

Eine echte Alternative

Modellierung und Simulation der Hochtemperatur-Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle (HTPEM) am Zentrum für Brennstoffzellentechnik (ZBT)

Die Brennstoffzellentechnik wird in naher Zukunft eine echte Alternative zu konventionellen Energieumwandlungseinheiten sowie klassischen Antriebskonzepten darstellen. Neben der Niedertemperatur-Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle (NTPEM) wird seit einiger Zeit am ZBT in Duisburg auch an der Hochtemperatur-Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle (HTPEM) geforscht. Neben der praktischen Laborforschung stellt die strömungsmechanische Modellierung und Simulation einen wesentlichen Bestandteil dieser Forschungsarbeit dar.

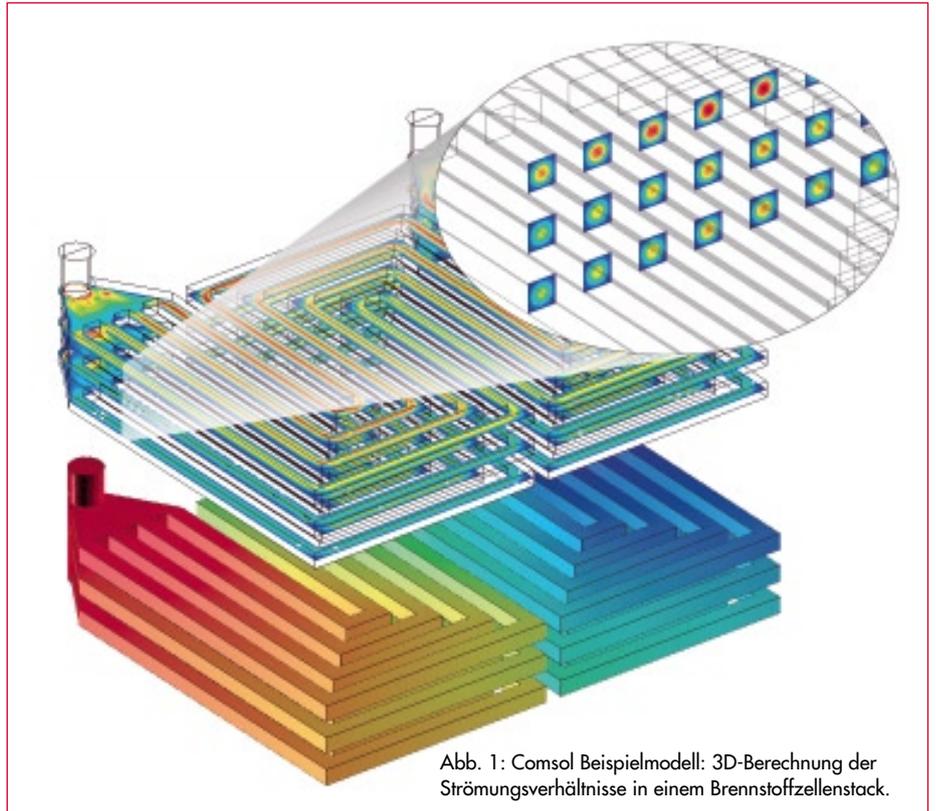


Abb. 1: Comsol Beispielmodell: 3D-Berechnung der Strömungsverhältnisse in einem Brennstoffzellenstack.

In der HTPEM-Brennstoffzellentechnik können bei Betriebstemperaturen von 130 – 180 °C die bekannten Schwierigkeiten bezüglich Wassermanagement, Wärmeauskopplung oder Schadgasverträglichkeit umgangen werden. Folglich wird im Gegensatz zur NTPEM- der komplette HTPEM-Systemaufbau wesentlich vereinfacht.

Seit 2004 wird die Polybenzimidazol/Phosphorsäure (PBI/H₃PO₄) Sol-Gel Membran erfolgreich am ZBT im Zellen- und Stackdesign getestet und liefert Erfolg versprechende Ergebnisse in Kurz- und Langzeitversuchen [1, 2]. Neben der Entwicklung von z.B. HTPEM-Bipolarplatten [3] oder dem Testen von Anfahrzyklen ist auch die strömungsmechanische Modellierung und Simulation ein wesentlicher Bestandteil der Forschungsarbeit.

Die mathematische Modellierung und Simulation ist mittlerweile ein anerkanntes Werkzeug für Auslegung, Design und Opti-



Dipl.-Ing. Christian Siegel,
Zentrum für Brennstoffzellentechnik (ZBT)



MSc. George Bandlamudi,
Zentrum für Brennstoffzellentechnik (ZBT)



Dr.-Ing. Peter Beckhaus,
Zentrum für Brennstoffzellentechnik (ZBT)



Prof. Dr. rer. nat. Angelika Heinzel,
Zentrum für Brennstoffzellentechnik (ZBT)

mierung von Brennstoffzellen. Das komplexe Zusammenspiel von z.B. strömungstechnischen sowie elektrochemischen Vorgängen kann inzwischen detailliert dargestellt werden. In den letzten Jahren wurden am ZBT sowie an der Universität Duisburg-Essen unterschiedliche HTPEM-Modelle mit der

Software Comsol Multiphysics [4] realisiert. Ausgehend von einem 2D-Modell [5] ist man heute in der Lage komplette strömungsmechanische 3D-Modelle zu lösen [6]. Die Modellierung basiert auf den Erhaltungsgleichungen (partielle Differentialgleichungen) von Masse, Impuls, Ladung, Spe-

Formelzeichen

T_f	[K], [°C]	Gastemperatur (Fluid-(Gas)-Phase)
T_s	[K], [°C]	Zellentemperatur (Festkörperphase)
U	[V]	Zellenspannung
x	[m]	Ortskoordinate in x-Richtung
y	[m]	Ortskoordinate in y-Richtung
z	[m]	Ortskoordinate in z-Richtung

Griechische Symbole

γ	[-]	Stöchiometrie
σ_m	[S/m]	Leitfähigkeit der Membran

Abkürzungen

H_2	Wasserstoff
H_3PO_4	Phosphorsäure
PBI	Polybenzimidazol
FEM	Finite Elemente Methode
MEA	Membran-Elektroden-Einheit

Unterstützung

Die Arbeit wird unterstützt vom ‚Le Gouvernement du Grand-Duché de Luxembourg, Ministère de la Culture, de l'Enseignement supérieur et de la Recherche, Recherche et Innovation' No.: BFR07/007, sowie durch den europäischen Fond für Regionale Entwicklung und durch das Land Nordrhein-Westfalen.

Literatur

- [1] J. Burfeind, G. Bandlamudi, I. Kundler, A. Heinzl, Betriebserfahrungen mit Hochtemperatur-PEM von PEMEAS, Riesaer Brennstoffzellen-Workshop – Neueste Entwicklungen in der Brennstoffzellentechnologie, Glaubitz 2006.
- [2] G. Bandlamudi, F. Mahlendorf, Ex-situ-Untersuchungen zur Bestimmung der Degradation von Phosphorsäure-basierten Brennstoffzellen, 87. AGEF-Seminar und NRW-Netzwerk NanoEnergie: Workshop in-situ-Messmethoden in Brennstoffzellen, Heinrich-Heine-Universität, Düsseldorf 2006.
- [3] T. Derieth et al., J. New Mat. Electrochem. Systems 2008, 11, 21.
- [4] Comsol Multiphysics Software v3.5 2009. <http://www.comsol.de>.
- [5] C. Siegel, G. Bandlamudi, A. Heinzl, Proceedings of the European COMSOL Conference 2007.
- [6] C. Siegel, G. Bandlamudi, A. Heinzl, Proceedings of the European COMSOL Conference 2008.
- [7] C. Siegel, Energy 2008, 33, 1331.
- [8] L. Xiao et al., Chem. Mater. 2005, 17, 5328.

Fachbeitrag auf CD

Dieser Beitrag ist auch auf der Comsol Konferenz CD 2008 zu finden. Die CD enthält außerdem über 300 Fachvorträge, Folienpräsentationen, Videos und Comsol-Modelle und ist kostenfrei erhältlich.
www.comsol.de/conference2008/cd/

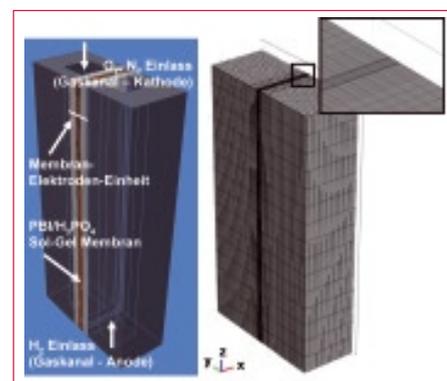


Abb. 2: 3D-Rechengebiet und erzeugtes FEM-Rechengitter.

zies und Energie. Zusätzlich muss das PBI/ H_3PO_4 Sol-Gel Membranverhalten beschrieben werden. Die eingesetzten Membranen enthalten einen sehr hohen Anteil Phosphorsäure (z.B. ± 32 Phosphorsäuremoleküle pro PBI-Wiederholungseinheit) innerhalb der komplexen PBI-Matrix. Die daraus resultierende Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit wird in der Fachliteratur des Öfteren mit einem Arrhenius-Ansatz beschrieben. Diese zusätzlichen Gleichungen können mit der eingesetzten Software neben vordefinierten Applikationsmodi, ohne eigene FEM-Codes programmieren zu müssen, eingefügt werden.

Vereinfachte 3D-Rechengebiete

Ein verwendetes 3D-Rechengebiet wird in Abb. 2 dargestellt und besteht aus einem Bipolarplattenausschnitt, dem Gaskanal sowie der Membran-Elektroden-Einheit (MEA). Durch das Festlegen der jeweiligen Gebiets-, Rand-, und Initialbedingungen kann das Modell gelöst werden. Das dazugehörige erstellte Rechengitter, besteht aus 8.820 finiten Elementen und wurde speziell im Bereich der MEA stark verfeinert (siehe Ausschnitt in Abb. 2).

Um diese multiphysikalischen Modelle zu lösen, braucht man stabile numerische Verfahren sowie an das Problem angepasste Lösungsmethoden, welche z.B. in [7] zusammengefasst sind. Bei ausreichender Arbeitsspeicherauslegung des Rechners können für große 3D-Modelle neben iterativen Lösern (z.B.: ‚segregated solver‘) auch robuste Direktlöser eingesetzt werden.

Darstellung multiphysikalischer Verhaltensweisen

Im Folgenden werden einige Ergebnisse einer vorangegangenen Studie präsentiert [6]. Das Hauptaugenmerk lag hierbei auf der Simulation multiphysikalischer Kopplungen von z.B.: Massenbruchverteilung von Spezies, Stromdichteverteilung innerhalb der elektrochemisch aktiven Bereiche, Leitfähigkeitsverhalten der Membran oder Temperaturgradienten innerhalb der HTPeM-Brennstoffzelle.

Abb. 3 zeigt die berechnete Sauerstoff- sowie die Wasserstoffmassenbruchverteilung an unterschiedlichen Stellen entlang der y-Koordinate (hier: ‚through-plane‘) bei einer Zellenbetriebsspannung von 0,6 V. In beiden Fällen erkennt man das Abreichte-

ungsverhalten entlang des Kanals (z-Koordinate) sowie den Einfluss der Bipolarplattenstege insbesondere auf der Kathodenseite der HTPeM-Brennstoffzelle.

Die berechnete Stromdichteverteilung innerhalb der porösen Reaktionsschicht der Kathode ist in Abb. 4 dargestellt. Es ist allgemein bekannt, dass die Stromdichte von z.B. der jeweiligen Verteilung der Reaktionsgase sowie der ohmschen Verluste abhängt und wird gerade deswegen als wichtiges Optimierungskriterium angesehen.

Abb. 5 veranschaulicht die simulierte Leitfähigkeitsverteilung innerhalb der PBI/ H_3PO_4 Sol-Gel Membran bei einer Zellenspannung von 0,6 V. Das erstellte Modell ist in der Lage, den Einfluss der Betriebstemperatur auf die Leistungsfähigkeit der Zelle, wie in [8] beschrieben, wiederzugeben. Die volumetrisch gemittelten Leitfähigkeitswerte liegen bei $\sigma_m = 22 \text{ S m}^{-1}$ ($T_s = 160^\circ\text{C}$) und $\sigma_m = 25 \text{ S m}^{-1}$ ($T_s = 170^\circ\text{C}$). Aus Abb. 5 ist der Einfluss der Gastemperatur ebenfalls leicht ersichtlich und könnte als wichtiges Optimierungskriterium einer HTPeM-Brennstoffzelle betrachtet werden.

Abb. 6 zeigt die im ZBT-Labor eingesetzte HTPeM-Brennstoffzelle im Betrieb. Die Zellentemperatur wurde konstant geregelt. Die Gaseingangstemperatur betrug anoden- und

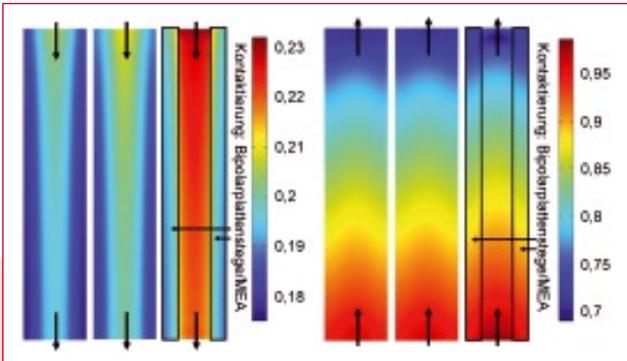


Abb. 3: Massenbruchverteilung der Spezies Sauerstoff (links) und Wasserstoff (rechts) – (jeweils innerhalb der porösen Reaktionsschicht, der porösen Gasdiffusionsschicht sowie unter dem Gaskanal). Pfeile: Strömungsrichtung der Gase.

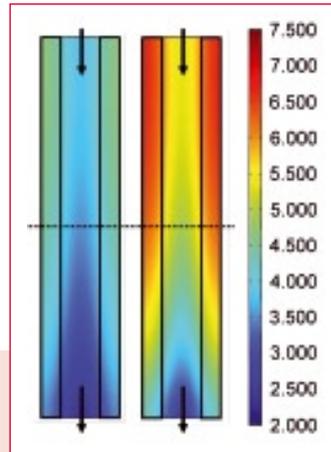


Abb. 4: Stromdichteverteilung innerhalb der kathodenseitigen Reaktionsschicht bei 0,6 V (links) und 0,5 V (rechts).

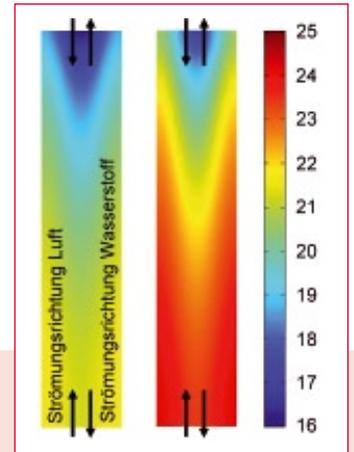


Abb. 5: Leitfähigkeitsverteilung der PBI/H₃PO₄, Sol-Gel Membran bei 160 °C (links) und 170 °C (rechts) (U = 0,6 V).

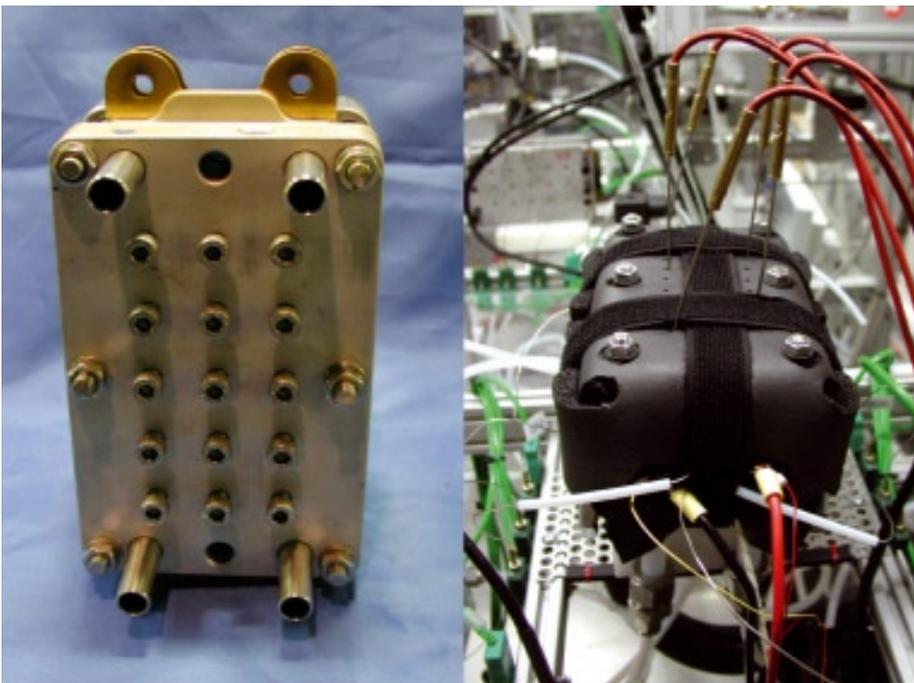


Abb. 6: HTPEM-Referenzzelle im Betrieb.

kathodenseitig $T_f = 21\text{ °C}$, bei einer relativen Feuchte von $\pm 0,25\%$ und einer H₂-Stöchiometrie von $\gamma = 1,35$ respektive $\pm 2\text{-}4\%$ und einer Luft-Stöchiometrie von $\gamma = 2,5$ sowie Umgebungsdruck.

Modellansätze kontinuierlich ergänzen und verbessern

Das finite Elemente Paket Comsol Multiphysics hat sich am ZBT als optimales Tool erwiesen, um die multiphysikalischen Aspekte

innerhalb der HTPEM-Brennstoffzellen zu untersuchen. Die gemessenen Stromdichte-Spannungskurven können innerhalb eines definierten Fehlerkorridors von $\pm 10\%$ wiedergegeben werden. Ausgehend von einem funktionierenden Modell können z.B. Auslegungsarbeiten beginnen und Optimierungsroutinen gestartet werden, welche auf die jeweilige Brennstoffzellenanwendung zugeschnitten sind. Des Weiteren werden die Modellansätze kontinuierlich ergänzt und verbessert.

Comsol Kolloquium zur Chemical Engineering Simulation



Am 25. Juni 2009 findet in Darmstadt ein Comsol Kolloquium zur Chemical Engineering Simulation statt. Es richtet sich an Ingenieure, Verfahrenstechniker, Chemiker und alle diejenigen, die sich mit Simulationen von Transportphänomenen wie z.B. Strömungsmechanik (CFD), Diffusion oder Wärmetransport beschäftigen.

www.comsol.de/events/kolloquium/

Kontakt

Christian Siegel
 Zentrum für Brennstoffzellentechnik
 (ZBT) GmbH, Duisburg
 Tel.: 0203/75980
 Fax: 0203/7598222
 c.siegel@zbt-duisburg.de
 www.zbt-duisburg.de

Almut Seyderhelm
 Comsol Multiphysics GmbH, Göttingen
 Tel.: 0551/99721-0
 Fax: 0551/9972129
 Almut.Seyderhelm@comsol.de
 info@comsol.de
 www.comsol.de