

Entwicklungsstand innovativer SOFC Systeme zur dezentralen Energiebereitstellung

Martin Hauth, Jürgen Karl

Institut für Wärmetechnik / TU Graz, Inffeldgasse 25/B, Tel.: 0316 873 7319,
martin.hauth@tugraz.at, www.iwt.tugraz.at

Kurzfassung: Die unterschiedlichen Bauarten von Brennstoffzellen (AFC, PEM, DMFC, MCFC, SOFC) ermöglichen ein sehr breites und flexibles Einsatzspektrum. Zu den verbreitetsten Anwendungen gehören mobile Anwendungen (Laptop, Militär), Notstromaggregate, Hilfsaggregate im automobilen Bereich (APU) und Systeme zur dezentralen Energiebereitstellung im kleinen und mittleren Leistungsbereich. Das mittlerweile sehr umfangreiche Angebot an Herstellern bietet Systeme, die vorwiegend mit reinem Wasserstoff oder mit Kohlenwasserstoffen wie Methan (Erdgas) oder Methanol in Verbindung mit einer vorgeschalteten Reformereinheit betrieben werden. Diese Technologien sind für eine verstärkte Marktdurchdringung und somit für eine steigende Akzeptanz gegenüber brennstoffzellenbetriebenen Produkten von enormer Bedeutung. Lerneffekte hinsichtlich Optimierung und Steigerungen der Lebensdauer sowie den sich dadurch ergebenden Kosteneinsparungspotentialen beschleunigen die Etablierung dieser Technologien am Markt. Da Brennstoffzellen als hocheffiziente Energiesysteme im Bereich erneuerbarer Energien gesehen werden, ist die Frage nach der Herkunft des Brennstoffs ein wesentliches Kriterium. Die Herstellung von Wasserstoff über die Elektrolyse erfordert den Einsatz exergetisch hochwertiger Energie. Aus diesem Grund geht die Entwicklung im Bereich der Energiebereitstellung hin zum Einsatz von Synthesegasen, die gezielt durch die Vergasung von Biomasse gewonnen werden. Unter dem Blickwinkel der CO₂ Sequestrierung werden auch Systeme mit integrierter Kohlevergasung sehr stark als zukunftssträchtige Technologie vorangetrieben. Weitere bereits eingesetzte Brennstoffe sind Biogas aus der Fermentation und Klärgas.

Nachfolgend wird die aktuelle Situation der weltweiten Entwicklung dezentraler Energiesysteme auf Basis einer SOFC gegenübergestellt. Dabei wird sowohl auf die verfolgten Technologien, als auch auf die nationalen wie internationalen Forschungsprogramme eingegangen. Neben technologischen Zielen, wie Lebensdauer und Gesamteffizienz, wird ein Ausblick auf die angepeilten Kostenziele gegeben. Daraus abgeleitet werden die aktuellen Forschungsaktivitäten am Institut für Wärmetechnik, TU Graz, im Bereich der Nutzung von Produktgasen aus der Biomasse Vergasung in einer SOFC vorgestellt.

Keywords: SOFC, dezentrale Energiesysteme, Systemkosten, Biomasse

1 Geschichtliche Entwicklung der SOFC

Während die Entdeckung des Grundprinzips der Brennstoffzelle auf den deutschen Chemiker Schönbein sowie dem britischen Physiker Grove auf das Jahr 1838 bzw. 39 zurück geht, wurden die Grundsteine für die SOFC erst Ende des 19-ten Jahrhunderts gelegt [10]. Nernst entwickelte damals, für die von ihm erfundene Nernst Lampe, Yttrium dotierte Zirkonoxid (YSZ) Elektroden und demonstrierte damit erstmals die stark temperaturabhängige Ionenleitfähigkeit des in heutigen SOFC zum Einsatz kommenden Elektrolytes. Jedoch erst 1943 wurde der Mechanismus der Ionenleitfähigkeit von Wagner gänzlich verstanden und dadurch verstärkt in Richtung SOFC geforscht. Verschiedene Patente von Brennstoffzellen mit festen Elektrolyten wurden unter anderem von Haber (1905), Siemens und Halske (1935) sowie Baur und Preis (1937) eingereicht [11].

Bis 1955 war die Bestrebung dahingehend, den Zellaufbau so weit zu verbessern, dass es möglich wurde die theoretische Nernstspannung auch messtechnisch zu ermitteln. Nachdem dies gelang, wurde auch erstmals versucht, im Umkehrschluss den Sauerstoffpartialdruck in Stickstoff anhand der Nernstspannung zu messen. Anfang der 60er Jahre begann auch Westinghouse mit der Entwicklung erster planarer sowie tubularer Stacks. 1962 wurde am Battelle Institut in Frankfurt das erste Mal vom Einsatz kohlenwasserstoffhaltiger Brennstoffe berichtet. Verwendet wurde dabei ein Ni-Gewebe, das als Vorreformer funktionierte. Auch die Idee der Kopplung eines Kohlevergasers mit einer SOFC stammt aus dieser Zeit und wurde 1967 von Westinghouse aufgestellt. Generell kamen in diesem Jahrzehnt mehr und mehr Forschungsaktivitäten in den USA, Europa und Japan auf. Der Fokus lag eindeutig auf der Materialseite und zielte auf ein besseres Verständnis bezüglich der Ionenleitfähigkeit ab. Jedoch erst 1986 führte ein neues Design von Westinghouse basierend auf tubularen Zellen zum ersten 5 kW_{el} SOFC Generator [11].

2 Marktsituation

Bei den weltweiten Brennstoffzellen-Aktivitäten ist aus kommerzieller Sicht gesehen, derzeit die PEM Brennstoffzelle, ein Vertreter der Niedertemperatur-Brennstoffzellen (PEM, DMFC), die treibende Kraft. Betriebstemperaturen unter 200°C stellen dabei geringere Anforderungen an das Material der Zell- und Stackkomponenten und haben somit den Vorteil geringerer Materialkosten. Als nachteilig gegenüber den Hochtemperatur-Brennstoffzellen (MCFC, SOFC) kann die erforderliche höhere Gasreinheit des Brennstoffs gesehen werden. Gerade für einen Großteil der derzeitigen kommerziellen Anwendungen der PEM, bei denen reiner Wasserstoff zum Einsatz kommt, fällt diese Problematik jedoch weg, wodurch sich der höhere Grad der Kommerzialisierung begründen lässt. Während PEM-Brennstoffzellen vermehrt im kleinen Leistungsbereich (25 W_{el} – 16 kW_{el}) für zahlreiche mobile Anwendungen zum Einsatz kommen und somit ein breites Spektrum an Nischenmärkten vorfinden, liegt der Fokus bei den MCFC und SOFC mehr im Kleinkraftwerksbereich (1 kW_{el} – 2,8 MW_{el}). Dies resultiert aufgrund der hohen Betriebstemperatur (650 – 1000°C) auch aus der Tauglichkeit für eine Kraft-Wärme-Kopplung.

Tab. 2-1 soll einen Überblick über derzeitige Brennstoffzellensysteme, die zum Teil kommerziell erhältlich sind oder nahe vor der Vermarktung stehen, verschaffen. Hinsichtlich der sich am Markt befindlichen Systeme stehen neben den Herstellern von PEM-Brennstoffzellen vor allem die beiden Hersteller der MCFC basierenden Kraftwerke hervor. FuelCell Energy betreibt bereits zahlreiche Kraftwerkstandorte in Kalifornien. Mit Posco Fuel Cell als Lizenznehmer wird dieser Typ auch auf dem koreanischen Markt angeboten. Systeme bis 50 MW_{el} werden dabei angestrebt. Die MTU onsite energy betreibt mit dem Hot Module eine weitere Bauart einer MCFC die neben Erdgas auch Biogas, Klärgas und Methanol als Brennstoff umsetzt. Hier werden beispielsweise Krankenhäuser oder diverse Produktionsstätten aus der Lebensmittel- und Getränkeindustrie speziell in Deutschland versorgt.

Tab. 2-1: Kommerzielle und marktnahe System-Anwendungen verschiedener Brennstoffzellentypen

Typ	Anwendung	CHP	Leistung	Brennstoff	Hersteller
DMFC	Stromaggregat (Camping, Hütte, Marine, etc.)	nein	25 - 90 W _{el}	Methanol (Me)	Smart Fuel Cell AG, www.sfc.com
PEM	Modellbau, Notstrom, Bordstrom	k.A.	50 W _{el} - 16 kW _{el}	H ₂	Heliocentris, www.heliocentris.com
PEM	BHKW, Hilfsaggregate, Telekom	ja	150 W _{el} - 5 kW _{el} , 4,8 kW _{el} / 7 kW _{th}	H ₂ , LPG	Morphic Exergy, www.morphic.se
PEM	Stromaggregat (Laptop, Batterie laden, militärische Anwendung)	Nein	25 W _{el} , 50 W _{el}	Methanol	UltraCell, www.ultracellpower.com
PEM	Gabelstapler, Bus, Kraft-Wärme-Kopplung, Notstrom	Ja	0,3 kW _{el} - 150 kW _{el}	H ₂ od. Reformat	Ballard, www.ballard.com
MCFC	Kraftwerk	k.A.	300 kW _{el} , 1,4 MW _{el} , 2,8 MW _{el}	Erdgas (EG)	FuelCell Energy, www.fuelcellenergy.com
MCFC	Kraftwerk	k.A.	345 kW _{el}	EG, Biogas, Klärgas, Me	MTU onsite energy, www.mtu-online.com
PEM SOFC	Militär, mobile Anwendungen, Notstrom, Recreation, u. a.	k.A.	ca. 250 W _{el} (PEM)	H ₂ Reformat	Protonex, www.protonex.com
SOFC	Brennstoffzellen-Heizgerät	Ja	2 kW _{el} , 1 kW _{th}	EG	Ceramic Fuel Cells Ltd., www.cfcl.com.au
SOFC	Stromaggregat	Nein	5 kW _{el}	CH ₄ , C ₃ H ₈ , Erdgas, H ₂	Acumentrics, www.acumentrix.com
SOFC	Auxiliary Power Unit (APU)	Nein	5 kW _{el}	EG, Diesel, Benzin, C ₃ H ₈	Delphi, http://delphi.com
SOFC	Brennstoffzellen-Heizgerät	Ja	2 kW _{el} - 10 kW _{el}	EG, C ₃ H ₈ , Diesel	Versa Power Systems, www.versa-power.com
SOFC	Stromaggregat, marine Anwendungen	Nein	20 kW _{el}	EG	Wärtsila, www.wartsila.com
PEM SOFC	Brennstoffzellen-Heizgerät	Ja	1-4,6 kW _{el} (PEM), 1 kW _{el} (SOFC)	EG	Vaillant, www.vaillant.de

Richtet man den Blick auf kommerzielle SOFC Anwendungen, findet man mit dem Brennstoffzellen-Heizgerät „BlueGen“ für den Haushaltsbereich (2 kW_{el}, 1 kW_{th}) der australischen Firma Ceramic Fuel Cells Ltd. einen etablierten Hersteller. Das System verwendet eine Vorreformereinheit in der der verwendete Brennstoff Erdgas aufbereitet wird. Dabei wird ein maximaler elektrischer Wirkungsgrad von 60% bzw. ein Gesamtnutzungsgrad von bis zu

85% angegeben [18]. Mit Vaillant engagiert sich ein Hersteller von PEM als auch SOFC Systemen in einem groß angelegten deutschen Leuchtturmprojekt namens „Callux“. In diesem von der NOW GmbH koordiniertem Projekt werden Brennstoffzellen-Heizgeräte fürs Eigenheim einem Praxistest unterzogen. Eine Marktvorbereitung wird für 2012 anvisiert [23]. Versa Power Systems, Delphi und Acumentrix sind drei amerikanische Vertreter, die für das Programm Solid State Energy Conversion Alliance (SECA) auserkoren wurden. Diese Allianz soll die Marktvorbereitung von 3 – 10 kW_{el} Systemen im Bereich Transport, Militär und stationäre Anwendungen beschleunigen [1].

Neben den obengenannten Firmen werden im Bereich SOFC auch Aktivitäten bei Rolls-Royce erwähnt. Schon in der Vergangenheit erfolgreich waren unter anderem Siemens-Westinghouse, ein Unternehmen deren Brennstoffzellengeschichte bis auf die 1950er Jahre zurückreicht, sowie die Fa. Hexis die ein Brennstoffzellen-Heizgerät in Haushaltsgröße für die Erzeugung von Strom und Wärme aus Erdgas entwickelt hat. Siemens-Westinghouse erprobte bereits Ende der 90er Jahre ein 100 kW_{el} SOFC mit Kraft-Wärme-Kopplung sowie ein 220 kW_{el} druckaufgeladenes SOFC System gekoppelt mit einer Gasturbine. 2008 verkündete Siemens jedoch den Ausstieg aus den SOFC Aktivitäten aufgrund nicht erreichter Marktziele [9].

3 SOFC Aktivitäten weltweit

In diesem Kapitel werden nationale und internationale Forschungsaktivitäten und Fördermechanismen mit Fokus auf SOFC Systeme beleuchtet. Mit dem Hintergrund der derzeitigen Marktrelevanz abhängig vom Entwicklungsgrad und der Kostensituation, soll besonders die unterschiedliche Herangehensweise auf den Kontinenten verglichen werden. Beispielhaft werden zukunftssträchtige Systemvarianten gezeigt.

3.1 Europa

Die Rahmenprogramme der EU sind neben den diversen nationalen Förderprogrammen ein wesentliches Mittel zur Gestaltung und Lenkung europäischer Brennstoffzellenaktivitäten. Betrachtet man die Anzahl geförderter SOFC Projekte des 6. (19 Projekte) und 7. (ein Projekt) Rahmenprogramms, ist jedoch ein negativer Trend erkennbar. Ein zusätzlicher Mechanismus hingegen wurde mit der „Fuel Cell and Hydrogen Joint Technology Initiative“ (FCH JTI) geschaffen [7]. Die FCH JTI stellt eine Partnerschaft zwischen Privatwirtschaft und öffentlicher Hand und soll die Implementierung des 7. Rahmenprogramms verstärken. Von öffentlicher Seite wird die FCH JTI durch die Europäische Kommission vertreten. Das Budget für 2008 bis 2017 umfasst 940 Millionen EUR von denen die Hälfte durch die EU finanziert wird. Der Rest wird vom privaten Sektor aufgebracht.

Der Multi-Annual Implementation Plan (MAIP) sieht eine Gliederung in 5 Kategorien vor, von denen eine „stationäre Energiesysteme und Kraft-Wärme-Kopplung“ umfasst und mit 34 – 37% der gesamten Mittel dotiert ist. Für diese Anwendung wurden PEM, MCFC und SOFC als die zu fördernden Technologien ausgewählt. Der Grundgedanke ist die Forschungsaktivitäten sehr anwendungsorientiert, jedoch technologieneutral zu lenken. Eine klare Festlegung auf eine bestimmte Technologie, wie in den USA (s. Kap. 3.2), gibt es in Europa nicht. Die Zielsetzung in dieser Kategorie liegt für 2010 bei 3 – 7 MW installierter elektrischer Leistung

innerhalb der EU für vorkommerzielle Demonstrationszwecke. 2015 soll die gesamte installierte Leistung bereits 100 MW betragen [21].

Tab. 3-1: Auszug aus den laufenden und abgeschlossene Förderprojekte im Bereich SOFC innerhalb der europäischen Union

<i>Progr.</i>	<i>Projekt</i>	<i>Laufzeit</i>	<i>Volumen</i>	<i>Ziel</i>
FP6	SOFC600	2006-2010	11.92 M€	Entwicklung Stack Komponenten für 600°C
FP6	REAL SOFC	2004-2008	18.26 M€	Betrieb druckaufgeladener Stacks, Wärmerückgewin.
FP6	LARGE-SOFC	2007-2009	11.03 M€	Entwicklung von 100kW-MW Kraftwerken
FP6	FLAME-SOFC	2005-2010	12.26 M€	SOFC basierende Mikro KWK für untersch. Brennstoffe
FP6	GREEN-FC	2004-2007	5.17 M€	Nutzung Holzgas in einer SOFC
FP6	BIOCELLUS	2004-2007	3.36 M€	Demonstration holzgasbetriebener SOFC von unterschiedlichen Biomasse-Vergasern
FP6	BIOFUCEL	2004-2008	0.86 M€	Entwicklung SOFC KnowHow für stat. Anwendung basierend auf Biomasse Vergasung und Erdgas
FP7	METSOFC	2008-2011	5,57 M€	Entwicklung von neuartiger Stack Technologie basierend auf metallgestützten Elektroden
JTI	GENIUS	2010-2013	4,2 M€	„GENeric diagNosis InstrUment“ für SOFC Systeme
JTI	ASSENT	2010-2013	4,9 M€	Anoden Subsystem Entwicklung & Optimierung für SOFC Systeme
JTI	ROBANODE	2010-2013	3,4 M€	Untersuchung und Minimierung der Anoden Degradation in H ₂ - und erdgasbetriebenen SOFCs

In Europa werden vorwiegend kohlenwasserstoffhaltige Brennstoffe wie Erdgas mittels Reformierung eingesetzt. Im Bereich der erneuerbaren Ressourcen gibt es einige Forschungsaktivitäten die sich mit der Synthesegasnutzung aus der Biomasse Vergasung beschäftigen.

Neben Hexis (ehemals Sulzer Hexis), die bereits ein Brennstoffzellen-Heizgerät mit 1 kW_{el} entwickelt haben, wartet Wärtsila mit dem WFC20 und einer Leistung von 20 kW_{el} auf. Den Heizwert zugrunde legend schafft dieses System 46% elektrischen Wirkungsgrad und einen Gesamtnutzungsgrad von 80% bei einer Wärmeauskopplung bis 90°C. Primäre Brennstoffe sind dabei Erdgas, Methanol und Wasserstoff. Wärtsila übernimmt hauptsächlich die Aufgabe der Integration der Systemkomponenten, während der Partner Topsoe Fuel Cell (TOFC) den Stack als auch den Reformier sowie den katalytischen Brenner liefert. Die weitere Entwicklung sieht vorerst ein Upscale auf 50 kW_{el} vor.

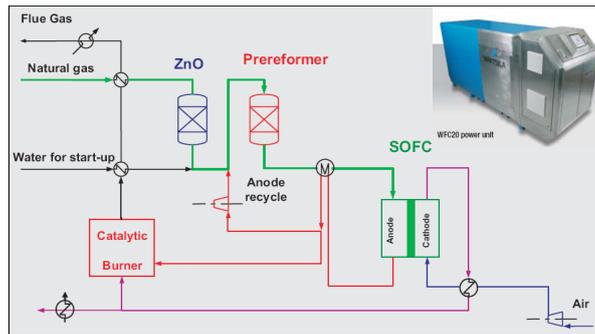


Abb. 3.1.: Prozess Schaltbild des WFC20 von Wärtsilä [22]

Ein weiteres großes Förderprogramm wird im Rahmen des „Nationalen Innovationsprogramms Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie“ in Deutschland von der NOW GmbH unter dem Namen „Callux“ koordiniert. Dabei sollen PEM als auch SOFC in der Sparte Brennstoffzellen-Heizgeräte fürs Eigenheim im Praxistest bis zur Marktreife getestet werden. Das Gesamtvolumen von 86 Millionen Euro soll ca. zur Hälfte von den Konsortialpartnern aufgebracht werden. Beteiligt sind die drei Gerätehersteller Baxi Innotech (PEM), Hexis (SOFC) und Vaillant (PEM, SOFC). Der elektrische Leistungsbereich liegt in diesem Projekt zwischen 1 und 4,6 kW_{el} [23].

3.2 USA

Ein sehr ambitioniertes Programm läuft derzeit in den USA unter dem Namen „Solid State Energy Conversion Alliance (SECA)“. Das 1999 vom Department of Energy (DOE) initiierte Programm, das die Zusammenarbeit zwischen Regierung, Industrie und Forschung forciert, soll die Markttauglichkeit von 3 – 10 kW_{el} SOFC Systemen beschleunigen. Zahlreiche Vertreter der SOFC Branche wie Acumentrics, Cummins Power Generation, Delphi, Fuel Cell Energy, GE und Siemens wirken an diesem Programm mit. Zielgebiet sind dabei primär stationäre sowie militärische Anwendungen, als auch der Sektor Transport. 2007 endete die erste Phase des Programms. Dabei wurden mit einem durchschnittlichen elektrischen Wirkungsgrad von 38,5% und einer Degradationsrate von 2% je 1000 Betriebsstunden die gesteckten Ziele erreicht. Die Systemkosten werden dabei mit 700 \$/kW_{el} kalkuliert. Ein Wert von 400 \$/kW_{el} wird hier bis 2010 angestrebt, um die Konkurrenzfähigkeit gegenüber vergleichbaren Energiesystemen zu ermöglichen. Die Stackkosten sollen sich dann auf 100 \$/kW_{el} belaufen. Zum Vergleich dazu: eine zu Testzwecken verwendete 5x5cm² große planare Einzelzelle kostet derzeit je nach Ausführung zwischen 100 und 300 EUR.

Die Erkenntnisse aus diesen Arbeiten sind als Grundlage für das eigentliche Vorhaben des Programms zu sehen – die Entwicklung von SOFC Systemen mit integrierter Kohlevergasung. Ein erwarteter elektrischer Wirkungsgrad von 55% (bezogen auf den Brennwert) erklärt die Attraktivität eines solchen Systems. Zusätzlicher Nutzen gegenüber reinen Kohlekraftwerken ist die Vereinfachung der CO₂ Sequestration, da das CO₂ am Ausgang der Brennstoffzelle hauptsächlich in einem Gemisch mit Wasserdampf vorliegt.

Der Zeitplan des bis 2025 laufenden Programms sieht eine Demonstration eines 5 MW_{el} Systems mit Wärmerückgewinnung (2015), eines atmosphärischen (2020) sowie eines druck-

aufgeladenen SOFC Systems (2025) mit integrierter Kohlevergasung im Bereich 250-500 MW_{el} vor [1].

Die USA hat sich mit diesem Programm klar zu einer langfristigen Nutzung der Kohle als Brennstoffquelle bekannt. Das System einer „Integrated Gasification Fuel Cell“ (IGFC) sieht eine Vergasung der Kohle mit Wasserdampf und Reinsauerstoff und die anschließende Nutzung des Synthesegases in einer SOFC vor. Im ersten Schritt soll ein atmosphärisch betriebenes SOFC Systems mit integrierter Kohlevergasung entwickelt werden (s. Abb. 3.2.).

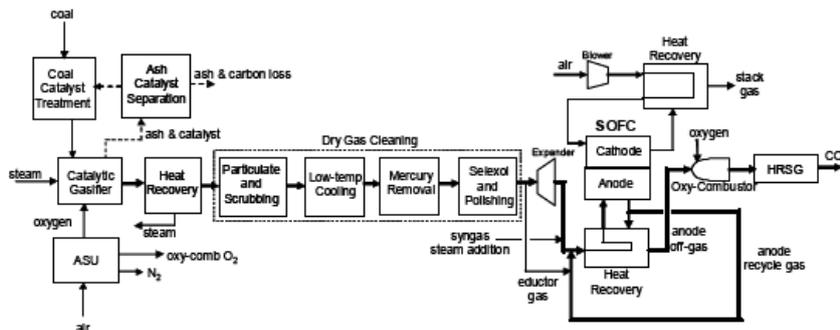


Abb. 3.2.: atmosphärisches SOFC System mit integrierter Vergasung

Bei dieser Variante wird die Kohle katalytisch mit Reinsauerstoff und Wasserdampf zu Synthesegas umgewandelt. Der Sauerstoff wird dabei aus einer kryogenen Luftzerlegungsanlage gewonnen. Die Verunreinigungen im Synthesegase werden dann im Schritt der Kaltgasreinigung entfernt. Da der Vergasungsschritt bei etwa 67bar abläuft, muss vor Eintritt in den Anodenraum der SOFC zuerst expandiert werden. Das Synthesegas besteht aus ca. 29% Methan. Um eine Reformierung des Methans an der Oberfläche der Anode zu ermöglichen bzw. die Bildung von Kohlenstoffablagerungen zu verhindern, erfolgt vor Eintritt in die Anode eine Wasserdampfinjektion. Die Ein- bzw. Ausgangstemperatur der SOFC beträgt 650 bzw. 800°C. Das Anodenabgas wird rezykliert, um die Brennstoffausnutzung von 70% nach einem Durchlauf auf 82% anzuheben. Der restliche unverbrauchte Brennstoff wird mit Reinsauerstoff nachverbrannt. Der entstehende Wasserdampf wird danach aus dem Abgas auskondensiert und das verbleibende CO₂ sequestriert [2].

Das druckaufgeladene SOFC System mit integrierter Vergasung funktioniert gleich wie das atmosphärische. Anstelle der Kaltgasreinigung tritt hier eine Heißgasreinigung. Das Synthesegas wird danach auf ca. 19 bar Anodeneintrittsdruck expandiert. Somit muss auch der gesamte Stack als Druckbehälter ausgeführt werden.

Von beiden Systemen werden Stromdichten von 500 mA/cm² erwartet. Vergleiche der jeweiligen Prozesssimulationen zeigen einen elektrischen Anlagenwirkungsgrad (inklusive CO₂-Kompression) bezogen auf den Brennwert von 49,4% (atmosphärisch) bzw. 56,2% (druckaufgeladen).

3.3 Japan

Als Schnittstelle zwischen Energie- bzw. Wissenschaftsministerium und Industrie, nationale und universitäre Forschungsinstitute agiert in Japan die „New Energy and Industrial Technology Development Organization“ (NEDO). Das Programm teilt sich auf in Grundlagenforschung und Demonstrationsprojekte, um einerseits Schwerpunkte wie Degradation, Lebensdauer und Start-up Zyklen zu untersuchen und andererseits reale Daten aus Langzeiteinsätzen zu gewinnen [3]. Auch hier wird die verwendete Technologie nicht klar vorgegeben, jedoch dürfte ebenfalls neben Erdgas, LPG, DME, Ethanol und Biogas die Verwendung von Kohlegas verstärkt zum Einsatz kommen. Der Fahrplan sieht Ziele hinsichtlich Wirkungsgrad, Lebensdauer und Systemkosten in einem Zeithorizont bis 2020~2030 vor. Dabei wird die Zielsetzung abhängig der Systemgröße definiert und teilt sich in Kleinanwendungen (bis einige kW), mittelgroße Anwendungen (bis einige 100 kW) und Hybrid Anwendungen für dezentrale Energiebereitstellung und industrielle Nutzung auf [4]. Die Zielsetzung bis 2020 für den elektrischen Wirkungsgrad wurde für Kleinanwendungen bei 44% (bezogen auf den Heizwert) bis hin zu 67% für Systeme > 100 kW_{el} festgelegt. Ebenso werden Systemkosten zwischen 900 und 3500 \$/kW_{el} anvisiert. Die Lebensdauer soll für alle drei Leistungsbereiche 90000 h nicht unterschreiten [7].

Mitsubishi Heavy Industries verfolgt in diesem Programm zwei unterschiedliche SOFC Designs. Das unter der Bezeichnung MOLB (Mono-block Layer Built) entwickelte System wurde in einem 10 kW_{el} SOFC System eingesetzt. Dabei weist die Elektrode eine besondere Struktur auf, die eine Maximierung der Oberfläche zum Ziel hat. Darüberhinaus wurde eine 50 kW_{el} Einheit, betrieben mit Stadtgas, entwickelt. Das zweite Design stellt ein 75 kW_{el} Hybrid System dar, das eine SOFC mit einer Mikro Gasturbine koppelt (s. Abb. 3.3). Dabei wird ein tubulares Zelldesign verfolgt. Aufbauend auf diesen Ergebnissen wird ein 200 kW_{el} Combined Cycle angestrebt [12, 13].

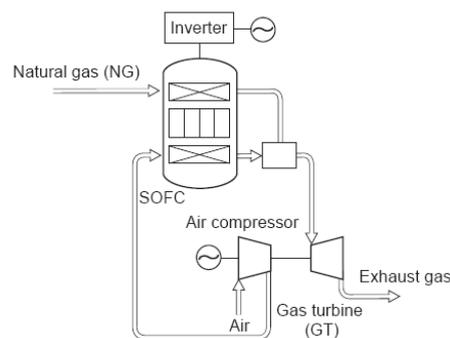


Abb. 3.3.: SOFC + Mikro Gasturbine [13]

3.4 China, Süd Korea

Die aktuellsten SOFC Forschungsergebnisse in China findet man am „Ningbo Institute of Material Technology and Engineering (NIMTE)“, sowie am „Shanghai Institute of Ceramics“. Am NIMTE wurde 2006 die „Fuel Cell and Energy Technology Division for SOFC R&D“ eingerichtet, die sich den Sparten Pulver und Zell-Entwicklung, Zell-Test, Stack- und Systementwicklung widmet. Die Stackkosten werden am NIMTE mit dem eigenem Design auf unter 100 EUR/kW_{el} prognostiziert, Massenfertigung vorausgesetzt. Bei der Systementwicklung

wird derzeit ein katalytischer Wasserdampfreformer für den Einsatz von Methan getestet. Im nächsten Schritt soll auch die Reformierung mit Kohlendioxid erprobt werden. [19, 20].

Süd Korea weist mit seinem „National Fuel Cell Technology Plan“ bereits konkrete Ziele, wie beispielsweise die Entwicklung eines 50 kW_{el} SOFC Systems bis 2010. Historisch lag der Fokus mehr bei den MCFCs und PAFCs. Der momentane Schwerpunkt liegt allerdings auf PEM und SOFC, wobei große Firmen wie Samsung, Hyundai und LG aufgrund ihres Anwendungsbereichs (tragbare Geräte, Fahrzeug) hauptsächlich auf PEM fokussiert sind. Forschung im Bereich SOFC wird dagegen bei den nationalen Forschungsinstituten betrieben [7].

3.5 Australien

Auf dem australischen Kontinent wurde die Entwicklung der SOFC besonders von Ceramic Fuel Cell Ltd. (CFCL) geprägt. Als Spin-Off der „CSIRO Division of Materials Science and Technology“ im Jahre 1992 setzte sich CFCL in einem 5 Jahresplan die Demonstration von 1 und 3-5 kW_{el} SOFC Stacks zum Ziel. Die mittlerweile 5. Generation kommt im kommerziellen Einsatz entweder als reines Stromerzeugungssystem oder als Brennstoffzellen-Heizgerät erfolgreich zum Einsatz [5]. Das unter dem Namen „BlueGen“ laufende System nutzt Erdgas als Brennstoff und besitzt einen internen Wasserdampf-Reformer. Die elektrische Leistung beträgt zwischen 0 und 2 kW_{el} mit einem maximalen elektrischen Wirkungsgrad von 60% (bezogen auf den Heizwert) bei 1,5 kW_{el}. Die thermische Leistung liegt zwischen 0,3 und 1,5 kW. Dabei wird das Abgas auf 30°C abgekühlt. Der erreichbare Gesamtnutzungsgrad liegt dann bei 85%. Mit 340 g/kWh liegt die CO₂ Emission etwa bei der Hälfte von Kohlekraftwerken. Die Einschaltzeit des Geräts liegt aufgrund der Keramikzellen bei 20 Stunden. Zum Einsatz kommen anodengestützte Ni-YSZ Zellen [18].

3.6 Süd Amerika

Vermeht Aktivitäten im Bereich SOFC findet man auch in Brasilien. Diese beschränken sich auf einige wenige national geförderte universitäre Forschungsaktivitäten. Neben zahlreichen Untersuchungen hinsichtlich der Elektrodenmaterialien wird unter anderem auch der Einsatz von Wasserstoff aus der Wasserdampf-Reformierung von Ethanol getestet [6].

Tab. 3-2.: Kostenziele für Stack bzw. Gesamtsystem einer SOFC

Quelle	Wirtschaftsraum	System/Stack	Anwendung	Leistung	Zeithorizont	Kosten
[7]	Japan	System	dezent. Energieerz.	>100 kW	2009-2013	8500 US\$/kW
[7]	Japan	System	dezent. Energieerz.	>100 kW	2025-2030	900 US\$/kW
[7]	Japan	System	Kraft-Wärme-Koppl.	10-100 kW	2013-2020	8500 US\$/kW
[7]	Japan	System	Kraft-Wärme-Koppl.	10-100 kW	2020-2030	1700 US\$/kW
[1]	USA	System	Dezent. Energieerz.	>100 kW	2010	400 US\$/kW
[1]	USA	Stack	Dezent. Energieerz.	>100 kW	2010	100 US\$/kW
[25]	EU	System	Kraft-Wärme-Koppl.	1-10 kW	2009-2012	6000 EUR/kW
[25]	EU	System	Kraft-Wärme-Koppl.	>100 kW	2009-2012	1,5-5 kEUR/kW

Betrachtet man die prognostizierten Kosten der SOFC (s. Tab. 3-2), erkennt man ein sehr weites Spektrum. Ob die Kosten auf die elektrische Leistung inklusive oder exklusive der ausgekoppelten nutzbaren Wärme bezogen wurden, wurde nicht dezidiert angegeben. Auch ist die zugrunde liegende Technologie nur bei den Kostenzielen des SECA Programms (USA) bekannt und bezieht sich auf ein SOFC System mit integrierter Kohlevergasung. Erdgasbasierte SOFC Kraftwerke sind sicherlich mit geringeren Kosten verbunden, da hier die Gasproduktion gänzlich bzw. die Gasaufbereitung teilweise wegfällt.

Studien zur Ermittlung der Systemkosten für SOFC mit integrierter Biomasse-Vergasung wurden beispielsweise für den Leistungsbereich 200 kW_{el} [16, 26] durchgeführt. Die Stackkosten für die SOFC wurden mit ca. 3000 EUR/kW_{el} [16] bzw. ca. 740 EUR/kW_{el} [26] mit einberechnet. Für den Top-Cycle [16] mit 215 kW_{el} errechnen sich die Systemkosten ohne Berücksichtigung einer Kostendegression mit 12000 EUR/kW_{el}. Ein ähnliches System wurde in [26] mit 4260 EUR/kW_{el} kalkuliert. Die Differenz der beiden Untersuchungen ergibt sich hauptsächlich aus der unterschiedlichen monetären Bewertung des Stacks, als auch des Vergasers.

4 Aktuelle SOFC Aktivitäten am Institut für Wärmetechnik

Basierend auf den Ergebnissen des EU-Projekts „BioCellus“ (6. Rahmenprogramm, s. Tab. 2-1) [8] leiten sich die derzeitigen Untersuchungen am Institut für Wärmetechnik, TU Graz, im Bereich der SOFC ab. Im Projekt „Biocellus“ wurden verschiedene Vergasertypen an eine SOFC gekoppelt. Eine entsprechende Gasreinigung zur Entfernung von Verunreinigungen wie Partikel, Chlor, Alkali, Schwefel und Teere sorgt für die notwendige Reinheit des Gases. Damit konnte der Einsatz von Produktgas in einer SOFC erfolgreich demonstriert werden. Darüber hinaus stellte sich eine überraschend hohe Toleranz der SOFC gegenüber Teeren heraus. Eine Nutzung dieser Teere bedeutet nicht nur eine Vereinfachung der Gasreinigung, sondern auch eine effizientere Ausbeute der Brennstoffenergie.

Das Konzept eines SOFC Systems mit integrierter Biomasse Vergasung ist in Abb. 4.1 ersichtlich. Dabei wird ein Teil der in der SOFC anfallenden Wärme direkt für die Vergasung genutzt. Dadurch muss nicht ein Teil der Biomasse für die notwendige Wärme des Vergasungsprozess oxidiert werden, womit sich ein Produktgas mit hohem Energiegehalt im Vergleich mit anderen Vergasungssystemen ergibt. Dieses Produktgas wird nach entsprechender Gasreinigung in die SOFC geleitet und dort umgesetzt. Um Wärmeverluste zu vermeiden, ist es sinnvoll das Produktgas bei möglichst hohen Temperaturen zu reinigen und somit die Produktgasaustrittstemperatur aus dem Vergaser nach Möglichkeit nicht zu senken. Dadurch entfällt die Notwendigkeit einer Vorwärmung des Produktgases vor Eintritt in die SOFC weitestgehend.

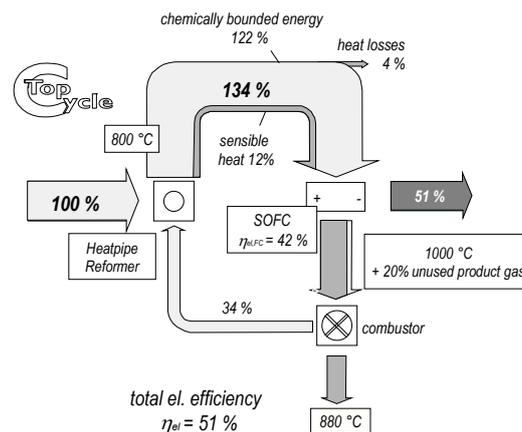


Abb. 4.1.: Top Cycle - SOFC System mit integrierter Biomasse Vergasung [17]

Eine dafür notwendige Heißgasreinigung sieht im allgemeinen Reinigungsstufen für Partikel, Chlor, Alkalien, Schwefel und Teere vor. Diese wird notwendig, da viele dieser Verunreinigungen die Zerstörung der Anode zur Folge haben. Die schädigende Wirkung von Schwefelverbindungen ist bereits umfangreich untersucht worden. Der Grenzwert für H₂S liegt beispielsweise unter 1 ppm [24]. Weniger untersucht wurden bisher der Einfluss von Chlor und Teere, wohingegen Alkali nahezu unerforscht sind. Bei den Teeren hingegen hat sich im Projekt Biocellus sowie in den laufenden Untersuchungen am Institut für Wärmetechnik gezeigt, dass diese bis zu einem gewissen Grad in der SOFC umgesetzt werden können. Die Nickelhaltige Anode funktioniert dabei als Katalysator und ermöglicht die Reformierung bei Vorhandensein ausreichender Mengen an Wasser. Zusätzlich ist der Reformierungsgrad stark temperaturabhängig und zeigt für Naphthalin nahezu vollständigen Umsatz bei 850 - 900°C. Die bei der Reformierung entstehenden Produkte Wasserstoff und Kohlenmonoxid wirken in der SOFC als Brennstoff.

Heißgasreinigungen sehen zur Entfernung der Teere eine eigene Reformereinheit vor [16]. Eine direkte Umsetzung der Teere an der Anode hätte den Vorteil, dass diese Reformereinheit entfallen könnte. Weiters ist die Reformierung eine endotherme Reaktion, wofür die in der SOFC anfallende Wärme direkt genutzt werden kann. Dadurch ergibt sich nicht nur eine wesentliche Vereinfachung der Heißgasreinigung, sondern auch eine Effizienzsteigerung aufgrund eines besseren Wärmehaushalts. Ziel ist es daher, den Einfluss der Teere auf das Betriebsverhalten einer SOFC zu untersuchen, um dadurch die Abhängigkeit

des Teerumsatz hinsichtlich Temperatur, Gaszusammensetzung, Art der Teere sowie Teerbelastung herauszufinden.

Um die Möglichkeit der Umsetzung der im Produktgas enthaltenen Teere zu untersuchen, werden in einem Einzelzellen Prüfstand (s. Abb. 4.2) gezielt Teere in ein synthetisches Holzgas beigemischt und diese auf ihr Reformierverhalten getestet. Die Verwendung von synthetischem Holzgas hat den Vorteil, dass Fremdeinflüsse von zusätzlichen Verunreinigungen (z.B. H_2S) wie sie im realen Holzgas vorkommen ausgeschlossen werden können. In der Gasregelstrecke (1) wird die gewünschte trockene Gaszusammensetzung des synthetischen Holzgases bestehend aus H_2 , CO , CO_2 , CH_4 und N_2 zusammengemischt. Dieses synthetische Holzgas strömt durch einen Wasserbefeuchter (2) der die Einstellung des H_2O Gehalts ermöglicht. Zusätzlich wird über einen separaten Stickstoffstrom ebenfalls auf dem Prinzip der Sättigung Teer (3) aufgegeben und dieser teerbeladene Stickstoffstrom anschließend mit dem Brenngas gemischt. Das fertig konditionierte Synthesegas wird dann zum eigentlichen SOFC Prüfstand (4) geleitet und auf die Einzelzelle aufgegeben. Die Umsätze werden durch die Gasanalyse vor und nach der Zelle mittels Gasanalysator (8) und Flammenionisationsdetektor (7) gemessen. Die Aufzeichnung der Spannung und Stromstärke erfolgt über die Prozesssteuerung (5). Parallel zum Brenngasstrom erfolgt die Kathodenluftversorgung. Die Teerkonditioniereinheit erlaubt die gleichzeitige Aufgabe von mehreren unterschiedlichen Teerspezies. Hier soll speziell das unterschiedliche Reformierverhalten von aliphatischen und aromatischen Teeren geprüft werden. Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus findet sich in [14, 15].

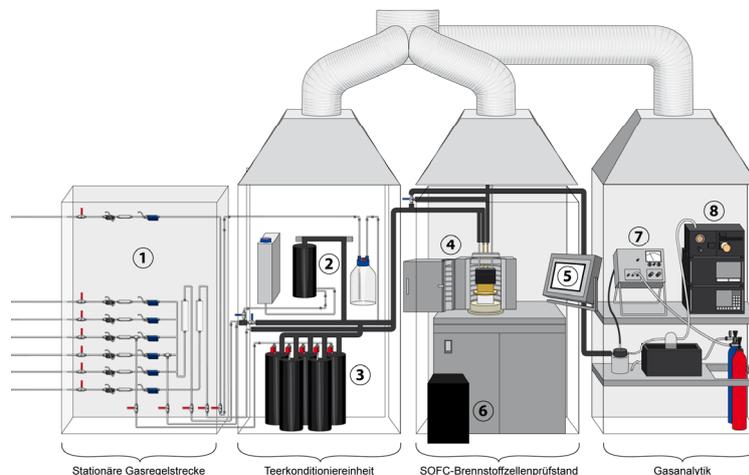


Abb. 4.2.: SOFC Einzelzellen Prüfstand am Institut für Wärmetechnik [15]

Die Erkenntnisse aus dem Betrieb mit synthetischen Gaszusammensetzungen sollen an späterer Stelle durch den Einsatz von realem Produktgas validiert werden. Reales Produktgas enthält eine große Anzahl unterschiedlicher Teere. Eine isolierte Betrachtung eines jeden vorkommenden Teers wäre zu umfangreich, wodurch versucht wird Gruppen von Teeren mit ähnlichem Verhalten zusammenzufassen.

Die ersten Versuchsreihen wurden mit Brenngasgemischen aus H_2 , H_2O und Rest N_2 durchgeführt. Als erster Modelteer wurde Naphthalin verwendet. Die Beladung betrug dabei zwischen 1000 und 3000 ppm. Der Wassergehalt wurde zwischen 0 und 20 %vol variiert. Die Wasserstoffkonzentration wurde mit 21 %vol für alle Versuche festgehalten. Ziel war es, die

Zellspannung im Leerlauf als auch unter Strombelastung bei Betrieb mit und ohne Naphthalin zu vergleichen. Der Gehalt an H_2 , H_2O und N_2 wurde dabei für den Vergleichstest nicht verändert. Abb. 4.3 zeigt für 800 und 900°C die jeweilige Kurve mit und ohne Naphthalin. Es ist eine deutliche Spannungserhöhung bei Betrieb mit Naphthalin gegenüber dem Betrieb ohne Naphthalin zu erkennen. Diese Spannungserhöhung resultiert aus der Wasserdampf-Reformierung des Naphthalins zu H_2 und CO , wodurch sich das Brennstoffangebot an der Anode erhöht. Weiters ist ersichtlich, dass der Betrag der Spannungserhöhung bei 900°C höher ausfällt als bei 800°C. Dies lässt sich auf eine bessere Reformierung des Naphthalins bei höheren Temperaturen zurückführen.

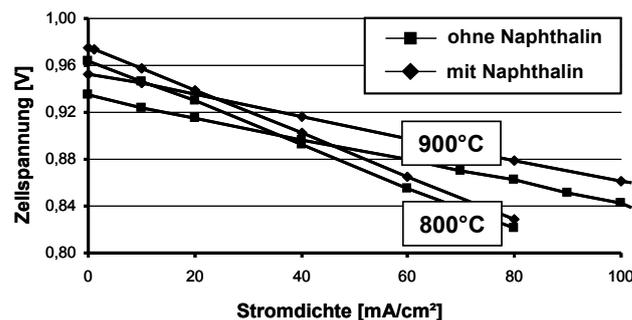


Abb. 4.3.: Vergleich der Zellspannung bei Betrieb mit und ohne Naphthalin bei 800 bzw. 900°C (Brenngas: $H_2/N_2/H_2O/C_{10}H_8$) [15]

Aufgrund dieses Verhaltens ist eine Nutzung der Teere als Brennstoff durch direkte Reformierung an der Anode denkbar. Dabei muss jedoch die Problematik der Kohlenstoffbildung, die bei zu geringen Wasserdampfgehalten auftritt, beachtet werden. Darüber hinaus müssen weitere Teerspezies getestet werden, um auch vergleichbare Aussagen über deren Charakteristik treffen zu können.

5 Zusammenfassung

Fazit vieler Betrachtungen die die Brennstoffzelle im allgemeinen und die SOFC im speziellen betreffen ist, dass diese Technologie zweifelsfrei das Potential für ein ökologisch nachhaltiges Energiesystem mit höchsten Wirkungsgraden aufweist, jedoch derzeit noch nicht ausreichend ausgereift ist, um bei Kosten und Lebensdauer mit konkurrierenden Systemen mithalten zu können. Dies hatte zur Folge, dass der, schon oftmals als „kurz bevorstehend“ prognostizierte, Marktdurchbruch versagt blieb und dadurch einen Rückzug auch vieler Investoren mit sich zog. Als jüngstes negatives Beispiel dafür lässt sich der Ausstieg von Siemens aus der SOFC Forschung anführen.

Auf Seite der Forschung sind die Aktivitäten seit jeher sehr umfangreich. Der Start intensiver SOFC Forschungsarbeiten reicht auf die 60er Jahre zurück. Dabei handelt es sich zumeist jedoch um die Untersuchung von Detailproblemstellungen. Die große Herausforderung ist nach wie vor das Zusammenführen dieser Detailoptimierungen und die Integration aller Komponenten in ein Gesamtsystem. Erst dann werden die Auswirkungen von Degradati-

onsmechanismen, ein Problem das die Vorhersehbarkeit und Testbarkeit der geforderten Lebensdauer von stationären Energiesystemen (40000 – 90000 h) erheblich erschwert, sichtbar. Die hohen Kosten der wegen der hohen Betriebstemperaturen notwendigen Materialien stellen eine weitere Barriere zur Markteinführung dar. Allerdings steht man, was die kostenmäßig positive Auswirkung der Massenfertigung betrifft, hier erst am Anfang der Kostendegression. Darüber hinaus sollen die Kosten durch den Trend hin zu niedrigeren Betriebstemperaturen (600°C) und den dadurch möglich werdenden metallgestützten Elektroden gesenkt werden.

Betrachtet man die internationale Förderlandschaft, beobachtet man einige engagierte Programme wie beispielsweise in den USA (SECA), Europa (JTI bzw. FP7) oder Japan (NEDO). Die USA verfolgt langfristig mit der beabsichtigten Entwicklung eines SOFC Systems mit integrierter Kohlevergasung sicherlich das am deutlichsten fokussierte Ziel der Marktetablierung. Damit haben sie sich aus einer Vielzahl von Systemmöglichkeiten die sich allein aus der Wahl des Brennstoffs ergeben gezielt auf Kohle festgelegt. In Europa gibt man sich bewusst technologieneutral. Die Anwendung steht im Vordergrund. Folglich betrifft die Förderung des europäischen Programms zumindest PEM, MCFC und SOFC in gleichen Maßen. Zwar ist das Programm vorerst bis 2017 budgetiert, jedoch sind die unterschiedlichen Förderprojekte auf 3 Jahre ausgelegt. In wie weit es möglich sein wird, eine konkrete Technologie auch längerfristig zu verfolgen und in weiterer Folge zur Marktreife zu führen, ähnlich wie im Programm der SECA, wird sich zeigen.

Literatur

- [1] Solid State Energy Conversion Alliance, www.netl.doe.gov, 02.12.2009
- [2] Gerdes K., Grol E., Keairns D., Newby R.; *Integrated Gasification Fuel Cell Performance and Cost Assessment*, National Energy Technology Laboratory, DOE/NETL-2009/1361, 03/2009
- [3] Hosoi K., Nakabaru M.; *Status of National Project for SOFC Development in Japan*, Advanced Power Generation & Storage Technology Development Dept., New Energy and Industrial Technology Development Organization
- [4] New Energy and Industrial Technology Development Organization; *2006 Fuel Cell/Hydrogen Technology Development Roadmap*, Artikel in Fuel Cell Today, 11/2006
- [5] Föger K., Love J.G.; *Fifteen years of SOFC development in Australia*, Solid State Ionics 174 (2004) 119-126, Elsevier, 2004
- [6] Hotza D., Diniz da Costa J.C.; *Fuel Cells development and hydrogen production from renewable resources in Brazil*, International Journal of Hydrogen Energy 33 (2008) 4915-4935, Elsevier, 2008
- [7] Adamson K-A.; *Stationary Fuel Cells: An Overview*, Elsevier, 2007
- [8] Biomass Fuel Cell Utility System, www.biocellus.de, 09.12.2009
- [9] Fuel Cell Today, 30.07.2008, www.fuelcelltoday.com, 27.01.2010

- [10] Andújar J. M., Segura F.; *Fuel Cells: History and updating. A walk along two centuries.* Renewable and Sustainable Energy Reviews 13 (2009) 2309-2322, Elsevier, 2009
- [11] Singhal S. C., Kendall K.; *High Temperature Solid Oxide Fuel Cells, Fundamentals, Design and Applications.* Elsevier, 2003
- [12] Crawley, G.; *Opening doors to fuel cell commercialisation.* Fuel Cell Today, Jänner 2007
- [13] Yoshida Y., Hisatome N., Takenobu K.; *Development of SOFC for Products.* Mitsubishi Heavy Industries Ltd., Technical Review Vol.40 No.4, August 2003
- [14] Wahl S.; *Auslegung einer Gasregelstrecke zur Konditionierung synthetischer Holzgase,* Diplomarbeit. TU Graz, Österreich, 2009
- [15] Lerch W.; *Betriebsverhalten einer SOFC mit teerbeladenen Brenngasen.* Diplomarbeit, TU Graz, Österreich, 2009
- [16] Schweiger A.; *Heißgasreinigung.* Dissertation, TU Graz, Österreich, 2008
- [17] Schweiger A., Hohenwarter U., Karl J.; *Verstromung von Biomasse – Produktgasen in Solid Oxide Fuel Cells.* 9tes Symposium Energieinnovation, Graz, Österreich, 2006
- [18] Ceramic Fuel Cells Ltd.; *Produkt Datenblatt BlueGen,* www.cfcl.com.au, 21.01.2010
- [19] Wang W. G., Guan W., Li H., Wang Z., Wang J. X., Wu Y., Zhou S., Zuo G.; *Solid Oxide Fuel Cell Development at NIMTE.* ECS Transactions, 25(2) 85-90 (2009)
- [20] Wang W. G., Guan W. B., Li H. M., Xue Y. J., Wang J. X., Wu Y. N., Wang J., Liu K.; *SOFC Research and Development at NIMTE.* Fuel Cell Forum, Luzern, 2008
- [21] *Fuel Cell and Hydrogen Joint Undertaking; Multi – Annual Implementation Plan 2008 – 2013.* Document FCH JU 2009.001, Version Mai 2009
- [22] Wärtsilä; *Bröschüre: Wärtsilä solid oxide fuel cell (SOFC) units,* www.wartsila.com, 22.01.2010
- [23] Callux; *Praxistest Brennstoffzelle fürs Eigenheim – Hintergründe und Aktivitäten,* April 2009, www.callux.net
- [24] EG&G Technical Services Inc. (2004); *Fuel Cell Handbook.* 7. Auflage
- [25] European Hydrogen & Fuel Cell Technology Platform; *Implementation Plan – Status 2006.* März 2007
- [26] Omosun A. O., Bauen A., Brandon N. P., Adjimin C. S., Hart D.; *Modelling system efficiencies and costs of two biomass-fuelled SOFC systems.* Journal of Power Sources 131 (2004) 96-106