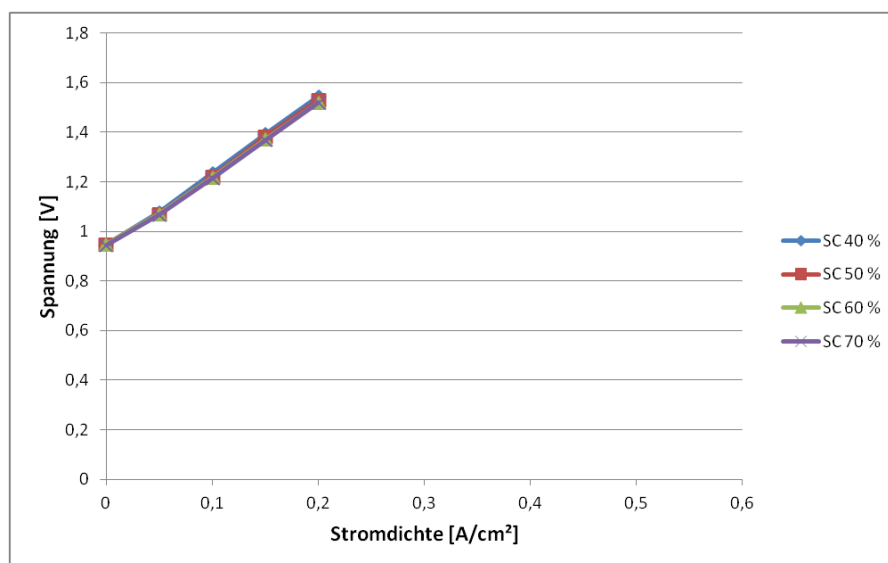


Abbildung 5.3.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 650 °C

Es ist zu erkennen, dass die Leistung der Zelle aufgrund der niedrigen Temperatur sehr schlecht war – alle Messungen konnten nur bis zu einer Stromdichte von 0,2 A/cm² durchgeführt werden.

Durch die Beendigung der Versuche bei niedrigen Stromdichten ist es auch nicht möglich, den Einfluss der Dampfausnutzung auf die Leistung der Zelle zu beobachten. Es ist ersichtlich, dass die aufgenommenen Kennlinien nahezu ident sind.

Abbildung 5.4 zeigt die bei einer Temperatur von 700 °C und unterschiedlichen Dampf-

ausnutzungen aufgenommenen Strom-Spannungskennlinien.

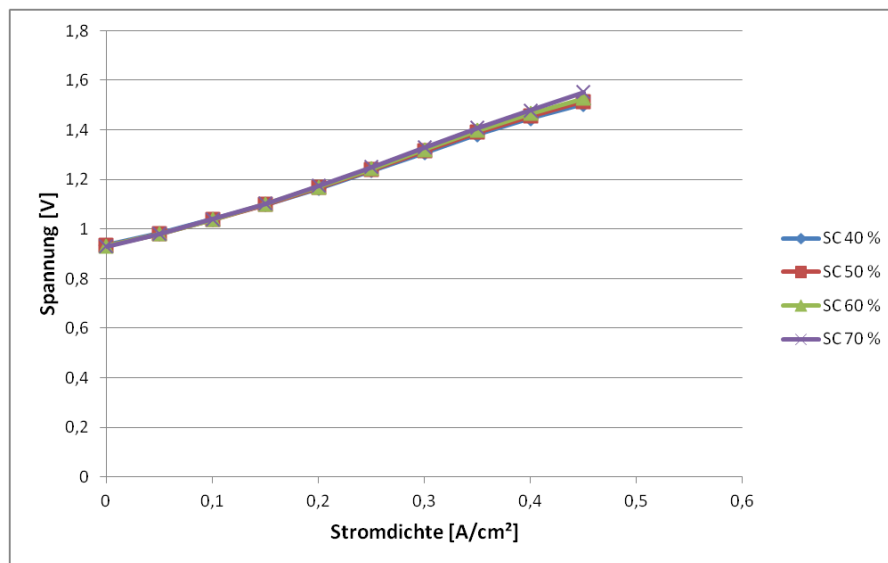


Abbildung 5.4.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 700 °C

Es ist zu erkennen, dass die Leistung der Zelle bei einer Temperatur von 700 °C besser war als noch bei 650 °C. Die Erhöhung der Temperatur hatte zur Folge, dass alle Kennlinien bis zu einer Stromdichte von 0,45 A/cm² durchgeführt werden konnten, bevor sie abgebrochen werden mussten.

Die Dampfausnutzungen hatten nur einen sehr geringen Einfluss auf die Leistung der Zelle. Man kann jedoch erkennen, dass die Steigungen der Kennlinien ab einer Stromdichte von 0,2 A/cm² mit ansteigender Dampfausnutzung steiler werden. Allerdings ist der Spannungsunterschied zwischen den Kennlinien bei einer Dampfausnutzung von 40 % bzw. 70 % bei einer Stromdichte von 0,45 A/cm² mit 49 mV sehr gering.

In Abbildung 5.5 sind die bei einer Temperatur von 750 °C und unterschiedlichen Dampfausnutzungen aufgenommenen UI-Kennlinien aufgetragen.

Es ist ersichtlich, dass die Erhöhung der Temperatur auf 750 °C eine weitere Verbesserung der Leistung der Zelle bewirkte. Die Kennlinien konnten, bis auf jene bei einer Dampfausnutzung von 70 %, bis zu einer Stromdichte von 0,5 A/cm² gefahren werden.

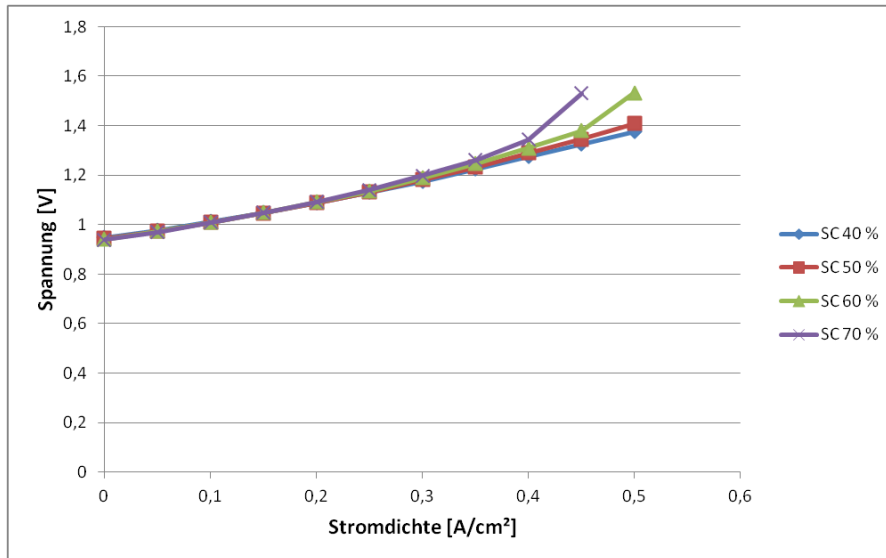


Abbildung 5.5.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 750 °C

Erstmals ist auch der Effekt der unterschiedlichen Dampfausnutzungen ersichtlich. Bei den Kennlinien mit einer Dampfausnutzung von 60 % und 70 % kommt es bei höheren Stromdichten zu einem starken Anstieg der Kurve. Dies lässt darauf schließen, dass es aufgrund der im Vergleich zu den anderen Kennlinien geringeren Wasserdampfmenge zu einem Anstieg des Diffusionswiderstands kommt. Der Spannungsunterschied zwischen der Kennlinie mit einer Dampfausnutzung von 40 % zu jener mit 70 % liegt bei der Stromdichte von 0,45 A/cm² bei 206 mV.

Abbildung 5.6 zeigt die bei einer Temperatur von 800 °C und unterschiedlichen Dampfausnutzungen aufgenommenen Strom-Spannungskennlinien.

Es ist abermals ersichtlich, dass die weitere Erhöhung der Temperatur auf 800 °C neuerlich zu einer Verbesserung der Leistung der Zelle führte. Mit Ausnahme der Kennlinie bei einer Dampfausnutzung von 70 % konnten alle bis zu einer Stromdichte von 0,5 A/cm² gemessen werden.

Es ist auch der Einfluss der unterschiedlichen Dampfausnutzungen zu erkennen: Bei den Kennlinien mit einer Dampfausnutzung von 60 % und 70 % kommt es wiederum zu einem starken Anstieg der Steigungen bei höheren Stromdichten. Dieser Effekt ist

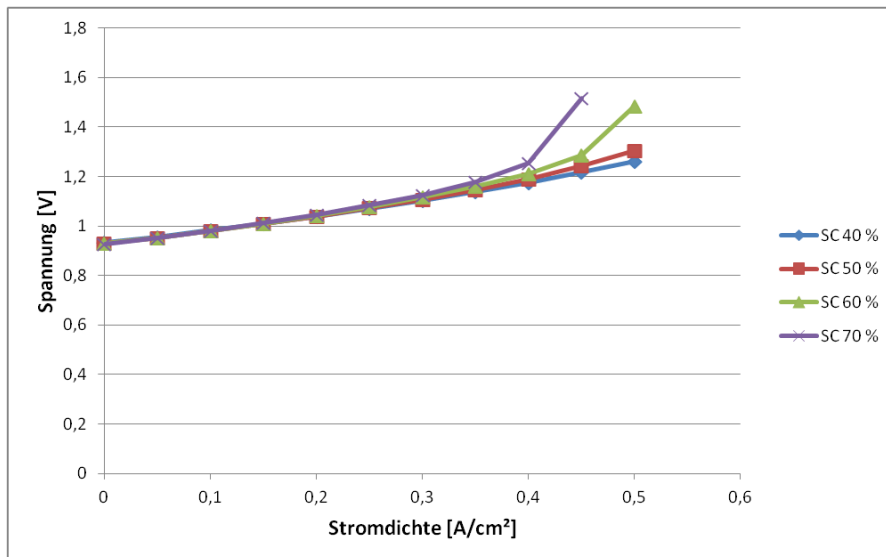


Abbildung 5.6.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Dampfausnutzungen und einer Temperatur von 800 °C

abermals auf die Erhöhung des Diffusionswiderstands zurückzuführen. Der Spannungsunterschied zwischen der Kennlinie mit einer Dampfausnutzung von 40 % und jener mit 70 % liegt bei einer Stromdichte von 0,45 A/cm² bei 302 mV.

In Abbildung 5.7 sind die bei einer Dampfausnutzung von 40 % und unterschiedlichen Temperaturen aufgenommenen UI-Kennlinien aufgetragen.

Anhand der Ergebnisse lässt sich der starke Einfluss der Temperatur auf die Leistung der Zelle eindeutig erkennen. Je höher die Betriebstemperatur angesetzt war, desto besser funktionierte auch die Zelle. Während bei einer Temperatur von 650 °C die Messung bei einer Stromdichte von 0,2 A/cm² abgebrochen werden musste, konnten die Kennlinien bei 750 und 800 °C bis zum vorgegebenen Maximum von 0,5 A/cm² gefahren werden.

Es ist ersichtlich, dass eine Dampfausnutzung von 40 % bei diesen Stromdichten noch keinen Effekt auf die Strom-Spannungskennlinien hat.

Abbildung 5.8 zeigt die bei einer Dampfausnutzung von 50 % und unterschiedlichen Temperaturen aufgenommenen Strom-Spannungskennlinien.

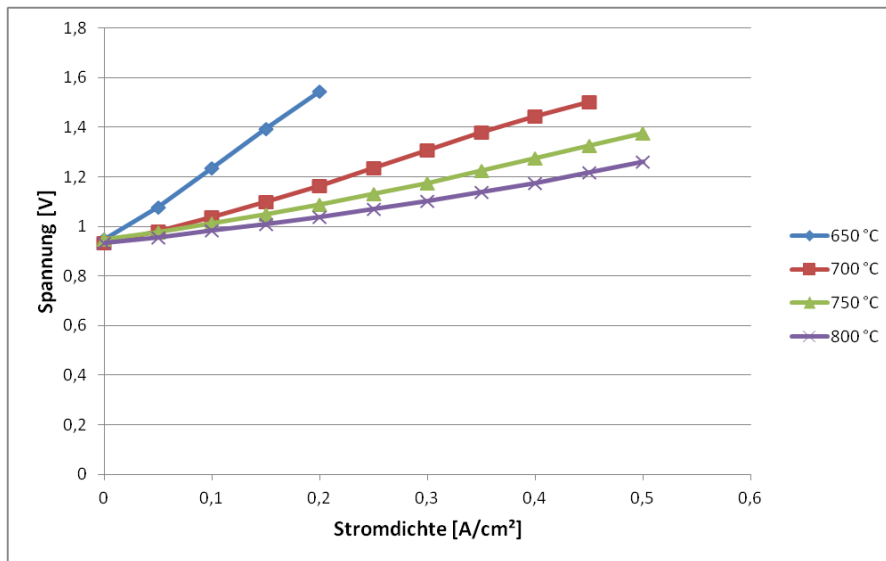


Abbildung 5.7.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 40 %

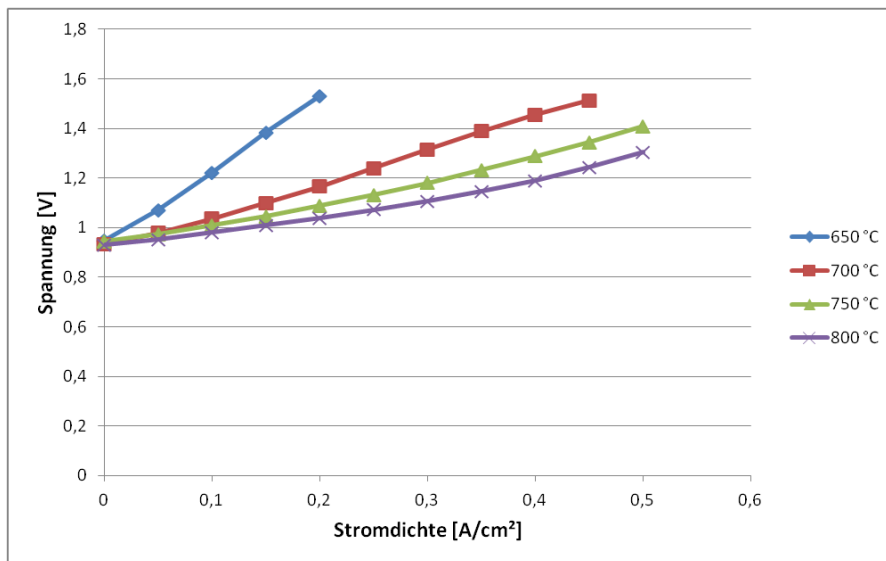


Abbildung 5.8.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 50 %

Die Ergebnisse bei einer Dampfausnutzung von 50 % sind jenen bei 40 % sehr ähnlich. Bei einer Temperatur von 650 °C wurde die Messung abermals bei der Stromdichte von 0,2 A/cm² abgebrochen, während sie bei 750 °C und 800 °C bis zum Ende durchgeführt werden konnte.

Bei einer Dampfausnutzung von 50 % lassen sich noch keine eindeutigen Effekte auf den Verlauf der Kennlinien erkennen. Allerdings zeigen die zuletzt gemessenen Punkte der Kurven im Vergleich zu den Ergebnissen bei einer Dampfausnutzung von 40 % eine um bis zu 45 mV höhere Spannung.

In Abbildung 5.9 sind die bei einer Dampfausnutzung von 60 % und unterschiedlichen Temperaturen aufgenommenen UI-Kennlinien aufgetragen.

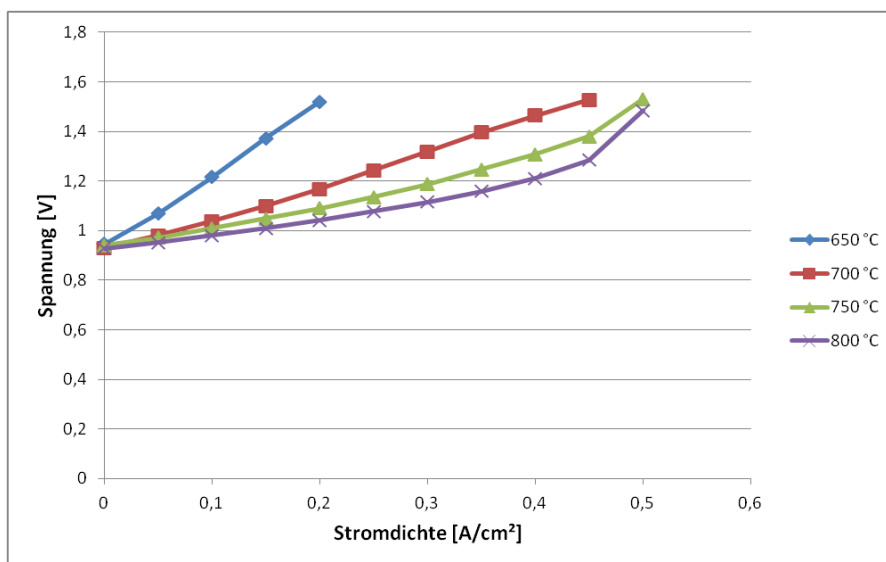


Abbildung 5.9.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 60 %

Anhand der Ergebnisse lässt sich abermals der starke Einfluss der Temperatur auf die Leistung der Zelle ablesen. Die Messung bei der Temperatur von 650 °C konnte nur bis zu einer Stromdichte von 0,2 A/cm², jene bei 750 °C und 800 °C hingegen vollständig durchgeführt werden.

An den Kurvenverläufen lässt sich erstmals ein eindeutiger Effekt der Dampfausnut-

zung auf die Leistung der Zelle beobachten: Die beiden Kennlinien bei einer Temperatur von 750 °C und 800 °C zeigen am letzten Messpunkt bei einer Stromdichte von 0,5 A/cm² einen starken Spannungsanstieg. Dieser Effekt lässt sich auf den Anstieg des Diffusionswiderstands aufgrund der geringeren Wasserdampfmenge zurückführen.

Abbildung 5.10 zeigt die bei einer Dampfausnutzung von 70 % und unterschiedlichen Temperaturen aufgenommenen Strom-Spannungskennlinien.

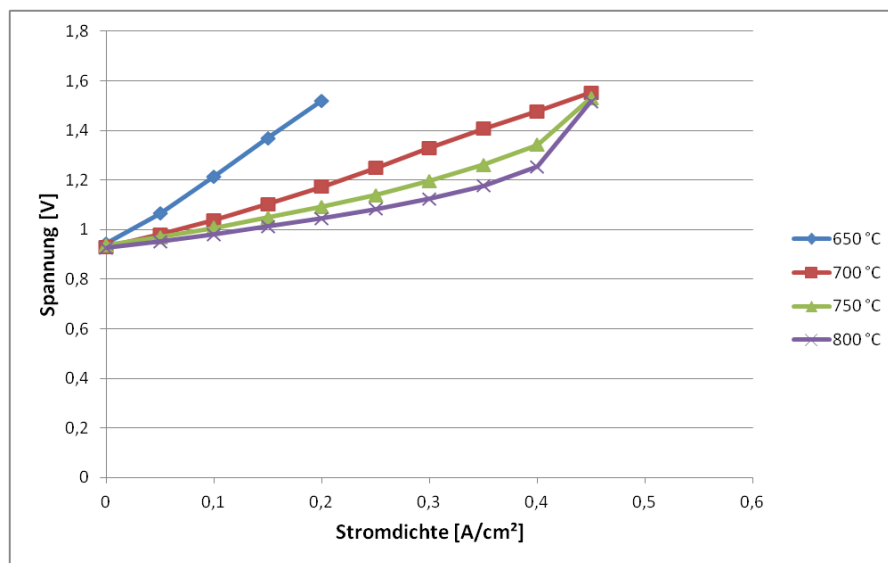


Abbildung 5.10.: UI-Kennlinien bei unterschiedlichen Temperaturen und einer Dampfausnutzung von 70 %

Die Resultate zeigen abermals, welche große Auswirkung die Temperatur auf die Leistungsfähigkeit der Zelle besitzt. Während die Messung bei einer Temperatur von 650 °C bei einer Stromdichte von 0,2 A/cm² abgebrochen werden musste, konnten die weiteren Versuche zumindest bis 0,45 A/cm² gefahren werden.

Die Dampfausnutzung von 70 % hatte den größten Einfluss auf die Leistung der Zelle, da keine Messung vollständig durchgeführt werden konnte. Die Kennlinien bei Temperaturen von 700 °C, 750 °C und 800 °C mussten bei einer Stromdichte von 0,45 A/cm² abgebrochen werden. Bei den beiden höheren Temperaturen war am letzten Messpunkt ein starker Spannungsanstieg zu beobachten, der abermals aufgrund des größer wer-

denden Diffusionswiderstands erfolgt.

5.2. Simulationen

Mit den aus den Simulationen erhaltenen Daten konnte der Gesamtwirkungsgrad der Anlagen bestimmt werden. Dafür wurde der Energiegehalt des Produktwasserstoffs pro Sekunde mit der Summe der eingesetzten elektrischen Leistung verglichen.

$$\eta = \frac{n_{\text{H}_2} M_{\text{H}_2} LHV_{\text{H}_2} \times 1000}{\Sigma P_{el}} \times 100 \% \quad (5.1)$$

| | |
|--------------------------|---|
| $\eta \dots$ | Gesamtwirkungsgrad [%] |
| $n_{\text{H}_2} \dots$ | Molenstrom an Produktwasserstoff [mol/s] |
| $M_{\text{H}_2} \dots$ | Molmasse von Wasserstoff [2,0158 g/mol] |
| $LHV_{\text{H}_2} \dots$ | Heizwert von Wasserstoff [119,97 kJ/g] |
| $\Sigma P_{el} \dots$ | Summe der eingesetzten elektrischen Leistung der Anlage [W] |

In Tabelle 5.1 sind alle Komponenten aufgelistet, die durch ihren Eigenverbrauch zur gesamten benötigten elektrischen Leistung der Anlage beitragen.

Tabelle 5.1.: Komponenten der Anlagen mit Eigenverbrauch

| Komponenten | Verwendung |
|-------------|------------------|
| Wasserpumpe | Kathodeneingang |
| Wasserpumpe | Kondensator |
| Gebläse | Anodeneingang |
| Gebläse | Rezyklierung |
| Gebläse | zusätzliche Luft |
| SOEC | |

5.2.1. Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr

Abbildung 5.11 zeigt den berechneten Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % und dem Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr.

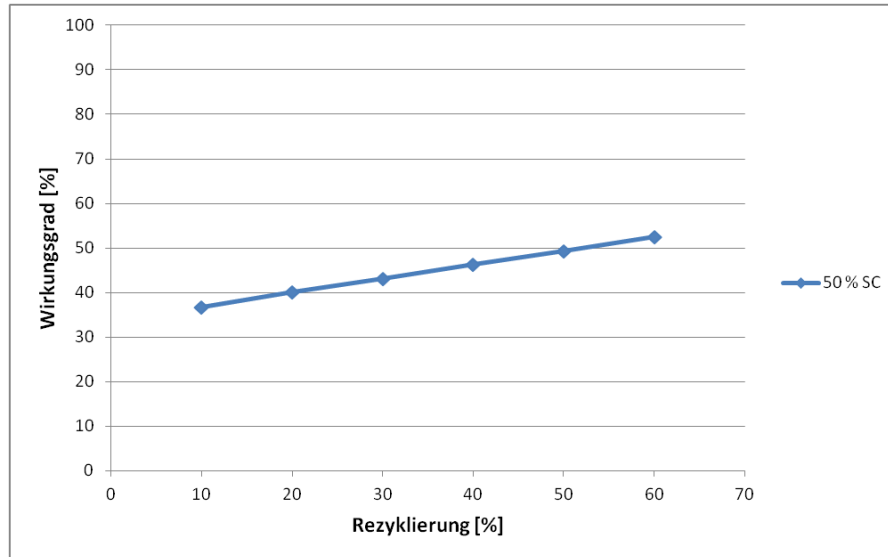


Abbildung 5.11.: Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % ohne externe Wärmezufuhr

Anhand der erhaltenen Daten ist zu erkennen, dass es zu einem nahezu linearen Anstieg des Wirkungsgrades kommt, wenn die Rezyklierungsrate erhöht wird. Während eine Rezyklierungsrate von 10 % zu einem Wirkungsgrad von 36,68 % führt, konnte er bei 60 % auf 52,48 % erhöht werden.

In Abbildung 5.12 ist der Einfluss der Dampfausnutzung auf den Wirkungsgrad der Anlage bei verschiedenen Rezyklierungsraten und dem Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr aufgetragen.

Aus den berechneten Resultaten lässt sich der Anstieg des Gesamtwirkungsgrades mit zunehmender Dampfausnutzung erkennen. Es ist auch ersichtlich, dass beim Systemmodell ohne externe Wärmezufuhr eine größere Rezyklierungsrate zu einem besseren

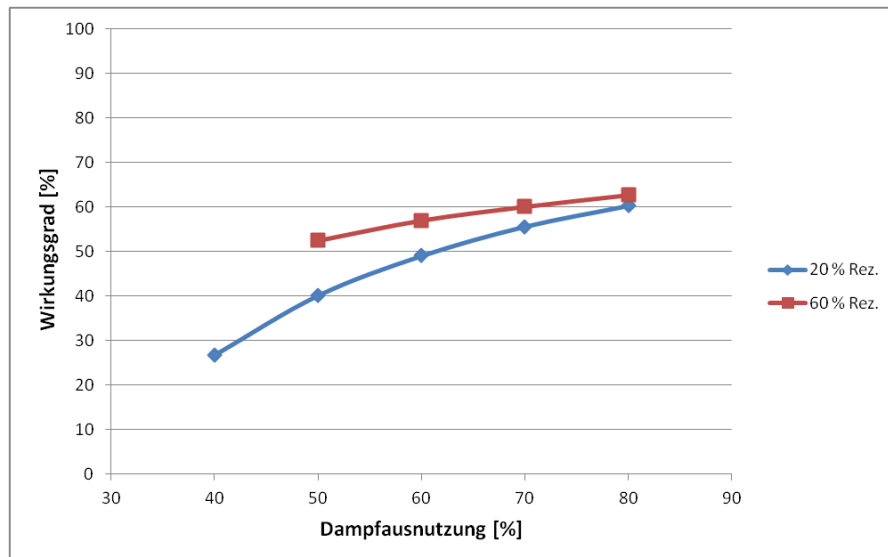


Abbildung 5.12.: Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei unterschiedlichen Rezyklierungsraten ohne externe Wärmezufuhr

Wirkungsgrad führt. Allerdings wird dieser Einfluss mit zunehmender Dampfausnutzung geringer.

Bei der Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 20 % bzw. 60 % beträgt der Wirkungsgrad 40,07 % bzw. 52,48 %. Erhöht man die Dampfausnutzung auf 80 %, so liegt er bei 60,19 % bzw. 62,57 %.

5.2.2. Systemmodell mit externer Wärmezufuhr

Abbildung 5.13 zeigt den berechneten Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % und dem Systemmodell mit externer Wärmezufuhr.

Aus den erhaltenen Daten ist ersichtlich, dass der Gesamtwirkungsgrad mit zunehmender Rezyklierungsrate niedriger wird. Während er bei einer Rezyklierungsrate von 10 % noch 73,81 % beträgt, so ist er bei 60 % auf nur mehr 57,89 % gesunken.

In Abbildung 5.14 ist der Einfluss der Dampfausnutzung auf den Wirkungsgrad der Anlage bei verschiedenen Rezyklierungsraten und dem Systemmodell mit externer Wär-

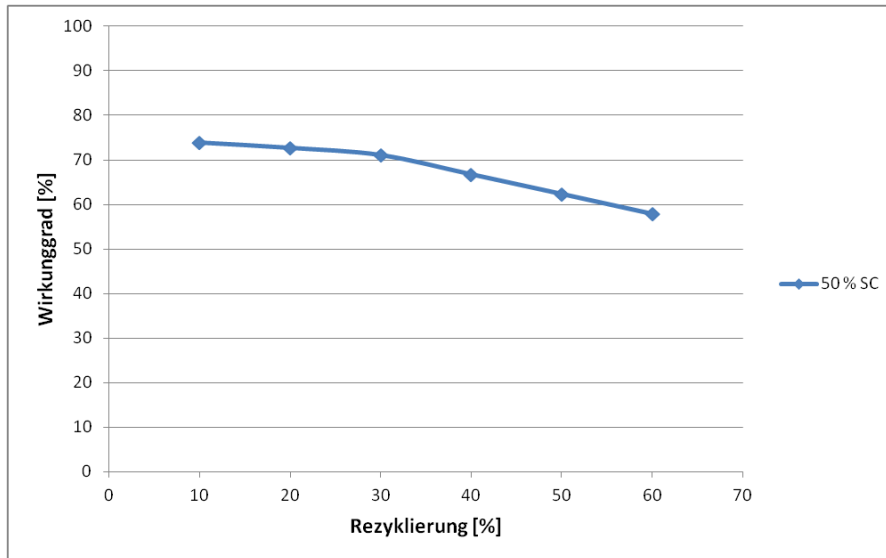


Abbildung 5.13.: Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % mit externer Wärmezufuhr

mezufuhr aufgetragen.

Auch in diesem Fall lässt sich aus den Simulationen ein Anstieg des Gesamtwirkungsgrades bei zunehmender Dampfausnutzung erkennen. Es ist außerdem ersichtlich, dass es bei diesem Modell zu einem höheren Wirkungsgrad kommt, wenn eine niedrigere Rezyklierungsrate verwendet wird. Dieser Effekt steigt mit zunehmender Dampfausnutzung sogar leicht an.

Bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 20 % bzw. 60 % beträgt der Wirkungsgrad 72,64 % bzw. 57,89 %. Erhöht man die Dampfausnutzung auf 80 %, so liegt er bei 84,09 % bzw. 66,56 %.

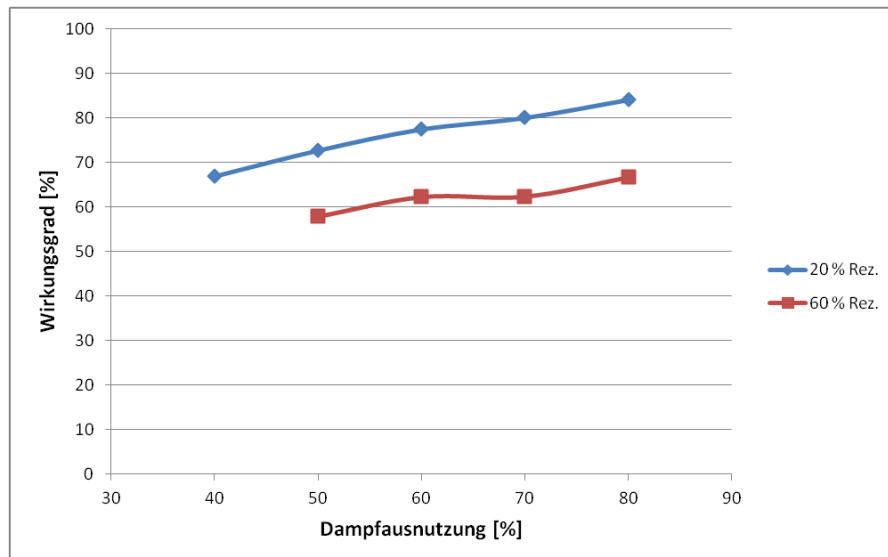


Abbildung 5.14.: Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei unterschiedlichen Rezyklierungsraten mit externer Wärmezufuhr

5.2.3. Vergleich der beiden Modelle

Abbildung 5.15 zeigt den Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 20 % bei beiden Modellen. Jenes ohne externe Wärmezufuhr wird in den folgenden Graphiken als Modell 1 bezeichnet und jenes mit externer Wärmezufuhr als Modell 2.

Aus den erhaltenen Daten ist ersichtlich, dass es bei beiden Modellen mit zunehmender Dampfausnutzung zu einem Anstieg des Gesamtwirkungsgrades kommt.

Der Gesamtwirkungsgrad ist beim Modell mit externer Wärmezufuhr höher. Die Differenz nimmt aber mit steigender Dampfausnutzung ab. Wird die Dampfausnutzung von 40 % auf 80 % erhöht, steigt der Gesamtwirkungsgrad der Anlage mit externer Wärmezufuhr von 66,81 % auf 84,09 % und jener der Anlage ohne externe Wärmezufuhr von 26,73 % auf 60,19 %.

In Abbildung 5.16 ist der Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 60 % bei beiden Modellen aufgetragen.

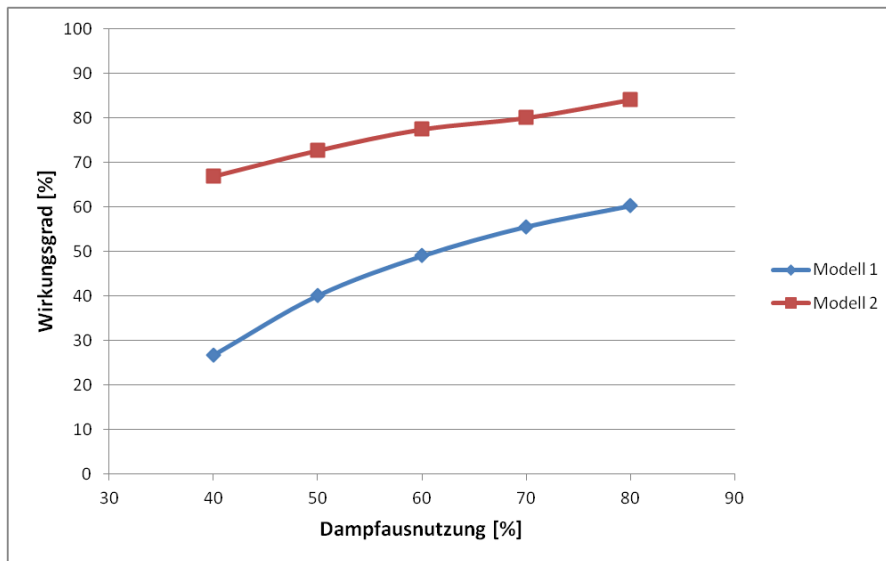


Abbildung 5.15.: Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 20 % bei beiden Modellen

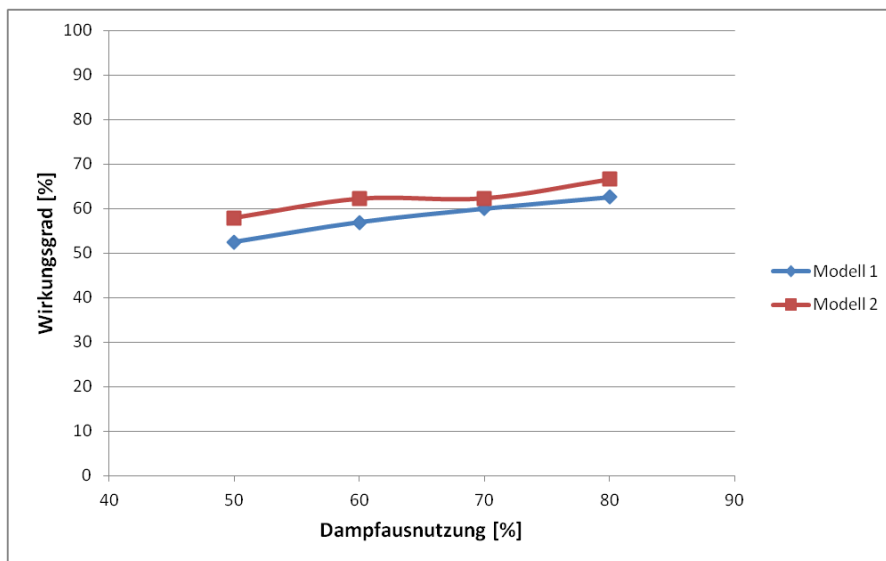


Abbildung 5.16.: Einfluss der Dampfausnutzung auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Rezyklierungsrate von 60 % bei beiden Modellen

Anhand der Ergebnisse ist wiederum ersichtlich, dass bei beiden Modellen eine Erhöhung der Dampfausnutzung zu einem Anstieg des Gesamtwirkungsgrades führt.

Abermals ist der Gesamtwirkungsgrad beim Modell mit externer Wärmezufuhr höher, allerdings ist die Differenz zwischen den Modellen viel geringer als bei einer Rezyklierungsrate von 20 %. Bei der Zunahme der Dampfausnutzung von 50 % auf 80 % erhöht sich der Gesamtwirkungsgrad der Anlage mit externer Wärmezufuhr von 57,89 % auf 66,56 %, bei der Anlage ohne externe Wärmezufuhr von 52,48 % auf 62,57 %.

Abbildung 5.17 zeigt den Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % bei beiden Modellen.

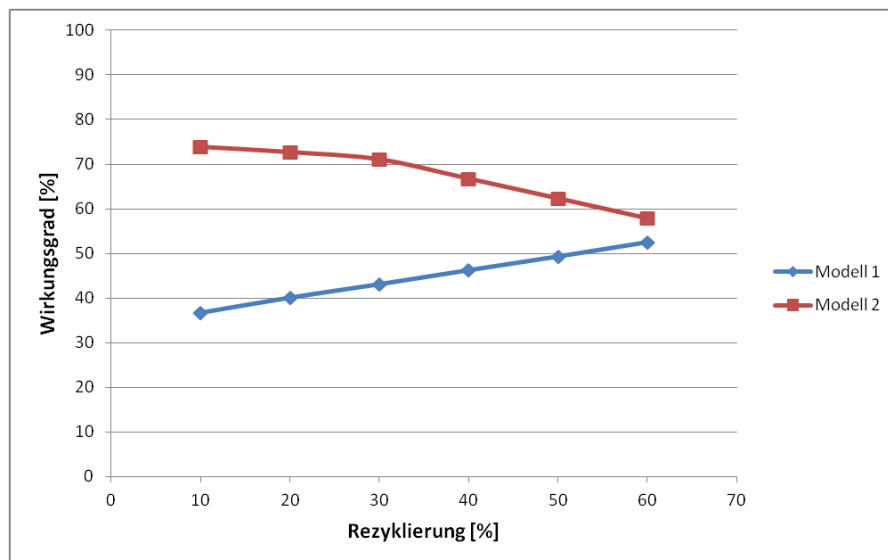


Abbildung 5.17.: Einfluss der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad bei einer Dampfausnutzung von 50 % bei beiden Modellen

Die erhaltenen Ergebnisse zeigen, dass sich die beiden Modelle unter diesen Bedingungen unterschiedlich verhalten: Die Anlage mit externer Wärmezufuhr hat zwar im vorgegebenen Bereich einen höheren Gesamtwirkungsgrad, allerdings sinkt dieser mit zunehmender Rezyklierungsrate. Beim Modell ohne externe Wärmezufuhr verhält es sich genau umgekehrt – hier kommt es zu einer nahezu linearen Verbesserung des Gesamtwirkungsgrades mit zunehmender Rezyklierungsrate.

Dies hat zur Folge, dass beim Modell mit externer Wärmezufuhr bei einer Erhöhung der Rezyklierungsrate von 10 % auf 60 % der Gesamtwirkungsgrad von 73,81 % auf 57,89 % sinkt; unter denselben Voraussetzungen steigt er hingegen bei der Anlage ohne externe Wärmezufuhr von 36,68 % auf 52,48 %.

6. Diskussion

Anhand der erhaltenen Ergebnisse können Rückschlüsse auf das Verhalten der Zelle bzw. der SOEC-Elektrolyseanlage gezogen werden. In den folgenden Abschnitten werden diese präsentiert und mit Literaturergebnissen verglichen.

6.1. Einzelzellmessungen

Die Messreihe hat gezeigt, dass die SOFC-Brennstoffzelle reversibel als SOEC-Elektrolysezelle betrieben werden kann. Die Spannungsverluste der Zelle bezogen auf die Stromdichte waren im Brennstoffzellenbetrieb etwas geringer, allerdings war der Unterschied sehr klein. In der Literatur werden diese Ergebnisse bestätigt, da auch bei den UI-Kennlinien, die sowohl im Brennstoffzellen- als auch im Elektrolysemodus durchgeführt wurden, beide Äste nahezu ident sind [2, 3, 7, 23]. Dies bedeutet, dass es in den beiden Bereichen zu keinen großen Änderungen in der Reaktionskinetik kommt [23].

Anhand der Ergebnisse war zu erkennen, welcher großen Einfluss die Betriebstemperatur auf die Leistung der Zelle hat. Während alle Messungen bei einer Temperatur von 650 °C schon bei der Stromdichte von 0,2 A/cm² abgebrochen werden mussten, steigerte sich die Leistung mit jedem Temperaturanstieg, bis die Zelle bei einer Temperatur von 800 °C die besten Ergebnisse lieferte. Diese Ergebnisse stimmen mit jenen in der Literatur überein [3, 5, 10]. Dieser Effekt ist hauptsächlich darauf zurückzuführen, dass der Zellwiderstand mit steigender Temperatur abnimmt [9]. EIS-Messungen zeigen, dass vor allem der Aktivierungswiderstand, aber auch der ohmsche Widerstand sinken, und dass der ohmsche Widerstand im Vergleich zum Aktivierungswiderstand einen größeren Einfluss auf die

Leistung der Zelle nimmt [5]. Dies bedeutet auch, dass die Reaktionsgeschwindigkeit, die Effizienz und die Wasserdampfverbrauchsrate mit steigender Temperatur zunehmen [10].

Es zeigte sich, dass die Dampfausnutzung erst ab Werten von 60 % und einer Stromdichte von $0,4 \text{ A/cm}^2$ einen Einfluss auf die Leistung der Zelle hat und dass unter einer Temperatur von $700 \text{ }^\circ\text{C}$ keine Auswirkungen zu erkennen waren. Somit konnten mit den Untersuchungen die Ergebnisse der Literatur bestätigt werden [10, 11].

Warum kein Effekt der Dampfausnutzung bei einer Betriebstemperatur von $700 \text{ }^\circ\text{C}$ zu erkennen war, obwohl die Messungen bis zu einer Stromdichte von $0,45 \text{ A/cm}^2$ durchgeführt wurden, ist anhand der Ergebnisse nicht genau zu erklären. Nachdem die Messungen nur einmal durchgeführt wurden, kann nicht ausgeschlossen werden, dass es sich hierbei um einen Messfehler handelt. Es ist möglich, dass der bereits erwähnte defekte Luft-Massedurchflussregler für die Wasserdampferzeugung der Grund dafür ist. Die Messungen wurden am selben Tag durchgeführt wie der abgebrochene SC 50 % + H_2 -Test und es wäre denkbar, dass durch einen Fehler des MFCs mehr Wasserdampf als geplant erzeugt wurde.

Es ist zu erwähnen, dass es bei den Messungen im Elektrolysebetrieb zu großen Verlusten der angelegten Spannung kam – die am Netzgerät angelegte Spannung war bis zu $0,9 \text{ V}$ höher als die Spannung der Zelle. Die Ursache für diese Verluste war wohl die Anodenstromstange: Nach Beendigung aller Messreihen wurde das gesamte Cell Housing aus dem Ofenprüfstand ausgebaut und es zeigte sich, dass die Oberfläche der Stromstange stark oxidiert war. Diese Oxidschicht dürfte zu dem erhöhten Widerstand geführt haben, der der Grund für die hohen Spannungsverluste war.

6.2. Simulationen

Anhand der durchgeführten Simulationen wurde der Einfluss der Dampfausnutzung und der Rezyklierungsrate auf den Gesamtwirkungsgrad zweier hypothetischer 10 kW SOEC-Elektrolyseanlagen untersucht, wobei bei Modell 1 die gesamte Energie zur Verdampfung

des Wassers und zur Erwärmung der Eingangsgasströme durch die Verbrennung des Produktwasserstoffs erzeugt wurde, während bei Modell 2 die Wasserdampferzeugung durch die externe Wärmequelle erfolgte.

Wie zu erwarten, konnte beim Vergleich der beiden Anlagenmodelle festgestellt werden, dass eine höhere Dampfausnutzung zu einem höheren Gesamtwirkungsgrad führt.

Die Rezyklierungsrate hatte bei den Modellen aber unterschiedliche Auswirkungen auf die Effizienz; während beim Modell ohne externe Wärmezufuhr eine höhere Rezyklierungsrate zu einem höheren Wirkungsgrad führte, war beim Modell mit externer Wärmezufuhr der gegenteilige Effekt zu erkennen. Aus diesen Ergebnissen lassen sich für die beiden Modelle zwei unterschiedliche Schlussfolgerungen ziehen:

Je größer die Rezyklierungsrate, desto größer ist der Anteil des rezyklierten Produktgases im Eingangsgasstrom und desto geringer ist die Menge an zu erzeugendem Wasserdampf. Da der Gesamtwirkungsgrad bei der Anlage ohne externe Wärmezufuhr mit steigender Rezyklierungsrate anstieg, kann man aus diesen Ergebnissen schließen, dass die meiste Energie in diesem Modell für die Verdampfung des Wassers gebraucht wird.

Durch die in Kapitel 4.2.2 beschriebene Auslegung des Systems bedeutet die größere Rezyklierungsrate auch einen größeren Eingangsgasstrom auf der Sauerstoffseite des Elektrolyseurs, da die Volumina der beiden Eingangsströme ungefähr gleich groß sein sollten. Da der Gesamtwirkungsgrad bei der Anlage mit externer Wärmezufuhr mit steigender Rezyklierungsrate sank, kann man aus den Ergebnissen schließen, dass die meiste Energie in diesem Modell für die Erwärmung des Eingangsgasstroms der Sauerstoffelektrode benötigt wird.

Wie bereits in Kapitel 4.2 erwähnt, haben diese Modelle nicht den Anspruch, tatsächlich in dieser Form umgesetzt zu werden. Bevor die Umsetzung stattfinden kann, müssen Verbesserungen am Aufbau des Systems durchgeführt und einige technische Hürden, die bei den Simulationen nicht berücksichtigt wurden, gelöst werden.

Ein Punkt für die Optimierung wäre dabei die bessere Ausnutzung der Wärme der Produktgasströme. Vor allem auf der Wasserstoffseite wird dies bei beiden Modellen sehr schlecht umgesetzt. Nach der Rezyklierung wird das Produktgas direkt zum Kondensator

geleitet und der Wasserdampf abgeschieden, womit die gesamte brauchbare Wärme verloren geht. Es sollte daher versucht werden, vor der Abscheidung einen Teil der Energie für die Wasserdampfherstellung oder die Erwärmung der Eingangsgasströme zu nutzen.

Eine technische Herausforderung ergibt sich durch die Erwärmung der Eingangsgasströme mittels Wärmetauscher. Bei den Simulationen wurden Wirkungsgrade von bis zu 95,15% für die Erwärmung benötigt, die in der Praxis nicht oder nur sehr schwer erreichbar sind. Außerdem stellt die Eingangstemperatur von 900 °C die obere Grenze für Wärmetauscher dar. Eine Möglichkeit, dieses Problem zu umgehen, wäre ein Betrieb der SOEC bei einer Spannung größer der thermoneutralen Spannung – so könnte ein Teil der benötigten Energie für die Erwärmung der Elektrolysezelle selbst geliefert werden.

A. Anhang

A.1. Simulationsdaten

A.1.1. SOEC-Anlage ohne externe Wärmezufuhr

Tabelle A.1.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50% und einer Rezyklierungsrate von 10%

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1269 |
| Leistung [kW] | 10,37 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 36,68 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 361,1 |
| Luft Anode [NL/h] | 7000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1981 |
| Luft Brenner [NL/h] | 15420 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 86,17 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,57 |

Tabelle A.2.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1386 |
| Leistung [kW] | 10,37 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 40,07 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 7000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1864 |
| Luft Brenner [NL/h] | 14445 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 84,45 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,58 |

Tabelle A.3.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 30 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1494 |
| Leistung [kW] | 10,39 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 43,07 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 1393 |
| Luft Anode [NL/h] | 8000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1756 |
| Luft Brenner [NL/h] | 13450 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 82,35 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,62 |

Tabelle A.4.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 40 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1607 |
| Leistung [kW] | 10,42 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 46,22 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 2167 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1643 |
| Luft Brenner [NL/h] | 12370 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 79,62 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,66 |

Tabelle A.5.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 50 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1720 |
| Leistung [kW] | 10,46 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 49,28 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 3250 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1531 |
| Luft Brenner [NL/h] | 11330 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 76,09 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,70 |

Tabelle A.6.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50% und einer Rezyklierungsrate von 60%

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1837 |
| Leistung [kW] | 10,49 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 52,48 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 11000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1413 |
| Luft Brenner [NL/h] | 10225 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 73,49 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,72 |

Tabelle A.7.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 40% und einer Rezyklierungsrate von 20%

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 933,4 |
| Leistung [kW] | 10,47 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 26,73 |
| Wasserdampf [NL/h] | 8125 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 2317 |
| Luft Brenner [NL/h] | 17960 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 84,32 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,59 |

Tabelle A.8.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 60 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1685 |
| Leistung [kW] | 10,31 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 48,95 |
| Wasserdampf [NL/h] | 5417 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 6000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1565 |
| Luft Brenner [NL/h] | 12085 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 84,52 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,59 |

Tabelle A.9.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 70 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1902 |
| Leistung [kW] | 10,27 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 55,51 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4643 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 5000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1348 |
| Luft Brenner [NL/h] | 10405 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 84,59 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,58 |

Tabelle A.10.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 80 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2058 |
| Leistung [kW] | 10,25 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 60,19 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4063 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 5000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1192 |
| Luft Brenner [NL/h] | 9110 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 84,68 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,60 |

Tabelle A.11.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 60 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 1985 |
| Leistung [kW] | 10,45 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 56,94 |
| Wasserdampf [NL/h] | 5417 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1265 |
| Luft Brenner [NL/h] | 9115 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 72,63 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,73 |

Tabelle A.12.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 70 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2086 |
| Leistung [kW] | 10,42 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 59,99 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4643 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1164 |
| Luft Brenner [NL/h] | 8285 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 71,88 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,73 |

Tabelle A.13.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 80 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2169 |
| Leistung [kW] | 10,39 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 62,57 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4063 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1081 |
| Luft Brenner [NL/h] | 7705 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 72,08 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,73 |

A.1.2. SOEC-Anlage mit externer Wärmezufuhr

Tabelle A.14.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 10 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2507 |
| Leistung [kW] | 10,18 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 73,81 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 361,1 |
| Luft Anode [NL/h] | 7000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 742,7 |
| Luft Brenner [NL/h] | 5075 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 93,5 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,92 |

Tabelle A.15.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2472 |
| Leistung [kW] | 10,20 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 72,64 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 7000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 777,8 |
| Luft Brenner [NL/h] | 5370 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 94,21 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,92 |

Tabelle A.16.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 30 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2427 |
| Leistung [kW] | 10,24 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 71,03 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 1393 |
| Luft Anode [NL/h] | 8000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 823,1 |
| Luft Brenner [NL/h] | 5610 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 88,42 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,02 |

Tabelle A.17.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 40 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2290 |
| Leistung [kW] | 10,29 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 66,73 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 2167 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 960,1 |
| Luft Brenner [NL/h] | 6620 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 81,39 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,02 |

Tabelle A.18.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 50 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2151 |
| Leistung [kW] | 10,34 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 62,34 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 3250 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1099 |
| Luft Brenner [NL/h] | 7645 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 76,07 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,01 |

Tabelle A.19.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 50 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2009 |
| Leistung [kW] | 10,40 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 57,89 |
| Wasserdampf [NL/h] | 6500 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 11000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1241 |
| Luft Brenner [NL/h] | 8690 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 72,23 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,01 |

Tabelle A.20.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 40 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2286 |
| Leistung [kW] | 10,25 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 66,81 |
| Wasserdampf [NL/h] | 8125 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 963,4 |
| Luft Brenner [NL/h] | 6660 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 93,68 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,89 |

Tabelle A.21.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 60 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2627 |
| Leistung [kW] | 10,17 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 77,43 |
| Wasserdampf [NL/h] | 5417 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 6000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 622,7 |
| Luft Brenner [NL/h] | 4214 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 94,61 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,93 |

Tabelle A.22.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 70 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2709 |
| Leistung [kW] | 10,15 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 80,03 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4643 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 5000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 540,9 |
| Luft Brenner [NL/h] | 3663 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 94,91 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 88,93 |

Tabelle A.23.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 80 % und einer Rezyklierungsrate von 20 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2843 |
| Leistung [kW] | 10,13 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 84,09 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4063 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 812,5 |
| Luft Anode [NL/h] | 5000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 407,5 |
| Luft Brenner [NL/h] | 2559 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 95,15 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 91,05 |

Tabelle A.24.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 60 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2151 |
| Leistung [kW] | 10,36 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 62,22 |
| Wasserdampf [NL/h] | 5417 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1099 |
| Luft Brenner [NL/h] | 7645 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 71,90 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,01 |

Tabelle A.25.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 70 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2152 |
| Leistung [kW] | 10,35 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 62,3 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4643 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 10000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 1098 |
| Luft Brenner [NL/h] | 7645 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 66,28 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,01 |

Tabelle A.26.: Simulationsdaten bei einer Dampfausnutzung von 80 % und einer Rezyklierungsrate von 60 %

| Parameter | Wert |
|--|-------|
| Produktwasserstoff [NL/h] | 2291 |
| Leistung [kW] | 10,32 |
| Gesamtwirkungsgrad [%] | 66,56 |
| Wasserdampf [NL/h] | 4063 |
| Wasserstoff rezykliert [NL/h] | 4875 |
| Luft Anode [NL/h] | 9000 |
| Wasserstoff Brenner [NL/h] | 959,2 |
| Luft Brenner [NL/h] | 6620 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Kathode [%] | 69,22 |
| Wirkungsgrad Wärmetauscher Anode [%] | 89,01 |

Literaturverzeichnis

- [1] H. Eichlseder and M. Klell, *Wasserstoff in der Fahrzeugtechnik - Erzeugung, Speicherung, Anwendung*. Springer Vieweg, 3. ed., 2012.
- [2] C. Stoots, R. O'Brien, T. Cable, and J. O'Brien, "INL Testing of the NASA Bi-Electrode Supported Solid Oxide Cell as an Electrolyzer," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14-1 – 14-12, 2010.
- [3] S. Elangovan, J. Hartvigsen, D. Larsen, I. Bay, and F. Zhao, "Materials for Solid Oxide Electrolysis Cells," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2875 – 2882, 2011.
- [4] P. Kim-Lohsoontorn and J. Bae, "Electrochemical performance of electrodes under high-temperature coelectrolysis of steam and carbon dioxide," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14-13 – 14-26, 2010.
- [5] T. Kato, K. Sato, T. Honda, A. Negishi, Y. Tanaka, A. Momma, K. Kato, and Y. Iimura, "Development of Tubular Solid Oxide Electrolysis Stacks for Hydrogen Production," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2979 – 2985, 2011.
- [6] X. Yang and J. T. S. Irvine, "(La_{0.75}Sr_{0.25})_{0.95}Mn_{0.5}Cr_{0.5}O₃ as the cathode of solid oxide electrolysis cells for high temperature hydrogen production from steam," *J. Mater. Chem.*, vol. 18, pp. 2349 – 2354, 2008.
- [7] J. Schefold, A. Brisse, M. Zahid, J. P. Ouweltjes, and J. U. Nielsen, "Long Term Testing of Short Stacks with Solid Oxide Cells for Water Electrolysis," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2915 – 2927, 2011.

- [8] C. Xu, J. F. Ding, T. S. Li, and W. G. Wang, "Using Ni/YSZ Cathode-Supported Solid Oxide Electrolyser Cells for Hydrogen Production," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–72 – 14–76, 2010.
- [9] C. Jin, C. Yang, and F. Chen, "Novel Micro-Tubular High Temperature Solid Oxide Electrolysis Cells," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2987 – 2995, 2011.
- [10] S. Kim, J. Yu, D. Seo, I. Han, and S. Woo, "Hydrogen Production by High Temperature Electrolysis Using Solid Oxide Electrolyzer Cells," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2957 – 2960, 2011.
- [11] M. Petitjean, M. Reytier, A. Chatroux, L. Bruguière, A. Mansuy, H. Sassoulas, S. Di Iorio, B. Morel, and J. Mougín, "Performance and Durability of High Temperature Steam Electrolysis: From the Single Cell to Short-Stack Scale," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2905 – 2913, 2011.
- [12] F. Lefebvre-Joud, M. Petitjean, J. P. Ouweltjes, A. Brisse, J. R. Bowen, and J. U. Nielsen, "Analysis of the parameters controlling high temperature steam electrolysis efficiency and durability in the RelHy project," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–39 – 14–48, 2010.
- [13] J. Fish and N. Sammes, "Synthesis of novel cathode material for solid oxide electrolysis cells (SOEC)," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–87 – 14–90, 2010.
- [14] C. Moyer, H. Zhu, N. Sullivan, and R. Kee, "Gas Transport and Charge-Transfer Chemistry in High-Temperature Solid-Oxide Electrolysis Cells," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–61 – 14–71, 2010.
- [15] M. Ni, "2D thermal modeling of a solid oxide electrolyzer cell (SOEC) for syngas production by H₂O/CO₂ co-electrolysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, no. 8, pp. 6389 – 6399, 2012.

- [16] J. H. Yu, I. S. Han, D. W. Seo, K. S. Hong, S. D. Kim, and S. K. Woo, "Hydrogen Production by Steam Electrolysis with Tubular SOEC," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–77 – 14–83, 2010.
- [17] G. Hawkes, J. O'Brien, C. Stoots, and B. Hawkes, "3D CFD model of a multi-cell high-temperature electrolysis stack," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, no. 9, pp. 4189 – 4197, 2009.
- [18] S. Gopalan, M. Mosleh, J. J. Hartvigsen, and R. D. McConnell, "Analysis of self-sustaining recuperative solid oxide electrolysis systems," *Journal of Power Sources*, vol. 185, no. 2, pp. 1328 – 1333, 2008.
- [19] N. Armaroli and V. Balzani, "The Hydrogen Issue," *ChemSusChem*, vol. 4, no. 1, pp. 21 – 36, 2011.
- [20] M. Laguna-Bercero, "Recent advances in high temperature electrolysis using solid oxide fuel cells: A review," *Journal of Power Sources*, vol. 203, pp. 4 – 16, 2012.
- [21] J. Watton, A. Dhir, and R. Steinberger-Wilckens, "Development of a solid oxide electrolysis test stand," in *Proceedings of 10th European SOFC Forum 2012*, pp. B07–92 – B07–99, 2012.
- [22] S. H. Jensen, *Solid Oxide Electrolyser Cell*. PhD thesis, Technical University of Denmark, 2006.
- [23] N. Q. Minh, "Development of Reversible Solid Oxide Fuel Cells (RSOFCs) and Stacks," *ECS Transactions*, vol. 35, no. 1, pp. 2897 – 2904, 2011.
- [24] J. E. O'Brien and C. M. Stoots, "High Temperature Electrolysis using Electrode-Supported Cells," in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–27 – 14–38, 2010.
- [25] T. Kato, T. Honda, A. Negishi, K. Sato, Y. Tanaka, A. Momma, K. Kato, and Y. Iimura, "Tubular Solid Oxide Electrolysis Cells for Hydrogen Production," *ECS Transactions*, vol. 30, no. 1, pp. 317 – 322, 2011.

- [26] C. Lebrun, T. Delahaye, K. Couturier, and O. Joubert, “Ni substituted titanates presenting exsolution of Ni nanoparticles as new hydrogen electrode materials for SOFC or SOEC,” in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–84 – 14–86, 2010.
- [27] A. Brisse, J. Schefold, M. Zahid, J. U. Nielsen, and P. Noyé, “Long Term Operation of Solid Oxide Fuel Cell Stacks in High Temperature Water Electrolysis,” in *Proceedings of 9th European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, pp. 14–49 – 14–60, 2010.
- [28] J. Holladay, J. Hu, D. King, and Y. Wang, “An overview of hydrogen production technologies,” *Catalysis Today*, vol. 139, no. 4, pp. 244 – 260, 2009.
- [29] www.fluidat.com.
- [30] J. Mathé, “Sulfur poisoning of solid oxide fuel cells,” Master’s thesis, Technische Universität Wien, 2012.
- [31] M. Rittenschober, “Schwefelverträglichkeit von Festoxid-Brennstoffzellen,” Master’s thesis, Technische Universität Graz, 2012.