

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
12. Oktober 2006 (12.10.2006)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2006/105752 A2

(51) Internationale Patentklassifikation:
H01M 8/04 (2006.01) **H01M 8/24** (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2006/000481

(22) Internationales Anmeldedatum:
18. März 2006 (18.03.2006)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2005 015 660.6 6. April 2005 (06.04.2005) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH** [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425 Jülich (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **MÜLLER, Martin** [DE/DE]; Harbachstr. 36, 53489 Sinzig (DE). **DOHLE, Hendrik** [DE/DE]; Schroiffstr. 32, 52224 Stolberg (DE). **MERGEL, Jürgen** [DE/DE]; Jan-von-Werth-Str. 96, 52428 Jülich (DE). **WÜSTER, Thorsten** [DE/DE]; In den Hehnen 21a, 52076 Aachen (DE). **STOLTEN, Detlef** [DE/DE]; Sperberweg 2, 52076 Aachen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: **FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH**; Fachbereich Patente, 52425 Jülich (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: LOW-TEMPERATURE FUEL CELL STACK AND METHOD FOR OPERATING THE SAME

(54) Bezeichnung: NIEDERTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLENSTAPEL SOWIE VERFAHREN ZUM BETREIBEN DESSELBEN

(57) Abstract: The invention relates to a low-temperature fuel cell stack comprising a specific device for the supply of fuel. Said low-temperature fuel cell stack is characterised in that, in addition to the central fuel supply device, it comprises a supply or storage device for a liquid fuel, and a plurality of separately controllable dosing devices that lead into the central fuel supply device, especially respectively upstream of a distribution channel to the individual cells. Controllable valves, controllable piezoelectric pumps or thermally controllable supply elements are suitable as dosing devices. The invention also relates to a method for operating one such low-temperature fuel cell stack, which advantageously enables a defined concentration of fuel, or a defined humidity of the oxidation medium, to be adjusted at certain points in the fuel cell stack, especially on the inlet for the individual cells.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft einen Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel mit einer besonderen Vorrichtung zur Betriebsmitteleinspeisung. Der Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel ist dadurch gekennzeichnet, dass er neben der zentralen Betriebsmitteleinspeisung eine weitere Zuführungs- bzw. Speichereinrichtung für ein flüssiges Betriebsmittel aufweist, und dass diese mehrere separat ansteuerbare Dosiereinrichtungen umfasst, die in die zentrale Betriebsmitteleinspeisung münden, insbesondere jeweils vor einem Verteilungskanal zu den Einzelzellen. Als Dosiereinrichtung sind steuerbare Ventile, steuerbare Piezopumpen oder thermisch steuerbare Einspeisung geeignet. Die Erfindung betrifft einen Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel bzw. ein Verfahren zum Betreiben desselben, mit dessen Hilfe es vorteilhaft möglich wird, an bestimmten Stellen in einem Brennstoffzellenstapel, insbesondere am Einlass für die Einzelzellen, eine definierte Konzentration an Brennstoff bzw. eine bestimmte Feuchtigkeit des Oxidationsmediums einzustellen.

WO 2006/105752 A2

B e s c h r e i b u n g

Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel
sowie Verfahren zum Betreiben desselben

Die Erfindung betrifft einen Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel sowie Verfahren zum Betreiben desselben.

5 Stand der Technik

Brennstoffzellstapel nach dem Stand der Technik verfügen üblicherweise über eine zentrale Betriebsmitteleinspeisung. Von dieser aus werden die einzelnen Brennstoffzellen über Zuleitungen versorgt. Das Betriebsmittel wird dann weiter in
10 der Regel über Kanäle in der Bipolarplatte oder über Netzstrukturen über die Fläche der Membran-Elektroden-Einheit (MEA) möglichst gleichförmig verteilt.

Die aus dem Stand der Technik bekannten Vorrichtungen weisen
15 jedoch Nachteile dahingehend auf, dass die angestrebte Gleichverteilung der Betriebsstoffe über die einzelnen Zellen häufig nicht zufriedenstellend realisiert werden kann. Insbesondere in den Zellen gebildete Wassertropfen, Gasblasen und Fertigungsungenauigkeiten führen regelmäßig zu einer
20 Unterversorgung einzelner Brennstoffzellen. Gerade bei Direkt-Methanol-Brennstoffzellen ist jedoch eine präzise und schnelle Steuerung der Methanolkonzentration in den einzelnen Zellen erforderlich, um den Wirkungsgrad und die Leistungsabgabe zu maximieren.

25

Aufgabe und Lösung

Aufgabe der Erfindung ist es, ein Verfahren bereit zu stellen, mit dessen Hilfe die Einstellung von definierten Konzentrationen an Methanol für einzelne Brennstoffzellen in
30

einem Stapel möglich ist. Ferner ist es die Aufgabe der Erfindung, eine entsprechende Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens bereitzustellen.

5 Die Aufgaben der Erfindung werden gelöst durch einen Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel mit der Gesamtheit an Merkmalen gemäß Hauptanspruch, sowie durch ein Verfahren gemäß Nebenanspruch. Vorteilhafte Ausführungsformen des Verfahrens und des Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapels
10 finden sich in den jeweils darauf rückbezogenen Ansprüchen wieder.

Gegenstand der Erfindung

15 Die Erfindung betrifft ein Verfahren, mit dessen Hilfe es möglich wird, an einigen Zuführungsstellen zu den einzelnen Brennstoffzellen in einem Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel definierte Konzentration an Brennstoff oder Wasser zur Befeuchtung einzustellen bzw. zur Verfügung zu stellen.

20 Dazu sind vorteilhaft an verschiedenen Stellen innerhalb des Brennstoffzellenstapels Sensoren angeordnet, die in der Lage sind, Informationen über die Konzentration des Brennstoffs, der Feuchte des Oxidationsgases oder über die Zellspannung
25 wiederzugeben. Diese Informationen dienen als Regelglied für eine oder mehrere Dosiereinrichtungen, die an bestimmten Stellen des Brennstoffzellenstapels angeordnet sind. Als Dosiereinrichtungen sind insbesondere steuerbare Ventile, steuerbare Piezopumpen oder thermisch steuerbare Einspeisungen
30 geeignet.

Für die Dosiereinrichtungen kann auf herkömmliche Mittel zurückgegriffen werden. Das Verfahren zur Dosierung kann beispielsweise ähnlich wie bei einem Bubble-Jet Verfahren

erfolgen, z. B. wie bei Tintenstrahldruckern. Hier gibt es im Wesentlichen zwei unterschiedliche Verfahren, um ein Tintentröpfchen zu erzeugen: 1. Piezopumpen oder 2. Pumpen, in denen ein Teil der Tinte über einen kurzzeitigen hohen Energieeintrag verdampft und so die Tinte aus dem Düsenkopf
5 ausgetrieben wird. Eine auf diese Art funktionierende Dosiereinrichtung ist im Rahmen dieser Erfindung mit einer thermisch steuerbaren Einspeisung gemeint.

10 Die Dosiereinrichtungen sind jeweils an eine zusätzliche Zuführung- bzw. Speicherungseinrichtung angeschlossen, die mit einem Betriebsmittel, Brennstoff oder Oxidationsmedium, gefüllt ist. Diese Zuführungs- bzw. Speichervorrichtung kann insbesondere eine weitere Betriebsmittelleitung sein,
15 die beispielsweise in ein Reservoir mündet.

Während des Betriebs eines Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapels werden über die übliche zentrale Zuführungsleitung die Betriebsstoffe zu den Einzelzellen geleitet. An
20 geeigneten Stellen eingebaute Sensoren ermitteln vorteilhaft jeweils die festgesetzten Regelungsinformationen, wie z. B. die lokalen Konzentrationen an Betriebsmittel, den Feuchtigkeitsgehalt des Oxidationsmediums oder auch entsprechende Zellspannungen einzelner Zellen. Ermittelt ein Sensor eine
25 Abweichung von einem vorher definierten Sollwert, führt dies zu einer Steuerung einer Dosiereinheit, die diesem Sensor zugeordnet und vorteilhaft in räumlicher Nähe zu diesem angeordnet ist. Eine Unterversorgung mit einem Betriebsmittel, insbesondere mit Brennstoff, die sich in einer geringeren Konzentration bezogen auf den Sollwert an einem
30 Sensor ergibt, führt zu einer Ansteuerung der entsprechenden Dosiereinheit, die daraufhin zusätzlich Brennstoff an diese Stelle einspeist. Bei einer zu geringen Feuchtigkeit des Oxidationsmittels kann über die Dosiereinheiten beispielsweise
35 Wasser zugeführt werden.

Die Dosierung selbst kann nach herkömmlichen Regelalgorithmen erfolgen. Denkbar ist sowohl eine pulsweise Zudosierung oder aber auch eine kontinuierliche Zudosierung, bis der Sensor ein Signal ermittelt, welches dem vorgegebenen Sollwert entspricht. Dadurch wird die Dosiereinheit gestoppt. Denkbar ist aber auch eine Regelung, die anstelle eines vorgegebenen Sollwertes mit mehreren Grenzwerten arbeitet. Die Dosierung für Brennstoff erfolgt dabei vorteilhaft mit konzentriertem Brennstoff, d. h. bei einer Methanol-Wasser-Brennstoffzelle insbesondere mit hochkonzentriertem oder sogar reinem Methanol.

Der erfindungsgemäße Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel weist zusätzlich zur üblichen zentralen Zuführung von Betriebsmitteln wenigstens eine weitere Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung für ein flüssiges Betriebsmittel, insbesondere einen flüssigen Brennstoff oder Wasser auf. Diese Einrichtung kann beispielsweise eine weitere Zuführungsleitung sein, die insbesondere mit einem höher konzentrierten Brennstoff gespeist wird.

Das neue Konzept für einen Direkt-Methanol-Brennstoffzellenstapel sieht folgende technische Merkmale vor:

- Der Brennstoffzellenstapel verfügt über wenigstens einen zusätzlichen inneren Raum zur Speicherung eines flüssigen Betriebsstoffes, insbesondere über eine weitere Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung für ein flüssiges Betriebsmittel;
- bei den flüssigen Betriebsmitteln handelt es sich insbesondere um Methanol, eine hochkonzentrierte Methanollösung oder auch Wasser;
- der innere Raum ist an mehreren Stellen mit Dosiereinrichtungen verbunden;

- die Dosiereinrichtungen münden in eine Zuführungsleitung, die ein Betriebsmittel zu den Einzelzellen führt;
- die Dosiereinrichtungen sind separat ansteuerbar;
- bei den Dosiereinrichtungen handelt es sich insbesondere um Piezopumpen oder um thermisch gesteuerte Einspeisungen oder um entsprechend gesteuerte Ventile;
- die Ventile oder Pumpen sind durch eine Steuerung, die Informationen über die Last- und Betriebszustände der einzelnen Zellen zusammenführt, gesteuert.

Mit diesen grundsätzlichen technischen Merkmalen lassen sich vorteilhaft ortsaufgelöst die Konzentrationen an Betriebsmittel für den Zulauf zu den einzelnen Brennstoffzellen einstellen.

Der vorgenannte Aufbau des Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapels lässt sich sowohl auf der Anodenseite für die Dosierung des Brennstoffs, als auch vorteilhaft auf der Kathodenseite einsetzen, wobei als flüssiges Medium dann vorteilhaft Wasser zu Befeuchtungszwecken zum Einsatz kommt.

Spezieller Beschreibungsteil

Nachfolgend wird der Gegenstand der Erfindung anhand von Figuren näher erläutert, ohne dass der Gegenstand der Erfindung dadurch beschränkt wird.

In Figur 1 ist der Stand der Technik für die Verteilung eines Betriebsmittels zu einzelnen Brennstoffzellen in einem Brennstoffzellenstapel 1 dargestellt. Die Verteilung der Betriebsmittel ist durch einzelne Pfeile angedeutet. Das Betriebsmittel, beispielsweise der Brennstoff, gelangt zunächst über eine zentrale Betriebsmitteleinspeisung 2, die dann in die einzelnen Verteilerkanäle 3 zu den Einzelzellen

abzweigt. Der entsprechende Abfluss aus den Einzelzellen und dem Brennstoffzellenstapel ist grau angedeutet.

Die Figur 2 zeigt demgegenüber die Verbesserung der Einstellung der lokalen Konzentration des Betriebsmittels, durch die zusätzliche Einspeisung eines Betriebsmittels, insbesondere eines hoch konzentrierten Betriebsmittels wie beispielsweise reines Methanol, über die Dosiereinrichtungen 5. Die Dosiereinrichtungen sind an eine oder mehrere weitere zusätzliche Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtungen 4 für ein flüssiges Betriebsmittel verbunden, und werden darüber mit dem Betriebsmittel versorgt. Die Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung kann beispielsweise ein weiterer Kanal und/oder auch ein in der Platte liegender Hohlraum (Reservoir) sein. Die Dosiereinrichtungen münden vorteilhaft nahe der Abzweigungen zu den Verteilerkanälen in die zentrale Betriebsmitteleinspeisung, oder sogar direkt in diese, so dass die gewünschte Konzentration gezielt für eine Brennstoffeinzelle bzw. für ein Zellpaket eingestellt werden kann.

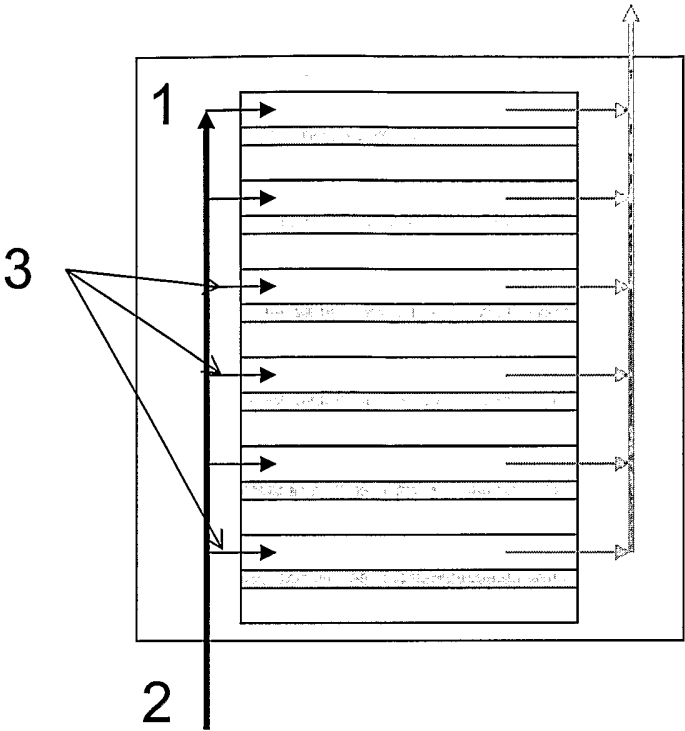
Durch geeignet eingebaute Sensoren kann eine punktgenaue Steuerung bzw. Regelung der Versorgung mit einem Betriebsmittel erfolgen, sofern die Sensorinformationen an die einzelnen ansteuerbaren Dosiereinrichtungen erfolgen.

P a t e n t a n s p r ü c h e

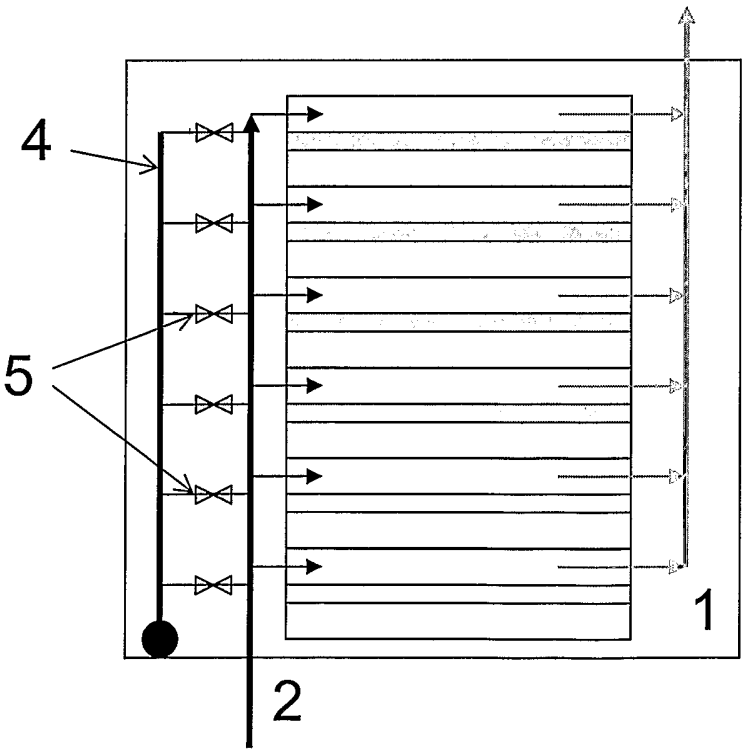
1. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel mit einer zentralen Betriebsmitteleinspeisung für die Einzelzellen, dadurch gekennzeichnet,
- 5 - dass der Brennstoffzellenstapel eine weitere Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung für ein flüssiges Betriebsmittel aufweist, und
- dass der Brennstoffzellenstapel mehrere separat ansteuerbare Dosiereinrichtungen umfasst, die mit der
- 10 weiteren Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung verbunden sind und in die zentrale Betriebsmitteleinspeisung münden.
2. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach vorhergehendem Anspruch 1, mit wenigstens einem steuerbaren
- 15 Ventil, einer steuerbaren Piezopumpe oder einer thermisch steuerbaren Einspeisung als Dosiereinrichtung.
3. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach einem der Ansprüche 1 bis 2, bei dem die Dosiereinrichtungen jeweils an der Stelle in die Betriebsmitteleinspeisung
- 20 münden, an denen die Verteilung zu den einzelnen Zellen erfolgt.
4. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 1 bis 3, mit einer Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtungen zur Zuführung von Methanol oder einer hoch-
- 25 konzentrierten Methanollösung.
5. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 1 bis 3, mit einer Zuführungs- bzw. Speicherungseinrichtung zur Zuführung von Wasser.
6. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach einem der
- 30 Ansprüche 1 bis 5, bei der die Dosiereinrichtungen mit Sensoren verbunden sind.

- 5 7. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 6 mit Sensoren, die die Konzentration eines Betriebsmittels und/oder die Feuchtigkeit eines Oxidationsmediums und/oder die Zellspannung und/oder die Temperatur zu messen vermögen.
8. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit Sensoren als Regeleinrichtung für die Dosiereinrichtungen.
- 10 9. Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel nach einem der Ansprüche 1 bis 6, bei der jeweils ein Sensor und die durch diesen Sensor gesteuerte Dosiereinrichtung benachbart angeordnet sind.
- 15 10. Verfahren zum Betreiben eines Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapels nach einem der Ansprüche 1 bis 9, bei dem über die separat ansteuerbaren Dosiereinrichtungen wenigstens einer Brennstoffeinzelle gezielt ein Betriebsmittel zugeführt wird.
- 20 11. Verfahren nach Anspruch 10, bei dem jeder Brennstoffeinzelle gezielt ein Betriebsmittel über eine Dosiereinrichtung zugeführt wird.
12. Verfahren nach Anspruch 10 bis 11, bei dem Methanol oder eine hochkonzentrierte Methanollösung zugeführt wird.
- 25 13. Verfahren nach Anspruch 10 bis 12, bei dem die separat ansteuerbaren Dosiereinrichtungen über Sensoren, die die Konzentration eines Betriebsmittels und/oder die Feuchtigkeit eines Oxidationsmediums und/oder die Zellspannung und/oder die Temperatur zu messen vermögen, separat gesteuert werden.
- 30

14. Verfahren nach Anspruch 10 bis 13, bei dem jede Dosiereinrichtung über einen jeweils benachbart angeordneten Sensor separat gesteuert wird.



Figur 1



Figur 2