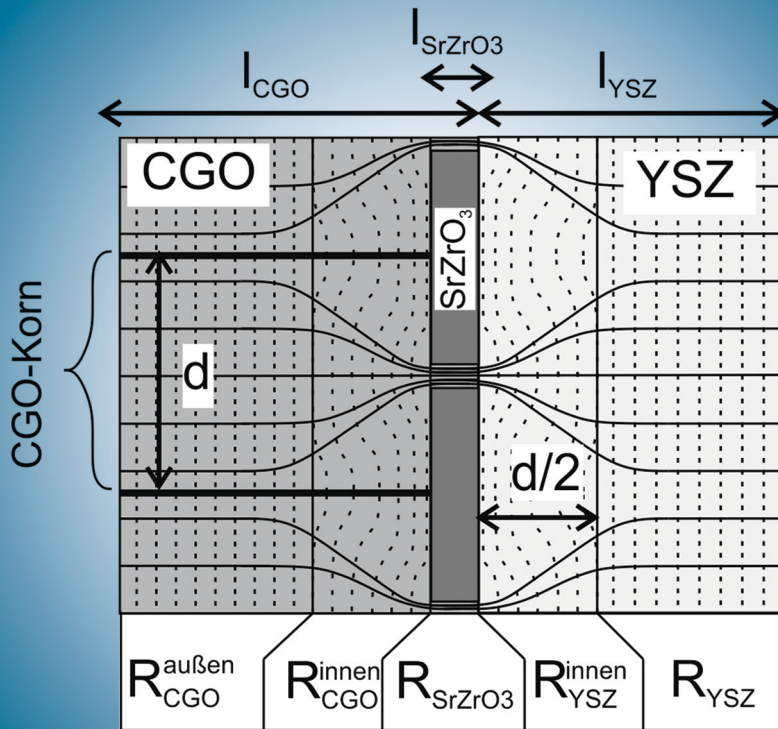


Strontium-Diffusion in Cer-Gadolinium-Oxid als Degradationsmechanismus der Festoxid-Brennstoffzelle

Tabea Mandt



Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

Strontium-Diffusion in Cer-Gadolinium-Oxid als Degradationsmechanismus der Festoxid- Brennstoffzelle

Tabea Mandt

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 264

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-058-6

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Motivation	2
1.2	Zielsetzung	2
1.3	Gliederung der Arbeit	3
2	Die Festoxid-Brennstoffzelle	5
2.1	Funktionsweise der Brennstoffzelle	5
2.2	Strom-/Spannungskennlinie der Brennstoffzelle	7
2.3	Aufbau der Festoxid-Brennstoffzelle	7
2.3.1	Einzelzelle	7
2.3.2	Stack und System	10
2.4	Degradationsmechanismen der Festoxid-Brennstoffzelle	10
2.4.1	Degradation im Stack	11
2.4.2	Intrinsische Degradation der Zelle	11
2.5	Strategien zur Verringerung der SrZrO_3 -Bildung	14
2.5.1	Anpassung der Betriebsweise/Präparation der CGO-Schicht	14
2.5.2	Alternative Kathodenwerkstoffe	14
3	Stand der Technik	17
3.1	Leistung und Langzeitverhalten der Forschungszentrum Jülich Festoxid-Brennstoffzelle	17
3.2	SOFC-Charakterisierung mittels Impedanzspektroskopie	19
3.3	Strontiumdiffusion in CGO	20
4	Grundlagen	23
4.1	Diffusion in Festkörpern	23
4.1.1	Klassifizierung der Diffusionsmechanismen	24
4.1.2	Diffusionskinetik im Volumen und entlang innerer Grenzflächen	25
4.1.3	Analyse von Diffusionsprofilen	26
4.2	Korngrenzbreiten von Keramiken	29
4.3	Widerstandserhöhung durch eine blockierende SrZrO_3 - Zwischenschicht	31
4.3.1	Geometrisches Modell	31
4.3.2	Zeitskala	37
4.4	Elektrochemische Impedanzspektroskopie	38
4.4.1	Hintergrund und Vorgehensweise	38
4.4.2	Ersatzschaltbild	38
4.4.3	Darstellung	39
4.4.4	Messdatenanalyse	40
4.5	Herstellungsmethoden dünner kristalliner Schichten	41
4.5.1	Magnetronputtern	41

4.5.2	Elektronenstrahlverdampfen	41
4.5.3	Molekularstrahlepitaxie	42
4.6	Materialanalysemethoden	42
4.6.1	Rasterelektronenmikroskopie	42
4.6.2	Transmissionselektronenmikroskopie	43
4.6.3	Röntgendiffraktometrie	44
4.6.4	Sekundärionenmassenspektrometrie	45
5	Alterung der Festoxid-Brennstoffzelle	47
5.1	Charakterisierte Zellen	47
5.2	Experimentelle Durchführung	48
5.2.1	Messaufbau	48
5.2.2	Elektrochemische Versuche	49
5.2.3	Analyse der Messdaten	50
5.3	Charakterisierung der Anfangsphase	51
5.3.1	Morphologie	51
5.3.2	Elektrochemie: Gesputterte CGO-Schicht	52
5.3.3	Elektrochemie: Elektronenstrahlverdampfte CGO-Schicht	53
5.3.4	Elektrochemie: Siebgedruckte CGO-Schicht	55
5.4	Ersatzschaltbild	58
5.5	Langzeitverhalten	59
5.5.1	Gesputterte CGO-Schicht	60
5.5.2	Elektronenstrahlverdampfte CGO-Schicht	61
5.5.3	Siebgedruckte CGO-Schicht	64
5.6	Diskussion	66
5.7	Zusammenfassung	74
6	Sr-Diffusion in CGO-Schichten	77
6.1	Probenherstellung	77
6.2	Experimentelle Durchführung	78
6.3	Charakterisierung der kristallinen Struktur der CGO-Schicht	79
6.3.1	Raster- und Transmissionselektronenmikroskopie	79
6.3.2	Röntgendiffraktometrie	85
6.4	Sr-Korngrenzdiffusion in CGO	87
6.4.1	Diffusionsprofile	87
6.4.2	Anpassung der Diffusionsprofile	88
6.4.3	Effektiver Diffusionskoeffizient	89
6.4.4	Korngrenzdiffusionskoeffizient	90
6.5	Diskussion	93
6.6	Zusammenfassung	96
7	Widerstandzunahme durch die Bildung von SrZrO₃ auf dem Elektrolyten	97
7.1	Widerstandzunahme mit Zunahme der Querschnittsbedeckung	97
7.1.1	Formalismus	98
7.1.2	Widerstandzunahme der Jülicher SOFC	100
7.1.3	Abhängigkeit von den geometrischen Parametern	102
7.2	Zeitlicher Verlauf der Widerstandzunahme	104
7.2.1	Formalismus	104
7.2.2	Degradationsverlauf	105
7.3	Diskussion	107

7.4 Zusammenfassung	113
8 Diskussion	115
9 Zusammenfassung	121
Anhang	125
A Herleitung Widerstand eines Punktkontakts	125
B Referenzmessung zur Impedanzspektroskopie	127
C Datenüberwachung SOFC-Betrieb	128
D Kennwerte der SOFC-Degradation	131
E CGO-Korngröße und CGO-Flächenanteil	133
F Kalibration absolute Sr-Konzentration	135
G Sr-Diffusionsprofile in CGO	136
Abbildungsverzeichnis	137
Tabellenverzeichnis	143
Abkürzungsverzeichnis	145
Literaturverzeichnis	147

**Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 264
ISBN 978-3-95806-058-6**

