



TECHNISCHE UNIVERSITÄT WIEN

DIPLOMARBEIT

**Modellierung einer Brennstoffzelle mit experimenteller Validierung zur
Bewertung der Energieeffizienz mittels Längsdynamiksimulation**

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades eines
Diplom-Ingenieurs unter der Leitung von

Univ. Prof. Dr. techn. Bernhard Geringer

und

Assoc. Prof. Dr. techn. Peter Hofmann

E315

Institut für Fahrzeugantriebe und Automobiltechnik

eingereicht an der Technischen Universität Wien

Fakultät für Maschinenwesen und Betriebswissenschaften

von

Matthias Koch

00727058

Tresdorferstraße 16, 2100 Leobendorf



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
WIEN
Vienna University of Technology



Aufgabenstellung für die Diplomarbeit

Herrn Matthias Koch, Matrikelnummer: 00727058, wird folgende Aufgabe gestellt:

„Modellierung einer Brennstoffzelle mit experimenteller Validierung zur Bewertung der Energieeffizienz mittels Längsdynamiksimulation“

Nach der Einarbeitung in ein bestehendes Gesamtfahrzeugmodell mit Brennstoffzellenantrieb, soll das bestehende statische Modell der Brennstoffzelle in der Simulationssoftware GT-Suite durch ein neues Modell eines Brennstoffzellensystems ersetzt werden, wobei die Einflüsse des Luftdrucks, des Luftmassenstroms und der Temperatur besonders zu berücksichtigen sind. Danach kann die Energieeffizienz und der Kraftstoffverbrauch aufgrund von Parametervariationen und Betriebsstrategien anhand von Längsdynamiksimulation im Fahrzyklus WLTC quantifiziert und bewertet werden.

Schwerpunkte:

- Einarbeiten in das Simulationsprogramm GT-Suite und in das Gesamtfahrzeugmodell
- Erstellen eines neuen Modells eines Brennstoffzellensystems unter Berücksichtigung folgender Einflüsse: Systemdruck, Temperatur, Massenströme
- Bewertung der Energieeffizienz des Fahrzeugs mittels Parametervariationen und veränderten Strategien anhand von Längsdynamiksimulation: Maximalleistung Brennstoffzelle, Dimension und Masse Batterie, Betriebsstrategie dynamisch

Die Ergebnisse der Arbeit sind vertraulich zu behandeln und dürfen nur mit schriftlicher Genehmigung des Institutsvorstandes weitergegeben bzw. veröffentlicht werden.

Einverstanden:

Matthias Koch

Betreuer am Institut:

Assoc. Prof. Dr. Peter Hofmann

Prof. Dr. Bernhard Geringer
Institutsvorstand

Eidesstattliche Erklärung

Ich habe zur Kenntnis genommen, dass ich zur Drucklegung meiner Arbeit unter der Bezeichnung

„Modellierung einer Brennstoffzelle mit experimenteller Validierung zur Bewertung der Energieeffizienz mittels Längsdynamiksimulation“

nur mit Bewilligung der Prüfungskommission berechtigt bin. Ich erkläre weiters an Eides statt, dass ich meine Diplomarbeit nach den anerkannten Grundsätzen für wissenschaftliche Arbeiten selbständig ausgeführt habe und alle verwendeten Hilfsmittel, insbesondere die zugrunde gelegte Literatur genannt habe.

Weiters erkläre ich, dass ich dieses Diplomarbeitsthema bisher weder im In- noch im Ausland (einer Beurteilerin/ einem Beurteiler zur Begutachtung) in irgendeiner Form als Prüfungsarbeit vorgelegt habe und dass diese Arbeit mit der vom Begutachter beurteilten Arbeit übereinstimmt.

Wien, am

_____ Name

Sperrvermerk:

Ich weise darauf hin, dass die Diplomarbeit vertrauliche Informationen und unternehmensinterne Daten beinhaltet. Daher ist eine Veröffentlichung oder Weitergabe von Inhalten an Dritte ohne die vorherige Einverständniserklärung des Instituts für Fahrzeugantriebe und Automobiltechnik nicht gestattet.

Kurzfassung

Der Bedarf an lokal emissionsfreier Mobilität ist heute höher denn je. Neben den batterieelektrischen Fahrzeugen ist das Brennstoffzellenfahrzeug eine Möglichkeit, diese zu realisieren. Insbesondere die Niedertemperaturbrennstoffzelle mit Polymerelektrolytmembran ist aufgrund der Betriebstemperaturen, dem festen Elektrolyten, der ungiftigen Reaktanten und dem Reaktionsprodukt Wasser für den Einsatz im Fahrzeug geeignet.

In dieser Arbeit wurde eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle modelliert. Dazu wurden die bekannten Grundgleichungen um die Einflüsse des Luftdrucks, des Massenstroms und der Temperatur erweitert bzw. modifiziert. Durch eine anschließende Ausgleichsrechnung ließen sich mit dem Modell die Messdaten des Brennstoffzellenprüfstands der TU Wien mit zufriedenstellender Genauigkeit abbilden. Die Modellgleichungen wurden dann in ein in der Simulationssoftware *GT-Suite* neu aufgebautes Modell eines Brennstoffzellensystems implementiert. Das System besteht dabei aus der Zellspannungsberechnung abzüglich der Verluste, einem Luftversorgungssystem mit Kompressor, welcher den Luftdruck und den Massenstrom liefert und einer thermische Masse der Brennstoffzelle, über die die Temperatur geregelt wird. Als Teil eines bestehenden Gesamtfahrzeugmodells konnten somit Untersuchungen, u.a. in Bezug auf die maximale Brennstoffzellenleistung und den Wasserstoffverbrauch bzw. die Fahrzeugreichweite, am Brennstoffzellensystem durchgeführt werden.

Die maximale Brennstoffzellenleistung konnte für geringen sowie für hohen Luftdruck (zwei mögliche Stellungen der Drosselklappe) ermittelt werden. Die berechnete Leistung war, entsprechend der Druckabhängigkeit des Brennstoffzellenmodells, für hohen Luftdruck ebenfalls höher. Außerdem wurde die Temperaturabhängigkeit des Modells für die Bewertung eines elektrischen Heizsystems für den Kaltstart genutzt. Eine verbesserte Energiebilanz bei Aktivierung der elektrischen Heizung aufgrund des frühzeitigeren höheren Wirkungsgrades der Brennstoffzelle konnte nicht festgestellt werden. Der Einfluss einer geänderten Batteriekapazität auf die Brennstoffzellenleistung wurde ebenfalls untersucht. Der Wasserstoffverbrauch sank mit sinkender Batteriekapazität aufgrund von kürzeren Ladezeiten, da eine Batterie mit kleinerer Kapazität schneller auf höhere Ladezustände gebracht werden kann. Dadurch waren auch die Phasen mit hoher Brennstoffzellenleistung, und damit hohem Wasserstoffverbrauch, kürzer. Eine kleinere Batterie ist allerdings stärker belastet und damit in ihrer Haltbarkeit eingeschränkter.

Abstract

The demand for locally emission-free mobility is today higher than ever. Beside the battery electric vehicles, the fuel cell vehicle is a way to realize such a mobility. In particular, the low-temperature fuel cell with polymer electrolyte membrane is suitable for use in the vehicle due to the operating temperatures, the solid electrolyte, the non-toxic reactants and the reaction product water.

In this work, a polymer electrolyte membrane fuel cell has been modeled. For this purpose, the known basic equations were extended or modified to account for the effects of air pressure, mass flow and temperature. By a curve fitting, the model of the fuel cell test bench of the Vienna University of Technology could be reproduced with satisfactory accuracy. The model equations were then implemented in a model of a fuel cell system newly developed within the simulation software *GT-Suite* framework. The system consists of the cell voltage calculation minus the voltage losses, a compressor air supply system that provides the air pressure and the mass flow and a thermal mass of the fuel cell for the temperature control. As part of an existing vehicle model, investigations and simulations have been performed for the extended fuel cell system in terms of maximum fuel cell power, hydrogen consumption, and vehicle range.

The maximum fuel cell power has been determined for low as well as for high air pressure (two possible positions of the throttle valve). The calculated power was, according to the pressure dependence of the fuel cell model, also higher for high air pressure. In addition, the temperature dependence of the model was used for the evaluation of an electric heating system for the cold start. An improved energy balance due to the faster higher efficiency of the fuel cell has not been observed. The influence of different battery capacities on the fuel cell performance has also been investigated. Hydrogen consumption decreased with decreasing battery capacity due to shorter charging periods, as a battery with smaller capacity can reach a higher state of charge faster. As a result, the phases with high fuel cell performance, and hence hydrogen consumption, were shorter. A smaller battery, however, is more heavily strained and therefore more limited in its durability.

Danksagung

Ich möchte an dieser Stelle all jenen danken, die durch ihre fachliche und persönliche Unterstützung zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben. Zuallererst möchte ich Herrn Univ. Prof. Dr. techn. Bernhard Geringer und Herrn Assoc. Prof. Dr. techn. Peter Hofmann für die Aufgabenstellung danken, wodurch sie diese Arbeit erst ermöglicht haben. Besonderer Dank geht an Herrn DI Johannes Höflinger für die Betreuung, die Denkanstöße und die allfälligen Hilfestellungen.

Ich danke außerdem meinen Eltern nicht nur für die Unterstützung während des Verfassens dieser Arbeit, sondern auch während meines gesamten Studiums.

Abkürzungsverzeichnis

AFC	Alkaline Fuel Cell = Alkalische Brennstoffzelle
BZ	Brennstoffzelle
BZS	Brennstoffzellensystem
CL	Catalyst Layer = Katalysatorschicht
DMFC	Direct Methanol Fuel Cell = Direktmethanol-Brennstoffzelle
FC	Fuel Cell = Brennstoffzelle
FCV	Fuel Cell Vehicle
FTP-75	Federal Test Procedure
GDL	Gas Diffusion Layer = Gasdiffusionsschicht
HHV	„Higher Heating Value“ = Brennwert
HWFET	Highway Fuel Economy Driving Schedule
MCFC	Molten Carbonate Fuel Cell = Schmelzkarbonatbrennstoffzelle
MEA	„Membrane Electrode Assembly“ = Membran-Elektroden-Einheit
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NEDC	New European Driving Cycle = Neuer Europäischer Fahrzyklus
OCV	„Open Circuit Voltage“ = Leerlaufspannung
PAFC	Phosphoric Acid Fuel Cell = Phosphorsäure Brennstoffzelle
PE	Polyethylen
PEM	Polymerelektrolyt-Membran oder Protonen-Austausch-Membran
PEMFC	Proton Exchange Membrane Fuel Cell = PEM-Brennstoffzelle
PP	Polypropylen
PTFE	Polytetrafluorethylen
SoC	State of Charge = Ladezustand
SoH	State of Health = Gesundheitszustand
SOFC	Solid Oxide Fuel Cell = Festoxidbrennstoffzelle
US06	Supplemental Federal Test Procedure
VKM	Verbrennungskraftmaschine
WLTC	Worldwide Harmonized Light Vehicles Test Cycle
WTW	Well to Wheel
YSZ	Yttrium-stabilisiertes Zirconiumoxid

Nomenklatur

Symbol	Einheit	Bedeutung
a	-	Aktivität eines Stoffes
A	cm^2	Fläche
a_c	cm^2/mg	Katalysatorspezifische Fläche
a_{H_2}	-	Aktivität von Wasserstoff
a_{H_2O}	-	Aktivität von Wasser
a_{O_2}	-	Aktivität von Sauerstoff
A_{act}	cm^2	Aktive Elektrodenfläche
B	-	Koeffizient für Aktivierung und Konzentration
c_i	mol/cm^3	Konzentration des Stoffes i
C_B	mol/cm^3	Massenkonzentration des Reaktanten
C_S	mol/cm^3	Reaktantenkonzentration an der Katalysatoroberfläche
c_w	-	Strömungswiderstandskoeffizient
D_f	cm^2/s	Diffusionskoeffizient
E	V	Leerlaufspannung
E_0	V	Leerlaufspannung bei Standardbedingungen
$E_{a,act}$	J/mol	Aktivierungsenergie für die Aktivierungsüberspannung
$E_{a,cond}$	J/mol	Aktivierungsenergie für die Leitfähigkeitsüberspannung
E_{max}	V	Theoretisch maximal erreichbare Zellspannung
E_{oc}	V	Leerlaufspannung
F	C/mol	Faradays Konstante
ΔG	J/mol	Gibbs Freie Energie
H	J	Enthalpie
ΔH	J/mol	Bildungsenthalpie
i	A/cm^2	Stromdichte
i_0	A/cm^2	Austauschstromdichte
$i_{0,ref}$	A/cm^2	Stromdichte bei Standardbedingungen (Referenz)
I	A	Strom
i_L	A/cm^2	Limitierende Stromdichte
i_n	A/cm^2	Interne Stromdichte
L	cm	Länge des elektrischen Leiters

Symbol	Einheit	Bedeutung
L_c	mgPt/cm ²	Katalysatorbeladung
\dot{m}_{H_2}	kg/s	Verbrauch von Wasserstoff
\dot{m}_{Luft}	kg/s	Verbrauch von Luft
M_{O_2}	kg/mol	Molare Masse von Sauerstoff
M_{H_2}	-	Molare Masse von Wasserstoff
M_{H_2O}	-	Molare Masse von Wasser
n	-	Anzahl Elektronen
n_z	-	Anzahl Zellen im Stack
N	mol/s	Molenstrom des Reaktanten
\dot{N}_{H_2}	mol/s	Verbrauch von Wasserstoff
\dot{N}_{O_2}	mol/s	Verbrauch von Sauerstoff
\dot{N}_{H_2O}	mol/s	Produktion von Wasser
p_{H_2}	bar	Partialdruck Wasserstoff
p_{H_2O}	bar	Partialdruck Wasser
p_i	bar	Partialdruck des Stoffes i
p_{O_2}	bar	Partialdruck Sauerstoff
p_0	bar	Partialdruck bei Standardbedingungen (Referenz)
P	bar	Druck
P_e	W	Elektrische Leistung
Q	W	Heizleistung
Q_{el}	C	Elektrische Ladung
r_{ohm}	Ωcm^2	Spezifischer Widerstand
R	J/molK	Allgemeine Gaskonstante
R_S	-	Residuen
S	J/K	Entropie
T	K	Temperatur
T_0	K	Temperatur bei Standardbedingungen
U	J	Innere Energie
V	m ³	Volumen
ΔV	V	Nernst-Spannung
V_{act}	V	Aktivierungsüberspannung
V_c	V	Zellspannung

Symbol	Einheit	Bedeutung
V_{conc}	V	Konzentrationsüberspannung
V_{ohm}	V	Ohm'scher Spannungsverlust
Z	K	Koeffizient der Aktivierungsenergie

Griechische Buchstaben

Symbol	Einheit	Bedeutung
α	-	Ladungstransportkoeffizient
γ	-	Druckabhängigkeitskoeffizient
δ	μm	Diffusionsweg
η_{carnot}	-	Carnot-Wirkungsgrad
η_{cell}	-	Wirkungsgrad einer Zelle
$\eta_{ideal,BZ}$	-	Thermodyn. Wirkungsgrad bei Standardbedingungen
η_{sys}	-	Wirkungsgrad des Systems
κ	S/m	Leitfähigkeit, $S = 1/\Omega$
κ_0	S/m	Referenzleitfähigkeit (Standardbedingungen)
λ	-	Luftverhältnis

Inhaltsverzeichnis

Aufgabenstellung für die Diplomarbeit.....	I
Eidesstattliche Erklärung.....	II
Kurzfassung.....	III
Abstract.....	IV
Danksagung.....	V
Abkürzungsverzeichnis.....	VI
Nomenklatur.....	VII
Inhaltsverzeichnis.....	X
1. Einleitung.....	1
2. Grundlagen.....	3
2.1 Geschichtliches.....	4
2.2 Brennstoffzellentypen.....	6
2.3 Funktionsprinzip.....	10
2.4 Thermodynamik der Brennstoffzelle.....	11
2.4.1 Zellspannung.....	12
2.4.2 Wirkungsgrad.....	14
2.5 Elektrochemie der Brennstoffzelle.....	16
2.5.1 Aktivierung.....	17
2.5.2 Ohm'scher Widerstand.....	17
2.5.3 Massentransport.....	18
2.5.4 Polarisationskurve.....	20
2.5.5 Treibstoffverbrauch und Heizleistung.....	22
3. Modell der Brennstoffzelle.....	24
3.1 Leerlaufspannung.....	25
3.2 Aktivierungsverluste.....	26
3.3 Ohm'sche Verluste.....	30

3.4	Diffusionsverluste.....	33
3.5	Ausgangsspannung	35
3.6	Ausgleichsrechnung.....	36
3.7	Ergebnisse der Modellierung	39
4.	Modellierung der Brennstoffzelle mittels Simulationssoftware GT-Suite	43
4.1	Brennstoffzellensystem.....	43
4.1.1	Luftmanagement	46
4.1.2	Thermomanagement.....	50
4.1.3	Wirkungsgrade	52
5.	Simulation.....	53
5.1	Analyse des Überlastbereiches.....	55
5.2	Effizienzanalyse Heizsystem.....	58
5.2.1	Strategie 1 – Power Follower	58
5.2.2	Strategie 2 – Leistung in Abhängigkeit des SoC.....	63
5.3	Variation der Batteriegröße	68
6.	Zusammenfassung und Ausblick.....	78
	Quellenverzeichnis	81

1. Einleitung

Die anthropologische Einflussnahme in die Umwelt sorgt für einen stetig voranschreitenden Klimawandel bzw. die Klimaerwärmung. Daher sind besonders die Ingenieure in die Pflicht genommen, heute und in der Zukunft, nachhaltige und emissionsarme/-freie Technologien zur Energieerzeugung zu entwickeln. Dazu zählt auch die Entwicklung neuer Antriebstechnologien. Der Grundstein wurde hier schon gelegt, batterieelektrische Fahrzeuge (BEV) sind mit steigender Tendenz auf den Straßen unterwegs, langfristig scheinen diese Antriebssysteme den Verbrennungsmotor aber nicht verdrängen zu können. Die Einschränkungen in der Nutzbarkeit sind dafür zu gravierend, insbesondere bezüglich der Reichweite.

Erfolgsversprechender zeigen sich hier die Brennstoffzellenantriebe. Die erzielbaren Reichweiten sind im unteren Bereich von Fahrzeugen mit Verbrennungsmotor und die Hochdrucktanks lassen sich in ca. 5 Minuten wieder vollständig befüllen. Nur die fehlende Infrastruktur scheint die Verbreitung des elektrischen Antriebsstrangs mit Brennstoffzelle noch zu bremsen. Mit entsprechenden Tankmöglichkeiten könnten die Absatzzahlen rapide steigen und damit die Produktionskosten schnell sinken, denn der Wille der Gesellschaft auf die Elektromobilität umzusteigen ist grundsätzlich vorhanden.

Als vielversprechendes zukünftiges Antriebssystem steckt die Brennstoffzelle in einer bedeutenden Entwicklungsphase. Sie kann langfristig für eine Wende bei den automobilen Energieträgern sorgen, da batterieelektrische Fahrzeuge, so scheint es, nur mittelfristig als Alternative zum Verbrennungsmotor dienen können. Im Sinne dieses Entwicklungsprozesses, umfasst diese Diplomarbeit die Modellierung einer Brennstoffzelle und der dazugehörigen Nebensysteme als Teil eines Gesamtfahrzeugmodells mit Brennstoffzellenantrieb. Die Modellierung der Brennstoffzelle erfolgte aus den charakteristischen Gleichungen einer Brennstoffzelle. Diese Gleichungen wurden allerdings mit Modifizierungen für die Druck- und Temperatureinflüsse erweitert, um die Messdaten des Brennstoffzellenprüfstandes der TU Wien nach einer Ausgleichsrechnung in bestmöglichem Maße abbilden zu können. Diese modifizierten Gleichungen wurden dann in ein in der Simulationssoftware *GT-Suite* neu

aufgebautes Modell eines Brennstoffzellensystems integriert, welches Teil des Gesamtfahrzeugmodells war. Somit konnte der Einsatz der Brennstoffzelle des Prüfstands in einem Fahrzeug anhand von Längsdynamiksimulation quantifiziert und bewertet werden.

2. Grundlagen

Eine Brennstoffzelle ist in einigen Aspekten ähnlich einer Batterie. Sie besitzt einen Elektrolyten und zwei Elektroden, eine positive und eine negative, und sie generiert eine elektrische Gleichspannung über elektrochemische Reaktionen, siehe Abbildung 2-1. Anders als die Batterie aber, muss eine Brennstoffzelle konstant mit Treibstoff versorgt und ein Oxidationsmittel zugeführt werden. Der Hauptunterschied ist also, dass die Batterie ein Energiespeicher und die Brennstoffzelle ein Energiewandler ist. Außerdem unterscheiden sich Batterie und Brennstoffzelle durch ihre Elektroden. In der Brennstoffzelle bewirkt die Stromerzeugung keine chemischen Veränderungen an der Elektrode. Batterien (Primärzellen) generieren Strom mittels elektrochemischer Reaktionen mit den Materialien die sich bereits in der Batterie befinden. Aufgrund dessen ist es möglich, dass eine Batterie entladen werden kann, da die Reaktionen nur solange ablaufen wie genügend Reaktionsmaterial in der Batterie vorhanden ist.

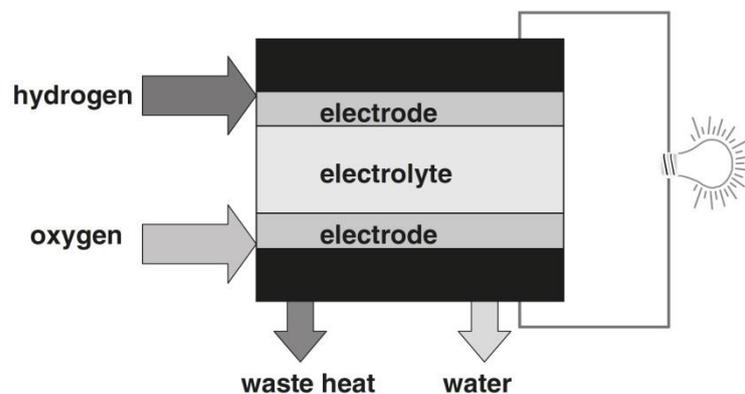


Abbildung 2-1: Grundprinzip eine Brennstoffzelle [1]

Es gibt Batterien die wiederaufladbar sind (Sekundärzellen oder Akkumulatoren) und welche die nicht wieder aufgeladen werden können (Primärzellen). Die Aufladbarkeit bedeutet, dass die elektrochemischen Reaktionen in umgekehrter Richtung ablaufen können, wenn von außen eine Spannung angelegt wird. Eine Brennstoffzelle kann in

diesem Sinne nicht entladen, lediglich die Zufuhr von Reaktionsstoffen gestoppt werden. Typische Reaktanden für Brennstoffzellen sind Wasserstoff und Sauerstoff. Ob diese in Reinform vorhanden sein müssen, ist vom Brennstoffzellentyp abhängig. Wasserstoff kann gasförmig in Mischung mit anderen Gasen wie Kohlendioxid CO_2 , Stickstoff N_2 oder Kohlenmonoxid CO , oder in Kohlenwasserstoffen wie Methan CH_4 vorkommen. Sogar in flüssiger Form von Methanol CH_3OH ist Wasserstoff vorhanden. Der Sauerstoff für die Reaktion in der Brennstoffzelle kann aus der Luft entnommen werden, da er dort ausreichend vorhanden ist. Eine weitere Eigenschaft der Brennstoffzelle ist, dass diese Abwärme und das Reaktionsprodukt Wasser produziert. Diese Eigenschaften müssen vom System geregelt werden.

2.1 Geschichtliches

Eine Zeitleiste der Entwicklungsgeschichte der Brennstoffzelle ist in [Abbildung 2-2](#) dargestellt.

Im Jahre 1800 wurde Wasser erstmals durch Elektrolyse zerlegt. William Nicholson und Anthony Carlisle spalteten das Wasser in zwei Volumenanteile Wasserstoff und einen Teil Sauerstoff. Dabei verwendeten sie den Strom aus einer Volta'schen Säule, eine mit Salzwasser getränkte Pappe zwischen Zink- und Silberscheiben. Diesen Vorläufer der modernen Batterie entwickelte Alessandro Volta nur wenige Monate zuvor [2]. Der Effekt der umgekehrten Elektrolyse, welche die Reaktion in einer Brennstoffzelle darstellt, wurde erstmals im Jahre 1838 von Christian F. Schönborn beschrieben. Darauf aufbauend entwickelte Sir William Grove die erste Brennstoffzelle und präsentierte diese als „Gasbatterie“ in 1839. Im Jahre 1842 stellte selbiger die erste Brennstoffzelle vor, welche elektrische Energie durch die Kombination von Wasserstoff und Sauerstoff erzeugte [1]. Walter Nernst demonstrierte im Jahr 1899 die Eignung fester Elektrolyte für technische Anwendungen mit dem ersten Yttrium-stabilisierten Zirconiumoxid-Elektrolyten, welche die Grundlage für die spätere Festoxidbrennstoffzelle (SOFC) darstellt. 1939 begann Francis T. Bacon mit der Entwicklung der ersten Alkalischen Brennstoffzelle (AFC). Diese erreichte eine kurzzeitige Spitzenleistungsdichte von $0,66 \text{ W/cm}^2$ – ein Wert der sich selbst bei heutigen Standards sehen lassen kann [3]. Für die erste praktische Anwendung benötigte es aber noch einiges an Entwicklungsarbeit, bis in die späten 1950er Jahre. Zu dieser Zeit waren die

Vereinigten Staaten von Amerika mit der Sowjetunion in einem Rennen um den Erstflug in den Weltraum und später wer den ersten Menschen auf den Mond bringt. Hier erfuhr die Brennstoffzellenentwicklung einen Schub, da sie für die Stromversorgung benötigt wurde. Den ersten Praxiseinsatz hatte die Brennstoffzelle schließlich im U.S. Raumfahrtprogramm. William Grubb und Leonard Niedrach entwickelten beim Unternehmen General Electric die erste Niedertemperatur-Brennstoffzelle PEMFC im Jahre 1955 und lieferten damit die Stromgeneratoren für das Gemini Raumfahrtprogramm der NASA in den frühen 1960 Jahren. Aufgrund der kurzen Lebensdauer und den hohen Katalysatorbelastungen mit teurem Edelmetall, wechselte man bei der NASA für die Apollo Missionen auf Alkalische Brennstoffzellen (AFC), welche bis zur Einstellung des Space-Shuttle-Programms 2011, nach 30 Jahren Betrieb, in den Space Shuttle Orbitern zum Einsatz gekommen ist [3].

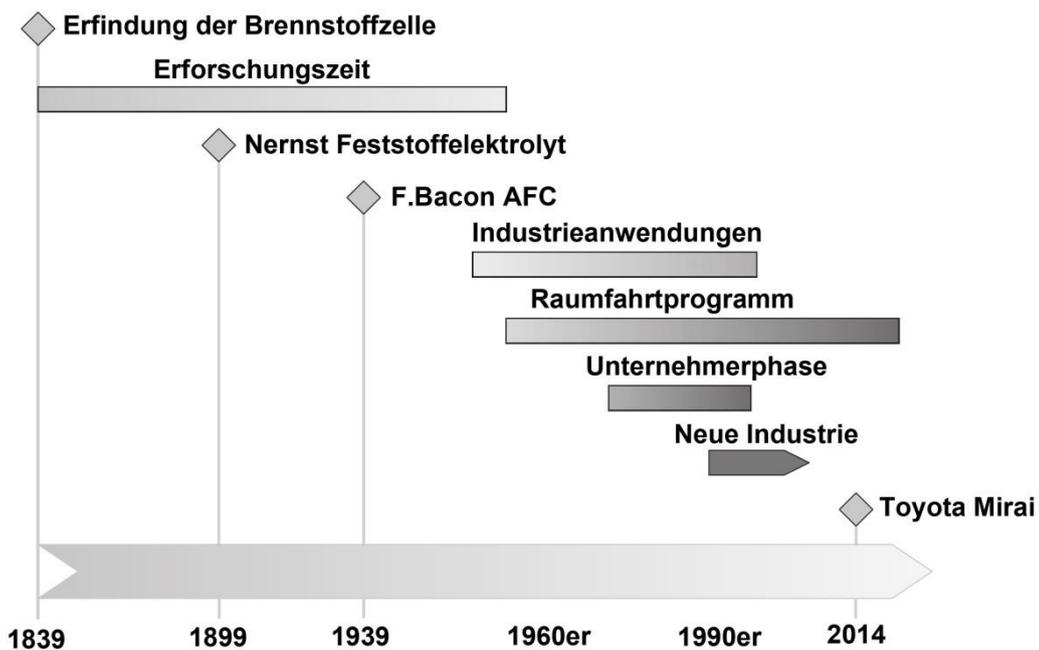


Abbildung 2-2: Zeitleiste der Geschichte der Brennstoffzelle in Anlehnung an [1]

Im Jahre 1966 baute General Motors dann das erste Brennstoffzellenfahrzeug. Es handelte sich dabei um einen Kleinbus (Van), um das Gesamtsystem überhaupt unterbringen zu können. Obwohl Brennstoffzellen so erfolgreich im amerikanischen Raumfahrtprogramm zum Einsatz kamen, dauerte es bis ins Jahr 1989, bis die nächste

terrestrische Anwendung folgte. Perry Energy Systems demonstrierte die Fähigkeiten einer PEM-Brennstoffzelle anhand eines U-Bootes. Im Jahre 1993 folgte dann ein Brennstoffzellenbus des Unternehmens Ballard Power Systems, welches bis heute ein führendes Unternehmen in Sachen erneuerbare Energien ist. Energy Partners, ein Nachfolger von Perry Energy Systems, stellte im gleichen Jahr einen PKW mit Brennstoffzellenantrieb vor. Daraufhin, mit Unterstützung des U.S. Departement of Energy, folgten viele Fahrzeughersteller diesem Trend und folglich hatte fast jeder Hersteller bis zum Ende des Jahrtausends ein Brennstoffzellenfahrzeug vorgestellt. Eine neue Industrie war geschaffen [1].

Auch wenn die Entwicklung weiterging, dauerte es noch fast ein Jahrzehnt, bis der Honda FCX Clarity im Jahr 2008 in den USA eingeführt wurde. In Europa kam mit dem Hyundai ix35 FCEV das erste Brennstoffzellenfahrzeug im Jahr 2013 auf den Markt, gefolgt vom Toyota Mirai im Jahr 2014. Im Jahr 2019 wird der Mercedes-Benz GLC F-Cell erhältlich sein.

2.2 Brennstoffzellentypen

Wie im vorigen Kapitel schon angedeutet, gibt es diverse Typen von Brennstoffzellen, welche anhand charakteristischer Eigenschaften voneinander unterschieden werden. Die Hauptunterscheidungsmerkmale sind in Tabelle 2-1 angeführt. Obwohl alle darin genannten Brennstoffzellentypen auf dem gleichen elektrochemischen Prinzip beruhen, werden alle in verschiedenen Temperaturbereichen betrieben, bestehen aus verschiedenen Materialien, werden mit unterschiedlichen Treibstoffen versorgt, liefern variierende Spannungen und Leistungen und sind nicht alle in gleichem Maße effizient. Außerdem differieren sie in ihrer Empfindlichkeit gegenüber Verunreinigungen im Treibstoff, da bestimmte Stoffe die Wirkung der Katalysatormaterialien stark beeinträchtigen können (Katalysatorvergiftung).

Die Alkalische Brennstoffzelle (AFC) verwendet eine wässrige Kaliumhydroxid-Lösung (30%) in einer porösen Polymermatrix (früher Asbest) als Elektrolyt. Als Katalysator können Nickel, Silber und Edelmetalle zum Einsatz kommen. Vorteile sind die günstigen Katalysator- sowie Elektrolytmaterialien. Nachteile dieser Bauform sind die Systemkomplexität durch benötigte Wasserabscheider an der Kathode und die hohe

Empfindlichkeit gegenüber der Verunreinigung des Wasserstoffs oder des Sauerstoffs mit der bereits geringen atmosphärischen Menge an CO_2 aus der Luft. Anwendung fand dieser Brennstoffzellentyp, wie bereits im vorigen Kapitel erwähnt, bei den Apollo-Raumfahrtmissionen der NASA.

Tabelle 2-1: Eigenschaften verschiedener Brennstoffzellentypen [4]

Typ	Elektrolyt	Brennstoff	Zellspannung [V]	Betriebstemperatur [°C]	Ausgangsleistung [kW]	Effizienz [%]
AFC	wässrige Kaliumhydroxid-Lösung in poröser Matrix (PP,PE)	reiner H_2	1,0	90-100	10-100	60
PAFC	Phosphorsäure in poröser Matrix (SiC, PTFE-gebunden)	reiner H_2	1,1	150-200	50-1000	> 40
SOFC	Yttrium-stabilisiertes Zirconiumoxid	H_2 , CO , CH_4 , etc.	0,8-1,0	600-1000	<1-3000	35-43
MCFC	Alkalicarbonat-Mischschmelze aus Lithium- und Kaliumcarbonat	H_2 , CO , CH_4 , etc.	0,7-1,0	600-700	<1-1000	45-47
PEMFC	Polymermembran, z.B.Nafion	reiner H_2	1,1	50-100	<1-250	53-58
DMFC	Polymermembran	CH_3OH	0,2-0,4	60-200	0,001-100	40

Die Phosphorsäurebrennstoffzelle (PAFC) nutzt konzentrierte Phosphorsäure, welche als Gel in einer PTFE-gebundenen Siliziumkarbid-Matrix fixiert ist, als Elektrolyt. Der Katalysator ist hier Platin, sowohl anoden- als auch kathodenseitig. Vorteile sind die ausgereifte Technik, die Zuverlässigkeit und der kostengünstige Elektrolyt. Nachteile sind das teure Platin, die Gefahr der Katalysatorvergiftung und der korrosive Flüssigelektrolyt. Dieser Bautyp ist bereits semikommerziell verfügbar. In großen Containern werden PAFCs als stationäre Stromgeneratoren verwenden. Hunderte solcher Generatoren mit einer Leistung von bis zu 200 kW wurden schon in vielen Teilen der Welt installiert [1].

Die Festoxidbrennstoffzelle (SOFC) arbeitet bei relativ hohen Temperaturen und verwendet dabei einen Elektrolyten aus einem festen, undurchlässigen Metalloxid, typischerweise Yttrium-stabilisiertes Zirconiumoxid (YSZ). Dieses Material zeichnet sich durch eine sehr gute Leitfähigkeit für Sauerstoffionen bei gleichzeitig hohem elektrischem Widerstand für den Elektronentransport aus. Katalytische Wirkung erzielen bei diesem Typen unedle Metalle wie Nickel oder Perowskit (CaTiO_3). Vorteile sind die Brennstoffflexibilität, die günstigen Katalysatormaterialien und die große nutzbare Abwärmemenge. Die Nachteile beinhalten das komplexe System sowie die schwierige Abdichtung der Zellen aufgrund der hohen Temperaturen und die relativ teuren Zellmaterialien. Die Bauart bietet sich wie die PAFC ebenfalls für stationäre Generatoranwendungen an, kann aber auch in mobilen Anwendungen zum Einsatz kommen, wie beispielsweise Nissan mit einem Fahrzeug gezeigt hat [5].

Mit MCFC bezeichnet man die Schmelzkarbonatbrennstoffzelle. Der Elektrolyt ist eine Alkalikarbonatschmelze, bestehend aus Li_2CO_3 - K_2CO_3 -Gemischen oder Na_2CO_3 in einer hitzefesten Matrix (LiAlO_2) [6]. Bei der hohen Betriebstemperatur bilden die Karbonate eine Schmelze, in welcher die Karbonationen für die sehr gute Ionenleitfähigkeit sorgen. Als Katalysator dienen unedle Metalle wie Nickel. Vorteile sind die variablen Brennstoffe, kostengünstige Katalysatorwerkstoffe und die hohe nutzbare Abwärme. Nachteile sind der korrosive geschmolzene Elektrolyt und die kostenintensiven Zellmaterialien. Wie auch die andere Hochtemperaturbrennstoffzelle SOFC kann diese Bauart für den stationären Generatorbetrieb Anwendung finden.

Die PEM-Brennstoffzelle, Polymerelektrolyt- oder Protonenaustauschmembran-Brennstoffzelle, nutzt einen dünnen Polymerelektrolyten für die Ionenleitung. Der meistverwendete Werkstoff ist unter dem Handelsnamen Nafion bekannt. Typischerweise wird auf Aktivkohlepartikeln adsorbiertes Platin als Katalysator verwendet. Der hochwertige Katalysator ist notwendig aufgrund der geringen Betriebstemperaturen, ist aber anfällig für die Vergiftung mit Kohlenmonoxid CO . Die Vorteile liegen in der hohen Leistungsdichte, den niedrigen Temperaturen und der Unempfindlichkeit für häufige Start-Stopp-Zyklen. Nachteilig zeigen sich die Kosten für Platin und die hochwertige Membran sowie die Anfälligkeit für die Vergiftung mit CO . Die PEM-Brennstoffzelle ist für die Verwendung in mobilen Geräten und in Fahrzeugen prädestiniert, da sie einen vergleichbaren Betriebstemperaturbereich wie Verbrennungsmotoren aufweist und mit einem hervorragenden Wirkungsgrad arbeitet. Diese Bauform ist in den Serienfahrzeugen Toyota Mirai und Honda Clarity im Einsatz.

Schließlich sei noch die Direktmethanolbrennstoffzelle (DMFC) genannt, welche wie die PEMFC einen Polymermembranelektrolyten und Platin als Katalysator verwendet. Sie unterscheiden sich aber aufgrund des Treibstoffes, da die DMFC mit flüssigem Methanol betrieben wird. Auch dieser BZ-Typ ist für mobile Anwendungen geeignet. Abschließend sind in Abbildung 2-3 die elektrochemischen Reaktionen der diversen Brennstoffzellentypen veranschaulicht. [1], [3], [6], [7], [8], [9]

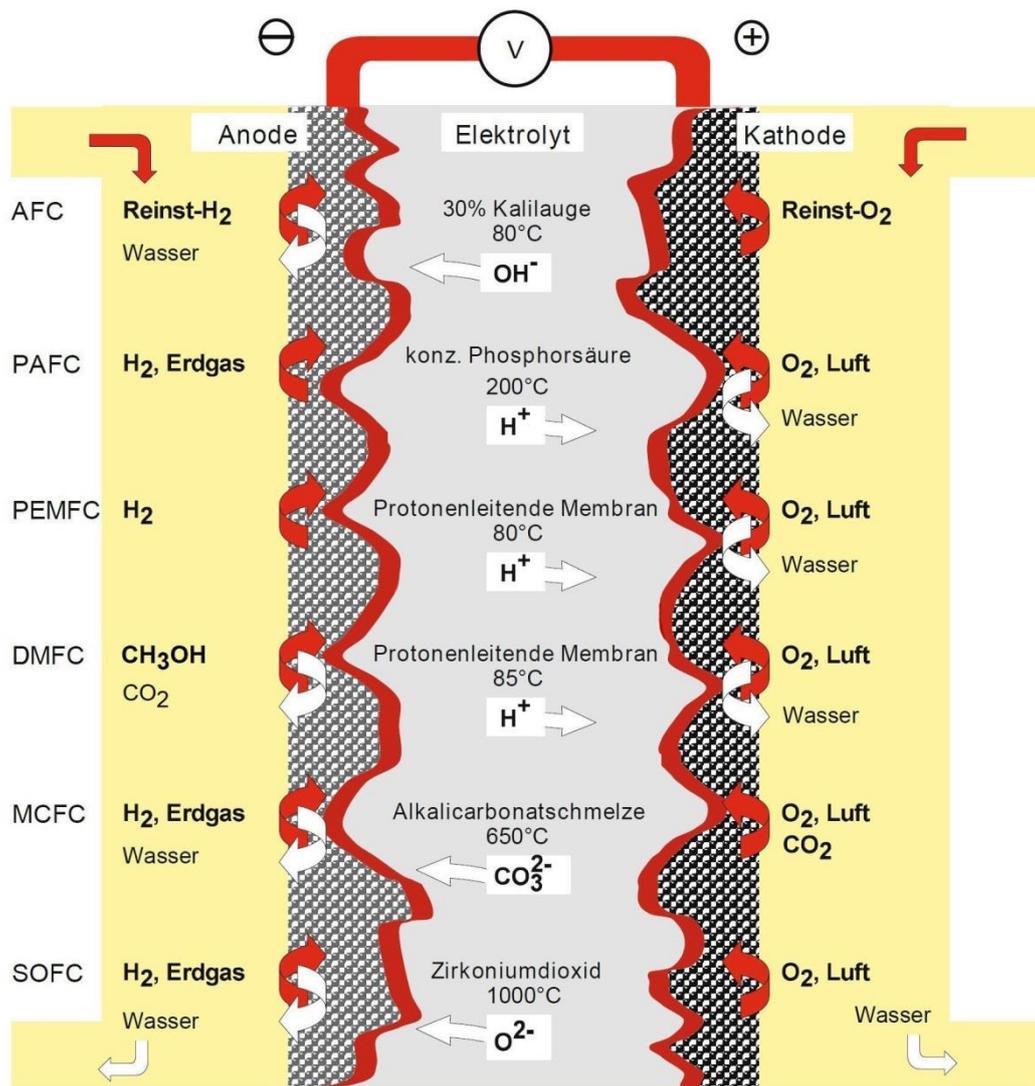


Abbildung 2-3: Zellreaktionen mit Reaktanten und Produkten verschiedener Brennstoffzellentypen in Anlehnung an [6]

2.3 Funktionsprinzip

Im Fokus dieser Arbeit liegt der PEM-Brennstoffzellentyp. Die Abbildung 2-4 zeigt den Schnitt durch eine Einzelzelle mit einem Detailausschnitt der MEA (Membran-Elektroden-Einheit) und der Reaktionszentren. Die MEA ist dabei die zusammengepresste Einheit aus der Anode und der Kathode mit der dazwischenliegenden Polymermembran. Diese ist sehr häufig aus dem Material mit dem Handelsnamen Nafion, welches ein perfluoriertes Copolymer auf sulfonierter Tetrafluorethylenbasis darstellt. Die Membran ist protonenleitend und undurchlässig für Anionen.

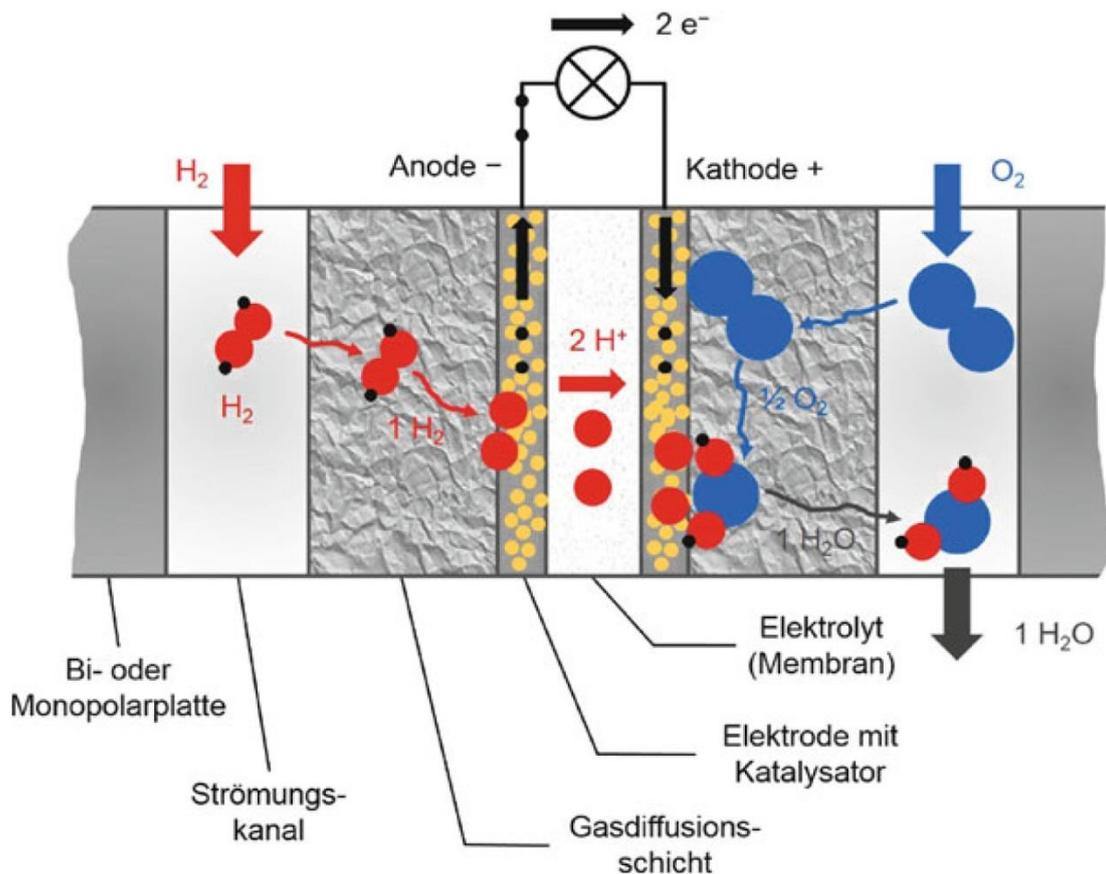


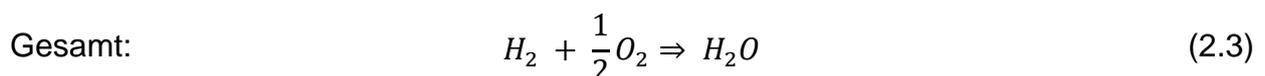
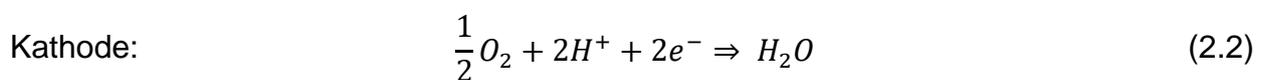
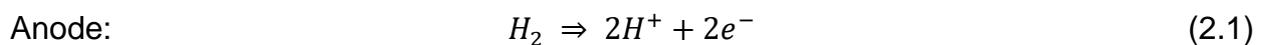
Abbildung 2-4: Prinzip der PEM Brennstoffzelle [10]

Während des Betriebs werden die Reaktionsgase über die Strömungsverteiler (Bipolarplatten) zur MEA zugeleitet. Dort strömen sie durch das poröse Kohlenstoffgewebe, welches als Gasdiffusionsschicht (GDL) bezeichnet wird, und weiter zur Katalysatorschicht (CL) auf der Elektrode. Die Gasdiffusionsschicht dient der gleichmäßigen Verteilung des Gases auf die gesamte Reaktionsfläche und dem Abtransport des entstehenden Reaktionswassers. Die Katalysatorschicht befindet sich direkt an der Elektrolytmembran und sorgt für die Aufspaltung des Wasserstoffs in Wasserstoffprotonen und Elektronen. Die Protonen wandern dann durch die für sie durchlässige Membran auf die Kathodenseite. Die Elektronen werden aus der Brennstoffzelle abgeleitet und fließen über die Außenleiter und einen elektrischen Verbraucher zur Kathode. Dort treffen sie auf den Sauerstoff aus der Luft, welcher durch die GDL und CL zur Membran gelangt ist. Die Wasserstoffprotonen bilden dort mit den Elektronen und dem Sauerstoff Wasser und geben dabei Reaktionswärme frei. Der Gesamtprozess produziert also Strom, Wasser und Wärme.

Um die genauen Abläufe in der Brennstoffzelle besser verstehen zu können, benötigt es die Kenntnis der elektrochemischen und der thermodynamischen Gesetzmäßigkeiten.

2.4 Thermodynamik der Brennstoffzelle

Die oben beschriebenen elektrochemischen Reaktionen der Brennstoffzelle lauten für die jeweilige Seite der Elektrolytmembran und insgesamt [1]:



2.4.1 Zellspannung

Die Brennstoffzelle ist ein elektrochemischer Energiewandler, sie generiert aus der chemischen Energie des Treibstoffs auf direktem Wege elektrische Energie. Die chemische Energie der dabei reagierenden Stoffe lässt sich über die freie Gibbs-Energie beschreiben. Die freie Gibbs-Energie G ist definiert als die Enthalpie, berechnet aus der Summe von innerer Energie und dem Produkt aus Druck und Volumen, abzüglich dem Produkt aus Temperatur und Entropie [6]:

$$G = U + PV - TS = H - TS \quad (2.4)$$

Diese kann als die nutzbare Energie des Systems angesehen werden, sprich als das Maximum an chemischer Energie, die in elektrische Energie umwandelbar ist.

Die Änderung der freien Gibbs-Energie für die Gleichung der Gesamtreaktion (2.3) ist somit die Gibbs-Energie der Produkte abzüglich der Gibbs-Energien der Reaktanten. Unter Standardbedingungen und für flüssiges Produktwasser ist $\Delta G = -237.13 \text{ kJ/mol}$ [11].

Allgemein ist die elektrische Arbeit das Produkt aus der Ladung Q und dem elektrischen Potential E . Die maximale elektrische Arbeit, die ein System bei konstanter Temperatur und konstantem Druck leisten kann, entspricht der negativen Änderung der freien Gibbs-Energie:

$$W_{el} = Q_{el} * E = -\Delta G \quad (2.5)$$

Die Ladung, die durch die Brennstoffzellenreaktion pro reagiertes Mol des Wasserstoffs durch die Außenleiter transportiert wird, ist die Anzahl der beteiligten Elektronen n multipliziert mit der Faraday-Konstante F :

$$Q_{el} = n * F \quad (2.6)$$

Damit folgt aus der Gleichung (2.5) für das reversible elektrische Potential der Brennstoffzelle, mit $n = 2$ und $F = 96485 \frac{C}{mol}$ [8]:

$$E_0 = \frac{-\Delta G}{nF} = \frac{237130 \frac{J}{mol}}{2 * 96485 \frac{C}{mol}} = 1.229 V \quad (2.7)$$

Dies ist die reversible Zellspannung (Standardpotential) bei Standardbedingungen. Die Standardbedingungen sind in der Regel allerdings nicht vorherrschend. Brennstoffzellen arbeiten, speziell bei automobilen Anwendungen, unter transienten Bedingungen, die sehr deutlich von den Standardbedingungen abweichen. Die Einflüsse der Temperatur und des Drucks erhält man mit einer Erweiterung der obigen Formel (2.7), woraus die *Nernst-Gleichung* folgt [1]:

$$E = E_0 + \frac{RT}{nF} * \ln\left(\frac{a_{H_2} a_{O_2}^{0.5}}{a_{H_2O}}\right) \quad (2.8)$$

Darin sind die Leerlaufspannung bei Standardbedingungen aus Gleichung (2.7) und die Aktivitäten der Edukte und des Produkts, mit den jeweiligen stöchiometrischen Koeffizienten aus der Reaktionsgleichung (2.3), enthalten. Die Aktivitäten können im Fall der Annahme von idealen Gasen als

$$a = \frac{p}{p_0} \quad (2.9)$$

definiert werden, wobei hier p der Partialdruck des Gases und p_0 der Partialdruck des Gases bei Standarddruck ist. Für den Standarddruck von 1 bar können für die Aktivitäten die Partialdrücke der Reaktanten eingesetzt werden ($a_{H_2} = p_{H_2}$, $a_{O_2} = p_{O_2}$). Die Brennstoffzelle generiert Produktwasser das dampfförmig oder flüssig vorliegen kann, wodurch die Aktivität schwierig zu bestimmen ist. Da die Brennstoffzelle unterhalb einer Temperatur von 100 °C betrieben wird, ist das Reaktionsprodukt flüssiges Wasser und die Aktivität des Wassers wird somit als $a_{H_2O} = p_{H_2O} = 1$ angenommen. Die *Nernst-Gleichung* (2.8) wird damit zu:

$$E = E_0 + \frac{RT}{nF} * \ln(p_{H_2} p_{O_2}^{0.5}) \quad (2.10)$$

Die *Nernst-Gleichung* ist eine bedeutende Formel in der Elektrochemie. Sie beschreibt die reversible elektrochemische Zellspannung als Funktion der Konzentrationen der Reaktanten bzw. der Gasdrücke und der Temperatur.

2.4.2 Wirkungsgrad

Für jeden Energiewandler ist der Wirkungsgrad von zentraler Bedeutung. Beim Wirkungsgrad unterscheidet man zwischen einem idealen (oder reversiblen) und einem realen (oder praktischen) Wirkungsgrad. Beim idealen Wirkungsgrad einer Brennstoffzelle könnte man nun versucht sein anzunehmen, dass dieser 100% betragen sollte. Das ist aber nicht der Fall. Wie zuvor schon erwähnt, ist die elektrische Arbeit, die in einer Brennstoffzelle zur Verfügung steht, durch die Änderung der freien Gibbs-Energie ΔG begrenzt. Somit ist auch der ideale Wirkungsgrad einer Brennstoffzelle durch ΔG begrenzt. Eine ideale Brennstoffzelle ist immer effizienter als eine reale Brennstoffzelle, da reale Brennstoffzellen im Betrieb nicht-ideale irreversible Verluste verursachen. Diese nicht-thermodynamischen Verluste werden im Kapitel 2.5 Elektrochemie der Brennstoffzelle diskutiert.

Der Wirkungsgrad ist definiert als die nutzbare Energie im Verhältnis zur insgesamt vorhandenen Energie. Die maximal nutzbare Energie ist, wie oben genannt, die Änderung der freien Gibbs-Energie ΔG . Die vorhandene Energie im System ist durch die Bildungsenthalpie ΔH gegeben. Bei Standardbedingungen betragen die freie Gibbs-Energie für die Brennstoffzellenreaktion $\Delta G = -237.13 \text{ kJ/mol}$ und die Bildungsenthalpie für flüssiges Produktwasser $\Delta H = -285.83 \text{ kJ/mol}$ [11], [12]. Der thermodynamische Wirkungsgrad bei Standardbedingungen ist damit:

$$\eta_{ideal,BZ} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{-237.13 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}}{-285.83 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}} = 0.83 \quad (2.11)$$

Mithilfe der Bildungsenthalpie ΔH kann die theoretisch maximal erreichbare Zellspannung (Thermoneutralspannung) berechnet werden:

$$E_{max} = \frac{-\Delta H}{nF} = \frac{285830 \frac{J}{mol}}{2 * 96485 \frac{C}{mol}} = 1.48 V \quad (2.12)$$

Da sowohl die Bildungsenthalpie ΔH als auch die freie Gibbs-Energie ΔG in eine elektrische Spannungsgleichung ((2.7) und (2.12)) einfließen, kann der thermodynamische Wirkungsgrad auch über die Zellspannungen ausgedrückt werden [13]:

$$\eta_{ideal,BZ} = \frac{E_0}{E_{max}} \quad (2.13)$$

Im Vergleich dazu ist der maximale theoretische Wirkungsgrad einer konventionellen Wärmekraftmaschine durch den Carnot-Wirkungsgrad beschrieben. Für dessen Herleitung wird auf die Literatur zur klassischen Thermodynamik verwiesen. Der Carnot-Wirkungsgrad errechnet sich aus der höchsten (Index h) und geringsten (Index l) Temperatur eines Prozesses und lautet:

$$\eta_{Carnot} = \frac{T_h - T_l}{T_h} \quad (2.14)$$

In Abbildung 2-5 ist ein Vergleich der Wirkungsgrade einer idealen Brennstoffzelle und des Carnot-Prozesses dargestellt. Klar zu erkennen ist ein signifikanter thermodynamischer Wirkungsgradvorteil der Brennstoffzellen bei niedrigen Temperaturen, sie verlieren diesen Vorteil jedoch bei höheren Temperaturen. Der Knick in der Wirkungsgradkurve der Brennstoffzelle bei 100 °C ergibt sich aus der Entropiedifferenz zwischen flüssigem Wasser und Wasserdampf.

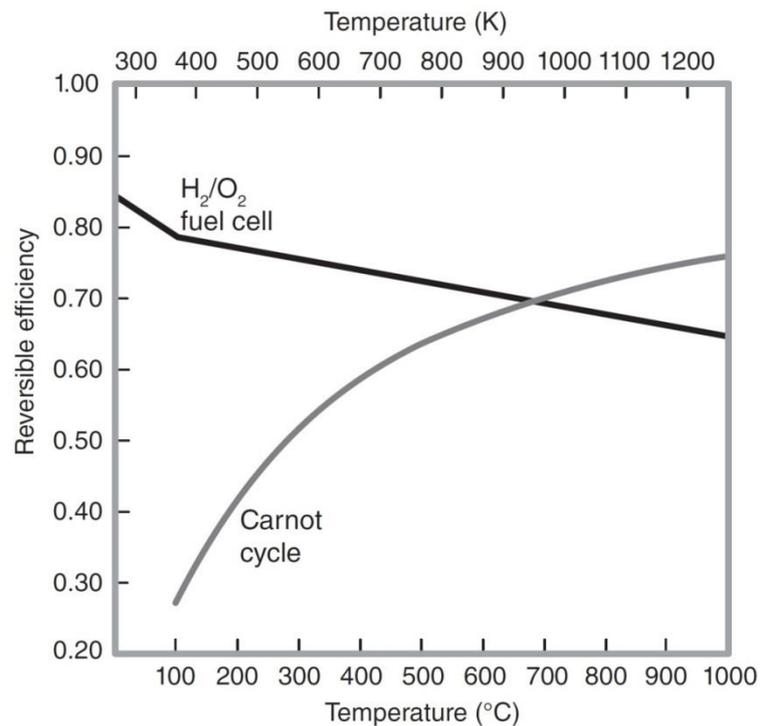


Abbildung 2-5: Theoretischer Wirkungsgrad einer Wasserstoffbrennstoffzelle und einer Wärmekraftmaschine im Vergleich [7]

2.5 Elektrochemie der Brennstoffzelle

Wenn die Brennstoffzelle in einer elektrischen Schaltung verbaut ist und kein Verbraucher angelegt ist, sollte man meinen, dass die Zellspannung der reversiblen Spannung aus Gleichung (2.7) für die gegebenen Bedingungen (Temperatur, Druck, Konzentrationen) entspricht. Dies ist aber nicht der Fall. Die tatsächliche Zellspannung ist deutlich kleiner als die reversible Zellspannung und wird als Leerlaufspannung (OCV) bezeichnet. Das deutet darauf hin, dass es einige Einflussfaktoren geben muss die für den Spannungsverlust verantwortlich sind. Diese sind die Kinetik der elektrochemischen Reaktionen, die inneren elektrischen und ionischen Widerstände und die Transportproblematik der Reaktanten zur Reaktionsstätte.

2.5.1 Aktivierung

Im Allgemeinen benötigen chemische Reaktionen für ihren Start eine bestimmte Aktivierungsenergie. Das gilt auch für die elektrochemischen Reaktionen in einer Brennstoffzelle. Hier wird eine gewisse Überspannung benötigt, um die Reaktionen auf der Katalysatoroberfläche zu starten. Diese Spannungsdifferenz wird als Aktivierungsüberspannung bezeichnet und begründet sich auf der trägen Kinetik an der Elektrode. Sie reduziert die theoretische Leerlaufspannung der Brennstoffzelle und ist der dominierende Verlust bei geringer Belastung der Zelle.

Die Aktivierungsüberspannung lässt sich in den meisten Fällen mit der *Tafel-Gleichung* abbilden:

$$V_{act} = \frac{RT}{\alpha * nF} * \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) \quad (2.15)$$

Hier sind der Ladungstransportkoeffizient α und die Austauschstromdichte i_0 die ausschlaggebenden Parameter. Die detaillierten Erläuterungen dazu folgen in Kapitel 3. Modell der Brennstoffzelle.

2.5.2 Ohm'scher Widerstand

Die Hauptursachen für Ohm'sche Spannungsverluste sind zum einen der Widerstand des Elektrolyten, der den Fluss der Ionen durch diesen behindert und zum anderen die Widerstände der Leitungen und leitfähigen Komponenten der Brennstoffzelle gegen den Elektronenfluss. Diese Widerstände werden in der Literatur zum Teil getrennt, als Ionenwiderstand und elektrischer Widerstand, betrachtet [7]. Im Allgemeinen genügt es aber, beide Komponenten in einem Widerstand zusammenzufassen, wobei der Elektrolyt in der Brennstoffzelle die bestimmende Komponente ist, die den höchsten Innenwiderstand hat. Nach dem Ohm'schen Gesetz folgt dann

$$V_{ohm} = i * r_{ohm} \quad (2.16)$$

2.5.3 Massentransport

Aufgrund der Umwandlungsvorgänge an der Anode und der Kathode kommt es zu einem Konzentrationsabfall der Reaktanten an den Elektroden, siehe Abbildung 2-6. Die Zufuhr der Reaktanten zur Reaktionsstätte bzw. die Abfuhr der Produkte von der Reaktionsstätte laufen zu langsam ab. Wie sehr sich diese Konzentrationsgradienten auf die Zellspannung auswirken, hängt auch davon ab, wie schnell die Reaktanten nachgefördert werden können, beim Betrieb mit Luftsauerstoff z.B. durch einen Kompressor. Die Verfügbarkeit der Reaktanten ist aber jedenfalls durch die Diffusion begrenzt. Die Konzentrationsabnahme wirkt sich bei jeglicher Belastung auf die Ausgangsspannung in Form eines Spannungsabfalls aus. Bei geringer Last minimal, bei hoher Last deutlich stärker. Im Allgemeinen wird nur der Verlust durch Massentransport an der Kathode berücksichtigt. Die Beschränkung durch den Sauerstoffmassentransport ist nämlich erheblich stärker als beim Wasserstoff, da im üblichen Betrieb der Brennstoffzelle der Sauerstoff aus der Umgebungsluft verwendet wird (Volumenanteil O_2 nur ca. 21%).

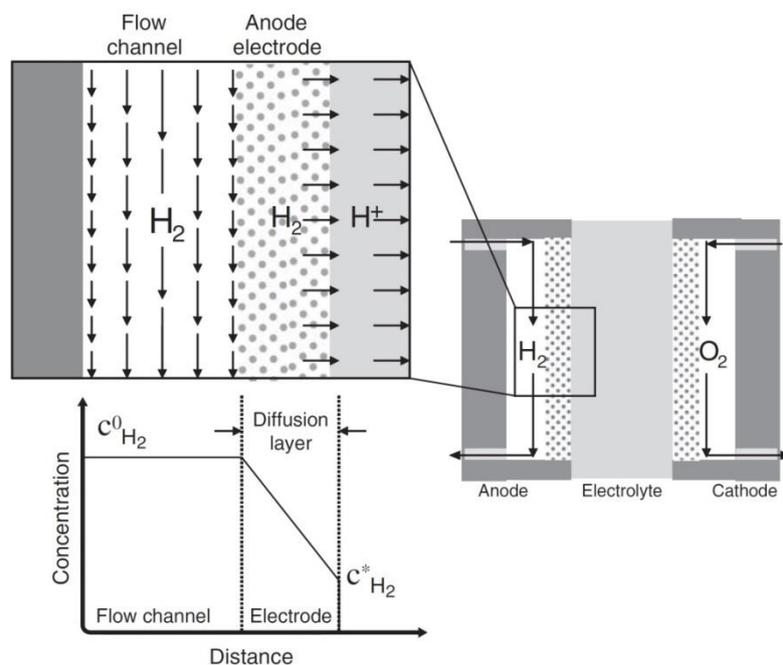


Abbildung 2-6: Schematische Darstellung der Diffusionsschicht und Konzentrationsabfall an der Anode [7]

Die reversible Zellspannung hängt, wie in Kapitel 2.4.1 Zellspannung schon beschrieben, von den Partialdrücken bzw. der Konzentrationen der Reaktanten ab. Hier kommt man also auf die bekannte *Nernst-Gleichung* zurück:

$$\Delta V = \frac{RT}{nF} \ln \left(\frac{C_B}{C_S} \right) \quad (2.17)$$

Die Konzentration C_B ist dabei die Konzentration des Reaktanten im Strömungskanal und C_S ist die Konzentration an der Elektrode.

Die Diffusionsvorgänge lassen sich am besten mit dem Fick'schen Gesetz für eindimensionale Diffusion beschreiben. Gemäß diesem Gesetz folgt für den Molenstrom N des Reaktanten, in diesem Fall des Luftsauerstoffs [1]:

$$N = \frac{D_f * (C_B - C_S)}{\delta} * A_{act} \quad (2.18)$$

Hier sind D_f der Diffusionskoeffizient, δ entspricht der Dicke der Diffusionsschicht und A_{act} ist die aktive Fläche der Elektrode.

In stationärem Zustand geht man nun davon aus, dass die Umsetzung des Reaktanten Sauerstoff in der elektrochemischen Reaktion gleich dem Diffusionsstrom aus dem Strömungskanal an die Elektrodenoberfläche ist. Der Verbrauch in Mol pro Sekunde an Sauerstoff, in Abhängigkeit vom Strom I , ist

$$N = \frac{I}{nF} \quad (2.19)$$

Setzt man (2.18) und (2.19) gleich und formt mit der Beziehung für die Stromdichte

$i = \frac{I}{A_{act}}$ auf i um, ergibt sich die Gleichung:

$$i = \frac{nF * D_f * (C_B - C_S)}{\delta} \quad (2.20)$$

Die Konzentration des Sauerstoffs an der Katalysatoroberfläche ist also abhängig von der Stromdichte. Je größer die Belastung der Brennstoffzelle, desto geringer ist die Konzentration an der Oberfläche und umgekehrt. Die Konzentration an der Oberfläche des Katalysators erreicht ein Minimum, wenn die Umwandlungsgeschwindigkeit gleich

der Diffusionsgeschwindigkeit wird, d.h. wenn der Sauerstoff die Oberfläche erreicht und sofort umgewandelt wird. Das bedeutet, dass die Oberflächenkonzentration Null wird. Diese Stromdichte ist die limitierende Stromdichte i_L .

Eine Brennstoffzelle kann nicht über den limitierenden Strom belastet werden, da keine Reaktanten mehr an der Katalysatoroberfläche vorhanden sind. In Gleichungen ausgedrückt bedeutet das mit $C_S = 0$ und $i = i_L$:

$$i_L = \frac{nF * D_f * C_B}{\delta} \quad (2.21)$$

Kombiniert man schließlich den Ausdruck für die limitierende Stromdichte (2.21) mit der Gleichung (2.20) und (2.17), lässt sich die Gleichung für die Spannungsverluste aufgrund von Konzentrationsgradienten ableiten zu:

$$V_{conc} = \frac{RT}{nF} * \ln\left(\frac{i_L}{i_L - i}\right) \quad (2.22)$$

2.5.4 Polarisationskurve

Die Ausgangsspannung oder Leerlaufspannung (OCV) der Brennstoffzelle ergibt sich nun mit den vorangegangenen Ausführungen aus der reversiblen Zellspannung abzüglich der einzelnen Spannungsverluste (2.10), (2.15), (2.16), (2.22) zu:

$$V_c = E - V_{act} - V_{ohm} - V_{conc} \quad (2.23)$$

$$V_c = E_0 - \frac{RT}{\alpha * nF} * \ln\left(\frac{i}{i_0}\right) - i * r_{ohm} - \frac{RT}{nF} * \ln\left(\frac{i_L}{i_L - i}\right) \quad (2.24)$$

Somit hat man einen Ausdruck für die Brennstoffzellenspannung in Abhängigkeit vom Strom. Die charakteristische Strom-Spannungs-Kurve einer Brennstoffzelle wird als Polarisationskurve bezeichnet. Eine solche Kurve ist beispielhaft in Abbildung 2-7 dargestellt. Darin sind außerdem auch die Leistung und der Wirkungsgrad in Abhängigkeit von der Stromdichte abgebildet. Des Weiteren sind die Thermoneutral-

spannung nach Gleichung (2.12), das Standardpotential aus Gleichung (2.7) und die Spannung nach der Nernst-Gleichung (2.10) eingezeichnet.

Die Abbildung 2-7 zeigt auch die Bereiche der Spannungsverluste, in denen sie den größten Einfluss auf die Ausgangsspannung haben. Im Bereich geringer Stromdichten bzw. Belastung der Zelle überwiegen die Aktivierungsverluste. Hier sorgt das Verhältnis aus Stromdichte und Austauschstromdichte für einen logarithmischen Abfall der Kurve. Der zweite Bereich ist der übliche Betriebsbereich der Brennstoffzelle. Der lineare Abfall der Spannungskurve wird hauptsächlich durch die Ohm'schen Verluste verursacht. Im letzten Bereich mit hohen Stromdichten bestimmen die Konzentrationsverluste die Kurve. Wie in Kapitel 2.5.3 Massentransport erläutert nähert man sich hier der Begrenzung durch die Diffusion.

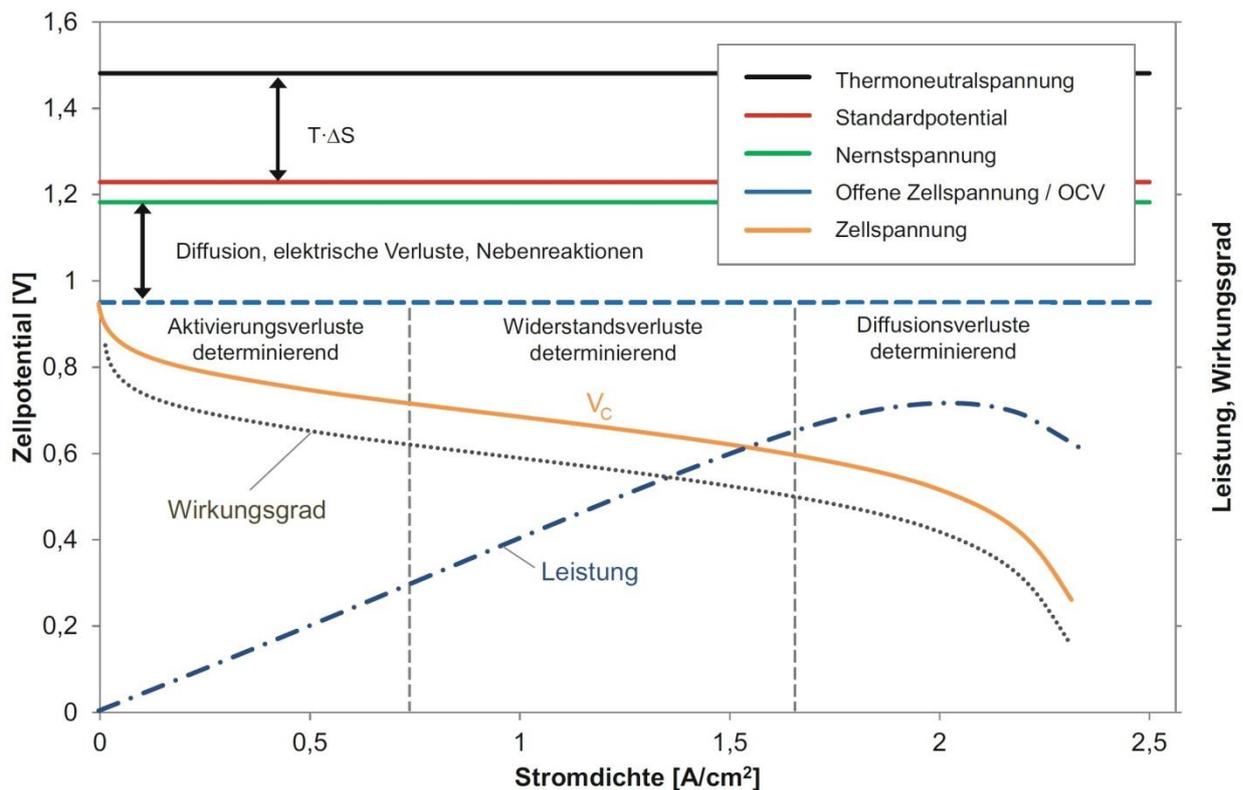


Abbildung 2-7: Strom-Spannungs-Kennlinie einer Brennstoffzelle in Anlehnung an [10]

2.5.5 Treibstoffverbrauch und Heizleistung

Der Treibstoffverbrauch bzw. die Wasserproduktion berechnen sich nach dem Faraday'schen Gesetz aus der Stoffmenge, die pro Sekunde verbraucht wird, wie in Gleichung (2.19):

$$\dot{N}_{H_2} = \frac{I}{2F} \text{ mols}^{-1} \quad (2.25)$$

$$\dot{N}_{O_2} = \frac{I}{4F} \text{ mols}^{-1} \quad (2.26)$$

$$\dot{N}_{H_2O} = \frac{I}{2F} \text{ mols}^{-1} \quad (2.27)$$

Da der Sauerstoff im üblichen Betrieb aus der Luft verwendet wird, ist der Luftverbrauch in kg/s von Interesse. Für die Berechnung benötigt man die molare Masse von Luft ($M_{Luft} = 28.97 * 10^{-3} \text{ kgmol}^{-1}$) und die Gleichung der elektrischen Leistung, umgeformt auf dem Strom:

$$\dot{m}_{Luft} = \frac{M_{Luft}}{Vol\% O_2} * \frac{P_e}{V_c * nF} \quad (2.28)$$

Mit der Berücksichtigung der Lambda-Zahl λ – auch Luftverhältnis oder Luftzahl genannt – ergibt sich schließlich für den Luftverbrauch:

$$\dot{m}_{Luft} = \frac{28.97 * 10^{-3} * P_e}{0.21 * 4 * V_c * F} * \lambda = 3.57 * 10^{-7} * \lambda * \frac{P_e}{V_c} \text{ kgs}^{-1} \quad (2.29)$$

Analog dazu ergibt sich für den Wasserstoffverbrauch mit der molaren Wasserstoffmasse ($M_{H_2} = 2.016 * 10^{-3} \text{ kgmol}^{-1}$):

$$\dot{m}_{H_2} = \frac{2.016 * 10^{-3} * P_e}{2 * V_c * F} = 1.045 * 10^{-8} * \frac{P_e}{V_c} \text{ kgs}^{-1} \quad (2.30)$$

Die Wasserproduktion in der Brennstoffzelle kann mithilfe der molaren Masse von Wasser ($M_{H_2O} = 18.02 * 10^{-3} \text{ kgmol}^{-1}$) ermittelt werden:

$$\dot{m}_{H_2O} = \frac{18.02 * 10^{-3} * P_e}{2 * V_c * F} = 9.338 * 10^{-8} * \frac{P_e}{V_c} \text{ kgs}^{-1} \quad (2.31)$$

Die produzierte Heizleistung von einem Stack mit einer Anzahl von n_z Zellen wird mittels des Stroms und der Spannung in Abhängigkeit von der Thermoneutralspannung mit gasförmigem Reaktionsprodukt Wasser berechnet:

$$Q = n_z I (1.254 - V_c) \text{ kW} \quad (2.32)$$

3. Modell der Brennstoffzelle

Die vorgestellten Formeln für die Ausgangsspannung der Brennstoffzelle aus Kapitel 2. Grundlagen liefern für einen stationären Punkt mit bestimmter Temperatur und definiertem Druck eine Polarisationskurve, aus welcher die Spannung bei einer gewählten Belastung abgelesen werden kann. Die Gleichungen beschreiben allerdings nur einen idealen Zustand und lassen sich nicht auf Messdaten einer realen Brennstoffzelle in zufriedenstellendem Maße anwenden. Aus diesem Grund wurden die bekannten Gleichungen erweitert und optimiert, um somit die Messdaten des Brennstoffzellenprüfstands der TU Wien darstellen zu können. Im Mittelpunkt standen dabei die Einbindung von Temperatur- bzw. Druckeinflüssen in Gleichungen, in denen diese nicht vorhanden waren, nach den Gesetzen der Physik und Chemie aber vorhanden sein sollten. Beispielsweise für den Fall der Temperaturänderung, beim Kaltstart der Brennstoffzelle und dem nachfolgenden Aufwärmvorgang, oder der Druckänderung bei der bedarfsabhängigen Regelung der Ladeluft benötigt man eine Verfeinerung der Gleichungen.

Die Überlegungen zur Modifizierung bzw. Erweiterung der bekannten Gleichungen basieren auf der Tabelle 3-1. Darin sind die Einflüsse der Temperatur und des Drucks und deren Intensität auf die Zellspannung und den Überspannungen bzw. Spannungsverlusten aufgeführt.

Die in den nachfolgenden Kapiteln benannten Koeffizienten wurden mit einer Ausgleichsrechnung mittels der Methode der kleinsten Quadrate (Fitting) in ihrer Größe bestimmt. Genaueres zur Ausgleichsrechnung folgt im Kapitel 3.6 Ausgleichsrechnung.

Tabelle 3-1: Einfluss von Temperatur und Druck auf die Brennstoffzellenleistung [14]

Faktor	Temperatur	Druck
E	$\Delta H < 0$ für Brennstoffzellenreaktionen. Demnach sinkt die Spannung mit einer Erhöhung der Temperatur (vgl. Gl. (2.10)). Der Effekt ist nur gering.	Siehe Gleichung (2.10): $\rightarrow E = E_0 + \frac{RT}{nF} * \ln\left(\frac{p_{H_2} p_{O_2}^{0.5}}{p_{H_2O}}\right)$
V_{ohm}	Der Widerstand wird durch die ansteigende Temperatur deutlich verringert. Die Leitfähigkeit ist ein aktivierter Prozess, welcher exponentiell mit der Temperatur zunimmt.	Effekt vernachlässigbar
V_{act}	Die Austauschstromdichte ist ein aktivierter Prozess und nimmt exponentiell mit der Temperatur zu.	Die Druckabhängigkeit ist ebenfalls mit der Formel für die Austauschstromdichte gegeben.
V_{conc}	Der Diffusionskoeffizient hängt von der Temperatur ab, die Konzentration sinkt allerdings mit der Temperaturerhöhung. Effektiv kommt es zu einem geringen Spannungsabfall mit steigender Temperatur.	Einfluss über den Partialdruck der gasförmigen Reaktanten. Somit sinken die Konzentrationsverluste mit steigendem Druck.

3.1 Leerlaufspannung

Die Leerlaufspannung erfährt nur eine geringe Modifizierung bzw. wird in Form einer in diversen Publikationen vielfach verwendeten Vereinfachung der Nernst-Gleichung modelliert. Die Ursprungsquelle dieser Formel ist [15].

$$E_{oc} = 1.229 - 0.85 * 10^{-3} * (T - T_0) + 4.3085 * 10^{-5} * T * [\ln(p_{H_2}) + 0.5 * \ln(p_{O_2})] \quad (3.1)$$

Diese Gleichung ist im Grundsatz die Nernst-Gleichung (2.10). Der Anteil „1.229“ entspricht der reversiblen Zellspannung E_0 . Der nachfolgende subtrahierte Anteil ist der Temperaturabhängigkeit geschuldet. Dazu summiert sich der Ausdruck am Ende, welcher mit „ $4.3085 * 10^{-5}$ “ dem Quotienten $\frac{R}{nF}$ aus der allgemeinen Gaskonstante und dem Produkt aus der Anzahl der beteiligten Elektronen und der Faraday-Konstante entspricht, und dem Logarithmus der Partialdrücke.

3.2 Aktivierungsverluste

Für die Brennstoffzellenmodellierung wurden die Gleichungen aus Kapitel 2.5.1 Aktivierung modifiziert. Die Gleichung (2.15) erhielt eine Erweiterung im Logarithmus durch einen konstanten Wert für die interne Stromdichte i_n , die den geringen Verlust durch den Strom quantifiziert, der über den Elektrolyten fließt. Darüber hinaus wurde der Koeffizient B eingeführt, um ihn später auch in der gleichen Form bei den Konzentrationsverlusten verwenden zu können. Damit ergibt sich für die modifizierte Aktivierungsüberspannung

$$V_{act} = B * \frac{T}{\alpha} * \ln\left(\frac{i + i_n}{i_0}\right) \quad (3.2)$$

Der Koeffizient B entspricht demnach

$$B = \frac{R}{n * F} = \frac{8.314 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}}{2 * 96485 \text{ Cmol}^{-1}} = 4.30844 * 10^{-5} \text{ JC}^{-1}\text{K}^{-1} \quad (3.3)$$

und kann in dieser Form später auch im Kapitel 3.4 Diffusionsverluste verwendet werden. Dieser Koeffizient ist mittels R , n und F unveränderlich definiert. Die Anzahl n der an der Reaktion beteiligten Elektronen ist auf 2 festgelegt. Das gilt grundsätzlich für die Anodenseite, da aus einem Wasserstoffmolekül zwei Elektronen ausgelöst werden. An der Kathodenseite werden für die Reaktion zu Wasser hingegen vier Elektronen benötigt. Da allerdings nur zwei Elektronen pro Wasserstoffmolekül über die Außenleiter wandern und elektrische Arbeit leisten können wird $n = 2$ definiert.

Der Ladungstransportkoeffizient α hängt von der Symmetrie der Aktivierungsbarriere ab, liegt aber immer zwischen 0 und 1. Außerdem werden die Ladungstransportkoeffizienten daran unterschieden, ob das Problem an der Anoden- oder Kathodenseite betrachtet wird. Grundsätzlich ist für „symmetrische“ Reaktionen $\alpha = 0.5$. Bei den meisten elektrochemischen Reaktionen liegt α für die Kathodenseite zwischen 0.2 und 0.5 [7]. In [8] werden Werte zwischen 0.1 und 0.5 genannt.

Für das Modell ergab sich nach der Anpassung an die Polarisationskurve aus Messdaten ein idealer Ladungstransportkoeffizient von

$$\alpha = 0.2107 \quad (3.4)$$

und liegt damit innerhalb der in der Literatur gegebenen Grenzen.

Die Austauschstromdichte i_0 (englisch: Exchange Current Density) in elektrochemischen Reaktionen ist vergleichbar mit der Geschwindigkeitskonstante in chemischen Reaktionen, mit dem Unterschied, dass die Austauschstromdichte konzentrationsabhängig ist [1]. Die Austauschstromdichte ist ein Maß für die „Reaktionswilligkeit“ einer elektrochemischen Reaktion. Bei einer hohen Austauschstromdichte spricht man von einer aktiveren Elektrodenoberfläche. Je höher die Austauschstromdichte also ist, desto niedriger ist die Hürde der Aktivierungsenergie die überwunden werden muss, um Ladung zu transportieren.

In der Gleichung für die Austauschstromdichte wird die Konzentration des Reaktanten über den Partialdruck ausgedrückt. Darüber hinaus fließen die Temperatur und Katalysator-Parameter, wie die katalysatorspezifische Fläche und die Katalysatorbeladung, in die Gleichung ein. Diese lautet [1]:

$$i_0 = D * \left(\frac{p_{O_2}}{p_0}\right)^\gamma * \exp\left(-\frac{Z}{T} * \left(1 - \frac{T}{T^0}\right)\right) \quad (3.5)$$

Darin enthalten sind die für die Modellierung berechneten Koeffizienten D und γ und Z . Der Koeffizient D ist das für die Optimierung des Modells zusammengefasste Produkt aus der Referenzstromdichte (bei Standardbedingungen), der katalysatorspezifischen Fläche a_c und der Katalysatorbeladung L_c :

$$D = i_{0,ref} * a_c * L_c \quad (3.6)$$

Das Produkt $a_c * L_c$ wird in der Literatur auch als Rauheit der Elektrode bezeichnet. Das Modelldaten-Fitting ergab einen Wert von

$$D = 0.1516 \text{ mAcm}^{-2} \quad (3.7)$$

Für die Referenzaustauschstromdichte $i_{0,ref}$ wird in der Literatur ein Wert von 0.003 mA/cm² angegeben. Für die katalysatorspezifische Fläche a_c werden Werte von 600-1000 cm²mg⁻¹, mit der Möglichkeit der Reduktion um bis zu weiteren 30%. Die Katalysatorbeladung L_c wird mit Werten zwischen 0.1 und 0.5 mgPtcm⁻² bemessen [1]. Mit diesen Werten aus der Literatur werden $i_{0,ref}$ und L_c wie folgt gewählt, woraus sich der Wert für a_c ergibt:

$$i_{0,ref} = 0.003 \text{ mAcm}^{-2} \quad (3.8)$$

$$L_c = 0.1 \text{ mgcm}^{-2} \quad (3.9)$$

$$a_c = 505.27 \text{ cm}^2\text{mg}^{-1} \quad (3.10)$$

Die Werte sind also in ihrer Größenordnung plausibel und der Koeffizient D somit bestätigt.

Der Exponent γ des Quotienten der Partialdrücke wird als Druckabhängigkeitskoeffizient bezeichnet. Er sollte sich bei Werten zwischen 0.5 und 1 einordnen [1]. Die Berechnung ergab einen Wert von

$$\gamma = 1.1085 \quad (3.11)$$

Der Druckabhängigkeitskoeffizient liegt leicht über den gegebenen Grenzen aus der Literatur. Dies kann aber schlicht als erhöhte Druckabhängigkeit gewertet werden und liefert für das Daten-Fitting die besten Ergebnisse.

Der dritte Koeffizient in der Formel der Austauschstromdichte (3.5) ist Z . Er definiert den Quotienten aus der Aktivierungsenergie für die Aktivierungsüberspannung $E_{a,act}$ und der allgemeinen Gaskonstante R und ergab im Zuge der Anpassungsberechnungen:

$$Z = \frac{E_{a,act}}{R} = 4903.8125 \text{ K} \quad (3.12)$$

Da der allgemeinen Gaskonstante R ein fester Wert zugeordnet ist, ergibt sich für die Aktivierungsenergie:

$$E_{a,act} = 40.7703 \text{ kJmol}^{-1} \quad (3.13)$$

Typische Werte für Aktivierungsenergien von chemischen Reaktionen liegen zwischen 30 und 100 kJ/mol [16]. In diesem Bereich liegt auch die Aktivierungsenergie des Modells und ist damit als sinnvolles Ergebnis anzusehen.

Die Referenzwerte der Standardbedingungen sind wie folgt definiert [7]:

$$p_0 = 0.21 \text{ bar} \quad (3.14)$$

$$T_0 = 298.15 \text{ K} \quad (3.15)$$

3.3 Ohm'sche Verluste

Die Leitfähigkeit des Elektrolyten ist stark von der Temperatur abhängig. Daher ist der Widerstand r_{ohm} , aufgrund des in ihm enthaltenen Ionenwiderstands, ebenfalls einer großen Temperaturabhängigkeit unterworfen. Das Verhalten der Leitfähigkeit mit steigender Temperatur ist ein komplexes System mehrerer Faktoren. Für die Modellierung erwies sich ein Arrhenius-Ansatz als ausreichend genaue Beschreibung des Temperatureinflusses [14].

Die Leitfähigkeit mittels Arrhenius-Ansatz lautet somit:

$$\kappa = \kappa_0 * \exp\left(\frac{E_{a,cond}}{RT}\right) \quad (3.16)$$

$E_{a,cond}$ ist hier die Aktivierungsenergie für die Leitfähigkeitsüberspannung. Sie hat nicht denselben Zahlenwert wie die in Kapitel 3.2 Aktivierungsverluste genannte Aktivierungsenergie der Aktivierungsüberspannung.

Der Ansatz für die Leitfähigkeit (3.16) wird in die Formel für den spezifischen Widerstand eines Leiters, Länge des Leiters L dividiert durch die Leitfähigkeit κ , eingesetzt:

$$r_{ohm} = \frac{L}{\kappa} = \frac{L}{\kappa_0 * \exp\left(\frac{E_{a,cond}}{RT}\right)} \quad (3.17)$$

Diese Formel wurde mithilfe der Vereinfachung durch zwei Koeffizienten abgewandelt und besteht nun in der Modellierung in der Form:

$$r_{ohm} = \frac{M}{\exp\left(-\frac{N}{T}\right)} \quad (3.18)$$

Woraus klar ersichtlich ist, dass die Koeffizienten M und N die folgenden Gleichungsteile wiedergeben:

$$M = \frac{L}{\kappa_0} \quad (3.19)$$

$$N = \frac{E_{a,cond}}{R} \quad (3.20)$$

Die Spannungsverluste durch den Ohm'schen Widerstand berechnen sich nun also zu:

$$V_{ohm} = i * r_{ohm} = i * \frac{M}{\exp\left(-\frac{N}{T}\right)} \quad (3.21)$$

Der Einfluss der Temperatur ist somit in den Ohm'schen Spannungsverlusten integriert, wie in Tabelle 3-1 gefordert. Der Druck hat einen vernachlässigbar kleinen Einfluss auf den Ohm'schen Widerstand der leitfähigen Komponenten der Brennstoffzelle.

Für die Koeffizienten wurden nach der Berechnung folgende Werte als optimal angesehen:

$$M = 2.0062 * 10^{-7} \text{ k}\Omega\text{cm}^2 \quad (3.22)$$

$$N = 1924.9933 \text{ K} \quad (3.23)$$

Zur Kontrolle der Größenordnungen der Ergebnisse wird die Länge des Leiters L als die Dicke des Elektrolyten betrachtet. Im Modell wird diese Dicke mit 50 μm [14] angenommen. Daraus ergibt sich dann die Referenzleitfähigkeit zu

$$\kappa_0 = 24.9226 \text{ S}\text{cm}^{-1} \quad (3.24)$$

und die Aktivierungsenergie der Leitfähigkeitsüberspannung zu

$$E_{a,cond} = 16.0044 \text{ kJmol}^{-1} \quad (3.25)$$

Daraus lässt sich, zur Kontrolle der Plausibilität der Modellwerte, die Leitfähigkeit bei einer Temperatur von 25 °C mittels Arrhenius-Ansatz aus Gleichung (3.16) berechnen:

$$\begin{aligned}\kappa &= \kappa_0 * \exp\left(\frac{E_{a,cond}}{RT}\right) \\ &= 24.9226 \text{ Scm}^{-1} * \exp\left(\frac{16004.4 \text{ Jmol}^{-1}}{8.314 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1} * 298 \text{ K}}\right) \quad (3.26) \\ &= 0,039 \text{ Scm}^{-1}\end{aligned}$$

Typische Werte für die Protonenleitfähigkeit des Elektrolyten liegen zwischen 0.005 und 0.12 S/cm [6], [9], [11], [12], siehe auch Abbildung 3-1. Die Leitfähigkeit für Protonen hängt neben der Temperatur auch vom Wassergehalt in der Membran ab. Dieser Einfluss blieb bei der Modellierung aber unberücksichtigt, um die Komplexität möglichst gering zu halten. Der Zahlenbereich für die Aktivierungsenergie der Leitfähigkeitsüberspannung $E_{a,cond}$ kann stark variieren, liegt aber im Kilojoule-Bereich und ist damit nach [14] sehr gut geeignet.

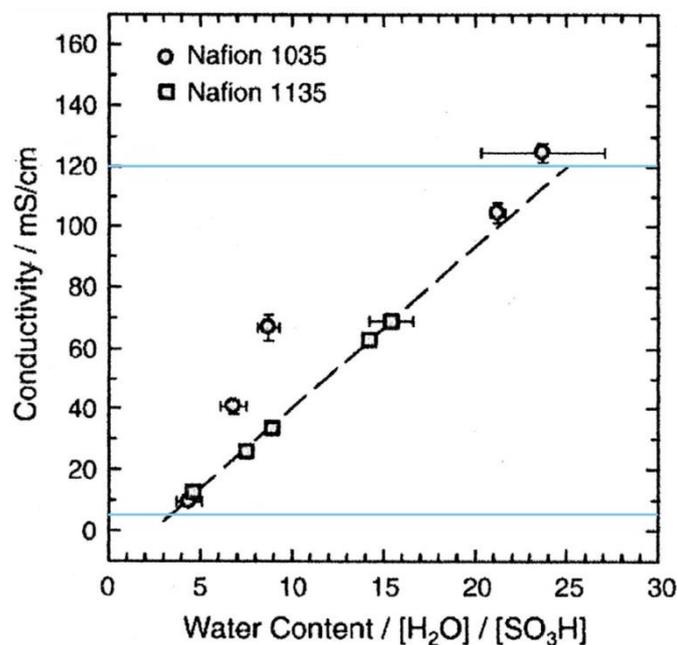


Abbildung 3-1: Protonenleitfähigkeit von Nafion-Membranen als Funktion der Wasserbeladung in Anlehnung an [11]

3.4 Diffusionsverluste

Die Verluste durch den Massentransport werden ausgehend von der bereits in Kapitel 2.5.3 Massentransport vorgestellten Formel (2.22) modelliert. Sie lautet in der modifizierten Form:

$$V_{conc} = B * \ln\left(\frac{i_L}{i_L - i}\right) \quad (3.27)$$

Für die Modellierung wurde der konstante Anteil zu einem Koeffizienten B zusammengefasst, welcher in dieser Form auch bei den Aktivierungsverlusten verwendet wurde:

$$B = \frac{R}{n * F} = 4.30844 * 10^{-5} \text{ JA}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1} \quad (3.28)$$

Laut den Angaben in Tabelle 3-1, welche der gesamten Modellierung zugrunde liegen, steht der Massentransport unter dem Einfluss von Temperatur und Druck. Die Einbindung des Druckes erfolgt über den Partialdruck des Sauerstoffs.

In der Annahme eines idealen Gases gilt für die Konzentration c_i eines Stoffes i :

$$c_i = \frac{p_i}{RT} \quad (3.29)$$

Somit wird aus der Gleichung (2.21)

$$i_L = \frac{nF * D_f * p_i}{\delta * RT} \quad (3.30)$$

Die limitierende Stromdichte i_L wurde für das Messdaten-Fitting so abgeändert, dass die konstanten „Unbekannten“ in einem Koeffizienten zusammengefasst sind. Damit ist nur die Abhängigkeit von den variierenden Anteilen Druck und Temperatur gegeben.

Die limitierende Stromdichte ist demnach nun:

$$i_L = C * \frac{p_i}{T} \quad (3.31)$$

Mit dem Parameter C für die Diffusionsvorgänge (vgl. mit Gleichung (3.30)):

$$C = \frac{n * F * D_f}{\delta * R} \quad (3.32)$$

Die Optimierung ergab, dass der Koeffizient C eine Größe verlangt von

$$C = 222.2209 \text{ AKN}^{-1} \quad (3.33)$$

Die Überprüfung, ob die Größenordnung von C akzeptabel für das Modell ist, erfolgt mit den vorgegebenen Konstanten n , F und R , welche dem Kehrwert von B entsprechen. Daher bedarf es nur einer Kontrolle der Parameter der Diffusion. Diese liegen typischerweise für D_f um $10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$ und für δ zwischen 100 und 300 μm [7]. Tatsächlich ergaben sich für die Modellierung die optimalen Werte

$$\frac{D_f}{\delta} \sim 0.009574 \text{ ms}^{-1} \quad (3.34)$$

$$D_f \sim 0,01915 \text{ cm}^2\text{s}^{-1} \quad (3.35)$$

$$\delta = 200 \mu\text{m} \quad (3.36)$$

Aus der Gleichung (3.34) kann man erkennen, dass sich die Wahl der Dicke der Diffusionsschicht δ auf die Größe des Diffusionskoeffizienten D_f auswirkt. Für die Modellierung wurde $\delta = 200 \mu\text{m}$ gewählt. Der sich dafür ergebende Diffusionskoeffizient D_f bestätigt die getroffene Wahl der Dicke der Diffusionsschicht. Beide Werte liegen im Bereich der Angaben für typische Größenordnungen aus der Literatur.

3.5 Ausgangsspannung

Die Ausgangsspannung ergibt sich analog zur Gleichung (2.23) aus der Leerlaufspannung abzüglich der Verluste. In der Langform, um alle modellierten Koeffizienten und die Temperatur- und Druckeinflüsse darzustellen, lautet die Formel:

$$\begin{aligned}
 V_c = & 1.229 - 0.85 \cdot 10^{-3} \cdot (T - T_0) + 4.3085 \cdot 10^{-5} \cdot T \\
 & * [\ln(p_{H_2}) + 0.5 \cdot \ln(p_{O_2})] - \frac{B}{\alpha} \cdot T \\
 & * \ln \left(\frac{i + i_n}{D * \left(\frac{p_{O_2}}{p_{ref}}\right)^{\gamma} * \exp\left(-\frac{z}{T} * \left(1 - \frac{T}{T_{ref}}\right)\right)} \right) - i * \frac{M}{\exp\left(-\frac{N}{T}\right)} - B \\
 & * T * \ln \left(\frac{C * \frac{p_i}{T}}{C * \frac{p_i}{T} - i} \right)
 \end{aligned} \quad (3.37)$$

3.6 Ausgleichsrechnung

Die angegebenen Werte für die Koeffizienten, aus den vorangegangenen Abschnitten des dritten Kapitels, sind das Ergebnis einer Ausgleichsrechnung (englisch: Curve Fitting bzw. Fitting) mittels der Methode der kleinsten Quadrate. Für detailliertere Informationen zur Methode der kleinsten Quadrate wird auf die Literatur verwiesen [17].

Die Messdaten vom Brennstoffzellenprüfstand liegen für verschiedene Betriebsfälle in Form von Spannungs- und Strom-Werten vor. Die Laststeuerung der Brennstoffzelle erfolgte über den Strom, d.h. für festgelegte Ströme wurden die ausgegebenen Spannungen gemessen. Der Strom wurde stufenweise verändert und in jeder Laststufe solange gehalten, bis sich ein stationärer Zustand einstellte. Für die Ermittlung der Spannungswerte wurde ein Zeitfenster von 5 Sekunden am Ende der gehaltenen Stromstufe gewählt. Der Mittelwert der schwankenden Spannungswerte, aus diesem Zeitfenster des stationären Bereichs, ergab den angegebenen Spannungswert der Messung. Diese Spannungswerte wurden für die Ausgleichsrechnung durch die Anzahl der Zellen (96) dividiert, um die gemittelte Spannung einer Einzelzelle zu erhalten. Die unterschiedenen Fälle und Lastpunkte können in Tabelle 3-2 eingesehen werden.

Für die Methode der kleinsten Quadrate wurden die Spannungen für das Modell aus der Gleichung (3.37) für jeden einzelnen Lastpunkt eines Betriebsfalls (Tabelle 3-2) ermittelt. Mit diesen Modellwerten und den gemittelten Spannungen für die Einzelzelle aus den Messwerten wurde dann die Residuenquadratsumme $\sum R_s^2$ berechnet, d.h. die Summe der quadrierten Differenzen zwischen Messwerten und Berechnungswerten gebildet. Diese Summe galt es schließlich zu minimieren. Die Minimierung der Summe konnte durch die Variation der Koeffizienten C , D , α , γ , M , N , und Z (siehe vorige Kapitel) erreicht werden, unter Berücksichtigung der durch die Literatur gegebenen Wertebereiche. Die gesamte Berechnung wurde im Tabellenkalkulationsprogramm Microsoft Excel durchgeführt. Für die Minimierung wurde das Add-In Programm „Solver“ von Microsoft Excel verwendet.

Tabelle 3-2: Fallunterscheidungen der Messdaten

Fall	Druck / Drosselklappe	Temperatur	λ	Messpunkte [A]
1 – Hochdruck	erhöhter Luftdruck, Drosselklappe zu	55 °C	1.5	50, 120, 180, 260, 340, 400
2 – Standard	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	55 °C	1.5	50, 120, 180, 270, 340, 400
3 – heiß	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	60 °C	1.5	50, 120, 180, 260, 340, 400
4 – kühl	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	50 °C	1.5	50, 120, 180, 270, 340, 400
5 – Aufheizen 3	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	40 °C	>1.5	50, 120, 180, 270
6 – Aufheizen 2	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	30 °C	>1.5	50, 120, 180, 210
7 – Aufheizen 1	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	20 °C	>1.5	50, 120, 180
8 – Lambda 1.7	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	55 °C	1.7	50, 120, 180, 260, 340, 400
9 – Lambda 1.3	geringer Luftdruck, Drosselklappe offen	55 °C	1.3	50, 120, 180, 260, 340, 400

Die Messdaten enthalten neben den Strom- und Spannungswerten auch Daten eines Luftkompressors. So wurden im Zuge der Berechnungen das Druckverhältnis und der Luftmassenstrom verwendet. Außerdem enthielten die Messungen auch Informationen über den Druckverlust in der Brennstoffzelle in Form von Druckwerten vor und nach der Zelle. Im Sinne der Eindimensionalität wurden für die Berechnung die gemittelten Drücke zwischen Eingang und Ausgang der Luftversorgung der BZ verwendet. Mit dem Volumenanteil an Sauerstoff in der Luft und dem Druckverhältnis des Kompressors konnte der gemittelte Sauerstoffpartialdruck für jeden Lastfall errechnet werden. Der Einfluss des Luftverhältnisses Lambda wurde über den prozentualen Verbrauch berücksichtigt. Bei Standard-Lambda von 1.5 sind demnach 150 % des benötigten Luftsauerstoffs am Eingang verfügbar und bis zum Ausgang werden 100% davon verbraucht. Somit ist am Ausgang nur noch ein Drittel des ursprünglichen Sauerstoffs in der Luft vorhanden. Mithilfe des berechneten Sauerstoffpartialdrucks und dem

Verbrauch in Abhängigkeit vom Luftverhältnis wurde schließlich der gemittelte Sauerstoffpartialdruck in der Brennstoffzelle ermittelt. Es wurde also die vereinfachende Annahme getroffen, dass in der Brennstoffzelle überall der gleiche Sauerstoffpartialdruck vorherrscht.

Die Ausgleichsrechnung führte schließlich zu zwei möglichen Lösungen, eine mathematisch optimale Lösung mit minimaler Residuenquadratsumme und eine optimale Lösung für die Modellierung des Hochdruck-Falls 1 (siehe [Tabelle 3-2](#)). Die beiden Lösungen unterscheiden sich im Wesentlichen dadurch, dass die mathematisch optimale Lösung für hohe Lastpunkte höhere Spannungen aus der Gleichung (3.37) für den Fall 1 ausgibt. Mögliche Ursachen dafür können die getroffenen Vereinfachungen in Bezug auf die gemittelten Partialdrücke und die Temperatur in der Brennstoffzelle sein. Der Fall 1 ist aber für die späteren Analysen mittels Simulation der relevante Fall und würde dadurch zu optimistische Ergebnisse liefern. Daher wurde eine zweite Lösung erarbeitet, welche die Strom-Spannungs-Kurve des Modells jener der Messdaten für den Fall 1 möglichst nahe kommen und gleichzeitig die Residuenquadratsumme nur geringfügig vom Minimum abweichen lässt. Diese Abweichung äußert sich beim gemittelten relativen Fehler aller Modellpunkte gegenüber den Messpunkten in einer Veränderung von lediglich 0.04 %. Die in den Kapiteln [3.2](#) bis [3.4](#) angeführten Werte für die Koeffizienten sind jene der optimalen Lösung für den Fall 1, siehe auch [Tabelle 3-3](#).

Tabelle 3-3: Werte der Koeffizienten als Ergebnisse der Optimierung

Koeffizient	Minimum	Fall 1
C	224.4522	222.2209
D	0.1152	0.1516
α	0.2235	0.2107
γ	1.6751	1.1085
M	$1.9518 * 10^{-7}$	$2.0062 * 10^{-7}$
N	2010.0824	1924.9933
Z	5525.7777	4903.8125
$\sum R_s^2$	0.0023508	0.0027563

3.7 Ergebnisse der Modellierung

Die Ergebnisse der Modellierung und Ausgleichsrechnung für die einzelnen Betriebsfälle sollen hier dargestellt werden. Dabei handelt es sich um die optimale Lösung für den Fall 1. Die Abbildung 3-2 zeigt die Fälle 1 und 2. Dabei sind die Messdaten als Punkte und die berechneten Punkte des Modells als Ausgleichskurve mit geraden Linien zwischen den Punkten. Analog erfolgen die Darstellung der Fälle 3 und 4 in Abbildung 3-3, sowie 5, 6 und 7 in Abbildung 3-4 und 8 und 9 in Abbildung 3-5.

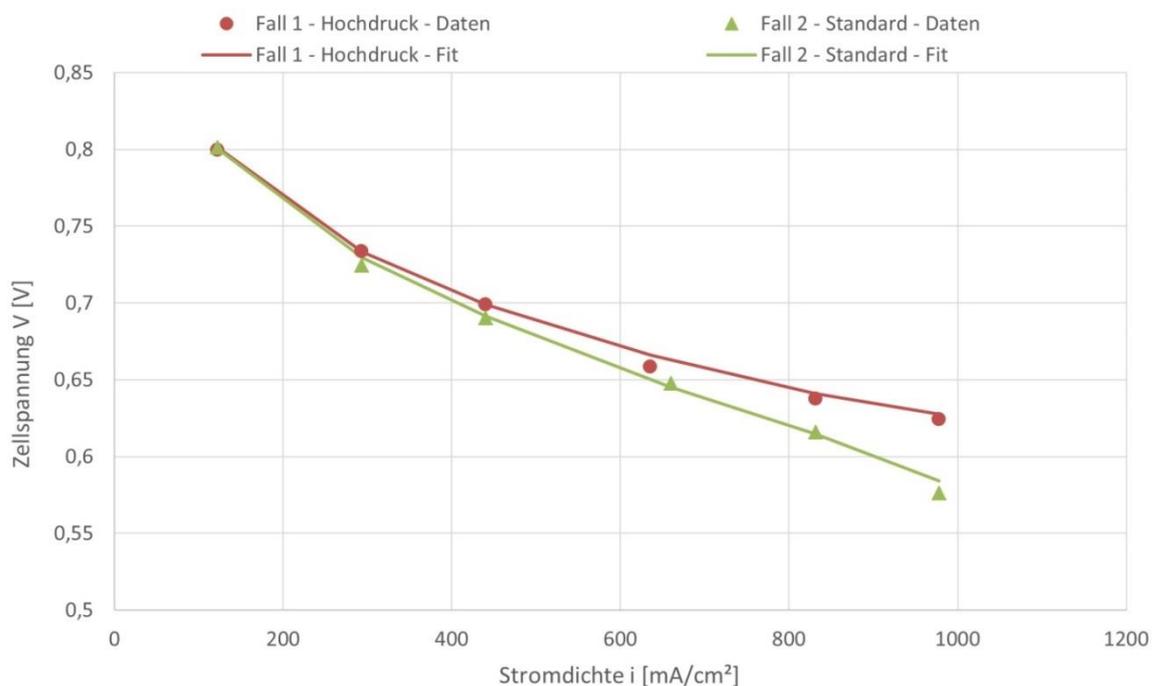


Abbildung 3-2: Zellspannung in Abhängigkeit von der Stromdichte der Messdaten (Daten) und als Ergebnis der Ausgleichsrechnung (Fit) für die Betriebsfälle 1 – Hochdruck und 2 – Standarddruck

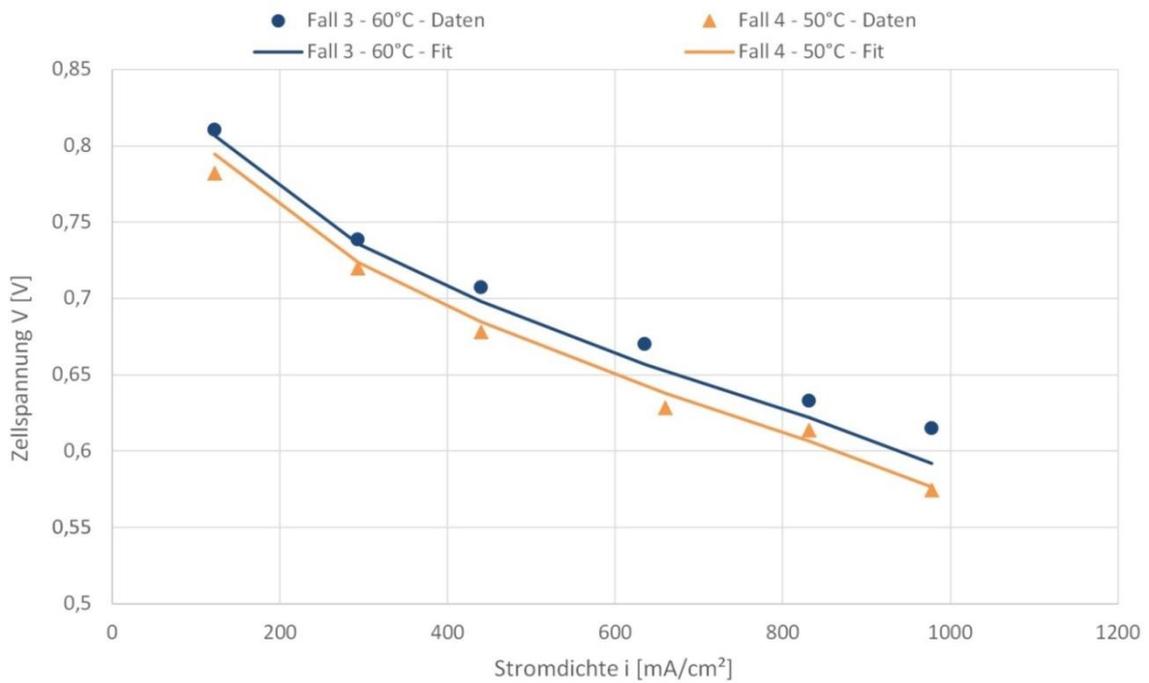


Abbildung 3-3: Zellspannung in Abhängigkeit von der Stromdichte der Messdaten (Daten) und als Ergebnis der Ausgleichsrechnung (Fit) für die Betriebsfälle 3 – 60°C und 4 – 50°C

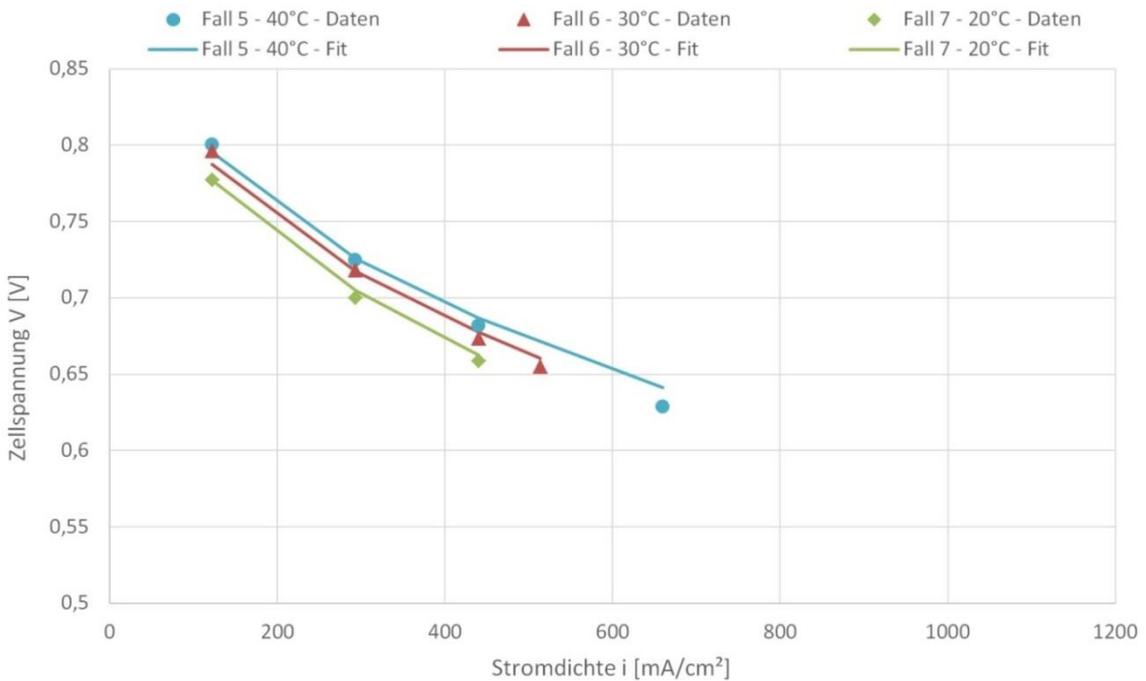


Abbildung 3-4: Zellspannung in Abhängigkeit von der Stromdichte der Messdaten (Daten) und als Ergebnis der Ausgleichsrechnung (Fit) für die Betriebsfälle 5 – 40°C, 6 – 30°C und 7 – 20°C

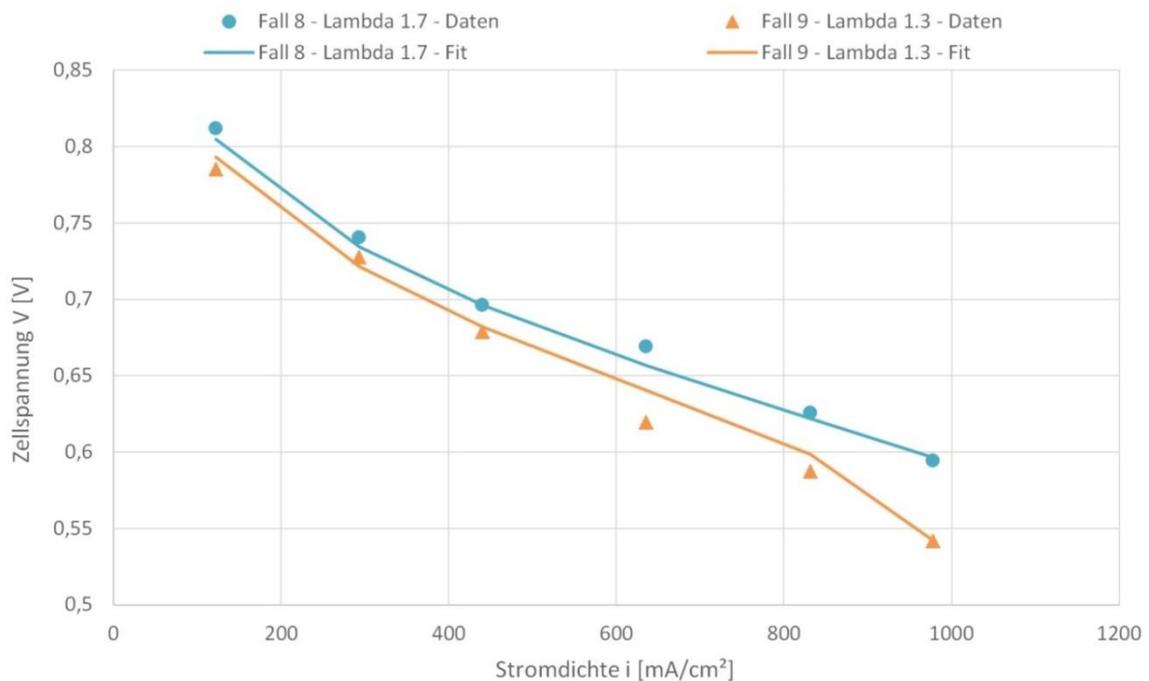


Abbildung 3-5: Zellspannung in Abhängigkeit von der Stromdichte der Messdaten (Daten) und als Ergebnis der Ausgleichsrechnung (Fit) für die Betriebsfälle 8 – Lambda 1.7 und 9 – Lambda 1.3

Die Abweichungen von den realen Messwerten sind dabei gering. Die prozentualen relativen Fehler sind für die einzelnen Punkte und die jeweiligen Fälle gemittelt berechnet worden. Dazu wurde der gemittelte relative Gesamtfehler in Prozent bemessen. Diese Ergebnisse sind in Tabelle 3-4 angeführt. Der minimale Fehler des Modells liegt dabei in Fall 9 beim Messpunkt ($V_c = 0.542 \text{ V}$, $i = 978 \text{ mAcm}^{-2}$) bei lediglich 0.007 %. Den maximalen Fehler erreicht das Modell beim Messpunkt ($V_c = 0.615 \text{ V}$, $i = 978 \text{ mAcm}^{-2}$) des Falls 3 mit einer Größe von 3.761 %. Dadurch erhält man im Fall 3 auch den höchsten gemittelten relativen Fehler aller Fälle mit 1.595 %. Der kleinste gemittelte relative Fehler aller Betriebsfälle liegt bei Fall 1 mit 0.407 % vor. Damit sind auch die Voraussetzungen für die weiteren Analysen mittels Simulation mit den Betriebsbedingungen von Fall 1 ideal und die Ergebnisse sollten dementsprechend aussagekräftig sein. Der gemittelte relative Fehler aller Modellpunkte gegenüber den Messpunkten liegt bei 0.861 %.

Tabelle 3-4: Ergebnisse der Fehlerrechnung

Fall	relativer Fehler
1 – gesamt	0.407 %
2 – gesamt	0.483 %
3 – gesamt	1.595 %
Maximum Messpunkt – 3	3.761 %
4 – gesamt	1.020 %
5 – gesamt	0.864 %
6 – gesamt	0.677 %
7 – gesamt	0.418 %
8 – gesamt	1.267 %
9 – gesamt	0.737 %
Minimum Messpunkt – 9	0.007 %
Gesamt	0.861 %

4. Modellierung der Brennstoffzelle mittels Simulationssoftware GT-Suite

Die Modellierung der Brennstoffzelle erfolgte auf der Grundlage eines bestehenden Gesamtfahrzeugmodells mit Brennstoffzellenantrieb. Dieses Modell beinhaltet die Modellierung der mechanischen, elektrischen und elektronischen Komponenten eines Brennstoffzellenfahrzeugs. Zu den elektrischen Komponenten gehören zwei E-Maschinen für den Antrieb, jeweils eine an der Vorder- und Hinterachse. Außerdem ist eine Traktionsbatterie im Fahrzeug vorhanden.

4.1 Brennstoffzellensystem

Im bestehenden Modell wurde die Brennstoffzelle allein durch einen „Leistungsblock“ dargestellt, welcher nur den Leistungsbedarf des Systems direkt als gelieferte BZ-Leistung ausgibt. Der Leistungsbedarf dabei ist mit einer unteren Einschaltswelle von 4 kW und einer maximalen Leistung von 30 kW definiert. Wichtige Betriebsparameter wie Druck, Temperatur und die Massenströme hatten im alten Modell somit keinen Einfluss auf die abgegebene Leistung. Daher war ein Teil der Aufgabenstellung, die Brennstoffzelle detailreich neu zu gestalten. Eine Darstellung des gesamten neu modellierten Systemaufbaus ist in Abbildung 4-1 zu sehen. Darin sind außerdem die später folgenden Detaildarstellungen der Zellspannungs- und Leistungsberechnung, des Luftmanagements und des Thermomanagements markiert.

Der Leistungsblock wurde beibehalten und liefert nun den Leistungsbedarf für die Brennstoffzelle. Die BZ-Leistung wird mittels eines PI-Reglers auf den Leistungsbedarf geregelt. Der Leistungsbedarf wird mittels der Zellenanzahl und der aktiven Zellfläche auf die Leistungsdichte umgerechnet. Aus dem Quotienten der Leistungsdichte und der Zellspannung erhält man die Stromdichte. Der Stromdichtebedarf wird dann über einen Block, der die maximale Stromdichte nach Herstellerangaben begrenzt, an die Blöcke der Spannungsverluste weitergegeben. Diese Berechnungsblöcke sind u.a. in der Abbildung 4-2 dargestellt.

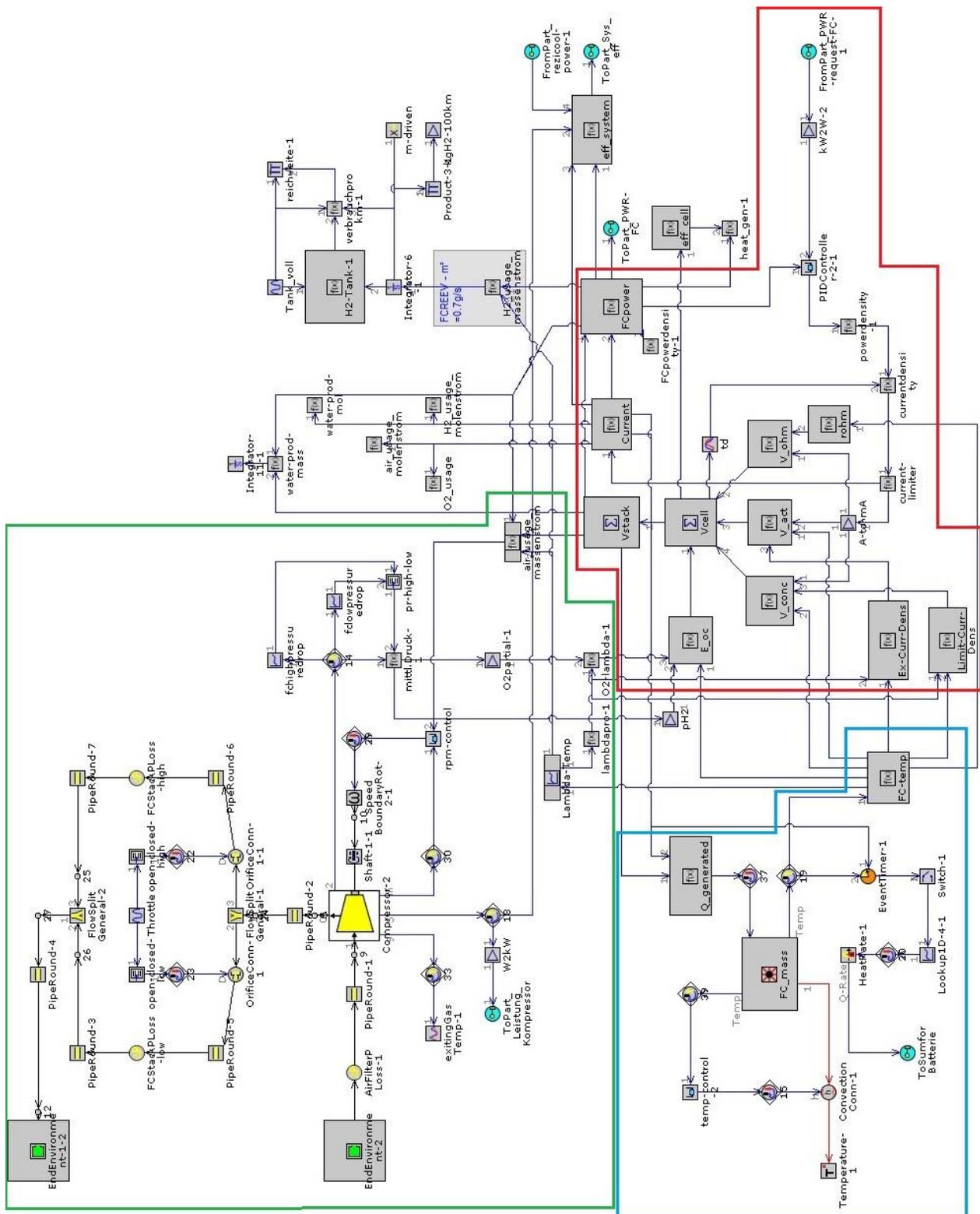


Abbildung 4-1: Modellierung des Brennstoffzellensystems in *GT-Suite*. Die markierten Bereiche werden als Detailansichten in [Abbildung 4-2](#) (rot), [Abbildung 4-3](#) (grün), [Abbildung 4-7](#) (blau) dargestellt.

Die Modellierung der Brennstoffzelle erfolgte mittels in *GT-Suite* zur Verfügung stehenden *MathEquation*-Blöcken. Damit kann eine mathematische Funktion definiert werden. Mithilfe dieser Funktionsblöcke wurden die Formeln für die Spannungen des Kapitels 3. Modell der Brennstoffzelle im Modell eingefügt und mit den Werten für die Koeffizienten aus der Ausgleichsrechnung ergänzt. Dabei wurde jeweils ein Block für die Leerlaufspannung und die einzelnen Verluste erstellt und schließlich in einem *Sum*-Block zur Ausgangsspannung aufsummiert, siehe Abbildung 4-2. In die jeweiligen Funktionsblöcke fließen die benötigten Parameter von Druck, Temperatur und, bei den Diffusions- bzw. Aktivierungsverlusten, die limitierende Stromdichte bzw. Austauschstromdichte ein. Die limitierende Stromdichte und die Austauschstromdichte sind jeweils in einem eigenen Funktionsblock unter der Berücksichtigung der Temperatur und des Drucks berechnet. In den Ohm'schen Spannungsverlust fließt außerdem der Ohm'sche Widerstand in Abhängigkeit der aktuellen Temperatur ein.

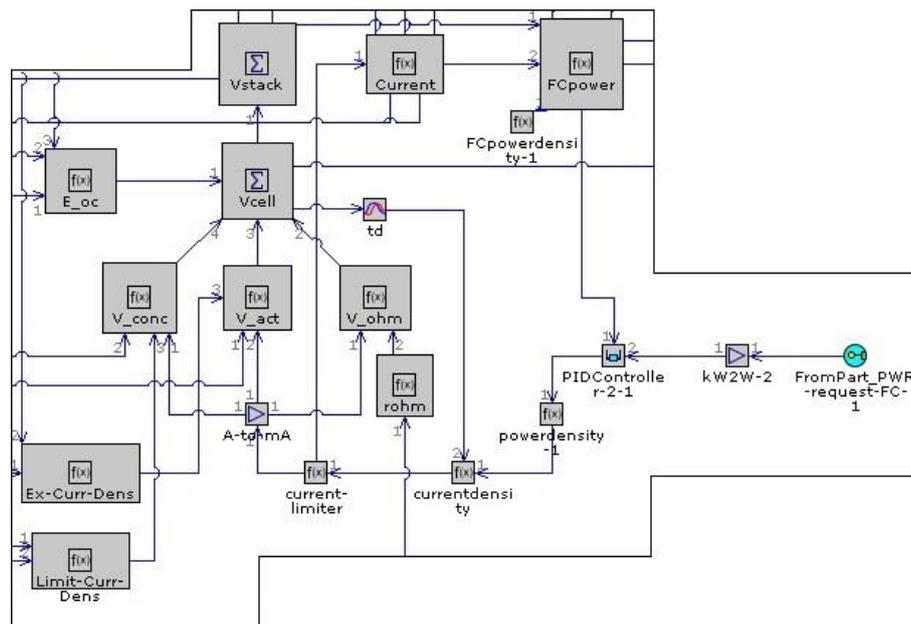


Abbildung 4-2: Funktionsblöcke für die Zellspannungs- und Leistungsberechnung, geregelt nach dem Leistungsbedarf

Die Spannung des gesamten Stacks wird aus der Zellspannung multipliziert mit der Zellenanzahl berechnet. Aus dem Stromdichtebedarf multipliziert mit der aktiven Fläche der Brennstoffzellenmembran wird dann, unter Berücksichtigung der Begrenzung des

maximalen Stroms auf 500 A, der gelieferte Strom der Brennstoffzelle berechnet. Mit dem Strom können dann die Verbräuche an Sauerstoff und Wasserstoff und die produzierte Menge an Wasser, nach Kapitel 2.5.5 Treibstoffverbrauch und Heizleistung, ermittelt werden. Der Wasserstoffverbrauch wird dann auf den Verbrauch in kg pro 100 km umgerechnet. Außerdem wird der Verbrauch vom Inhalt des modellierten Tanks subtrahiert.

4.1.1 Luftmanagement

Der Luftverbrauch in kg/s wird aus Stackspannung, dem Leistungsbedarf und der Lambda-Zahl nach der Gleichung (2.29) berechnet. Die Lambda-Zahl wird dabei anhand der aktuellen Stacktemperatur ausgewählt. Die temperaturabhängige Lambda-Auswahl wird in Kapitel 4.1.2 Thermomanagement erläutert.

Mit dem Luftverbrauch erfolgt mittels eines PI-Reglers die Drehzahlregelung eines Luftkompressors. Somit liefert der Kompressor anhand des berechneten Luftverbrauchs den benötigten Luftmassenstrom. Der Luftkompressor greift auf ein hinterlegtes Kompressorkennfeld zurück, welches aus den Messdaten des Kompressors am Prüfstand der TU Wien aufgebaut wurde. Die Kompressorleistung wird daraus von *GT-Suite* automatisch berechnet und fließt in den Summenblock für den aktuellen Leistungsbedarf mit ein. Die Detailansicht des Luftmanagementsystems ist in Abbildung 4-3 dargestellt. Darin sind auch die Detailansichten der Drosselklappenmodellierung (rot) sowie der Berechnung des Sauerstoffpartialdrucks (grün) markiert.

Die Messdaten des Brennstoffzellenprüfstandes reichen bis zu einer Belastung von 400 A. Darüber beginnt der Überlastbereich bis zu einem maximalen Strom von 500 A. In diesem Bereich sollte nur kurzzeitig belastet werden, da dies zur Degradation bzw. Alterung der Brennstoffzelle führen kann. Dementsprechend wurden die Messungen nur bis 400 A durchgeführt, wodurch der Bereich bis 500 A in der Simulation mithilfe der Modellierung betrachtet werden kann. Für den Überlastbereich sind folglich auch keine Daten des Luftkompressors (Druckverhältnis, Massenstrom etc.) vorhanden. Daher wurde das zuvor für den normalen Betriebsbereich angenäherte Kompressorkennfeld zu höheren Druckverhältnissen und Massenströmen hin erweitert.

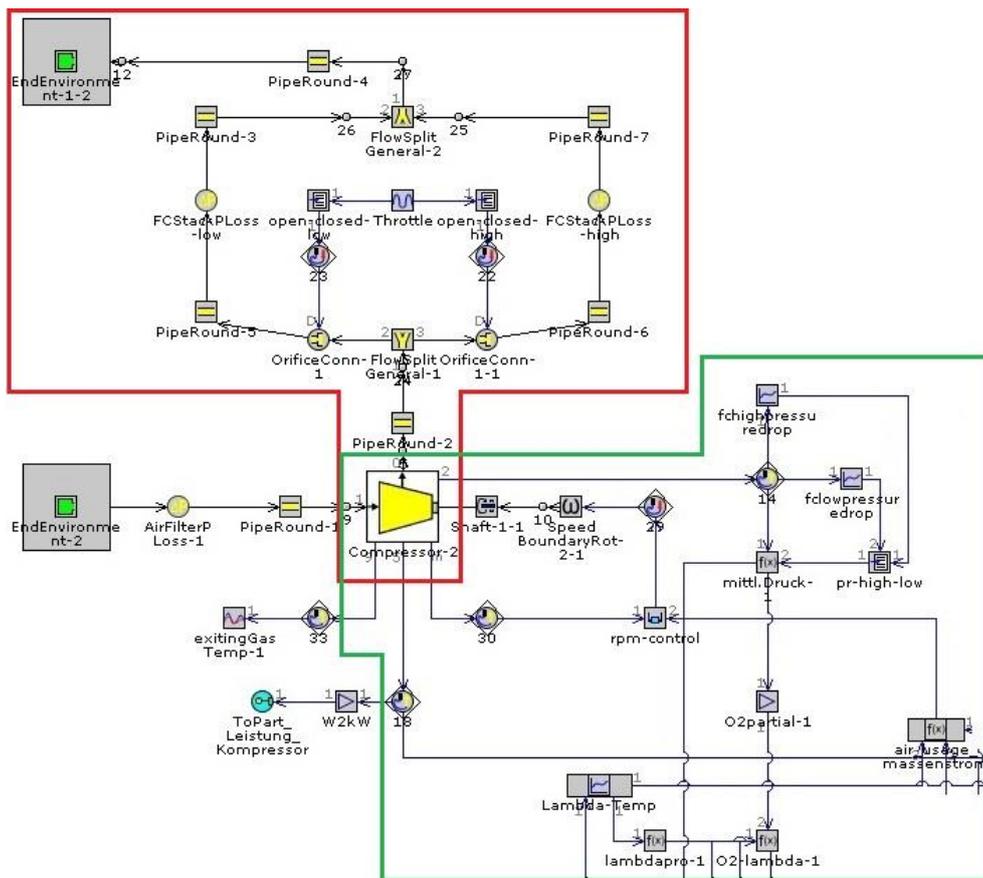


Abbildung 4-3: Luftmanagementsystem der Brennstoffzelle. Die markierten Bereiche werden als Detailansichten in [Abbildung 4-5](#) (rot) und [Abbildung 4-6](#) (grün) dargestellt.

Die Erweiterung erfolgte grafisch anhand von typischen Kompressorkennfeldern und dem vom Hersteller bereitgestellten Standard-Kennfeld. Das Kompressorkennfeld ist in [Abbildung 4-4](#) dargestellt. Darin sind die Punkte der Messdaten für den Hochdruckfall (grüne Dreiecke) und für den Fall mit niedrigem Druck (rote Quadrate) gekennzeichnet. Die Erweiterung des Kompressorkennfeldes umfasst die Druckverhältnis-Massenstrom-Punkte auf den Drehzahllinien von 66000 Umin^{-1} und, der maximalen Drehzahl laut Hersteller, von 70000 Umin^{-1} . Die Werte der Wirkungsgrade für die Messpunkte wurden aus dem Datenblatt des Herstellers entnommen bzw. für die Erweiterung aus den vorhandenen Daten extrapoliert.

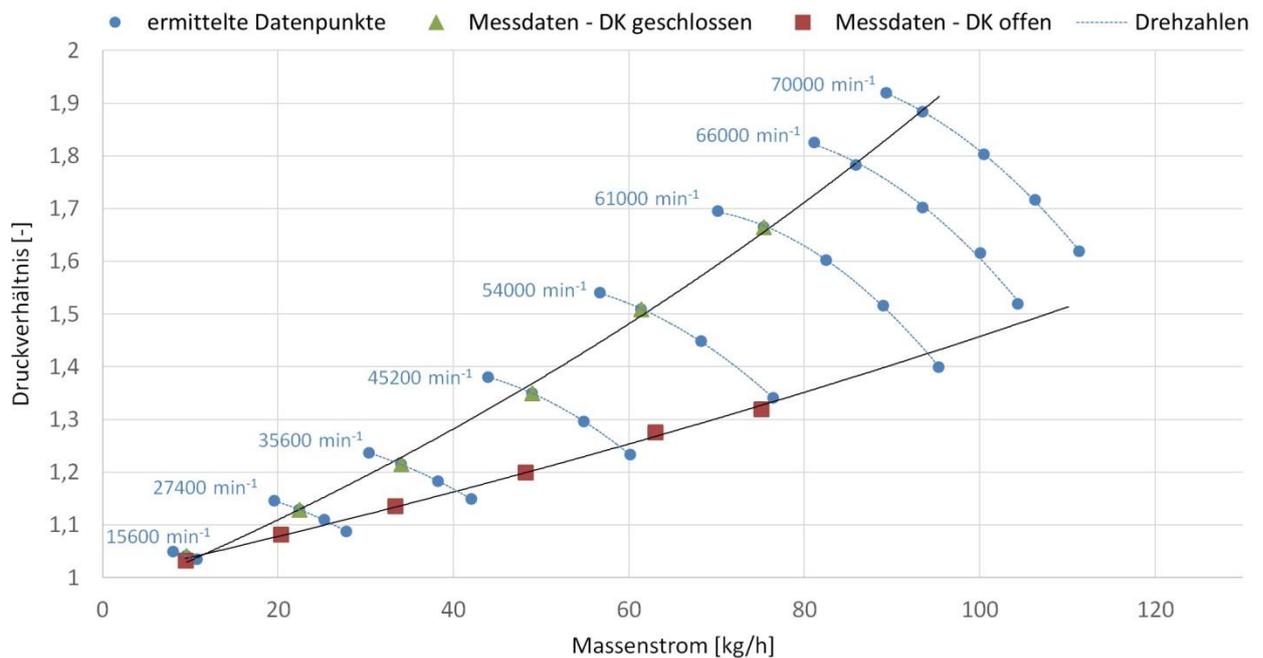


Abbildung 4-4: Kompressorkennfeld aus Messdaten und Extrapolation

Für die Fallunterscheidungen ist es außerdem notwendig eine Drosselklappe, wie sie am Prüfstand vorhanden ist, zu modellieren. Der Hochdruck-Fall ist nur mit entsprechendem Gegendruck aufgrund der Drosselklappe realisierbar. In der Modellierung wurden nur zwei verschiedene Öffnungswinkel der Drosselklappe berücksichtigt, welcher vor einer Simulation festgelegt werden muss: zur Gänze geöffnet und fast vollständig geschlossen. Die Klappe muss immer zumindest einen kleinen Spalt weit geöffnet sein, da sonst die Brennstoffzellenmembranen durch zu hohen Gegendruck beschädigt werden können. Im Modell wird dann der Druckabfall an der Drosselklappe für die jeweilige Klappenstellung in Abhängigkeit simuliert. Hierfür wurden ebenfalls Messdaten vom Prüfstand verwendet. Anhand des erweiterten Kompressorkennfeldes wurde der Druckabfall in Abhängigkeit des Massenstroms ebenfalls erweitert, durch Extrapolation. Eine Detailansicht der Modellierung der Drosselklappe findet sich in [Abbildung 4-5](#).

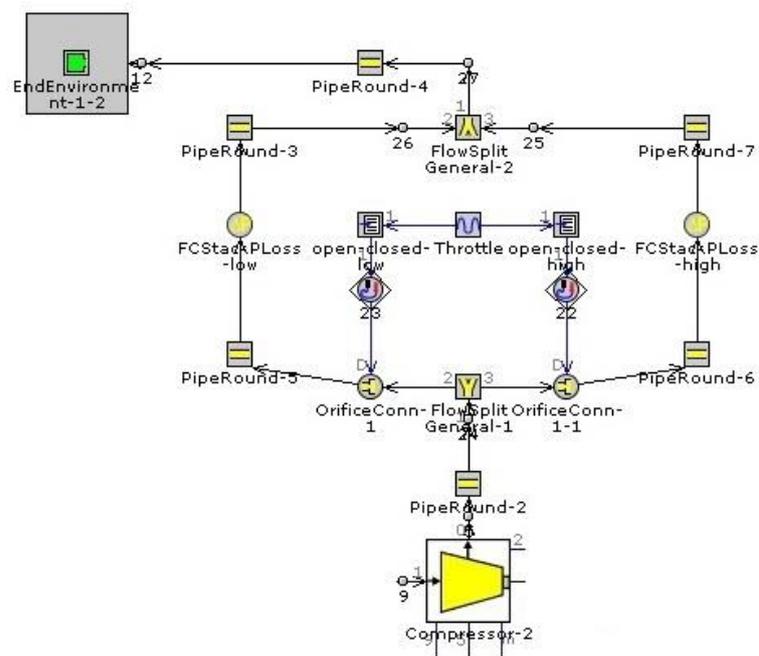


Abbildung 4-5: Detailansicht der Drosselklappenmodellierung

Die Modellierung der Berechnung der Partialdrücke wurde wie folgt ausgeführt. Mit dem Druckverhältnis, das der Kompressor aufbringt, wird aus einem Diagramm der dazugehörige Druckverlust über die Brennstoffzelle ausgelesen. Das Diagramm wurde zuvor aus Messdaten des Prüfstandes erstellt bzw. mittels Extrapolation für höhere Drücke erweitert. Je nach Drosselklappenstellung wird dann der mittlere Druck in der Brennstoffzelle aus dem Druckverhältnis vom Kompressor (vor der Brennstoffzelle) und dem Druckverlust aus dem Diagramm (nach der Brennstoffzelle) ermittelt. Dieser mittlere Druck wird dann mit dem Volumenanteil von Sauerstoff in der Luft multipliziert. Danach erfolgt die Berechnung des mittleren Sauerstoffpartialdrucks in der Brennstoffzelle mithilfe des Prozentsatzes des Sauerstoffanteils in der Luft nach der Brennstoffzelle, welcher aus der Lambda-Zahl berechnet wird. Die Detailansicht der Berechnungsblöcke des Sauerstoffpartialdruckes ist in [Abbildung 4-6](#) veranschaulicht.

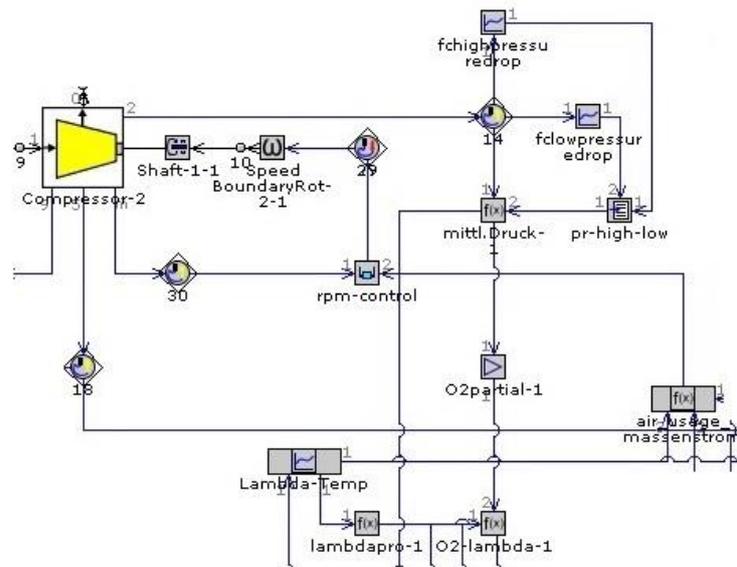


Abbildung 4-6: Detailansicht der Berechnung des Sauerstoffpartialdruckes

4.1.2 Thermomanagement

Aus der Stackspannung wird außerdem die produzierte Heizleistung nach Gleichung (2.32) berechnet. Diese Heizleistung fließt in eine thermische Masse von 50 kg Grafit, welche den Brennstoffzellenstack inklusive des Kühlmittels repräsentiert. An der thermischen Masse wird der Wärmeübergangskoeffizient an die Umgebung mit einem PI-Regler verändert, womit ein komplexes Kühlungssystem stark vereinfacht simuliert wird. Die Temperatur der thermischen Masse ist die Brennstoffzellentemperatur, welche dann in die Berechnungsblöcke der reversiblen Zellspannung, der Verluste, der limitierenden Stromdichte und der Austauschstromdichte und dem Ohm'schen Widerstand fließt. Mit der Temperatur der Zelle wird, wie zuvor erwähnt, auch die Lambda-Zahl geregelt. In der Aufwärmphase, ausgehend von 20 °C, wird die Brennstoffzelle mit hohem Luftüberschuss betrieben. Die Lambda-Zahl wird dann mit steigender Temperatur stetig reduziert bis die Betriebstemperatur von 55 °C erreicht ist. Ab Erreichen der Betriebstemperatur wird der Stack mit Lambda 1.5 betrieben. Der Ausschnitt des Thermomanagements vom Gesamtsystem ist in [Abbildung 4-7](#) zu sehen.

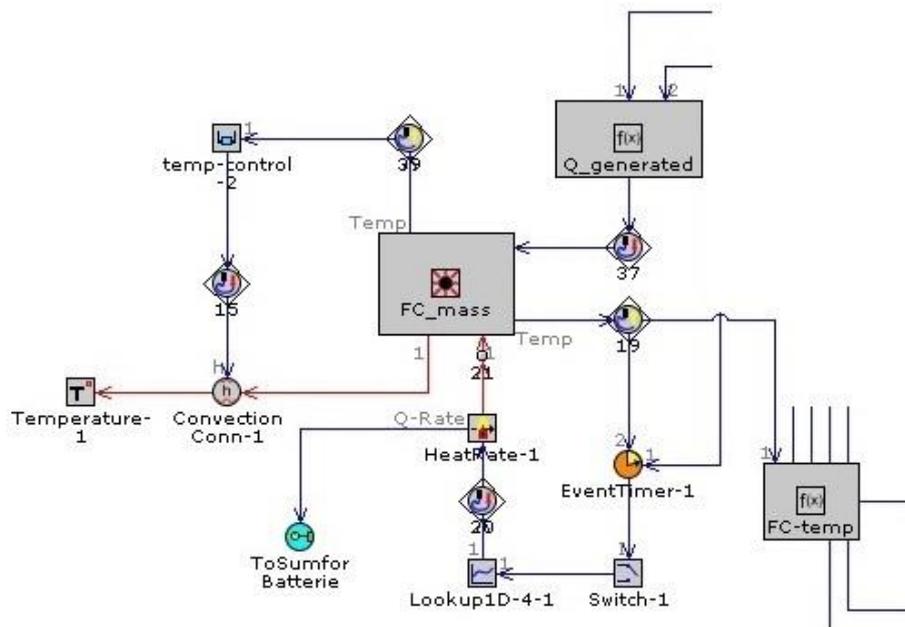


Abbildung 4-7: Thermomanagementsystem der Brennstoffzelle

In der Modellierung des Thermomanagements wurde außerdem ein System zum Vorheizen der Brennstoffzelle bzw. der Ersatzmasse vorgesehen. Dieses System soll die Brennstoffzelle möglichst rasch auf die Betriebstemperatur bringen, um die maximale Leistung abrufen zu können. Dabei wird die thermische Masse, die den BZ-Stack inklusive des Kühlmittels repräsentiert, elektrisch mit einer Leistung von 4 kW geheizt. Der Leistungsbedarf dafür fließt in den Summenblock der Leistungsanforderung an die Batterie ein. Das Heizsystem wird aktiviert, sobald Strom aus der Brennstoffzelle fließt, demnach erst wenn diese gestartet wird. Ab diesem Zeitpunkt wird mit der vollen elektrischen Leistung aufgeheizt, bis eine Temperatur von 320 K oder knapp 47 °C erreicht wird. Dann schaltet sich das System wieder vollständig ab und die Zelle heizt sich selbst bis zur Betriebstemperatur von 328.15 K bzw. 55 °C mit der Reaktionswärme auf.

4.1.3 Wirkungsgrade

Die Effizienz des Systems wird ebenfalls mithilfe von Funktionsblöcken ermittelt. Der Wirkungsgrad der einzelnen Zelle wird aus dem Quotienten der aktuellen Zellspannung und der theoretischen Zellspannung für gasförmiges Produktwasser (1.254 V) berechnet:

$$\eta_{cell} = \frac{V_c}{1.254 V} \quad (4.1)$$

Der Wirkungsgrad des Systems aus Brennstoffzelle, Luftkompressor und den beiden Hilfsaggregaten Wasserstoff-Rezirkulationspumpe und Kühlmittelpumpe berechnet sich aus der Leistung der Brennstoffzelle abzüglich der Komponenten dividiert durch die theoretische Maximalleistung für gasförmiges Produktwasser mit der Formel:

$$\eta_{sys} = \frac{(P_{BZ} - P_{comp} - P_{hilfs})}{(I * n * 1.254 V)} \quad (4.2)$$

Die Hilfsaggregate Wasserstoff-Rezirkulationspumpe und Kühlmittelpumpe sind im vorhandenen Gesamtfahrzeugmodell nur mit ihrem Leistungsbedarf modelliert. Sie verbrauchen für jede Brennstoffzellenleistung konstant die gleiche Leistung. In Summe beträgt die Leistung der beiden Komponenten 520 W.

5. Simulation

Die Simulation des Brennstoffzellensystems erfolgt im Softwarepaket *GT-Suite* mithilfe eines bestehenden Gesamtfahrzeugmodells in einem Fahrzyklus. Im Modell ist der seit 01. September 2017 für die Typengenehmigung von Fahrzeugen mit Verbrennungsmotor bestimmende WLTC implementiert und wird für die Simulationen verwendet, siehe Abbildung 5-1. Anhand des Geschwindigkeitsprofils des Fahrzyklus wird ein Leistungsbedarf berechnet, welcher an die beiden E-Maschinen weitergegeben wird. Diese beschleunigen das Fahrzeug mit dem erforderlichen Leistungsbedarf. Die aktuelle Fahrzeuggeschwindigkeit wird dann berechnet und mit der Zielgeschwindigkeit des Fahrzyklusprofils abgeglichen. Daraus erfolgt die Anpassung der Leistungsanforderung für die elektrischen Maschinen. Schließlich wird der elektrische Leistungsbedarf an die Batterie gestellt. Für die Kontrolle des Ladezustandes (SoC) bedarf es der Wahl einer Betriebsstrategie. Im Modell sind unter anderem die folgenden Strategien implementiert:

- 1) Power Follower: mittlerer Leistungsbedarf über Mittelungszeitfenster. Die Leistungsabgabe der BZ folgt dem gemittelten Leistungsbedarf des Antriebs.
- 2) Leistung in Abhängigkeit des SoC: Leistungsbedarf je nach SoC

Aus der gewählten Betriebsstrategie resultiert der Leistungsbedarf an das Brennstoffzellensystem.

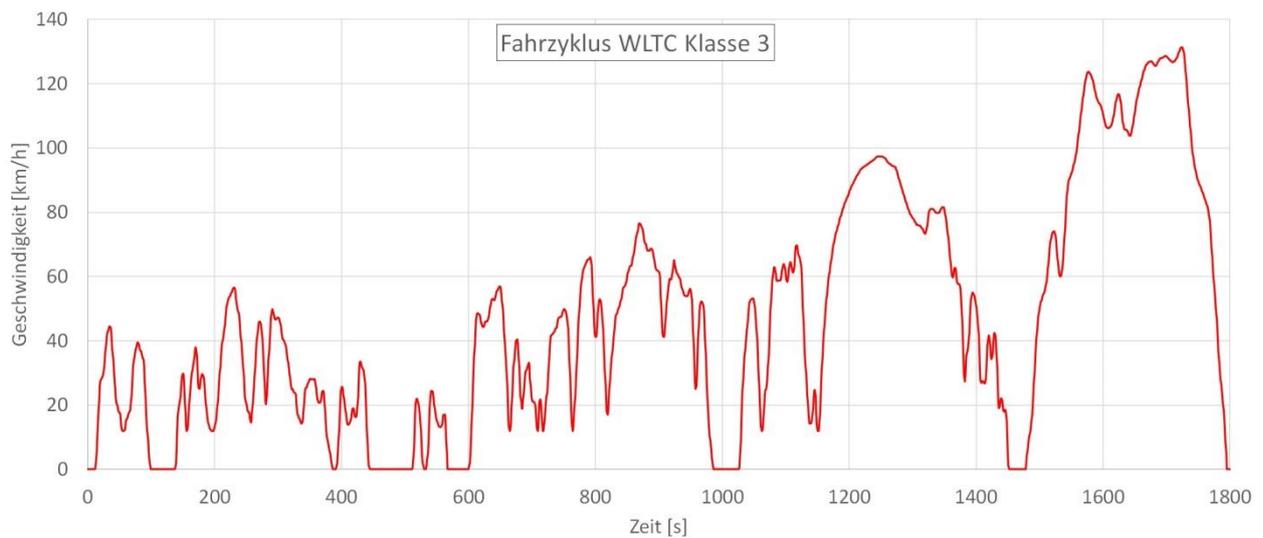


Abbildung 5-1: Fahrprofil des WLTC-Klasse 3-Zyklus [18]

Die Konfiguration des Gesamtfahrzeugmodells, welche als Ausgangslage für die Simulation herangezogen wird, gestaltet sich folgendermaßen. Die Traktionsbatterie ist eine Li-Ionen-Batterie mit 16 kWh. Ihr Coulomb'scher Wirkungsgrad beläuft sich auf 99% und betrifft die Ladungs- sowie die Entladungsphase. Vorgegeben sind außerdem das OCV-Kennfeld und das Kennfeld des inneren Widerstands der Batterie. Der Ladezustand zu Beginn einer Fahrzyklus-Simulation ist auf 0.5 (50 %) festgelegt. Die Brennstoffzelle ist mit einer Zellenanzahl von 96 und einer aktiven Zellfläche von 409 cm² festgelegt.

Das Gesamtfahrzeugmodell basiert auf dem Kleinbus Mercedes-Benz Vito [20] und unterliegt dessen c_w -Wert, Rollwiderstand und des Gewichts unter Berücksichtigung des Umbaus auf ein Brennstoffzellenhybridsystem bestehend aus Brennstoffzelle, Wasserstofftank und Traktionsbatterie. Der Antrieb erfolgt über zwei Traktionsmotoren, mit einer elektrischen Leistung von 75 kW an der Vorderachse und 50 kW an der Hinterachse.

5.1 Analyse des Überlastbereiches

Die Messdaten vom Brennstoffzellenprüfstand der TU Wien reichen von BZ-Strömen von 50 A bis 400 A. Bis zu einem BZ-Strom von 120 A befindet sich die Brennstoffzelle im Unterlastbereich, bis 400 A befindet sich der Nennbereich für den Dauerbetrieb. Der Bereich über 400 A bis zu einem maximalen BZ-Strom von 500 A ist der Überlastbereich. In diesem Bereich sollte die Brennstoffzelle nur kurzzeitig betrieben werden, da die hohe Belastung zu einer Degradation der Brennstoffzelle führen kann. Daher wurde dieser Bereich auch bei den Messungen am Brennstoffzellenprüfstand vermieden. Das Betriebsverhalten der Brennstoffzelle im Überlastbereich kann nun aber mittels der Modellbildung aus den Kapiteln 3. Modell der Brennstoffzelle und 4. Modellierung der Brennstoffzelle mittels Simulationssoftware GT-Suite simuliert und bewertet werden.

Die Analyse des Überlastbereiches erfolgt mittels des aktuellen Fahrzyklus WLTC bei 25 °C Umgebungstemperatur in der Betriebsstrategie 1, da dieser hohe Lastanforderungen an das System stellt und die maximale Brennstoffzellenleistung angefragt wird. Die Drosselklappe des Systems ist auf der Stellung „geschlossen“, womit das höhere Druckniveau (vgl. Fall 1 aus Tabelle 3-2) in der Brennstoffzelle vorherrschend ist. Bei offener Drosselklappe errechnet die Simulation eine maximale BZ-Leistung von 24.11 kW.

Die Unterlastgrenze von 120 A wird erstmals bei einer Leistung von 8.45 kW überschritten. Gegen Ende des Fahrzyklus wird der Leistungsbedarf hoch und die Brennstoffzelle arbeitet im Überlastbereich. Bei einem Strom von 400 A steht eine Leistung von 24.1 kW zur Verfügung. Die Maximalleistung ist bei 500 A mit 29.04 kW erreicht. Diese Leistung ist nahe an der Angabe des Herstellers für die Maximalleistung von 30 kW und fällt der Alterung der Brennstoffzelle entsprechend geringer aus.

Der Kompressor benötigt bei der BZ-Maximalleistung eine elektrische Leistung von 4.095 kW. Dabei fördert er einen Luftmassenstrom von 92.53 kg/h bei einem Druckverhältnis von 1.886. Der Luftmassenstrom entspricht dem Luftverbrauch der Brennstoffzelle bei einer Lambda-Zahl von 1.5. Der Verlauf der Brennstoffzellen- und Kompressorleistung ist in Abbildung 5-2 ersichtlich.

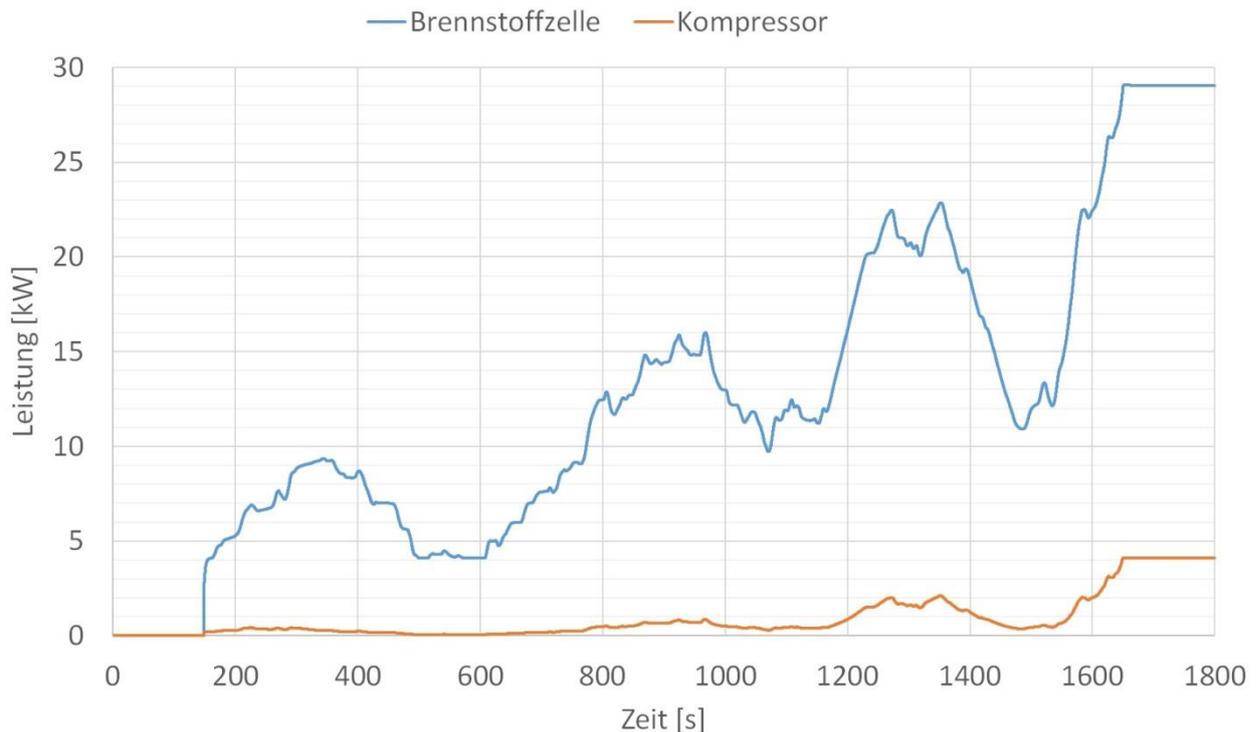


Abbildung 5-2: Brennstoffzellen- und Kompressorleistung im Fahrzyklus WLTC in Strategie 1 aus Berechnungsdaten von *GT-Suite*

Die Ausgangsspannung der Brennstoffzelle beträgt bei der maximalen Leistung ca. 58 V. Das entspricht einer Zellspannung von 0.605 V und damit einem Zellwirkungsgrad nach Gleichung (4.1) von 48.24 %, siehe [Abbildung 5-3](#). Darin ist auch der theoretische Wirkungsgrad für die Brennstoffzellenreaktion mit flüssigem Produktwasser, wenn zu Beginn des Fahrzyklus noch kein Strom fließt, von 83.59 % zu erkennen.

Die Nebenaggregate des Brennstoffzellensystems sind eine Wasserstoff-Rezirkulationspumpe und eine Kühlmittelpumpe. Diese werden beim BZ-Start eingeschaltet und laufen konstant mit einer Gesamtleistung von 520 W. Der Wirkungsgrad des Systems nach Gleichung (4.2) aus Brennstoffzelle, Kompressor und den Nebenaggregaten liegt bei der BZ-Maximalleistung bei 40.57 %, siehe [Abbildung 5-3](#). Außerdem lässt sich die maximale Leistungsdichte, aus der Leistung dividiert durch die Zellenanzahl multipliziert mit der aktiven Zellfläche, als weitere charakteristische Brennstoffzellengröße ermitteln. Diese beträgt im Maximum 0.74 W/cm^2 und liegt damit im mittleren Leistungsdichtebereich moderner Brennstoffzellen. In [8] sowie [6] wird eine typische Leistungsdichte von 0.6 W/cm^2 genannt. Die hochentwickelte Brennstoffzelle

des Brennstoffzellenfahrzeugs Toyota Mirai hat zum Vergleich eine maximale Leistungsdichte von 1.3 W/cm^2 [19].

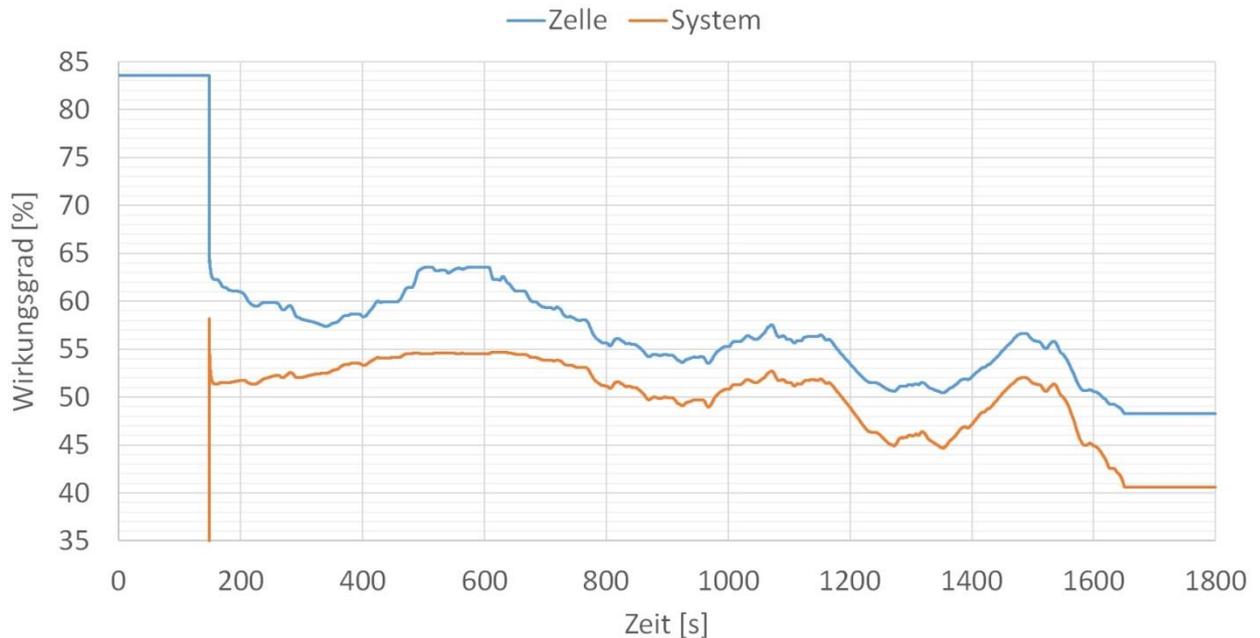


Abbildung 5-3: Wirkungsgrad des Brennstoffzellensystems und der Zelle im Fahrzyklus WLTC in Strategie 1 aus Berechnungsdaten von *GT-Suite*

Der Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle beträgt bei Maximalleistung (ab 29 kW BZ-Leistung) im WLTC-Fahrzyklus 1.806 kg/h. Das dem Gesamtfahrzeugmodell zugrunde gelegte Fahrzeug hat einen Brennstoffzellentank mit einer maximalen Speicherkapazität von 2.88 kg bei einem Druck von 70 MPa [20]. Daraus ergibt sich eine reine Brennstoffzellenbetriebszeit bei Maximalleistung von 1:35 Stunden bis der Wasserstoff-Tank leer ist.

Das Thermomanagement hält die Brennstoffzellentemperatur auf einem Wert von 55 °C. Dies erfolgt über die Veränderung des Wärmeübergangskoeffizienten. Die produzierte Heizleistung der Brennstoffzelle beträgt 31.15 kW bei einer elektrischen Leistung von 29 kW.

5.2 Effizienzanalyse Heizsystem

Der Wirkungsgrad einer PEM-Brennstoffzelle hängt unter anderem über die Zellspannung von der Temperatur ab. Besonders bei niedrigen Außentemperaturen kann es vorteilhaft für den Kraftstoffverbrauch sein, die Brennstoffzelle möglichst schnell auf Betriebstemperatur zu bringen. Dazu kann die Brennstoffzelle beispielsweise elektrisch über die Endplatten und das vorgewärmte Kühlwasser beheizt werden. Allerdings bewirkt die aus der Batterie entzogene Heizleistung eine verringerte Effizienz des Fahrzeugs. Ob sich ein elektrisches Heizsystem in Summe positiv auf das Fahrzeug auswirkt, soll in diesem Kapitel mithilfe des Gesamtfahrzeugmodells und zwei verschiedener Betriebsstrategien untersucht werden.

Die Bewertung des elektrischen Heizsystems, Modellierung laut Kapitel [4.1.2 Thermomanagement](#), erfolgte mittels Simulationen bei einer Umgebungstemperatur von 5 °C. Der verwendete Fahrzyklus ist dabei der WLTC mit der Strategie 1 – Power Follower oder der Strategie 2 - Leistung in Abhängigkeit des SoC. Das System wird bei der ersten Simulation des WLTC zunächst ohne zusätzliche Heizleistung, neben der Reaktionsabwärme, für die thermische Masse betrieben. Bei der zweiten Simulation wird der Zyklus ein weiteres Mal durchfahren, wobei der thermischen Masse ab dem Start der Brennstoffzelle konstant eine Heizleistung von 4 kW bis zu einer Temperatur von 47 °C zugeführt wird. Danach erfolgt die weitere Erwärmung bis zur Betriebstemperatur von 55 °C durch die Reaktionsabwärme.

5.2.1 Strategie 1 – Power Follower

Die Strategie berechnet den Leistungsbedarf aus der gemittelten Leistungsanforderung über ein Zeitfenster von 200 Sekunden. Der Leistungsbedarf ist damit in der Variabilität nur durch die Ober- und Untergrenze der Brennstoffzellenleistung von 4.1 kW und 30 kW beschränkt. Aufgrund der Leistungsuntergrenze wird die Brennstoffzelle nicht mit Beginn des Fahrzyklus gestartet, sondern erst ab einem ausreichend hohen Leistungsbedarfs. Beim Testfall mit elektrischer Heizleistung wird der Leistungsbedarf

mit einem Faktor multipliziert und damit erhöht, um am Ende des Fahrzyklus den gleichen End-SoC, wie beim Fall ohne Heizen, der Batterie zu erhalten. Dadurch ist die Vergleichbarkeit der Wasserstoff-Verbräuche und der Wirkungsgrade gegeben. Der Erhöhungsfaktor beträgt 1.04087, was einer konstanten Erhöhung des Leistungsbedarfs um 4.1%, gegenüber dem Fall ohne elektrische Heizleistung, entspricht.

Durch die elektrische Heizleistung ist die Brennstoffzelle deutlich schneller auf der Betriebstemperatur von 55 °C. Mit dem Start der Brennstoffzelle bei Sekunde 148.3 des Fahrzyklus, welcher bei beiden Testfällen der gleiche ist, beginnt die Aufwärmphase der Brennstoffzelle. Der Startzeitpunkt der Brennstoffzelle ist abhängig vom gestellten Leistungsbedarf, der bei 4.1 kW liegt. Ab dem BZ-Start wird der thermischen Masse für 166.8 Sekunden elektrische Heizleistung zugeführt (bis zur Sekunde 315.1 des WLTC). Danach erfolgt die weitere Erwärmung nur noch über die chemische Reaktionswärme. Die Zieltemperatur von 55 °C ist nach 360.6 Sekunden des WLTCs erreicht, siehe Abbildung 5-4. Darin ist auch der Temperaturverlauf der Simulation ohne elektrisches Heizen dargestellt. Hier ist bei gleichem Startzeitpunkt die Betriebstemperatur erst nach einer Zeit von 480.8 Sekunden im WLTC erreicht. Die Nettozeiten der Aufwärmphase belaufen sich somit beim elektrischen Heizen auf 212.3 Sekunden und ohne Heizsystem auf 332.5 Sekunden.

Aufgrund der Abhängigkeit des Zellwirkungsgrades von der Zellspannung, welche wiederum von der Temperatur abhängig ist, ist es vorteilhaft, möglichst schnell die Betriebstemperatur der Brennstoffzelle zu erreichen. Allerdings bewirkt die aufzubringende elektrische Heizleistung im Allgemeinen eine Verschlechterung des Systemwirkungsgrades. In der Simulation hat sich für niedrige Umgebungstemperatur ein anderes Verhalten gezeigt. Durch das elektrische Heizen werden früher höhere Temperaturen in der Brennstoffzelle erreicht. Die Lambda-Zahl ist abhängig von der BZ-Temperatur, wodurch der benötigte Massenstrom aufgrund der höheren Temperatur früher reduziert wird. Dadurch verringert sich im WLTC die Leistungsaufnahme des Kompressors zu einem früheren Zeitpunkt, woraus ein geringerer Leistungsbedarf an das BZ-System resultiert. Dieser Zusammenhang spiegelt sich auch im Systemwirkungsgrad nach Gleichung (4.2) wieder. Die System- und Zellwirkungsgrade der beiden Testfälle kann man in Abbildung 5-5 sehen.

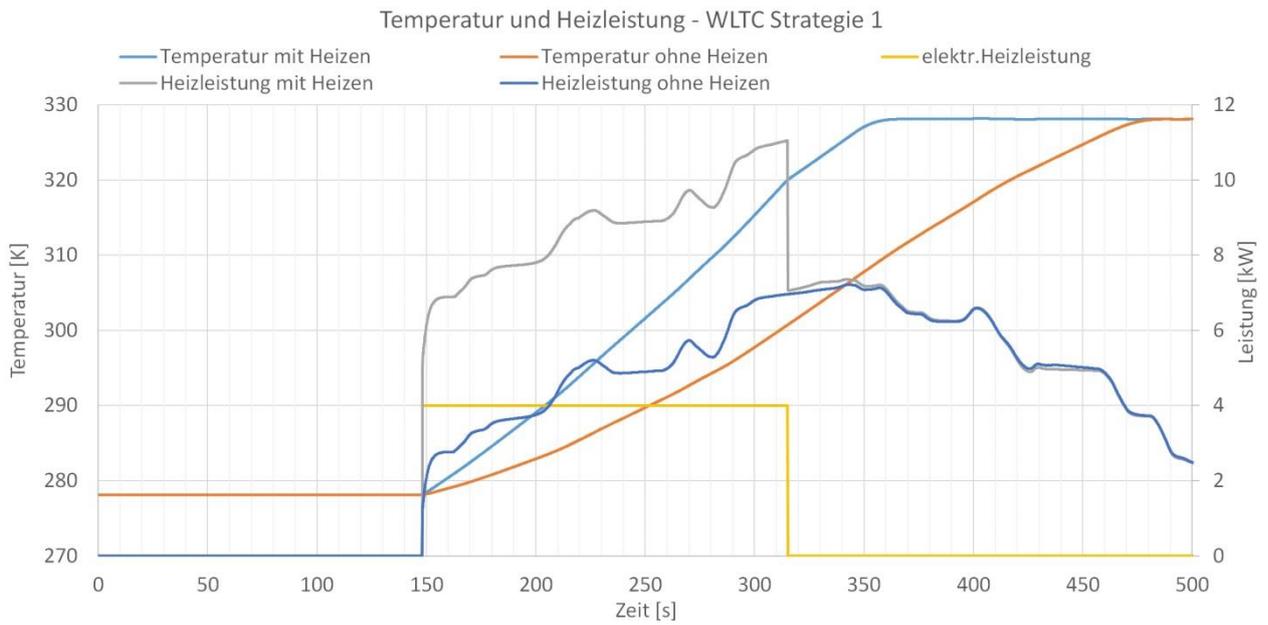


Abbildung 5-4: Temperaturverlauf der thermischen Massen und Heizleistungskurve der auf die thermischen Massen wirkenden Leistungen in der Aufwärmphase mit und ohne elektrischer Heizleistung während des WLTC mit Strategie 1

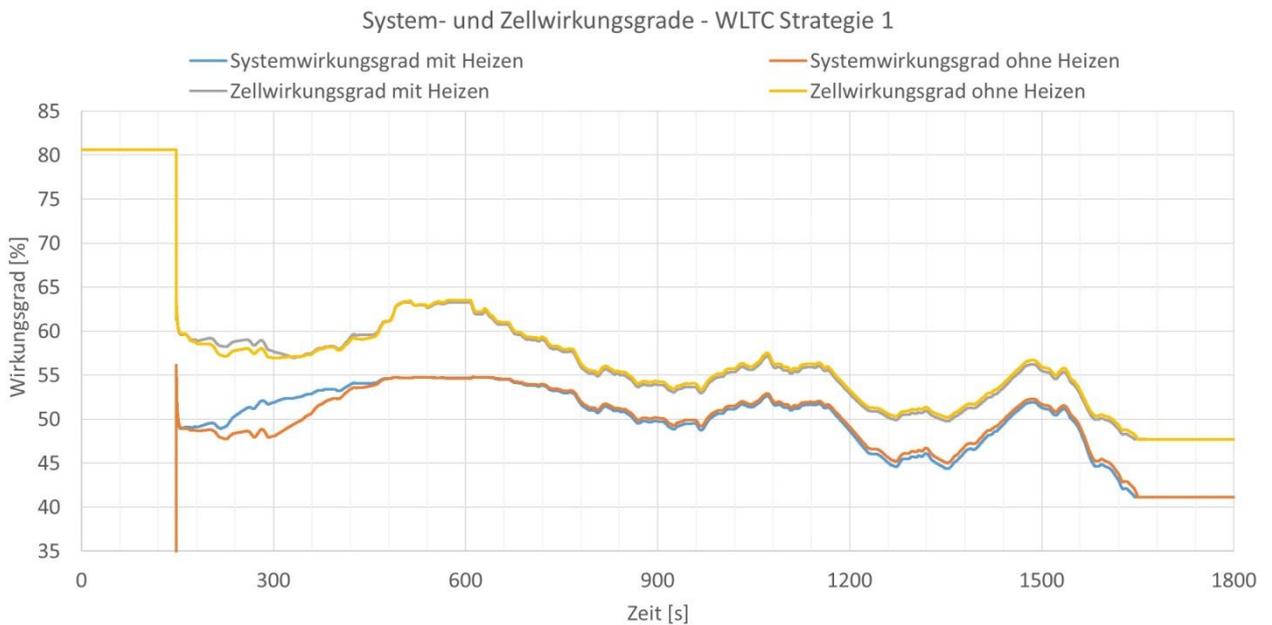


Abbildung 5-5: System- und Zellwirkungsgrade während des Fahrzyklus WLTC mit und ohne elektrische Heizleistung mit Strategie 1

Der Systemwirkungsgrad mit elektrischem Heizen ist während der Aufwärmphase klar höher, da die elektrische Heizleistung von der Batterie aufgebracht wird und nicht in die Wirkungsgradgleichung (4.2) einfließt. Darin wirkt sich lediglich die erhöhte Leistungsaufnahme des Kompressors aufgrund der höheren Lambda-Zahl aus. Nach Erreichen der Betriebstemperatur arbeitet das System kurzzeitig in beiden Fällen mit gleicher Effizienz. Danach wirkt sich allerdings die erhöhte BZ-Leistung nachteilig auf den System- und Zellwirkungsgrad aus. Der Zellwirkungsgrad ist in der Aufwärmphase durch das elektrische Heizen nur minimal höher als ohne Heizen, nach dem Aufwärmen sogar durchwegs niedriger. Der gemittelte Wirkungsgrad beträgt ohne Heizen 57.5 % und mit Heizen 57.3 %. Der durch die elektrische Heizleistung erhoffte Wirkungsgradvorteil ist hier nicht gegeben.

Der höhere Leistungsbedarf beim Testfall ohne Heizsystem wirkt sich direkt auf den Wasserstoffverbrauch aus. Die Momentanverbräuche unterscheiden sich in der Aufwärmphase allerdings nur minimal, wodurch sich die Differenz der Gesamtverbräuche über den Fahrzyklus WLTC lediglich auf 13.5 g beläuft. Der gemittelte Verbrauch über den gesamten WLTC ohne Heizen beträgt 0.766 kg/h, was einem Verbrauch von 1.507 kg pro 100 km entspricht, siehe auch [Abbildung 5-6](#). Damit berechnet sich eine Gesamtreichweite aus reiner Brennstoffzellenleistung von 191.1 km. Der gemittelte Verbrauch über den WLTC mit Heizen beträgt 0.795 kg/h bzw. 1.565 kg pro 100 km. Die Reichweite liegt bei 184 km und ist damit um 7.1 km verringert.

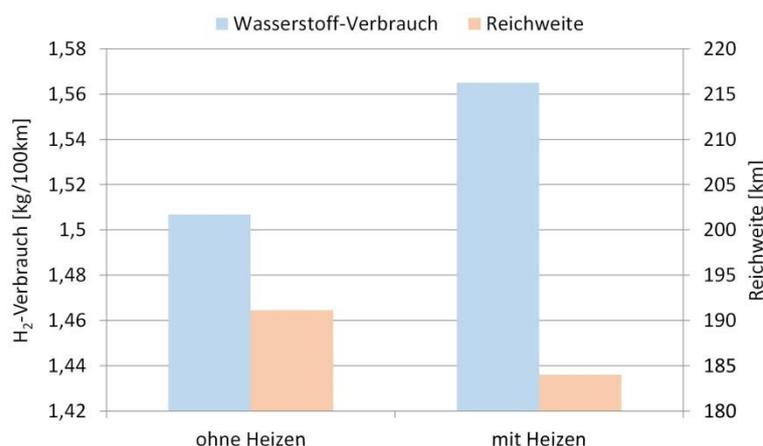


Abbildung 5-6: Verbrauch und Reichweite der Testfälle mit und ohne elektrisches Heizsystem für die Strategie 1 im Fahrzyklus WLTC

Die Auswirkungen des elektrischen Heizens sind auch am Ladezustand der Batterie zu erkennen. Der Fahrzyklus beginnt mit einem vorgegebenen SoC von 0.5. Beim Start der Brennstoffzelle ändert sich der Verlauf der Ladezustandskurven der Batterie für elektrisches Heizen und ohne Heizsystem. Es ergibt sich eine Differenz zwischen den Kurven aufgrund der zusätzlichen Belastung der Batterie durch das Heizsystem. Die SoC-Kurven öffnen sich bis zum Ende der Aufwärmphase und laufen von dem Punkt an scheinbar parallel. Die SoC-Kurven nähern sich allerdings, aufgrund des erhöhten BZ-Leistung beim Fall mit Heizen, bis zum Ende des Fahrzyklus wieder an, siehe [Abbildung 5-7](#). Der SoC für die Testfälle ohne Heizen bzw. mit Heizen liegt am Ende des Zyklus bei jeweils 0.497378. Für den Testfall mit elektrischem Heizen ergibt sich ein maximaler bzw. minimaler SoC von 0.538 bzw. 0.46 und für den Testfall ohne Heizsystem von 0.54 bzw. 0.46.

In Summe ist das elektrische Heizen der Brennstoffzelle für die Betriebsstrategie 1 wirtschaftlich nicht vertretbar. Das langsame Aufwärmen mittels chemischer Reaktionsabwärme ist die bessere Ausführung.

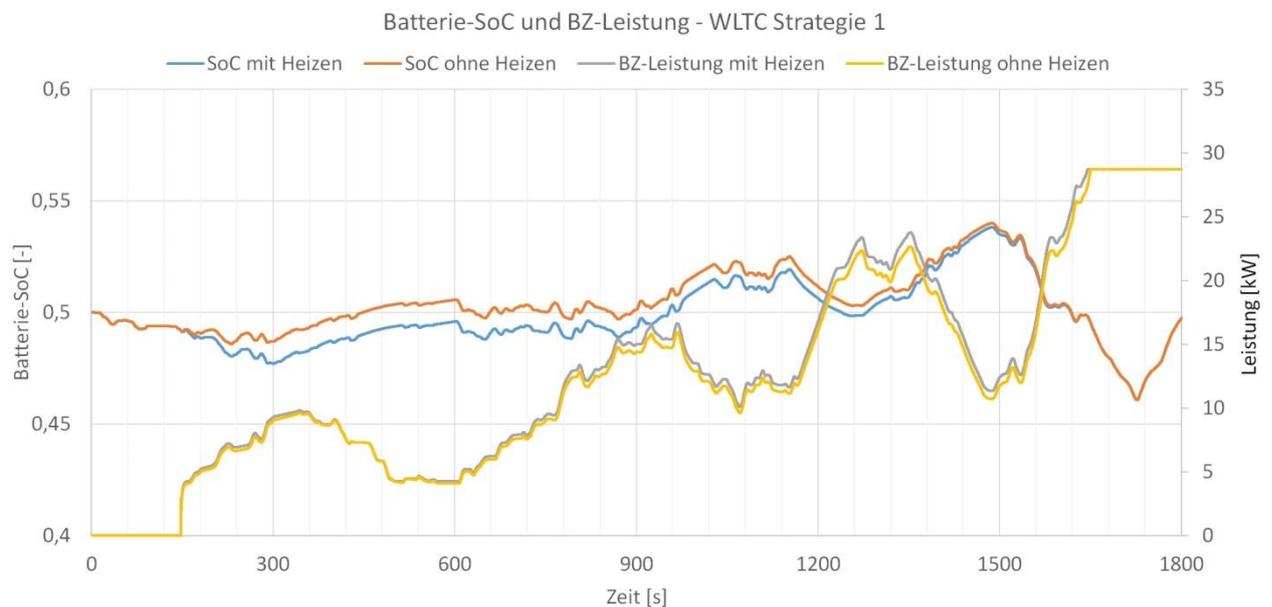


Abbildung 5-7: Batterie-SoC und BZ-Leistung während des Fahrzyklus WLTC mit und ohne elektrische Heizleistung mit Strategie 1

5.2.2 Strategie 2 – Leistung in Abhängigkeit des SoC

Die Abhängigkeit der BZ-Leistung vom Ladezustand der Batterie ist in Abbildung 5-8 ersichtlich. Die Leistungsstufen wurden nach den Kriterien gewählt, den SoC möglichst nahe an einem batterieschonenden Wert von 0.5 zu halten und gleichzeitig den Fahrzyklus WLTC mit einem Ladezustand gleich dem Start-SoC von 0.5 zu beenden. Bei einem SoC zwischen der unteren Betriebsgrenze der Batterie von 0.2 bis zu einem Wert von 0.4 ist der Leistungsbedarf an die Brennstoffzelle deren Maximalleistung. Für die vorliegende Brennstoffzelle beträgt diese Leistung 29 kW. Bei einem Ladezustand ab 0.45 bis 0.55 wird eine Leistung von 14.5 kW von der Brennstoffzelle gefordert. Ab einem SoC von 0.6 bis 0.78 bedarf es nur noch einer niedrigen Leistung von 8.5 kW. Der Übergang zwischen den Leistungsstufen erfolgt dabei stetig. Über einem SoC-Wert von 0.8 liefert die Brennstoffzelle keine Leistung mehr an die Batterie. Daher ist eine weitere Erhöhung nur noch über die Bremsenergierückgewinnung möglich.



Abbildung 5-8: SoC-abhängige Brennstoffzellenleistung der Betriebsstrategie 2

Der Fahrzyklus wird wieder mit einem Start-SoC von 0.5 begonnen. Der Leistungsbedarf an die Brennstoffzelle beginnt mit 14.5 kW und wird bis zu einem Batterie-SoC-Wert von 0.55 gehalten. Danach wird der Bedarf stetig in Richtung der 8.5 kW Stufe reduziert, da sich der SoC dem Wert 0.6 nähert. Die Brennstoffzelle wird bei dieser Strategie sofort gestartet. Die elektrische Heizleistung wird ebenfalls mit dem Start des Fahrzyklus beginnend der thermischen Masse zugeführt. Dadurch erreicht die

thermische Masse nach 87.2 Sekunden eine Temperatur von 320 K und das Heizen wird beendet. Nach insgesamt 117.9 Sekunden ist die Betriebstemperatur von 328 K erreicht. Ohne das elektrische Heizsystem erreicht die thermische Masse nach 145.2 Sekunden die 328 K -Marke. Der Temperaturverlauf für beide Testfälle ist in [Abbildung 5-9](#) dargestellt.

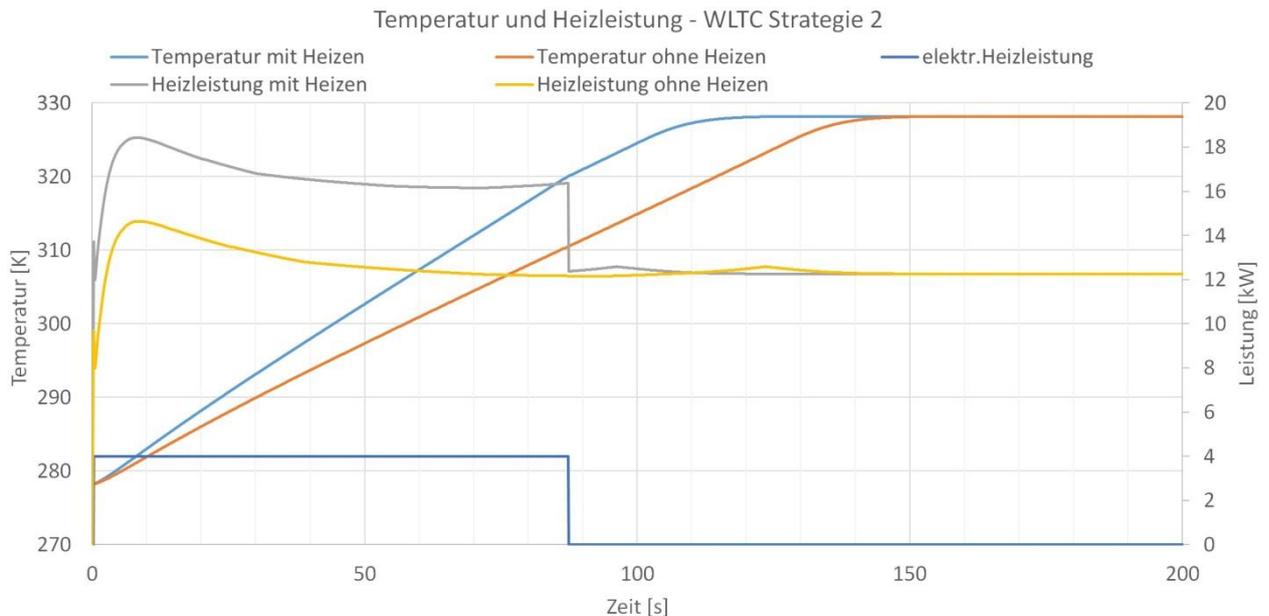


Abbildung 5-9: Temperaturverlauf der thermischen Massen und Heizleistungskurve der auf die thermischen Massen wirkenden Leistungen in der Aufwärmphase mit und ohne elektrischer Heizleistung während des WLTC mit Strategie 2

Der Systemwirkungsgrad für Batterie, Kompressor und Hilfsaggregate berechnet sich nach Gleichung (4.2) und ist im Mittel höher als bei Strategie 1. Für die beiden Testfälle haben die Wirkungsgradkurven einen sehr ähnlichen Verlauf, siehe [Abbildung 5-10](#). Sie unterscheiden sich im Mittel kaum mit Werten von 0.5083 mit Heizleistung und von 0.5082 ohne Heizleistung. Das elektrische Heizen der Brennstoffzelle bewirkt in diesem Fall also nur eine minimale Effizienzsteigerung. Die Wirkung der elektrischen Heizleistung ist bei dieser Strategie nämlich deutlich geringer als bei Strategie 1. Dies resultiert aus dem vergleichsweise hohen Leistungsbedarf zu Beginn des Zyklus und der damit einhergehenden hohen Abwärme aus den chemischen Reaktionen. In der Aufwärmphase von Strategie 1 entspricht die elektrische Heizleistung von 4 kW einer

mittleren Erhöhung der Heizleistung aus der chemischen Reaktion von 94 %. Die Heizleistung wird demnach fast verdoppelt. Bei Strategie 2 hingegen entsprechen 4 kW lediglich 31 % der Heizleistung aus der chemischen Reaktion.

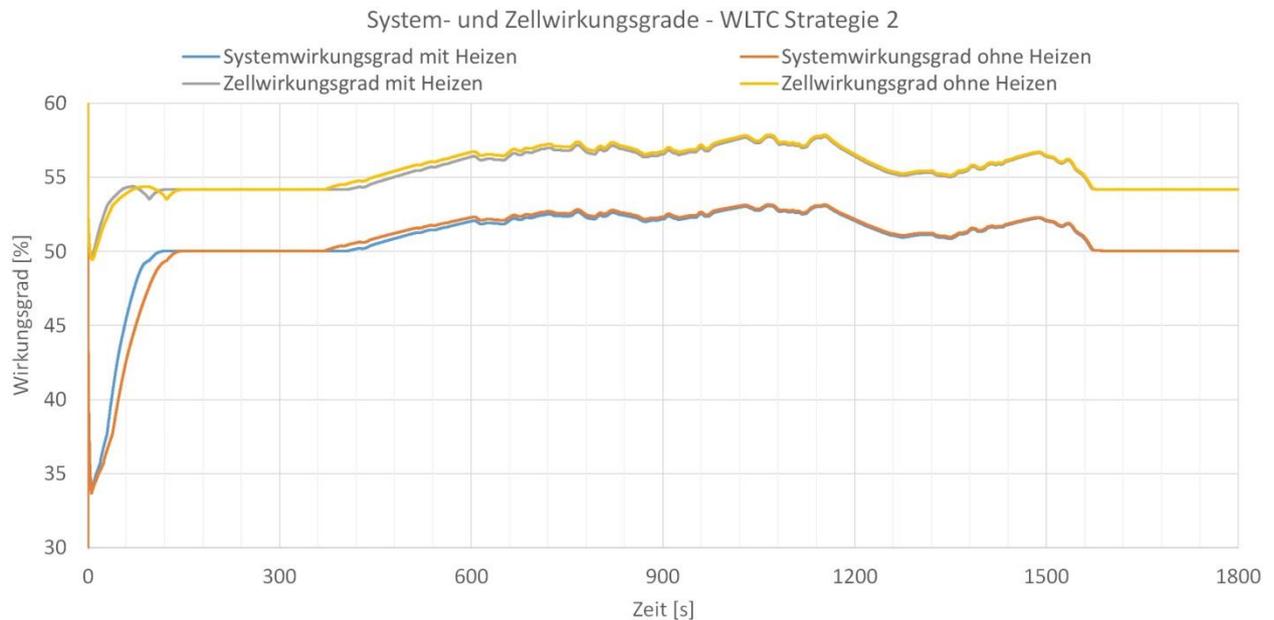


Abbildung 5-10: System- und Zellwirkungsgrade während des Fahrzyklus WLTC mit und ohne elektrische Heizleistung mit Strategie 2

Der Batterie-SoC hat bei Strategie 2 einen Startwert von 0.5. Über den gesamten WLTC Fahrzyklus variiert er zwischen einem Maximalwert von ca. 0.59 und einem Minimalwert von ca. 0.47, für beide Testfälle. Für die energetische Vergleichbarkeit sollte der End-SoC bei beiden Fällen wieder auf dem Start-SoC-Wert enden. Für das elektrische Heizen beträgt der SoC am Ende des Fahrzyklus 0.5000088. Beim Testfall ohne Heizsystem beträgt der End-SoC 0.5000052. Der Verlauf der SoC-Kurven über den Fahrzyklus ist in [Abbildung 5-11](#) dargestellt. Man kann erkennen, dass die Höhen der Ladezustände der beiden Testfälle lediglich in der ersten Phase des WLTCs aufgrund der aus der Batterie entnommenen elektrischen Heizleistung differieren. Gegen Ende des WLTCs sind die Kurven wieder auf gleichem Niveau und enden bei fast identen SoC-Werten. Somit lässt sich der Treibstoffverbrauch aufgrund des elektrischen Heizens bilanzieren. Der Ausgleich der SoC-Kurven erfolgt zulasten eines

höheren Leistungsbedarfs an die Brennstoffzelle. Dadurch erhöht sich der Wasserstoffverbrauch während des WLTCs.

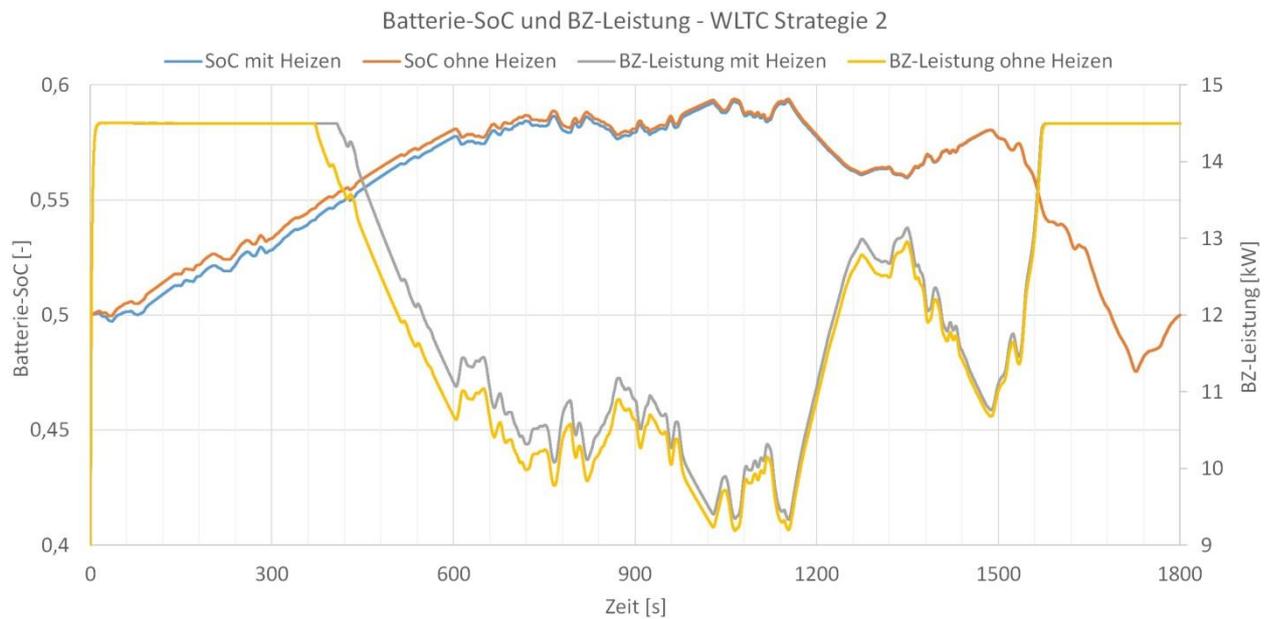


Abbildung 5-11: Batterie-SoC und BZ-Leistung während des Fahrzyklus WLTC mit und ohne elektrische Heizleistung mit Strategie 2

Für den Fall des elektrischen Heizens beträgt der über den gesamten Fahrzyklus gemittelte Verbrauch 0.676 kg/h. Das entspricht einem Verbrauch von 1.451 kg Wasserstoff pro 100 km und resultiert in einer Reichweite von 198.5 km, siehe auch [Abbildung 5-12](#). Der Verbrauch ohne Heizsystem liegt bei 0.665 kg/h und entspricht einem 100-Kilometerverbrauch von 1.427 kg. Damit lässt sich eine Reichweite von 201.9 km realisieren. Das elektrische Heizen verbessert die Systemeffizienz somit kaum und erhöht außerdem den Wasserstoff-Verbrauch.

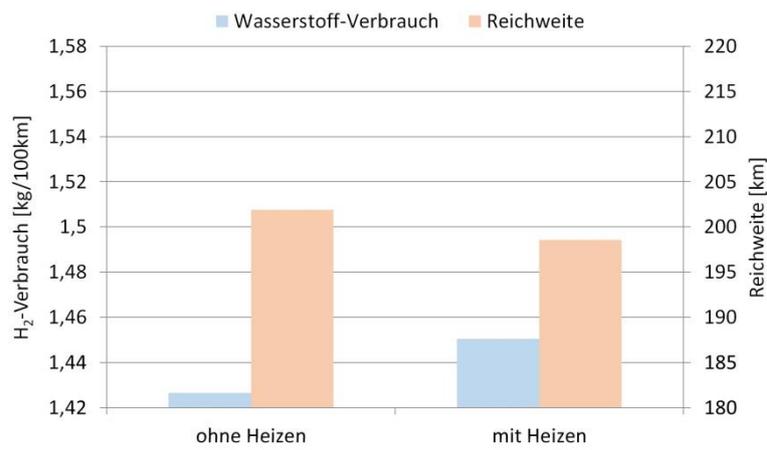


Abbildung 5-12: Verbrauch und Reichweite der Testfälle mit und ohne elektrisches Heizsystem für die Strategie 2 im Fahrzyklus WLTC

5.3 Variation der Batteriegröße

Die Größe des elektrischen Speichers in Form einer Batterie wirkt sich direkt über dessen Gewicht und indirekt über dessen Kapazität auf den Kraftstoffverbrauch der Brennstoffzelle aus. Eine Batterie mit höherer Kapazität hat im Allgemeinen auch ein höheres Gewicht und erhöht damit das Fahrzeuggewicht und dadurch den Fahrwiderstand. Eine veränderte Kapazität bewirkt außerdem, dass die Brennstoffzelle über den Leistungsbedarf aus der Betriebsstrategie unterschiedlichen Belastungen ausgesetzt wird. Darüber hinaus wirkt sich die Batteriekapazität auf die Kosten des Fahrzeugs aus. Die diversen Einflüsse der Batteriegröße sollen im Folgenden simuliert und bewertet werden.

Die Simulationen zur Variation der Batteriegröße erfolgte mittels des Gesamtfahrzeugmodells. Das Fahrzeug folgt hierbei dem Geschwindigkeitsprofil des Fahrzyklus WLTC der Klasse 3. Die Betriebsstrategie ist mit der Strategie 2 – Leistung in Abhängigkeit des Batterie-SoC, mit den identischen Leistungsstufen wie in Kapitel [5.2.2](#), gewählt. Für die Vergleichbarkeit der Wasserstoffverbräuche und der Wirkungsgrade wurde bei einem Start-SoC der Batterie von 0.5 der End-SoC von ebenfalls 0.5 vorausgesetzt. Außerdem wurden der Einfluss des Gewichts und der Kosten des Batteriepakets berücksichtigt. Die Außentemperatur beträgt bei der Simulation 25 °C.

Die Standardgröße der Batterie beträgt 44 Ah bzw. 16 kWh. Die Größe wurde in beide Richtungen stufenweise variiert und auf ihren Einfluss auf den Kraftstoffverbrauch überprüft. Die Kapazitätsstufen gestalten sich dabei in 25 %-Schritten der Ausgangskapazität und betragen 11-99 Ah. Die Eigenschaften der Batterie bezüglich des Coulomb'schen Wirkungsgrads, des OCV-Kennfelds und des Kennfelds des inneren Widerstands der Batterie liegen für Ladung sowie Entladung vor und sind gegenüber der Standardgröße von 44 Ah unverändert geblieben. Um einen End-SoC von 0.5 erreichen zu können, musste die Abhängigkeit des SoC von der Leistungsstufe für die jeweiligen Kapazitäten, gegenüber den Angaben in Kapitel [5.2.2](#), angepasst werden. Bei geringen Kapazitäten der Batterie wird im Allgemeinen ein höherer durchschnittlicher Ladezustand benötigt, um bei Bedarf genug Energie bereitstellen zu können. Daher wurden die SoC-Werte für die Leistungsstufen dahingehend angepasst, dass der Ladezustand am Ende des Fahrzyklus einen Wert von 0.5 erreicht. Die

Abhängigkeit der Leistungsstufe vom SoC ist in der [Abbildung 5-13](#) dargestellt. Zwischen den Stufen nimmt die Leistung linear zu bzw. ab.

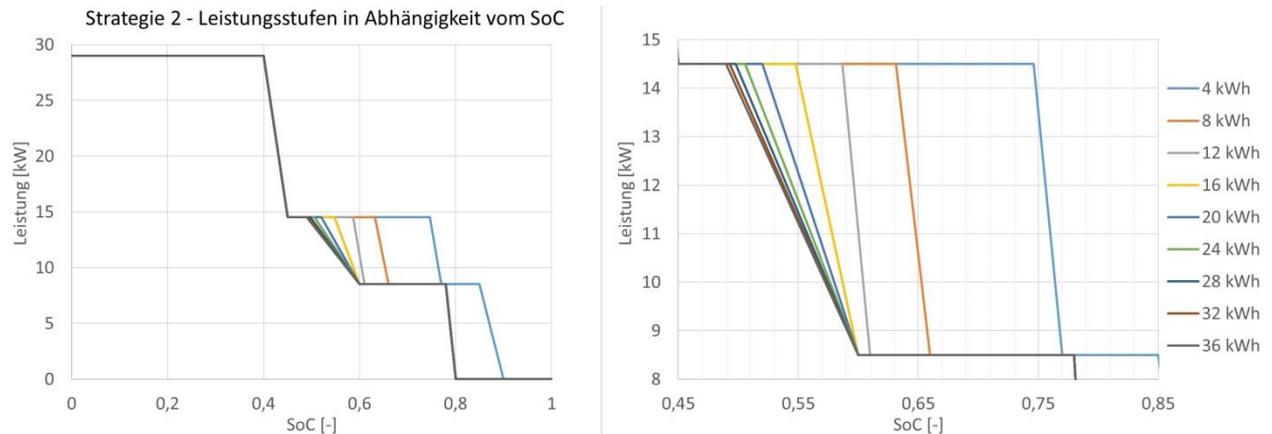


Abbildung 5-13: Leistungsstufen in Abhängigkeit des SoC bei Strategie 2 für die Batteriegrößenvariation

Das Gewicht des Batteriepakets wurde mittels der Energiedichte in Wh pro kg quantifiziert. Die Energiedichte für Batteriepakete in aktuellen Elektrofahrzeugen wurde mithilfe der Angaben in den Quellen [2], [21] und [22] ermittelt. Daraus ergab sich ein durchschnittlicher Wert von 125 Wh/kg für eine Li-Ionen-Traktionsbatterie. Das Gewicht des Fahrzeugs ohne Batterie wurde mittels des Fahrzeuggewichts mit der Standardkapazität von 16 kWh aus dem Gesamtfahrzeugmodell berechnet. Daraus konnten dann die Massen der anderen Konfigurationen ermittelt werden.

Die Kosten für das jeweilige Batteriepaket sind über den Preis pro kWh bemessen. Aktuelle Angaben zu den Batteriekosten pro kWh sind in [23] bzw. [24] enthalten und belaufen sich auf 300-1000 \$/kWh bzw. 190 \$/kWh (Tesla Modell 3) in der Großserienfertigung. Für die Berechnung wurden die Kosten mit 250 \$/kWh angenommen. Die Ausgangsdaten der Simulationen für die Batteriegrößenvariation sind in [Tabelle 5-1](#) aufgelistet.

Tabelle 5-1: Ausgangsdaten für die Simulationen der Batteriegrößenvariation

Kapazität [Ah]	11	22	33	44	55	66	77	88	99
Energieinhalt [kWh]	4	8	12	16	20	24	28	32	36
Gewicht Fahrzeug+ Batterie [kg]	2274	2306	2338	2370	2402	2434	2466	2498	2530
Gewicht Batterie [kg]	32	64	96	128	160	192	224	256	288
Batteriekosten [€] (1 \$ = 0.87 €)	870	1740	2610	3480	4350	5220	6090	6960	7830

Die Variation der Batteriekapazität bewirkt eine variierende Änderungsrate des Batterie-SoC. Die Änderungsrate ist bei einer geringen Kapazität deutlich höher im Vergleich zu einer großen Batterie. Somit sinkt der SoC bei einem hohen Leistungsbedarf des Gesamtfahrzeugs schneller ab, lässt sich dementsprechend aber beim Aufladen schneller wieder auf einen höheren Ladezustand anheben. Der SoC-Verlauf während des gesamten Fahrzyklus ist in [Abbildung 5-14](#) dargestellt. Die unterschiedlichen Kapazitäten der Batterie wirken sich direkt auf Leistungsbedarf an die Brennstoffzelle und damit auf den Wasserstoffverbrauch aus. Eine geringe Kapazität lässt nicht nur den Ladezustand stärker schwanken, es ändert sich auch der Leistungsbedarf an die Brennstoffzelle der Betriebsstrategie entsprechend häufiger. Ein hoher SoC wird bei einer kleinen Batterie schneller erreicht, wodurch die Brennstoffzellenleistung früher reduziert werden kann. Dadurch erhöht sich der Zellwirkungsgrad und der Wasserstoffverbrauch wird geringer. Allerdings ist eine kleinere Batterie durch die gleichen Leistungsanforderungen, wie an eine größere Batterie, einer höheren Belastung ausgesetzt.

Durch eine Batterie mit größerer Kapazität erhält man die gegenteiligen Effekte der zuvor genannten Auswirkungen: der SoC-Hub ist geringer, die Brennstoffzelle liefert länger höhere Leistungen und verbraucht dadurch mehr Wasserstoff, die Brennstoffzelle wird mit niedrigerer Effizienz betrieben, aber die Belastung der Batterie ist geringer.

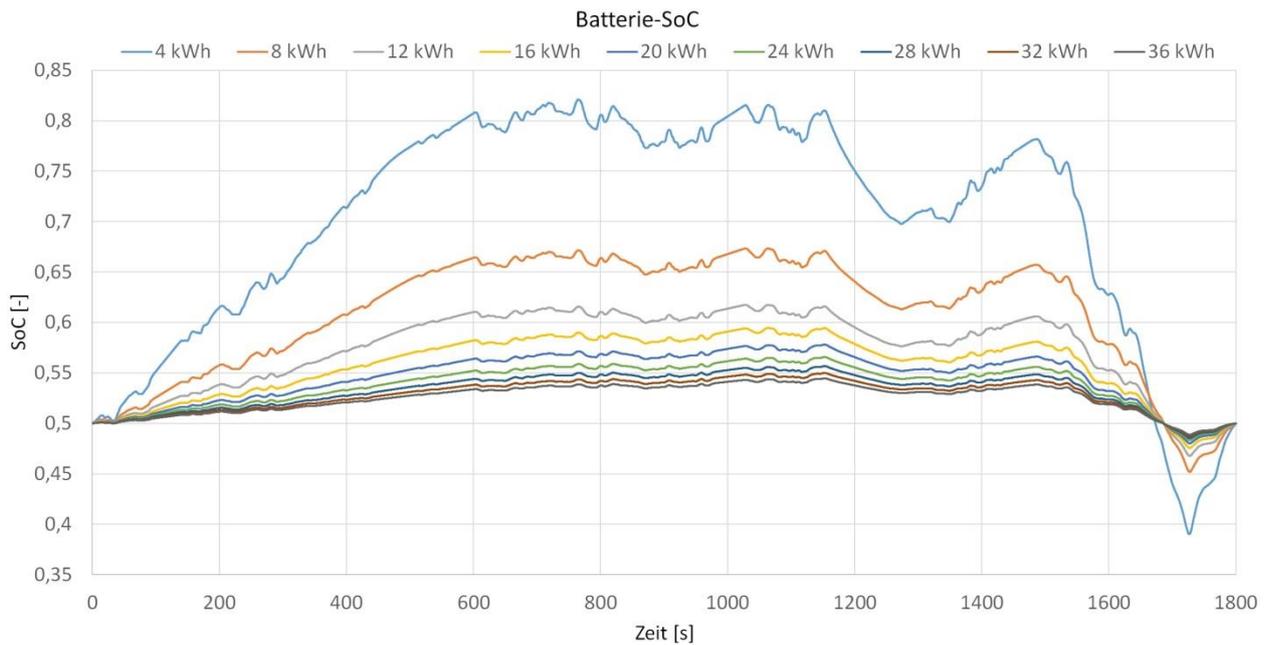


Abbildung 5-14: Batterie-SoCs der verschiedenen Kapazitäten im zeitlichen Verlauf des WLTC Klasse 3 Fahrzyklus

Der größere SoC-Hub bei kleinerer Batteriegröße wirkt sich auf die Zyklenlebensdauer aus. Die Zyklenlebensdauer ist die Anzahl der möglichen Lade- und Entlade-Vorgänge bis zum Ausfall der Batterie. Außerdem sinkt die nutzbare Kapazität mit jedem Zyklus. Beim Laden und Entladen treten Alterungsphänomene auf, welche unter anderem von der Temperatur und der C-Rate abhängen. Die C-Rate einer Batterie ist das Maß dafür, wie hoch die maximal zulässigen Ströme bei Lade- und Entladevorgängen, bezogen auf die Kapazität der Batterie, sein dürfen [2]. Somit berechnet sie sich aus dem Lade- bzw. Entladestrom dividiert durch die Nennkapazität. Die in der Simulation berechneten maximalen C-Raten für die jeweiligen Batteriegrößen sind in der Tabelle 5-2 aufgelistet. In der Tabelle sind außerdem die benötigten C-Raten für die maximale Leistung der beiden E-Motoren von 125 kW und die maximalen und minimalen SoC-Werte während des WLTC angeführt.

Je höher die C-Rate desto schneller altert im Allgemeinen die Batterie. Durch die hohe C-Rate von 14.9 und den großen SoC-Hub von 0.43 zwischen einem Wert von 0.82 und 0.39, im Fall einer Batteriegröße von 4 kWh, kann man davon ausgehen, dass die Batterie deutlich weniger Zyklen ertragen kann als beispielsweise die Batterie mit 16 kWh. Darüber hinaus wird für die maximale Leistung der E-Motoren von 125 kW eine sehr hohe C-Rate von 31.25 benötigt. Auf eine genaue Lebensdauerabschätzung wird

an dieser Stelle verzichtet, da hierfür ein thermisches Modell der Batterie für die Simulation benötigt wird. Ein solches ist nicht vorhanden, wodurch die Batterietemperatur für die Simulation auf konstante 25 °C festgelegt ist.

Tabelle 5-2: Max. C-Raten und SoC-Werte für die diversen Batteriegrößen

Energieinhalt [kWh]	4	8	12	16	20	24	28	32	36
max. C-Rate [h ⁻¹] im WLTC	14.9	7.6	5.16	3.96	3.19	2.67	2.3	2.0	1.79
C-Rate [h ⁻¹] für max. E-Motorenleistung (125 kW)	31.25	15.63	10.42	7.81	6.25	5.21	4.46	3.91	3.47
max. SoC	0.821	0.673	0.618	0.595	0.578	0.566	0.557	0.550	0.545
min. SoC	0.390	0.452	0.468	0.475	0.480	0.483	0.486	0.487	0.489

Der Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle pro 100 km und die Reichweite des Fahrzeugs sind für die verschiedenen Batteriegrößen in [Abbildung 5-15](#) dargestellt. Der Wasserstoffverbrauch reduziert sich, ausgehend von der größten Batterie mit 36 kWh, stetig mit sinkender Kapazität der Batterie. Allerdings gibt es bei der zweitkleinsten untersuchten Batteriegröße von 8 kWh eine Trendwende und der Verbrauch steigt für die kleinste Batterie mit 4 kWh wieder an.

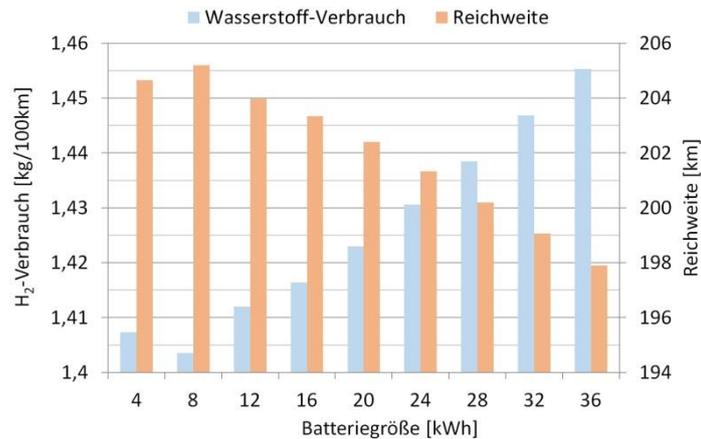


Abbildung 5-15: H₂-Verbrauch der Brennstoffzelle und Reichweite des Fahrzeugs für die diversen Batteriegrößen im Fahrzyklus WLTC Klasse 3

Der erhöhte Wasserstoffverbrauch der Brennstoffzelle bei einer Batteriekapazität von 4 kWh lässt sich anhand der Brennstoffzellenleistung erklären. In [Abbildung 5-16](#) ist Brennstoffzellenleistung in Abhängigkeit der Batteriegröße im Verlauf des Fahrzyklus WLTC dargestellt. Darin ist ersichtlich, wie lediglich bei der Batteriekapazität von 4 kWh in die höchste Leistungsstufe der Brennstoffzelle geschaltet wird. Diese Leistungsstufe wird von der Betriebsstrategie gefordert, da der Batterie-SoC bei dieser Konfiguration unter einen Wert von 0.4 gelangt (vgl. mit [Abbildung 5-14](#)). Da die maximale Brennstoffzellenleistung benötigt wird, ist der Wasserstoffverbrauch dementsprechend höher. Allerdings ist der Verbrauch im Vergleich zu allen untersuchten Batteriegrößen der zweitgeringste, da die Brennstoffzelle über weite Teile des Fahrzyklus in der kleinsten Leistungsstufe der Strategie verwendet wird. Über den gesamten Fahrzyklus gemittelt hat die Konfiguration mit der kleinsten Batterie den geringsten Leistungsbedarf von der Brennstoffzelle. Alle über den Fahrzyklus gemittelten BZ-Leistungen sowie die Maxima und Minima für die diversen Batteriegrößen sind in [Tabelle 5-3](#) angeführt.

Tabelle 5-3: BZ-Leistungen der Batterievariation über den Fahrzyklus WLTC

Energieinhalt [kWh]	4	8	12	16	20	24	28	32	36
Mittelwert	12.10	12.12	12.19	12.24	12.30	12.37	12.43	12.50	12.56
Maximum	29.16	14.50	14.50	14.50	14.50	14.50	14.50	14.50	14.50
Minimum	8.50	8.50	8.50	9.13	10.15	10.69	11.04	11.31	11.52

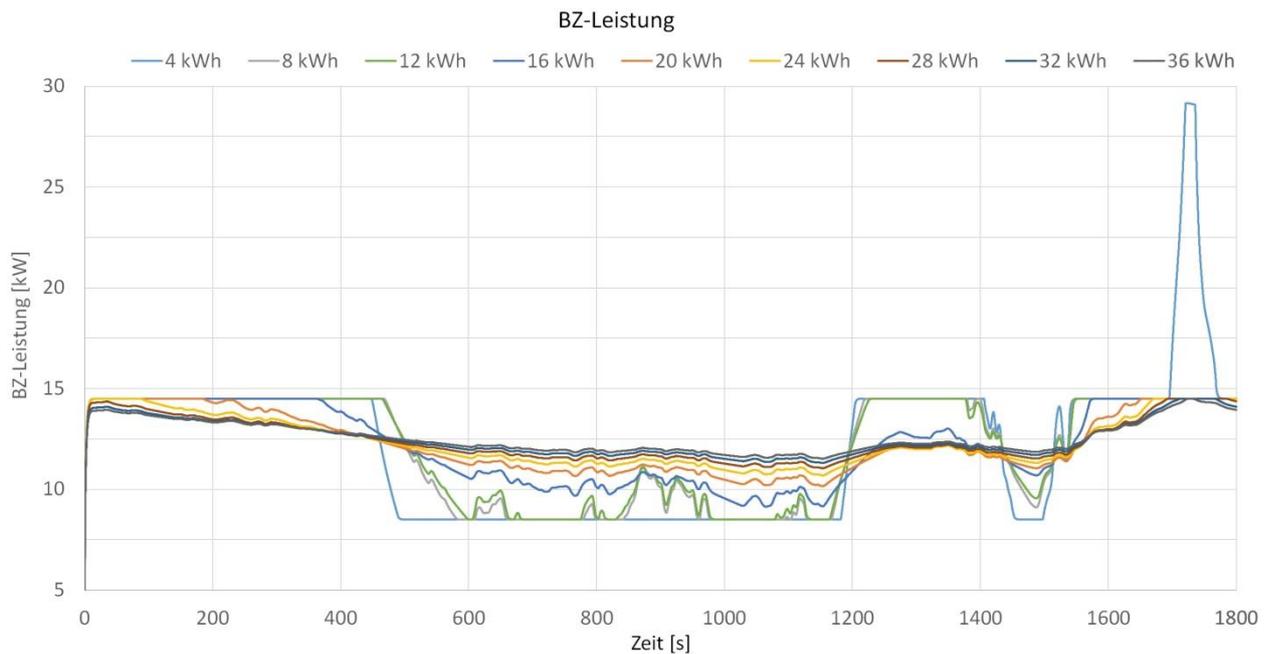


Abbildung 5-16: Brennstoffzellenleistung in Abhängigkeit der Batteriegröße im Fahrzyklus WLTC Klasse 3 bei Betriebsstrategie 2

Der Wirkungsgrad des Systems aus Brennstoffzelle, H₂-Rezirkulationspumpe und Kompressor im Verlauf des WLTC ist in [Abbildung 5-17](#) zu sehen. Hier zeichnet sich ein ähnliches Bild wie bei der BZ-Leistung ab, da der Wirkungsgrad neben der BZ-Leistung nur von der konstanten Summe der Leistungen der Rezirkulationspumpe und des Kompressors abhängen. Die niedrigen Wirkungsgrade zu Beginn des Fahrzyklus mit dem Anstieg bis zu einem Wert von 0.5 lassen sich anhand der Gleichung für den Systemwirkungsgrad (4.2) erklären. Der Kompressor benötigt im Startprozess der Brennstoffzelle eine hohe Leistung im Vergleich zur BZ-Leistung, um den Luftmassenstrom, für die in [Tabelle 3-2](#) definierten Lambda-Zahlen während des Starts, liefern zu können. Da die Lambda-Zahl von der Temperatur der Brennstoffzelle abhängt, ist der Einbruch des Systemwirkungsgrades zu Beginn des Fahrzyklus für alle Batteriegrößen annähernd gleich. Danach variieren die Wirkungsgrade der diversen Konfigurationen wie die Brennstoffzellenleistungen. Hier hat die Variante mit der 4-kWh-Batterie wieder eine deutliche Abweichung zu den anderen Batteriegrößen, da der Wirkungsgrad gegen Ende des Fahrzyklus kurzzeitig stark abfällt und ein Minimum von 0.406 erreicht. Dies geschieht aufgrund der höheren BZ-Leistung, deren Ursachen bereits zuvor erläutert wurde.

Die Variation der Batteriegröße, ausgehend von einer ursprünglichen Kapazität von 44 Ah, hat nun gezeigt, dass eine Halbierung der Kapazität auf 22 Ah einige Vorteile mit sich bringt. Der Wasserstoffverbrauch ist am geringsten und die Reichweite dadurch am höchsten. Außerdem sinkt das Fahrzeuggewicht und die Kosten für das Batteriepaket halbieren sich. Allerdings ist die Belastung der Batterie erhöht und beeinflusst die Alterung (SoH) der Batterie. Der SoH ist als Verhältnis von gemessener Kapazität zur Nennkapazität definiert und nimmt mit zunehmender Zyklanzahl, beginnend bei 1 bzw. 100 % zu Betriebsbeginn der Batterie, ab. Die Kapazität ist, wie zuvor schon erwähnt, abhängig von der Temperatur und der C-Rate und nimmt ebenfalls mit steigender Anzahl an Zyklen ab. Für automobile Anwendungen wird eine Batterie bis zu einem SoH von ca. 80 % eingesetzt [25]. In der Praxis wird die Lebensdauer der Batterien außerdem mit der Fahrzeuglebensdauer abgestimmt. Der Optimalfall tritt ein wenn beide übereinstimmen, da ein Austausch der Batterie aufgrund der Kosten nicht wirtschaftlich ist.

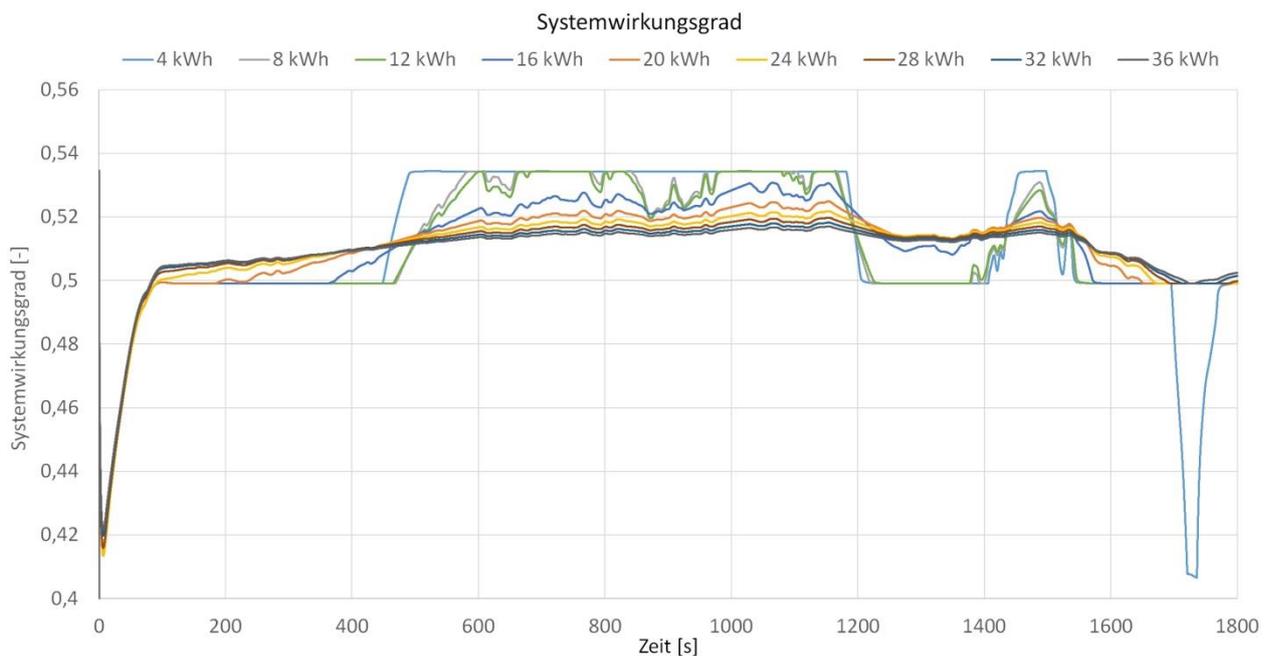


Abbildung 5-17: Wirkungsgrad des Systems Brennstoffzelle-Kompressor-Wasserstoffpumpe-Kühlmittelpumpe in Abhängigkeit der Batteriegröße im Fahrzyklus WLTC Klasse 3

Für die Abschätzung der Batterie-Lebensdauer wurde eine stark vereinfachte Berechnung verwendet. Ein Batteriezyklus beschreibt einen Lade- und Entladevorgang. Ein halber Zyklus ist daher mit einem ΔSoC von 1.0 definiert, also der Differenz zwischen den Ladezuständen von 0.0 und 1.0. Der ΔSoC während des WLTCs wurde mittels der Summe der Absolutbeträge der Änderungen des SoC für jeden Zeitschritt der Simulation berechnet und ist in Tabelle 5-4 angeführt. Mit diesem WLTC- ΔSoC wurde das Verhältnis zu einem Batteriezyklus- ΔSoC von 2.0 (Ladezustand von 0 % auf 100 % und wieder auf 0 %) berechnet. Dadurch erhält man einen Anteil eines Batteriezyklus, welcher während eines WLTCs verwendet wird. Daraus wird die Anzahl der WLTC-Durchläufe für einen vollen Zyklus der Batterie berechnet und mit den zu fahrenden Kilometern im WLTC multipliziert, um einen km-pro-Zyklus-Wert zu erhalten. Mithilfe der Lebensdauer von Li-Ionen-Batterien in Zyklen aus der Literatur [23], mit einem Wert von 2000, erhält man eine genäherte Lebensdauer der Batterie in Kilometern im WLTC, siehe Tabelle 5-4.

Tabelle 5-4: SoC-Änderung während des WLTC und Lebensdauerabschätzung für die Batterie in Kilometern im WLTC

Energieinhalt [kWh]	4	8	12	16	20	24	28	32	36
ΔSoC	1.662	0.859	0.582	0.444	0.359	0.302	0.261	0.231	0.207
Lebensdauer [1000 km]	56.1	108.4	160.0	210.1	259.9	308.7	356.7	403.8	450.1

Mit der stark vereinfachten Abschätzung der Batterie-Lebensdauer erhält man für die Ausgangsgröße der Batterie von 16 kWh eine Lebensdauer von 210100 km. Diese Lebensdauer fällt in den Bereich einer typischen Fahrzeuglebensdauer und spiegelt daher die genannte Praxis der an die Fahrzeuglebensdauer angepassten Batterie-Lebensdauer wider. Allerdings ist die Batterie-Lebensdauer auch vom SoC-Hub und dem Bereich, indem sich der SoC bewegt, abhängig. Um den SoC-Wert von 0.5 herum ist die Zyklenlebensdauer vorteilhafter als bei höheren und tieferen Ladezuständen. Die Batterie-Lebensdauer ist somit von der Temperatur, der C-Rate, des SoC-Hub und dem Betriebs-SoC-Bereich abhängig und lässt sich daher nur sehr schwer genau quantifizieren. Darüber hinaus wurde lediglich die Zyklenlebensdauer betrachtet, obwohl auch die kalendarische Lebensdauer der Batterie einen bedeutenden Einfluss hat. Die

kalendarische Lebensdauer beschreibt die Lebensdauer, wenn die Batterie keiner Belastung ausgesetzt ist. Sie hängt somit von Alterungsprozessen ab, welche unabhängig davon sind, wie die Batterie geladen und entladen wurde.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Die Modifizierung der Grundgleichungen der Brennstoffzelle machte es möglich, die Einflüsse des Luftdrucks, des Massenstroms und der Stacktemperatur besser bzw. überhaupt in den jeweiligen Gleichungen der Spannungsverluste darstellen zu können. Die Modifizierung erfolgte auf Grundlage der Ausführungen in der Literatur zur Elektrochemie und der vertiefenden Literatur zur Thermodynamik von Brennstoffzellen. Die modifizierten Gleichungen wurden dann auf die Terme des Luftdrucks, Massenstroms und der Temperatur mit Koeffizienten für die übrigen konstanten Terme reduziert. Die Koeffizienten konnten somit mittels einer Ausgleichsrechnung so angepasst werden, dass die Messdaten des Brennstoffzellenprüfstands der TU Wien mit dem Berechnungsmodell dargestellt werden konnten. Die berechneten Koeffizienten wurden in ihrer Größenordnung auf Plausibilität überprüft. Dies erfolgte mithilfe von Werten aus der Literatur für die Parameter in den jeweiligen Koeffizienten.

Die Ausgleichsrechnung wurde mit der Methode der kleinsten Quadrate durchgeführt. Dazu wurden die Residuenquadratsummen von Messwert und Berechnungswert berechnet. Es ergab sich ein mittlerer Fehler aller Messpunkte von 0.861 %. Der maximale Fehler aller Messpunkte lag bei 3.761 % und der minimale Fehler lag bei 0.007 %.

Die Modellierung des Brennstoffzellensystems erfolgte in der Simulationssoftware *GT-Suite*. Das Brennstoffzellensystem besteht dabei aus dem Modell der Brennstoffzelle bzw. des Stacks inkl. der Berechnung von Luft- und Wasserstoffverbrauch, dem Luftmanagementsystem mit Kompressor und Drosselklappe, einem Wasserstofftank für die Ermittlung der damit erzielbaren Reichweite und dem Temperaturmanagement mit einer thermischen Masse, welche die Brennstoffzelle vereinfacht darstellt. Das Luftmanagementsystem kann zwei verschiedene Druckstufen realisieren. Die geöffnete Drosselklappe ermöglicht einen niedrigen Luftdruck und die geschlossene einen erhöhten Luftdruck. Darüber hinaus wird die Lambda-Zahl in Abhängigkeit der Stacktemperatur gewählt. Bei Normalbetrieb ist ein Lambda von 1.5 eingestellt, lediglich in der Aufwärmphase ist die Lambda-Zahl erhöht. Außerdem wurde ein Kompressor-

kennfeld aus den Messdaten erstellt und für die Simulation der maximalen Brennstoffzellenleistung zu höheren Drücken hin erweitert. Das Thermomanagement regelt die Temperatur der thermischen Masse über die Änderung des Wärmeübergangskoeffizienten. Darüber hinaus wurde ein Heizsystem modelliert, mit dem der thermischen Masse eine elektrische Heizleistung zugeführt werden kann.

Mithilfe des Simulationsmodells konnten diverse Untersuchungen am Brennstoffzellen- bzw. Gesamtfahrzeugsystem durchgeführt werden. Mittels Simulation konnte das Verhalten der Brennstoffzelle bei hohen Lasten bewertet werden. Da die Bereiche mit hoher Last zu einer beschleunigten Alterung bzw. Degradation der Brennstoffzelle führen, wurden diese sogenannten Überlastbereiche an der realen Brennstoffzelle des Prüfstands nicht befahren. Die Maximalleistung der Brennstoffzelle liegt für die geöffnete Drosselklappe bei 24.11 kW. Für den Betrieb im Fahrzeug ist die Drosselklappe aber immer auf der geschlossenen Stellung. Mit erhöhtem Druck erreicht die Brennstoffzelle eine Maximalleistung von 29.04 kW bei einem Zellwirkungsgrad von 48.24 %. Der Systemwirkungsgrad aus Brennstoffzelle, Kompressor und Nebenaggregaten beträgt dabei 40.57 %.

Mit dem modellierten Heizsystem ließ sich die Effizienz des elektrischen Heizens der Brennstoffzelle bei einer Start- bzw. Außentemperatur von 5 °C bis zu einer Temperatur von 47 °C bewerten. Die elektrische Leistung von 4 kW wird dafür aus der Batterie entnommen. Die Betriebstemperatur von 55 °C wurde im WLTC 120.2 Sekunden früher erreicht als beim Aufwärmvorgang ohne elektrisches Heizen. Für die beiden untersuchten Betriebsstrategien ergab sich allerdings kein Verbrauchsvorteil durch die schnellere Erwärmung und damit früher höheren Wirkungsgrade der Brennstoffzelle. Somit ist auch die Reichweite eines Fahrzeugs mit Heizsystem geringer im Vergleich zu einem Fahrzeug ohne Heizsystem. Dabei ist der Unterschied zwischen den Betriebsstrategien deutlich. Mit der Strategie „Power Follower“ wurde mit dem Heizsystem eine Reichweite von 184 km und ohne von 191 km errechnet. Für die Strategie „Leistung in Abhängigkeit des SoC“ ergaben sich Reichweiten von 198.5 km bzw. 201.9 km für den Fall mit bzw. ohne elektrisches Heizen.

Schließlich wurde der Einfluss der Batteriekapazität auf die Brennstoffzellenleistung untersucht. Acht verschiedene Kapazitäten von 11-99 Ah wurden dabei mit der Ausgangskapazität von 44 Ah verglichen und in Bezug auf die Belastung der Batterie, den Wirkungsgrad, den Wasserstoffverbrauch und die Reichweite bewertet. Das Gewicht der Batterie und damit des Gesamtfahrzeugs wurden hierbei berücksichtigt. Die Reichweite des Fahrzeugs stieg mit sinkender Batteriekapazität aufgrund der

kürzeren Ladezeiten und damit kürzeren Belastung der Brennstoffzelle. Die höchste Reichweite konnte mit der 22 Ah-Batterie mit 205 km erreicht werden. Allerdings ist der Reichweitevorteil gering gegenüber der 44 Ah-Batterie mit 203 km auf Kosten einer stark belasteten Batterie und damit verkürzten Haltbarkeit. Die maximale C-Rate hat sich von der 44Ah-Batterie mit 3.96 zur 22 Ah-Batterie mit 7.6 fast verdoppelt.

Die Modellierung der Brennstoffzelle im Zuge dieser Diplomarbeit ließe sich in einer zukünftigen Arbeit um weitere Einflussfaktoren der Brennstoffzellenleistung erweitern. Hier würde sich die Möglichkeit der Erweiterung des Modells um den Einfluss der Feuchtigkeit der Membran anbieten. Die Feuchtigkeit der Membran hat einen Einfluss auf deren Durchlässigkeit für Wasserstoffprotonen. Dazu wären allerdings entsprechende Messdaten vom Brennstoffzellenprüfstand der TU Wien zur Validierung sinnvoll. Dadurch wäre die Brennstoffzelle noch detaillierter abgebildet, wodurch bessere Aussagen über das Betriebsverhalten und das Verhalten beim Einsatz in einem Fahrzeugsystem getroffen werden könnten.

Quellenverzeichnis

- [1] Barbir F.: PEM Fuel Cells – Theory and Practice. San Diego: Elsevier, ISBN 978-0-12-387710-9, 2013.
- [2] Kurzweil P.; Dietlmeier O.K.: Elektrochemische Speicher. Springer Fachmedien Wiesbaden, ISBN 978-3-658-21828-7, 2018.
- [3] Mench M.: Fuel Cell Engines. Hoboken: John Wiley&Sons Inc., ISBN 978-0-471-68958-4, 2008.
- [4] Das H.S.; Tan C.W.; Yatim A.H.M.: Fuel Cell hybrid electric vehicles: A review on power conditioning units and topologies. Renewable and Sustainable Energy Reviews, Volume 76, 2017, Seite 268-291.
- [5] Nissan AG: Nissan unveils world's first FCEV with SOFC running on bioethanol. Fuel Cells Bulletin, Volume 2016, Issue 9, Seite 3, 2016.
[https://doi.org/10.1016/S1464-2859\(16\)30231-0](https://doi.org/10.1016/S1464-2859(16)30231-0)
- [6] Kurzweil P.: Brennstoffzellentechnik. Wiesbaden: Springer Vieweg, ISBN 978-3-658-00084-4, 2013.
- [7] O'Hayre R.; Cha S.-W.; Colella W.; Prinz F.: Fuel Cell Fundamentals. Hoboken: John Wiley&Sons Inc., ISBN 9781119113805, 2016.
- [8] Larminie J.; Dicks A.: Fuel Cell Systems Explained. Chichester: John Wiley&Sons Ltd, ISBN 0-470-84857-X, 2003.
- [9] Töpler J.; Lehmann J.: Wasserstoff und Brennstoffzelle. Springer-Verlag GmbH Deutschland. ISBN 978-3-662-53359-8, 2017.
- [10] Klell M.; Eichlseder H.; Trattner A.: Wasserstoff in der Fahrzeugtechnik. Springer Fachmedien Wiesbaden. ISBN 978-3-658-20446-4, 2018.
- [11] Tanaka Y.: Ion Exchange Membranes. Fundamentals and Applications. Second Edition. Amsterdam. Elsevier, ISBN 978-0-444-63319-4, 2015.

- [12] Zhang J.; Zhang H.; Wu J.; Zhang J.: PEM Fuel Cell Testing and Diagnosis. Amsterdam: Elsevier, ISBN 978-0-444-53688-4, 2013.
- [13] Zahoransky R.: Energietechnik – Systeme zur Energieumwandlung. Springer Fachmedien Wiesbaden. ISBN 978-3-658-07453-1, 2015.
- [14] Fuller T.; Harb J.: Electrochemical Engineering. Hoboken: John Wiley&Sons Inc., ISBN 978-1-119-00425-7, 2018.
- [15] Amphlett J.C.; Baumert R.M.; Mann R.F.; Peppley B.A; Roberge P.R.: Performance modeling of the Ballard Mark IV solid polymer electrolyte fuel cell – I. Mechanist Model Development. Journal of Electrochemical Society, Vol.142, No.1, 1995.
- [16] Job G.; Rüffler R.: Physikalische Chemie. Vieweg+Teubner Verlag, Springer Fachmedien Wiesbaden GmbH. ISBN 978-3-8351-0040-4, 2011.
- [17] Scholz D.: Optimierung interaktiv. Springer Verlag GmbH. ISBN 978-3-662-57952-7, 2018.
- [18] Verordnung (EU) 2017/1151 der Kommission vom 1.Juni 2017 zur Ergänzung der Verordnung (EG) Nr. 715/2007 des Europäischen Parlaments und des Rates über die Typgenehmigung von Kraftfahrzeugen hinsichtlich der Emissionen von leichten Personenkraftwagen und Nutzfahrzeugen (Euro 5 und Euro 6) und über den Zugang zu Fahrzeugreparatur- und -wartungsinformationen, zur Änderung der Richtlinie 2007/46/EG des Europäischen Parlaments und des Rates, der Verordnung (EG) Nr. 692/2008 der Kommission sowie der Verordnung (EU) Nr. 1230/2012 der Kommission und zur Aufhebung der Verordnung (EG) Nr. 692/2008 der Kommission.
- [19] James, B.D.; Huya-Kouadio, J.M.; Houchins, C.; DeSantis, D.A.: Fuel Cell Vehicle and Bus Cost Analysis. FY 2016 Annual Progress Report. U.S. Department of Energy, Hydrogen and Fuel Cells Program.
- [20] Müller H.; Bernt AO.; Salman P.; Trattner A.: Brennstoffzellen-Range-Extender-Fahrzeug FCREEV – Große Reichweiten ohne Emissionen. ATZ Automobiltechnische Zeitschrift, 5/2017, Jahrgang 119, Seite 62-67. <https://doi.org/10.1007/s35148-017-0033-9>

- [21] Pint S.; Ardey N.; Mendl G.; Fröhlich G.; Straßer R.; Laudenschach T.; Doerr J.: Das neue vollelektrische Antriebssystem von Audi. 39. Internationales Wiener Motoren-symposium, Wien 2018.
- [22] Berjoza D.; Jurgena I.: Influence of batteries weight on electric automobile performance. 16th International Scientific Conference Engineering for Rural Development, Jelgava, Latvia 2017.
- [23] Hofmann P.: Hybridfahrzeuge. Springer-Verlag Wien, ISBN 978-3-7091-1779-8, 2014.
- [24] Reichmuth D.; Goldman J.: Accelerating US Leadership in Electric Vehicles. Union of Concerned Scientists. Policy brief 2017. <https://www.ucsusa.org/clean-vehicles/electric-vehicles/accelerating-us-leadership-electric-vehicles-2017>. (Letzter Zugriff am 19.10.2018)
- [25] Huynh, P.-L.: Beitrag zur Bewertung des Gesundheitszustands von Traktionsbatterien in Elektrofahrzeugen. Wissenschaftliche Reihe Fahrzeugtechnik Universität Stuttgart. Springer Fachmedien Wiesbaden GmbH, 2016. ISBN 978-3-658-16561-1