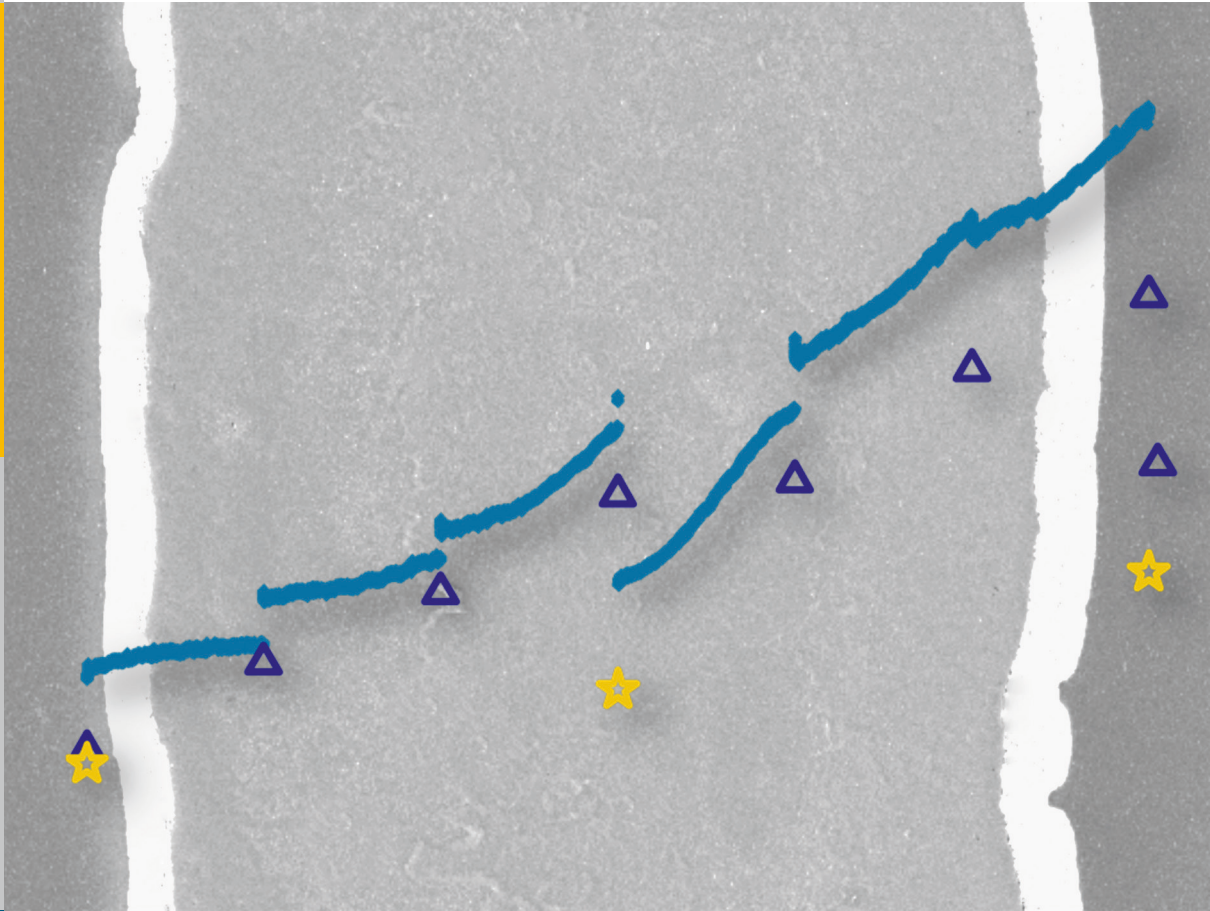


Langzeitstabilität der Polymerelektrolyt- Wasserelektrolyse bei reduziertem Iridiumgehalt

Christoph Georg Rakousky



Energie & Umwelt/
Energy & Environment
Band/ Volume 322
ISBN 978-3-95806-147-7

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

Langzeitstabilität der Polymerelektrolyt- Wasserelektrolyse bei reduziertem Iridiumgehalt

Christoph Georg Rakousky

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

Band / Volume 322

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-147-7

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Ziel dieser Arbeit	2
2	Literatur	5
2.1	Die PEM-Elektrolyse	5
2.2	Die Sauerstoffentwicklungsreaktion.....	8
2.2.1	Elektrochemische Grundlagen von Durchtrittsreaktionen	8
2.2.2	Ablauf der Sauerstoffentwicklungsreaktion (OER).....	10
2.2.3	Einfluss der OER auf die Elektrodenoberfläche.....	10
2.3	Aktivkomponenten für die Sauerstoffentwicklung im sauren Medium	11
2.4	Iridiumbasierte Katalysatorsysteme für die Sauerstoffentwicklungsreaktion	12
2.4.1	Pseudokapazität von Iridiumoberflächen.....	12
2.4.2	Potentialabhängigkeit der Struktur von Iridiumoberflächen.....	13
2.4.3	Ablauf der Sauerstoffentwicklung an Iridiumelektroden	16
2.4.4	Katalysatoren mit reduziertem Iridiumgehalt.....	17
2.5	Degradation in der PEM-Elektrolyse.....	22
2.5.1	Stabilität kommerzieller PEM-Elektrolyse Stacks.....	22
2.5.2	Stabilität von Bipolarplatten und Stromkollektoren.....	25
2.5.3	Stabilität von Katalysatoren	26
2.5.4	Stabilität von Ionomer und Membran.....	30
2.5.5	Reversible und irreversible Alterung.....	33
2.5.6	Zusammenfassung der bekannten Degradationsphänomene	33
3	Messmethoden	35
3.1	Charakterisierung iridiumbasierter Katalysatoren	35
3.1.1	Bestimmung der Oberfläche.....	35
3.1.2	Bestimmung der Aktivität.....	36
3.2	Bestimmung von Elektrodenpotentialen im Zellbetrieb	38
3.2.1	Die dynamische Wasserstoffelektrode (DHE).....	38
3.2.2	Nafionbrücke mit Wasserstoff-Referenzelektrode.....	41
3.3	Elektrochemische Impedanzspektroskopie.....	42
4	Experimentelle Durchführung	45

4.1	Charakterisierung von Katalysatoren mit der RDE	45
4.1.1	Herstellen von Katalysatorschichten	45
4.1.2	Messung im drei-Elektroden-Aufbau	46
4.2	Aufbau und Betrieb von Einzelzellen	47
4.2.1	Zellkomponenten und Zellaufbau	47
4.2.2	Herstellung der CCM.....	49
4.2.3	Beschichten von Sinterkörpern.....	49
4.2.4	Messung der Elektrodenpotentiale im Zellbetrieb.....	51
4.2.5	Aufbau eines Mehrfachteststandes für Einzelzellerterung.....	53
4.2.6	Polarisationskurven.....	54
4.2.7	Impedanzspektroskopie an Einzelzellen.....	54
4.3	Durchführung allgemeiner Messmethoden.....	56
4.3.1	Röntgendiffraktometrie	56
4.3.2	Elektronenmikroskopie	57
4.3.3	Messung des Kontaktwiderstandes.....	57
4.4	Fehlerbetrachtung.....	58
5	Reduktion von Iridium im Katalysatorsystem	59
5.1	Materialübersichtstabelle.....	59
5.2	Optimierung der Methodik zur Katalysatorevaluation	60
5.2.1	Morphologie und Entstehung der Katalysatorschicht während des Trocknungsprozesses	61
5.2.2	Einfluss von Ruß als Dispersionsadditiv auf die Performance des Benchmark-Katalysators	65
5.2.3	Einfluss der RDE-Beladung auf die ermittelte Massenaktivität und auf die äußere Ladung.....	70
5.3	Identifikation eines Benchmark-Katalysators	73
5.3.1	Physikalische und strukturelle Charakterisierung	73
5.3.2	Elektrochemische Charakterisierung	79
5.3.3	Definition des Benchmarkkatalysators.....	82
5.4	Katalysatormaterialien mit reduziertem Iridiumgehalt	82
5.4.1	Physikalische und strukturelle Charakterisierung	82
5.4.2	Elektrochemische Charakterisierung	86
5.4.3	Identifikation des aktivsten neuen Katalysatorsystems.....	91

5.5	Einsatz von Kat. A als Anodenkatalysator in der CCM	93
5.6	Zwischendiskussion	95
6	Charakterisierung des Langzeitverhaltens von Elektrolysezellen.....	97
6.1	Einfluss der Betriebsbedingungen auf die Alterung	97
6.2	Lokalisation der Alterungseffekte	100
6.2.1	Veränderung des ohmschen Widerstands.....	105
6.2.2	Veränderung des Durchtrittswiderstands.....	110
6.2.3	Analyse der Polarisationskurven	111
6.2.4	Gründe für eine veränderte Austauschstromdichte.....	117
6.3	Zwischendiskussion	122
7	Charakterisierung von CCMs mit reduzierter Anodenbeladung	129
7.1	Anoden mit Standardbeladung	129
7.1.1	Lokalisation der Alterungsphänomene	131
7.1.2	Diskussion der Zellspannungsveränderung.....	144
7.1.3	Vergleich von stationärem und dynamischem Betrieb	146
7.1.4	Zwischendiskussion	147
7.2	Anoden mit reduzierter Katalysatorbeladung.....	148
7.2.1	Zelleistung unter reduzierter Anodenbeladung	149
7.2.2	Langzeitstabilität unter reduzierter Anodenbeladung	150
7.3	Zwischendiskussion	161
8	Diskussion und Zusammenfassung	165
8.1	Diskussion der Ergebnisse	165
8.2	Zusammenfassung.....	168
9	Literaturverzeichnis	171
10	Abbildungsverzeichnis	181
11	Tabellenverzeichnis	186
12	Nomenklatur	187
13	Anhang.....	189
13.1	Anhang zu Kapitel 2	189
13.2	Anhang zu Kapitel 4	190
13.3	Anhang zu Kapitel 5	193

13.4	Anhang zu Kapitel 6	195
13.5	Anhang zu Kapitel 7	195

**Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 322
ISBN 978-3-95806-147-7**

