



(10) **DE 10 2005 014 077 B4 2012.05.24**

(12)

Patentschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2005 014 077.7**

(51) Int Cl.: **H01M 8/02 (2006.01)**

(22) Anmeldetag: **23.03.2005**

(43) Offenlegungstag: **05.10.2006**

(45) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: **24.05.2012**

Innerhalb von drei Monaten nach Veröffentlichung der Patenterteilung kann nach § 59 Patentgesetz gegen das Patent Einspruch erhoben werden. Der Einspruch ist schriftlich zu erklären und zu begründen. Innerhalb der Einspruchsfrist ist eine Einspruchsgebühr in Höhe von 200 Euro zu entrichten (§ 6 Patentkostengesetz in Verbindung mit der Anlage zu § 2 Abs. 1 Patentkostengesetz).

(73) Patentinhaber:

**Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428, Jülich,
DE**

(72) Erfinder:

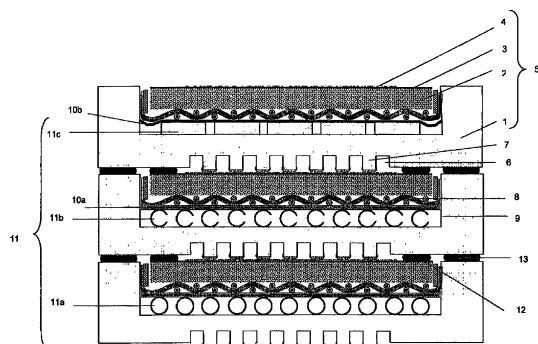
Ringel, Helmut, Dr., 52382, Niederzier, DE

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht
gezogene Druckschriften:

DE	40 16 157	A1
DE	100 33 898	A1
WO	01/ 04 981	A1

(54) Bezeichnung: **Interkonnektor für Hochtemperaturbrennstoffzellen und Verfahren zu dessen Herstellung und
Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle**

(57) Hauptanspruch: Interkonnektor (1) für eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, dadurch gekennzeichnet,
– dass Seitenränder (9) des Interkonnektors (1) mittels eines elektrisch leitenden Mittels (8) mit einer Anode (2) elektrisch leitend verbunden sind, und
– dass die Anode (2) und das elektrisch leitende Mittel (8) über wenigstens ein federndes Element (11) im Interkonnektor (1) gelagert sind.



Beschreibung

[0001] Die Erfindung bezieht sich auf einen Interkonnektor für Hochtemperaturbrennstoffzellen.

[0002] Eine Brennstoffzelle weist eine Kathode, einen Elektrolyten sowie eine Anode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff zugeführt.

[0003] Verschiedene Brennstoffzellentypen sind bekannt, beispielsweise die SOFC-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 44 30 958 C1 sowie die PEM-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 195 31 852 C1.

[0004] Die SOFC-Brennstoffzelle wird auch Hochtemperaturbrennstoffzelle genannt, da ihre Betriebstemperatur bis zu 1000°C betragen kann. An der Kathode einer Hochtemperaturbrennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Oxidationsmittels Sauerstoffionen. Die Sauerstoffionen diffundieren durch den Elektrolyten und rekombinieren auf der Anodenseite mit dem vom Brennstoff stammenden Wasserstoff zu Wasser. Mit der Rekombination werden Elektronen freigesetzt und so elektrische Energie erzeugt.

[0005] Mehrere Brennstoffzellen werden in der Regel zur Erzielung großer elektrischer Leistungen durch verbindende Elemente, auch Interkonnektoren genannt, elektrisch und mechanisch miteinander verbunden. Mittels Interkonnektoren entstehen übereinander gestapelte, elektrisch in Serie geschaltete Brennstoffzellen. Diese Anordnung wird Brennstoffzellenstapel genannt. Die Brennstoffzellenstapel bestehen aus den Interkonnektoren und den Elektroden-Elektrolyt-Einheiten.

[0006] Interkonnektoren besitzen neben den elektrischen und mechanischen Eigenschaften regelmäßig auch Gasverteilerstrukturen. Dies wird durch Stege und Nuten realisiert (DE 44 10 711 C1). Gasverteilerstrukturen bewirken, dass die Betriebsmittel gleichmäßig in den Elektrodenräumen (Räume in denen sich die Elektroden befinden) verteilt werden.

[0007] Nachteilig können bei Brennstoffzellen und Brennstoffzellenstapeln folgende Probleme auftreten:

- Metallische Interkonnektoren mit hohem Aluminiumgehalt bilden Al_2O_3 -Deckschichten aus, die nachteilig wie ein elektrischer Isolator wirken.
- Bei zyklischer Temperaturbelastung treten allgemein Wärmespannungen, verbunden mit Relativbewegungen der Einzelkomponenten zueinander, auf; diese resultieren aus dem unterschiedlichen Ausdehnungsverhalten bzw. den unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materialien im Betrieb.

[0008] Diesbezüglich besteht im Stand der Technik noch keine ausreichende Kompatibilität zwischen den vergleichsweise hohen Ausdehnungskoeffizienten z. B. des metallischen Interkonnektors und den derzeit bekannten Elektrodenmaterialien, deren Ausdehnungskoeffizienten vergleichsweise gering sind. Wärmespannungen können einerseits zwischen Elektroden und Interkonnektoren auftreten. Diese können Zerstörungen innerhalb der Brennstoffzelle zur Folge haben. Dies betrifft andererseits aber auch die in Brennstoffzellen häufig eingesetzten Glaslöcher, die die Dichtigkeit der Brennstoffzellen gewährleisten sollen. Beim Fügeprozess wird der Brennstoffzellenstapel auf etwa 700 bis 900°C erwärmt und mit 1 bis 5 kN zusammengepresst. Dabei wird das Glasloch weich, so dass unter dem Fügedruck zum einen die verschiedenen Fugen zwischen Zellen, Interkonnektoren und Gehäuse abgedichtet werden und zum anderen wird gleichzeitig ein Anpressdruck zur elektrischen Kontaktierung von Zellen und Interkonnektoren erreicht. Nachteilig bei dieser Anordnung ist es, dass das Glasloch bereits nach einigen Stunden Betriebszeit kristallisiert und dadurch spröde und hart wird. Das elastische Verhalten geht verloren. Dies hat zur Folge, dass sich die von außen auf den Stapel aufgeprägte Anpresskraft unregelmäßig und unkontrolliert auf die äußere Dichtungskraft und die innere Kontaktierungskraft aufteilt. Beim längeren Betrieb des Brennstoffzellenstapels bei 700 bis 900°C treten darüber hinaus Kriechvorgänge in den einzelnen Werkstoffsschichten des Stapsels und vor allem Schrumpfungen in der zunächst ungesinterten Kathodenkontakte schicht auf. Somit kann eine zuverlässige Kontaktkraft zwischen Zellen und Interkonnektoren nicht mehr aufrecht gehalten werden und die elektrische Kontaktierung geht verloren. Die Brennstoffzelle ist nicht mehr funktionstüchtig.

[0009] Aufgabe der Erfindung ist es daher, einen Interkonnektor für eine Hochtemperaturbrennstoffzelle bereit zu stellen, der eine langzeitstabile mechanisch-elektrische Kontaktierung zwischen Anode und Interkonnektor gewährleistet.

[0010] Diese Aufgabe wird durch einen Interkonnektor für eine Hochtemperaturbrennstoffzelle nach Anspruch 1 gelöst. Sie ist gekennzeichnet durch einen Interkonnektor, dessen Seitenränder mittels eines elektrisch leitenden Mittels elektrisch leitend mit der Anode kontaktiert sind sowie dessen Anode über federnde Elemente im Interkonnektor gelagert ist. Durch diese Ausgestaltung des Interkonnektors ist es möglich, eine Entkopplung von Dichtungs- und Kontaktierungskraft zu erreichen. Während nach dem bisher bekannten Stand der Technik z. B. ein elektrisch leitendes Mittel sowohl für die stabile elektrische Kontaktierung als auch für eine stabile mechanische Kontaktierung und Abdichtung verantwortlich war, wird diese Aufgabe durch die vorliegende Erfindung auf zwei Vorrichtungselemente aufgeteilt: fe-

dernde Elemente, welche für eine stabile mechanische Kontaktierung und Abdichtung der Brennstoffzelle sorgen und ein elektrisch leitendes Mittel, welches über die Seitenränder des Interkonnektors mit der Anode kontaktiert ist und damit für die stabile elektrische Kontaktierung sorgt. Die federnden Elemente müssen keinen Strom mehr übertragen. Im Unterschied zum Stand der Technik fließt der Strom nicht mehr direkt vertikal zwischen Anode und Interktor. Statt dessen wird der Strom über die Seitenränder des Interkonnektors umgeleitet.

[0011] In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Vorrichtung bestehen die federnden Elemente beispielsweise aus Einzelementen, mit einem kreisförmigen, C-förmigen oder S-förmigen Querschnitt oder aus einer federnden Schicht oder federnden Streifen. Diese federnde Schicht oder die Streifen können beispielsweise aus Glimmer bestehen. Glimmer bezeichnet eine Gruppe im monoklinen Kristallsystem kristallisierender Silikat-Minerale mit der komplexen chemischen Zusammensetzung (K, Na, Ca) (Al, Mg, Fe, Li) $2\text{-}3$ (OH) 2 (Si, Al) $4\text{-}5$ O₁₀. Die in Klammern stehenden Atome können sich in beliebiger Mischung vertreten, stehen aber immer im selben Verhältnis zu den anderen Atomgruppen (freie Enzyklopädie Wikipedia). Die kreisförmigen, C-förmig, oder S-förmig ausgestalteten Einzelemente können beispielsweise aus hochtemperaturfesten Stahlröhren, Profilstäben oder Stahlblechen bestehen. Die federnden Einzelemente können eine Höhe von 1–2 mm aufweisen, um eine ausreichende Federung zu gewährleisten und Relativbewegungen auszugleichen. Über die frei wählbare Steifigkeit der federnden Einzelemente kann die Kontaktierungskraft gezielt eingestellt werden. Glimmer ist gegenüber den kreisförmigen, C-förmigen oder S-förmigen Elementen weniger federnd, weist aber eine höhere Temperaturstabilität auf und ist kostengünstiger. Innerhalb der Gruppe der kreisförmig, C-förmig oder S-förmig ausgestalteten Einzelementen, weisen die kreisförmigen Elemente eine stärkere Steifigkeit gegenüber den C- oder S-förmig ausgestalteten Elementen auf.

[0012] Die Vorrichtung weist in vorteilhafter Weise ein elektrisch leitendes Mittel auf, welches aus Nickel, Gold, Platin oder Silber besteht. So kann beispielsweise ein Nickelnetz eingesetzt werden, welches einen Drahtdurchmesser von 0,6 mm und einen Drahtabstand von 2,6 mm hat. Es ist jedoch auch möglich, ein dünnes Blech oder eine Folie aus dem geeigneten Material einzusetzen. Die elektrisch leitenden Mittel können an den Seitenrändern des Interkonnektors elektrisch leitend mit diesem z. B. durch Hochtemperatlöten/-schweißen verbunden werden oder sie können in vorgefertigte Rillen des Interkonnektors eingestemmt oder dort verlötet werden.

[0013] In einer weiteren vorteilhaften Ausführung der Vorrichtung ist die innere Glaslotdichtung über ein

federndes Element mit dem angrenzenden Interktor verbunden. Biegespannungen, die im Randbereich der Brennstoffzelle auftreten, können hierdurch verringert werden und so eine Bruchgefahr der Brennstoffzelle verhindern. Dieses federnde Element kann beispielsweise ein Alchromstreifen sein, der kreisförmig, C-förmig oder S-förmig ausgestaltet ist.

[0014] Alternativ zu den bisher verwendeten Glaslotdichtungen für die Interkonnektoren untereinander, können auch metallische Dichtungen eingesetzt werden, die nicht elektrisch isoliert sind und Relativbewegungen an den Rändern der Interkonnektoren, die miteinander verbunden sind, ausgleichen können. Dies ist nun möglich, da die hohen Kräfte für die metallische Dichtung durch die entsprechende Dimensionierung der federnden Elemente nicht mehr unkontrolliert auf die Brennstoffzelle geleitet werden, sondern die Kontaktierungskraft entsprechend der frei wählbaren Steifigkeit der federnden Elemente bestimmbar ist. Die elektrische Isolierung der metallischen Dichtung kann durch eine Keramikschicht auf dem Interkonnektorrand oder eine Beschichtung der metallischen Dichtung mit einer Keramikschicht (z. B. Zirkonoxidschicht) erfolgen.

[0015] Die Aufgabe wird weiterhin gelöst durch ein Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Interkonnektors.

[0016] Im Folgenden wird die Erfindung unter anderem auch anhand der Beschreibung eines Ausführungsbeispiels und unter Bezugnahme auf die beigelegte Figur erläutert.

[0017] Es zeigt:

[0018] [Fig. 1](#): schematischer Querschnitt durch einen Stapel von Brennstoffzellen, die durch die erfindungsgemäßen Interkonnektoren **1** miteinander verbunden werden.

[0019] [Fig. 2](#): schematischer Querschnitt durch einen Stapel von Brennstoffzellen, die durch die erfindungsgemäßen Interkonnektoren **1** sowie zusätzliche federnde Elemente miteinander verbunden sind

[0020] [Fig. 1](#) zeigt schematisch einen Querschnitt durch drei Brennstoffzellen **5**, jeweils bestehend aus Anode **2**, Kathode **4** und Elektrolyt **3**, die durch die erfindungsgemäßen Interkonnektoren **1** miteinander verbunden werden. Die Interkonnektoren enthalten Gaskanäle **6** und Stege **7**. Unterhalb der Anode **2** ist ein elektrisch leitendes Mittel **8** angeordnet, welches elektrisch leitend mit den Seitenrändern **9** des Interkonnektors **1** verbunden ist. Zwischen Interkonnektor **1** und elektrisch leitendem Mittel **8** sind die federnden Elemente **11**, bestehend aus Einzelementen **11a**, **11b**, **11c** angeordnet. Diese können beispielsweise einen kreisförmigen **11a** oder C-förmigen **11b**

Querschnitt aufweisen oder aus einer Schicht/Streifen Glimmer 11c bestehen. Zur Herstellung einer planen Fläche und zur gleichmäßigen Verteilung der federnden Wirkung können die federnden Einzelemente 11a, 11b, 11c mit einem Blech 10a, 10b verbunden sein. Das Blech 10a, 10b kann lose schwimmend 10a oder fest 10b mit dem Interkonnektor 1 verbunden sein. Zum gasdichten Abdichten der Fugen zwischen Brennstoffzelle 5 und Interkonnektoren 1 werden beispielsweise Glaskeramiken wie z. B. Glaslot eingesetzt. Der Kathodenraum kann durch eine innere Glaslotdichtung 12 gegenüber dem Anodenraum abgedichtet sein. Zum Abdichten der Fugen zwischen den Interkonnektoren 1 ist eine äußere Glaslotdichtung 13 möglich.

[0021] [Fig. 2](#) zeigt schematisch einen Querschnitt durch zwei Brennstoffzellen 5, jeweils bestehend aus Anode 2, Kathode 4 und Elektrolyt 3, die durch die erfindungsgemäßen Interkonnektoren 1 verbunden werden. Neben den bereits in [Fig. 1](#) erläuterten Vorrhichtungsmerkmalen weisen die Interkonnektoren 1 zusätzliche federnde Elemente 14 und 15 auf.

[0022] Auf die innere Glaslotdichtung 12 kann ein weiteres federndes Element 14 aufgebracht sein, welches mit dem angrenzenden Interkonnektor 1 verbunden ist und Relativbewegungen der Brennstoffzelle ausgleichen kann.

[0023] Zur Abdichtung der Interkonnektoren (1) untereinander kann eine federnde, metallische Dichtung (15) eingesetzt werden, die nicht elektrisch isoliert ist und Relativbewegungen an den Rändern der Interkonnektoren 1, die miteinander verbunden sind, ausgleichen kann. In diesem Fall wird die elektrische Isolierung zwischen den Interkonnektoren 1 durch keramische Schichten 16 erreicht, die z. B. durch Plasmabeschichtung auf die Interkonnektoren 1 aufgetragen werden.

Patentansprüche

1. Interkonnektor (1) für eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle,
dadurch gekennzeichnet,
 - dass Seitenränder (9) des Interkonnektors (1) mittels eines elektrisch leitenden Mittels (8) mit einer Anode (2) elektrisch leitend verbunden sind, und
 - dass die Anode (2) und das elektrisch leitende Mittel (8) über wenigstens ein federndes Element (11) im Interkonnektor (1) gelagert sind.

2. Interkonnektor nach Anspruch 1, bei dem das federnde Element (11) Einzelemente mit einem kreisförmigen (11a), einem C-förmigen (11b) oder einem S-förmigen Querschnitt oder eine federnde Schicht oder Streifen (11c) umfasst.

3. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 1 bis 2, bei dem das federnde Element (11) aus hochtemperaturfestem Stahl oder Glimmer besteht.

4. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, bei dem das elektrisch leitende Mittel (8) aus Nickel, Gold, Platin oder Silber besteht.

5. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, bei dem das elektrisch leitende Mittel (8) an den Seitenrändern (9) des Interkonnektors (1) elektrisch leitend verlötet ist oder in die Seitenränder (9) eingestemmt ist.

6. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, bei dem die innere Glaslotdichtung (12) über ein weiteres federndes Element (14) mit einem angrenzenden Interkonnektor (1) verbunden ist.

7. Interkonnektor nach Anspruch 6, bei dem das weitere federnde Element (14) ein Aluchromstreifen ist.

8. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 6 bis 7, bei dem das weitere federnde Element (14) einen kreisförmigen, einen C-förmigen oder einen S-förmigen Querschnitt aufweist.

9. Interkonnektor nach einem der Ansprüche 6 bis 8, bei dem die Seitenränder (9) des Interkonnektors (1) über federnde, metallische Dichtungen (15) mit einem angrenzenden Interkonnektor (1) in Verbindung stehen.

10. Verfahren zur Herstellung eines Interkonnektors für Hochtemperaturbrennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet,

- dass die Seitenränder (9) des Interkonnektors (1) mittels eines elektrisch leitenden Mittels (8) mit einer Anode (2) elektrisch leitend verbunden werden und
- dass die Anode (2) und das elektrisch leitende Mittel (8) über wenigstens ein federndes Element (11) im Interkonnektor (1) gelagert werden.

11. Verfahren zum Betreiben einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle mit einem Interkonnektor gemäß einer der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass der Strom von einer Anode (2) über ein die Anode kontaktierendes elektrisch leitendes Mittel (8) in die Seitenränder des Interkonnektors (1) umgeleitet wird.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

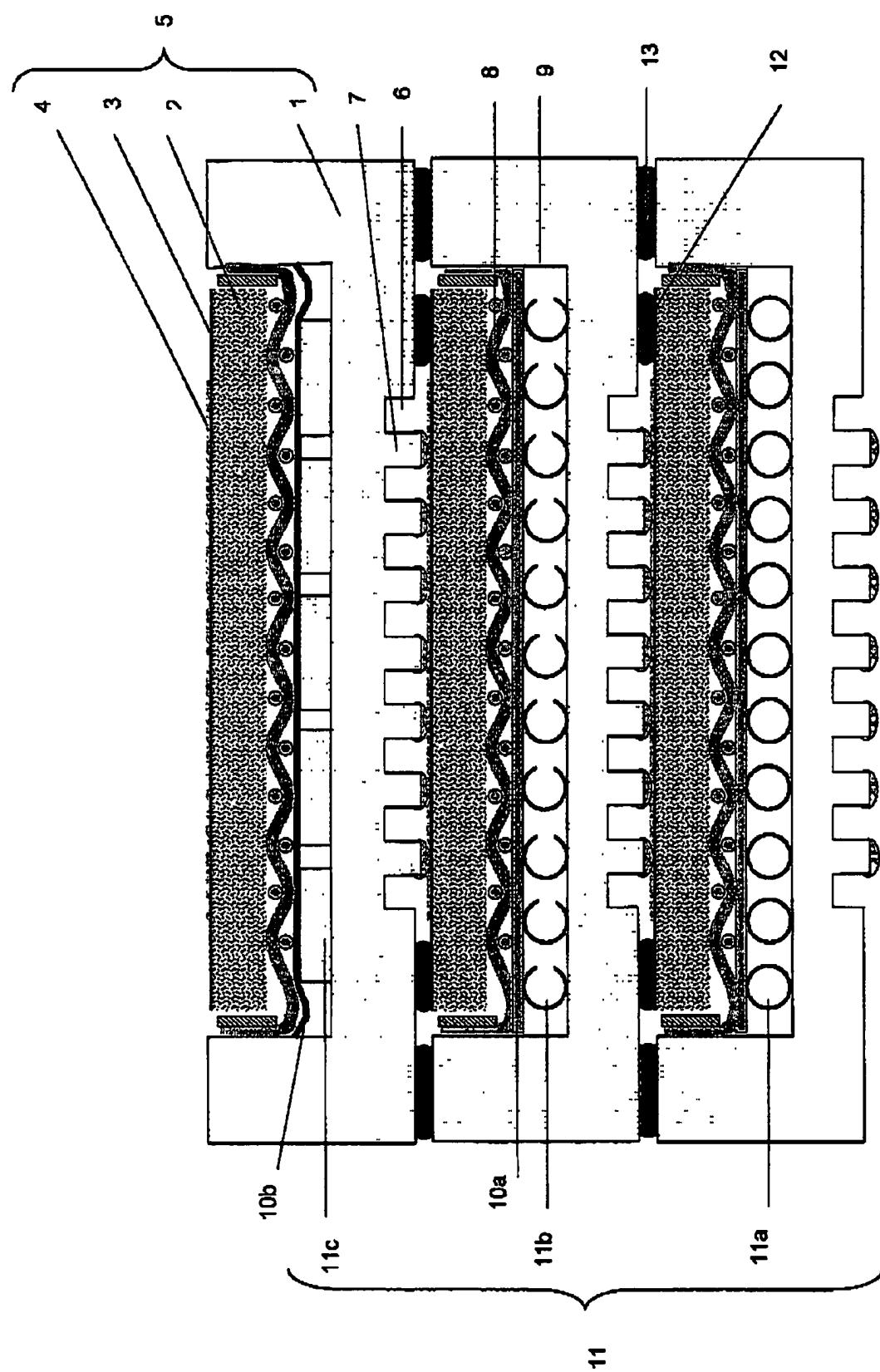


Fig. 1

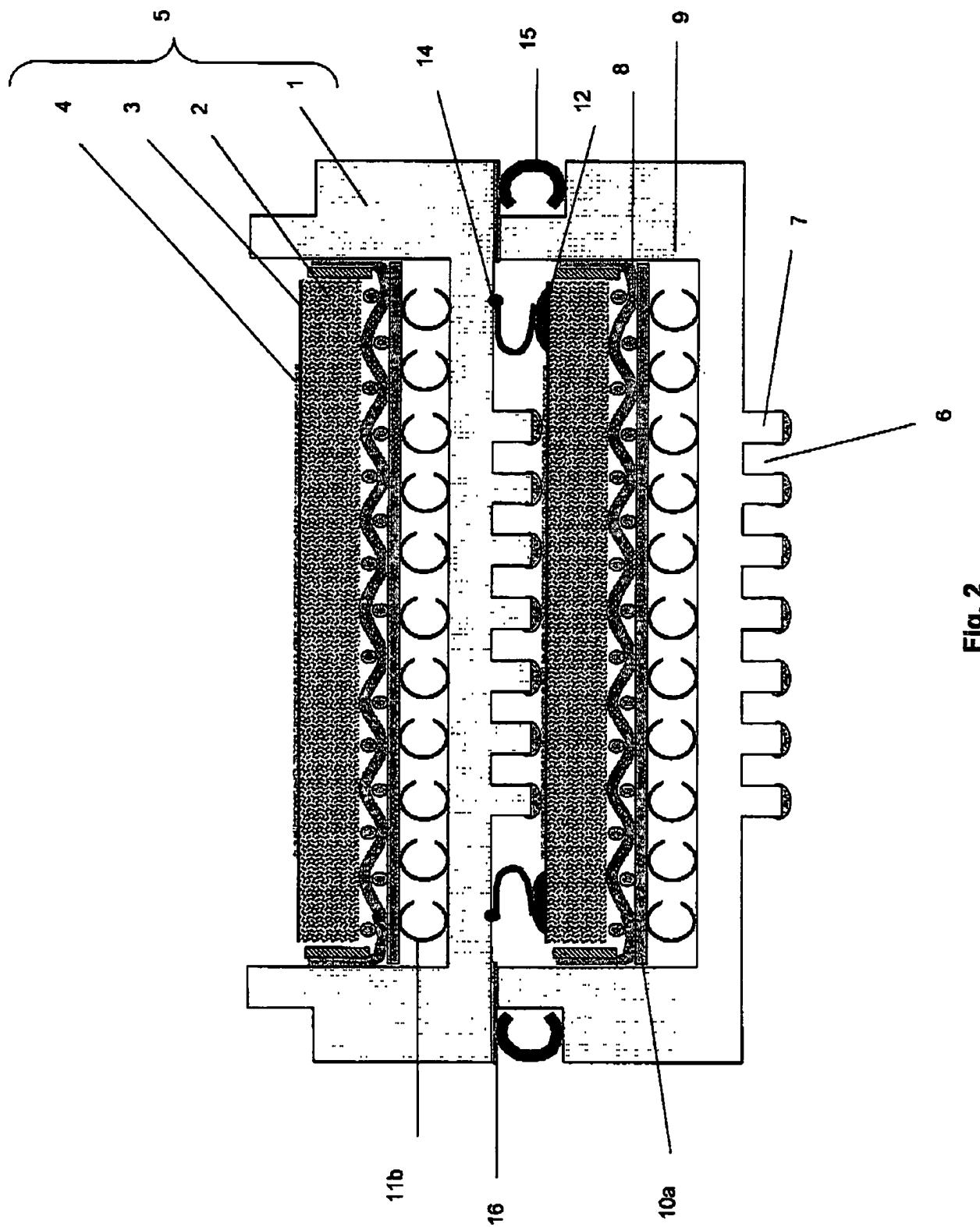


Fig. 2