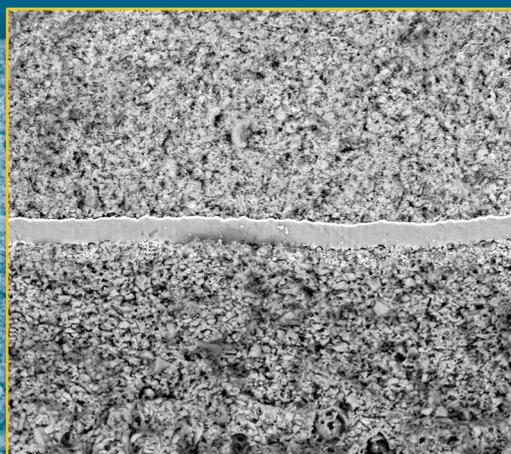


# Entwicklung und Charakterisierung von Nickel / Gadolinium-Ceroxid-basierten Anoden für die metallgestützte Festoxid-Brennstoffzelle

Veronika Anna Rojek-Wöckner



Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 343  
ISBN 978-3-95806-182-8

Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Werkstoffsynthese und Herstellungsverfahren (IEK-1)

# Entwicklung und Charakterisierung von Nickel / Gadolinium-Ceroxid-basierten Anoden für die metallgestützte Festoxid-Brennstoffzelle

Veronika Anna Rojek-Wöckner

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

Band / Volume 343

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-182-8

# Inhalt

|   |            |
|---|------------|
| <b>KURZZUSAMMENFASSUNG</b>  | <b>V</b>   |
| <b>ABSTRACT</b>   | <b>VII</b> |
| <b>BEREITS VERÖFFENTLICHTE TEILE DIESER ARBEIT</b>  | <b>IX</b>  |
| <b>ABKÜRZUNGEN</b>  | <b>XI</b>  |
| <b>INHALT</b>   | <b>XII</b> |
| <b>1 EINLEITUNG</b>   | <b>1</b>   |
| <b>2 BRENNSTOFFZELLEN – STAND DER TECHNIK</b>   | <b>4</b>   |
| <b>2.1 Grundlagen einer Brennstoffzelle</b> .....   | <b>4</b>   |
| <b>2.2 Arten von Brennstoffzellen</b> .....   | <b>6</b>   |
| <b>2.3 Die Festoxid-Brennstoffzelle (Solid Oxide Fuel Cell SOFC)</b> .....                  | <b>7</b>   |
| 2.3.1 Das Funktionsprinzip einer SOFC .....   | 7          |
| 2.3.2 Bauformen der SOFC .....  | 8          |
| 2.3.3 Werkstoffe für die SOFC .....   | 11         |
| <b>2.4 Spezifische Eigenschaften des Werkstoffs GDC</b> .....                               | <b>15</b>  |
| 2.4.1 Elektronische und ionische Mischleitung: Defektchemie.....                            | 15         |
| 2.4.2 Einfluss des $p(\text{O}_2)$ auf die elektrochemischen Eigenschaften.....             | 16         |
| 2.4.3 Einfluss der Dotierung auf elektrochemische Eigenschaften .....                       | 18         |
| 2.4.4 Einfluss der Defektchemie auf das Sinterverhalten .....                               | 20         |
| <b>2.5 Elektrochemische Charakterisierung von Einzelzellen und Funktionsschichten</b> ..... | <b>23</b>  |
| 2.5.1 Theoretische Zellspannung .....   | 23         |
| 2.5.2 Verlustmechanismen der Brennstoffzelle .....  | 24         |
| 2.5.3 Kennlinien-Modell.....  | 26         |
| 2.5.4 Impedanzspektroskopie.....  | 27         |
| <b>2.6 Degradationsmechanismen einer SOFC</b> .....   | <b>33</b>  |
| 2.6.1 Nickelagglomeration in der Anode.....   | 33         |
| 2.6.2 Reoxidation der Anode .....   | 34         |
| 2.6.3 Schwefel-Vergiftung der Anode .....   | 35         |
| 2.6.4 Verkokung der Anode.....  | 36         |
| 2.6.5 Alterung des Elektrolyten .....   | 38         |
| 2.6.6 Cr-Vergiftung der Kathode.....  | 38         |
| 2.6.7 Korrosion des Metallsubstrats.....  | 38         |
| <b>2.7 Integration der MSC in einen Brennstoffzellen-Generator</b> .....                    | <b>39</b>  |
| <b>3 VERFAHREN UND METHODEN</b>   | <b>42</b>  |
| <b>3.1 Verwendete Materialien</b> .....   | <b>42</b>  |
| 3.1.1 Ausgangspulver.....   | 42         |
| 3.1.2 Das metallische Substrat .....  | 42         |
| 3.1.3 Organik .....   | 43         |
| 3.1.4 Elektrolytfolien .....  | 43         |
| <b>3.2 Herstellung der Proben und MSC-Zellen</b> .....                                      | <b>43</b>  |
| 3.2.1 Probenherstellung durch Pressen .....   | 43         |
| 3.2.2 Probenherstellung durch Siebdruck .....   | 44         |

|            |   |           |
|------------|---|-----------|
| 3.2.3      | Sinterparameter.....  | 45        |
| 3.2.4      | Herstellung von symmetrischen Zellen .....                              | 46        |
| 3.2.5      | Herstellung von MSC .....   | 47        |
| <b>3.3</b> | <b>Analytik.....</b>  | <b>49</b> |
| 3.3.1      | Röntgendiffraktometrie.....   | 49        |
| 3.3.2      | Partikelgrößenanalyse (PSD).....  | 49        |
| 3.3.3      | Spezifische Oberfläche (BET).....                                       | 49        |
| 3.3.4      | Rasterelektronenmikroskopie .....                                       | 50        |
| 3.3.5      | Sinterdilatometrie.....   | 50        |
| 3.3.6      | Thermogravimetrie .....   | 51        |
| 3.3.7      | Rheologie.....  | 51        |
| 3.3.8      | Bestimmung der Leckrate .....   | 52        |
| 3.3.9      | Oberflächencharakterisierung durch ein optisches Tastverfahren.....     | 52        |
| 3.3.10     | Gründichtebestimmung .....  | 53        |
| <b>3.4</b> | <b>Elektrochemie.....</b>   | <b>53</b> |
| 3.4.1      | Symmetrisches Modellsystem .....  | 53        |
| 3.4.2      | Einzelzellmessungen.....  | 54        |
| 3.4.3      | Messablauf Einzelzellmessungen .....                                    | 55        |
| <b>4</b>   | <b>ERGEBNISSE UND DISKUSSION .....</b>                                  | <b>57</b> |
| <b>4.1</b> | <b>Sinterverhalten von Gadolinium-dotiertem Ceroxid .....</b>           | <b>57</b> |
| 4.1.1      | Korngrößenverteilung und spezifische Oberfläche .....                   | 57        |
| 4.1.2      | Sinterstudien an Bulkmaterial.....                                      | 58        |
| 4.1.3      | Dilatometrie .....  | 63        |
| 4.1.4      | Thermische Analyse mit Massenspektrometrie .....                        | 65        |
| 4.1.5      | Phasenstabilität .....  | 66        |
| <b>4.2</b> | <b>Processing und Sinterverhalten von Ni/GDC Cermets .....</b>          | <b>67</b> |
| 4.2.1      | Pastenentwicklung .....   | 67        |
| 4.2.2      | Sinterversuche von Cermetschichten auf Metallsubstrat.....              | 68        |
| 4.2.3      | Einfluss der Gründichte auf die Anodenmikrostruktur.....                | 71        |
| 4.2.4      | Freie Sinterung.....  | 72        |
| 4.2.5      | Phasenstabilität des Anodenmaterials.....                               | 72        |
| <b>4.3</b> | <b>Integration der Ni/GDC-Keramik in die Plansee MSC.....</b>           | <b>73</b> |
| 4.3.1      | Substratkrümmung und Oberflächenrauigkeit.....                          | 73        |
| 4.3.2      | Leckratenbestimmung und Dichtigkeit des Elektrolyten.....               | 74        |
| <b>4.4</b> | <b>Elektrochemische Charakterisierung von symmetrischen Zellen.....</b> | <b>74</b> |
| 4.4.1      | Systematische Optimierung des Messaufbaus und Fehlerbetrachtung.....    | 75        |
| 4.4.2      | Reproduzierbarkeit der Messergebnisse und Fehlerbetrachtung .....       | 77        |
| 4.4.3      | Temperaturabhängigkeit .....  | 78        |
| 4.4.4      | Stabilität der Widerstände innerhalb der ersten 150 h.....              | 81        |
| 4.4.5      | Variation der Brenngaskonzentration .....                               | 83        |
| 4.4.6      | Strukturierung der Anodenoberfläche.....                                | 84        |
| 4.4.7      | Deaktivierung durch H <sub>2</sub> S im Brenngas.....                   | 85        |
| 4.4.8      | Nutztiefe der Anodenschicht.....  | 90        |
| 4.4.9      | Gegenüberstellung Ni/GDC-Anoden und Ni/YSZ-Anoden .....                 | 92        |
| <b>4.5</b> | <b>Elektrochemische Charakterisierung von Einzelzellen.....</b>         | <b>93</b> |
| 4.5.1      | Einzelzelltests von Plansee MSCs mit Ni/YSZ-Anode .....                 | 94        |
| 4.5.2      | Einzelzelltest von MSCs mit <i>Best Choice</i> Ni/GDC-Anode.....        | 100       |

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| 4.5.3    | Vergleich von MSCs mit Standard Ni/YSZ-Anode und <i>Best Choice</i> Ni/GDC-Anode..... | 110        |
| 4.5.4    | Benchmark: Vergleich zur Literatur .....  | 112        |
| <b>5</b> | <b>ZUSAMMENFASSUNG</b>  | <b>114</b> |
| <b>6</b> | <b>AUSBlick UND WEITERE ENTWICKLUNGSOPTIONEN</b>                                      | <b>119</b> |
| <b>7</b> | <b>LITERATURVERZEICHNIS</b>   | <b>121</b> |
|          | <b>DANKSAGUNG</b>   | <b>133</b> |

**Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 343  
ISBN 978-3-95806-182-8**

