

(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
11. Dezember 2003 (11.12.2003)

PCT

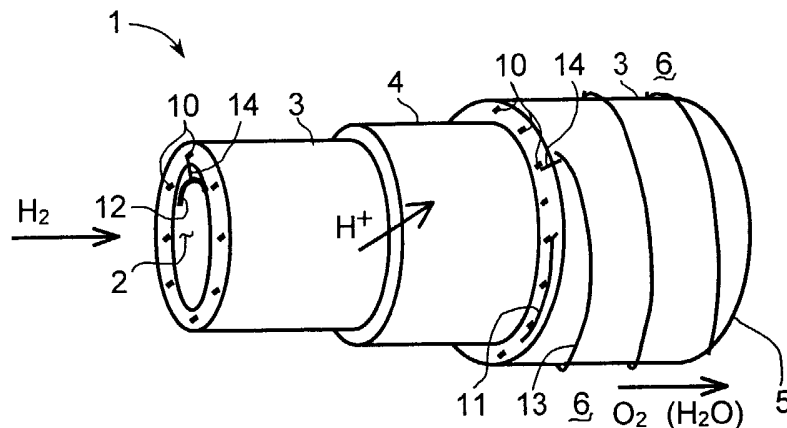
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/103079 A2

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **H01M 4/86** (74) **Anwalt: THIELE, Thomas**; Kanzlei Leibbrand - Thiele, Isoldenstrasse 8, 80804 München (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE03/01832
- (22) Internationales Anmeldedatum:
4. Juni 2003 (04.06.2003)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
102 24 783.8 4. Juni 2002 (04.06.2002) DE
- (71) Anmelder und
- (72) **Erfinder: HÖHBERGER, Ulrich, F., H.** [DE/DE]; Rade-
gundisstrasse 18, 86316 Friedberg (DE).
- (81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) **Title:** HOLLOW CONDUCTOR-FUEL CELL ELEMENT HAVING A CONDUCTOR ARRANGEMENT, AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) **Bezeichnung:** HOHLLEITER-BRENNSTOFFZELLENELEMENT MIT LEITERANORDNUNG UND VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG



(57) **Abstract:** The invention relates to a hollow conductor-fuel cell element (1) comprising a lumen (2) that is located inside, an inner electrode (3), an outer electrode (5), and a catalytic layer (4), which is at least permeable to protons and which is located between the inner electrode (3) and the outer electrode (5). The aim of the invention is to enable an adequate transport of electrons into the fuel cell element or out therefrom. To this end, the invention provides that conductors (10, 12, 13) are arranged inside the inner electrode (3) and/or inside the outer electrode (5) and/or directly adjacent to these electrodes. These conductors are specially designed for transporting to or from electrode regions of the inner electrode (3) or of the outer electrode (5).

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung bezieht sich auf ein Hohlleiter-Brennstoffzellenelement (1) mit einem innenseitigen Lumen (2), einer Innenelektrode (3), einer Aussenelektrode (5) und zwischen Innenelektrode (3) und Aussenelektrode (5) einer katalytischen, zumindest Protonen durchlassenden Schicht (4). Um einen ausreichenden Elektronentransport in das Brennstoffzellenelement hinein bzw. aus diesem heraus zu ermöglichen, wird vorgeschlagen, dass innerhalb der Innenelektrode (3) und/oder der Aussenelektrode (5) und/oder diesen direkt benachbart Leiter (10, 12, 13) anzuordnen, die speziell zum Hin- bzw. Abtransport zu bzw. von Elektrodenbereichen der Innenelektrode (3) bzw. der Aussenelektrode (5) ausgelegt sind.

WO 03/103079 A2



DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL,
PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG,
CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— *ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu ver-
öffentlichen nach Erhalt des Berichts*

Erklärung gemäß Regel 4.17:

— *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu
beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für alle
Bestimmungsstaaten*

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

Beschreibung

Hohlleiter-Brennstoffzellenelement mit Leiteranordnung und
Verfahren zur Herstellung

5

Die Erfindung bezieht sich auf ein Hohlleiter-
Brennstoffzellenelement mit einer Leiteranordnung gemäß den
oberbegrifflichen Merkmalen des Patentanspruchs 1, 2 bzw. auf
Verfahren und ein Mehrschichtmaterial zum Herstellen eines
10 solches Hohlleiter-Brennstoffzellenelementes.

Brennstoffzellen werden dazu verwendet, mit Hilfe von
Katalysatoren oder katalytisch wirkenden Elektroden chemische
Energie aus Brennstoffen wie z.B. Wasserstoff, Erdgas oder
15 Methanol direkt in elektrische Energie umzuwandeln. Man
unterscheidet u.a. Niedertemperatur- und
Hochtemperaturbrennstoffzellen. Ein Brennstoffzellentyp sind
sogenannte planare Brennstoffzellen, welche parallel
zueinander angeordnet eine plattenförmige
20 protonenaustauschende Membran, Elektroden und andere
Schichten aufweisen. Bekannt sind auch tubuläre
Brennstoffzellensysteme, bei denen die protonenaustauschende
Membran röhren- bis hin zu hohlfaserförmig ausgebildet wird
und außenseitig z.B. mit einer Elektrolytschicht beschichtet
25 und mit Draht eng umwickelt wird. Anstelle der Verwendung von
gewickeltem Draht ist auch der Einsatz eines aus Metall oder
Kohlenfasern geflochtenen Gewebes bekannt. Derartige
Bauweisen ermöglichen jedoch nur äußerst begrenzt eine
Miniaturisierung der Brennstoffzellen bzw. der Fasern für
30 solche Brennstoffzellen.

Problematisch bei im Verhältnis zum Durchmesser lang
dimensionierten Brennstoffzellen ist die Abführung von
erzeugtem Strom über entsprechend geeignete Leiter. Die
35 Elektroden selber sind dazu entsprechend den Bedingungen des
Ohm'schen Gesetzes nicht geeignet.

Aus DE 198 38 089 A1 ist es bekannt, tubuläre Brennstoffzellen als Wendel- oder Spiralrohr-Halme aus Feststoffelektrolyt-Bipol-Folien zu wickeln. Ferner wird darin vorgeschlagen, einen Elektrolyt-Halm zusammen mit einer
5 Elektrodenausformung aus einem Feststoffelektrolyt-Granulat zu extrudieren. Nach dem Ausformen werden diese Halme gebrannt, um sie nachfolgend als Membranen und Membranträger zu benutzen. Als Halmdurchmesser wird dabei ein Bereich von 0,28 bis 10,0 mm angegeben. Wie Halme mit einem
10 Außendurchmesser von weniger als einigen Millimetern tatsächlich hergestellt werden können, bleibt jedoch offen. Wie innerhalb des Halm-Lumens und im Umfangsbereich des Halmes Elektroden zur Ausbildung von Anode und Kathode und zudem zum Elektronentransport auszubilden sind, bleibt
15 ebenfalls offen.

Aus DE 198 60 056 sind Mikrohohlfaser-Brennstoffzellen bekannt, bei denen eine Hohlfaser mittels einer Spinnvorrichtung hergestellt wird, wobei im Bereich von
20 Düsenöffnungen der Spinnvorrichtung erzeugte Teilströme mittig durch Kerne oder durch Einrichtungen zum Einblasen eines Gases geteilt werden. Die erzeugte Hohlfaser wird wiederum gebrannt. Durch den Brennvorgang bei derartigen Hohlfasern sind diese selbst stützend ausgebildet, so dass
25 ein Lumen erhalten bleibt, durch welches der Brennstoff, insbesondere Wasserstoff hindurch geleitet werden kann.

Elektroden für tubuläre Brennstoffzellen sind beispielsweise aus DE 199 09 930 A1 bekannt. Dort werden Elektroden
30 vorgeschlagen, die aus einem Geflecht aus Elektronen leitendem Material bestehen. Dabei wird für das Lumen ein Innendurchmesser von 0,2 bis 3 mm avisiert. Aus der WO 00/54358 ist zusätzlich bekannt, auch in das Lumen zusätzlich zu dem innenseitigen Geflecht und in elektrisch leitend
35 anliegendem Kontakt zu diesem zentral und längs hindurchführende Drähte einzubringen, um die Stromabfuhr zu verbessern und die Stabilität des Hohlleiter-

Brennstoffzellenelements zu erhöhen. Die Drähte reduzieren nachteilhafterweise den Durchtrittsquerschnitt für den Brennstofftransport. Außerdem können die Drähte bei nicht ganz geradlinigem Verlauf den Brennstofffluss zusätzlich behindern.

Aus WO 97/47052 ist ein Verfahren zum Herstellen von tubulären Brennstoffzellen bekannt, bei denen eine Kohlenstoffstange nach dem Auftragen einer Katalysatorbeschichtung mittels Sputtern zum Ausbilden einer Anode mit einer elektrisch leitfähigen Faser umwickelt wird. Diese Faser bzw. ein entsprechender Draht dienen zum Transport von Elektroden. Aus US 5,458,989 ist es bekannt, eine Anode und eine Kathode direkt aus dicht gewickeltem Draht herzustellen.

Die Aufgabe der Erfindung besteht darin eine insbesondere tubuläre Brennstoffzelle mit einer verbesserten Leiteranordnung vorzuschlagen.

Diese Aufgabe wird durch ein Hohlleiter-Brennstoffzellenelement mit einer Leiteranordnung gemäß den Merkmalen des Patentanspruchs 1 bzw. 2, ein Verfahren zum Herstellen eines solchen Hohlleiter-Brennstoffzellenelements gemäß den Merkmalen des Patentanspruches 12 bzw. 13 bzw. durch ein Mehrschichtmaterial zum Herstellen von Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen mit den Merkmalen des Anspruchs 14 gelöst. Vorteilhafte Ausgestaltungen sind Gegenstand abhängiger Ansprüche.

Einen im Lumen des Hohlleiter- bzw. Hohlfaser-Brennstoffelementes angeordneten Spiralkörper und/oder eine spiralförmige Druckfeder als Leiteranordnung bietet eine Vielzahl von Vorteilen. Ein innen anliegender spiralförmiger Leiter bietet für das Hohlleiter-Brennstoffzellenelement eine ausreichende Stützfunktion. Darüber hinaus ist bei den hohen fließenden Strömen auch eine gute Elektronenleitung

gewährleistet, welche durch die Anodenschicht bzw. Kathodenschicht selber, welche mit der Spirale in Kontakt steht, nicht gewährleistet werden kann. Außerdem kann durch den Innenraum der Spirale hindurch und an die Anode heran der Brennstoff, z.B. Wasserstoffgas problemlos hindurchgeführt werden. Ein spiralförmiger Leiter liegt besser an der das Lumen umgebenden Elektrode, das heißt Anode oder Kathode, an, so dass der elektrische Kontakt besser gewährleistet ist als bei einem längs durch das Lumen führenden festen Leiter mit z.B. gefräster Oberfläche. Außerdem behindert ein spiralförmiger Leiter durch das enge Anliegen an der Elektrode und einen entsprechend freien Lumenkanal weniger den hindurchströmenden Brennstoff als längs durch das Lumen führende feste Leiter. Der Einsatz von spiralförmigen Leitern im Lumen eines Hohlleiters bzw. einer Hohlleiter einer solchen Brennstoffzelle dürfte insbesondere bei der Verwendung von Brennstoffzellen mit einem Gesamtdurchmesser von 0,3 bis 5 Millimetern vorteilhaft sein, um einerseits stützenden Halt für das Hohlleiter-Brennstoffzellenelement zu bieten und andererseits eine gute Stromleitung zu ermöglichen. Außerdem wird der Zutritt für den Brennstoff ausreichend sicher gestellt.

Vorteilhaft mit eigenständigem erfinderischen Gehalt ist insbesondere auch das Einbringen von Leitern in die Elektrodenschicht, das heißt in die Anode bzw. die Kathode selbst. Dies ist besonders vorteilhaft, wenn die Anode bzw. die Kathode mit Blick auf das Material oder die Dimensionierung zwar zum Aufnehmen bzw. Abgeben von Elektronen geeignet ist, jedoch weniger für den Transport größerer Elektrodenmengen über die Länge des Brennstoffzellenelements. Derartige im wesentlichen längs, d.h. insbesondere geradlinig durch die Anode und die Kathode führende Leiter können optional auch spiralförmig verlaufen, wodurch eine weiter verbesserte Formstabilität geboten wird. Der Einsatz von Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen mit einem Leiter- bzw. Materialdurchmesser von 0,005 - 0,03 ist

insbesondere für Hohlleiter-Brennstoffzellenelemente mit einem Gesamtdurchmesser von weniger als 1,0 mm, insbesondere weniger als 0,5 mm sehr sinnvoll, insbesondere bei einer Ausbildung als Hohlleiter. Dies ermöglicht einen guten
5 Elektronentransport auch in Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen mit einem sehr geringen Lumendurchmesser, welcher durch das Einbringen einer eigenständigen Elektrode in Form eines Geflechts oder einer Spirale als Leiter für einen ausreichenden Transport des
10 Brennstoffs zu gering wäre.

In Übergangsbereichen unterschiedlicher Hohlleiter-Brennstoffzellen-Dimensionen bietet sich in sehr vorteilhafter Ausgestaltung auch eine Kombination von Leitern
15 innerhalb der Anode bzw. Kathode und zusätzlich einem oder mehreren spiralförmigen Leitern innerhalb des Lumen eines Hohlleiter-Brennstoffzellenelementes an.

Zur Erhöhung der Stabilität kann bei längs gerichteten
20 Leitern innerhalb des Anoden- bzw. Kathodenmaterials der Brennstoff auch mit erhöhtem Druck durch das Lumen geführt werden, um das Lumen bzw. den gesamten Hohlleiter offen halten bzw. aufblähen.

25 Als Materialien für die Leiter wird vorteilhafterweise ein möglichst gut leitendes Material verwendet.

Vorteilhafte Herstellungsverfahren für derartige Hohlleiter-Brennstoffzellenelemente sind insbesondere das Einbringen
30 solcher Leiter beim Extrudieren von Hohlleiterzellen bzw. beim Spinnen von Hohlfasern bzw. das Einbringen solcher Leiter beim Wickeln eines solchen Hohlleiters.

Zur besseren Zu- bzw. Abführung von Elektronen aus dem
35 Anoden- bzw. Kathodenmaterial zu den darin eingebrachten längs führenden Leitern oder den spiralförmig verlaufenden Leitern können zusätzliche Leiter im wesentlichen quer zu

diesen Leitern durch das Anoden- bzw. Kathodenmaterial geführt werden. Diese zusätzlichen Leiter können auch mehrere benachbart längs führende Leiter verbinden, also eine Art Gitterstruktur ausbilden. Die quer geführten Leiter haben
5 eine Sammelfunktion für Elektronen aus dem benachbarten Elektrodenbereich und können daher mit Blick auf deren Querschnitt deutlich dünner ausgeführt sein, als die längs führenden Leiter, welche den Hauptelektronentransport übernehmen.

10

Zwischenräume bzw. Abstände zwischen einzelnen dieser Leiter oder auch den Wendeln der spiralförmigen Leiter im Innenraum des Lumen ermöglichen einen guten Durchtritt der Protonen zur Membran. In vorteilhafter Weise wird einerseits die für den
15 Elektronentransport zugängliche Oberfläche der Leiter vergrößert und andererseits der Zugang dieses Brennstoffs zur Katalysatorschicht sicher gestellt. Die erforderliche Porosität des Elektronen leitenden Kerns der Brennstoffzelle für den Durchtritt der Edukte in die Katalysatorschicht und
20 an die Membran im Inneren des Brennstoffzellentubus ist sichergestellt.

Während die Verwendung von vorzugsweise längs durch die Anode bzw. durch die Kathode führenden Leitern den elektrischen
25 Widerstand des gesamten Verbundes reduziert und damit verbessert, ist eine Kontaktierung dieser Leiter mit einer innerhalb des Lumen bzw. außerhalb der Anordnung angeordneten spiralförmigen Feder als weiterem Leiter besonders vorteilhaft, wenn diese verschiedenen Leiter miteinander in
30 Kontakt stehen. Über vorzugsweise gering dimensionierte längs gerichtete Leiter innerhalb der Schichten kann dann an den Kontaktpunkten ein Elektronenübergang zu den spiralförmigen Leitern erfolgen, welche einen größeren Durchmesser als die längs gerichteten Leiter aufweisen können und somit einen
35 weiter verbesserten Elektronentransport ermöglichen. Letztendlich wird somit die elektrische Kontaktierung

innerhalb der Katalysatorschicht und die Ausleitung durch einen geringeren Leiterwiderstand intensiviert.

Bei Brennstoffzellen aus Hohlleitern bzw. Hohlfasern mit
5 Durchmessern unter einem Millimeter bis hin zu 0,05 mm oder weniger ist eine kombinierte Verwendung von im wesentlichen längs durch die Schichten hindurchführenden Leitern und einem zusätzlich in dem Lumen befindlichen spiralförmigen Leiter möglich. Mit Blick auf ein freies Lumen zum Stofftransport
10 und die in derartig gering dimensionierten Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen nur im geringen Maße auftretenden Ströme ist die Kombination jedoch weniger erforderlich. In solchen Fällen sind die längs durch die Schichten, dass heißt durch die Anode bzw. Kathode führenden Leiter bei Verwendung
15 eines hoch leitfähigen Materials zumeist ausreichend.

Die Herstellung eines tubulären Verbundes, dass heißt eines Hohlleiter-Brennstoffzellenelementes mit den innen liegenden spiralförmigen Leitern und den im wesentlichen in
20 Längsrichtung in die Schichten eingebrachten Leitern kann kontinuierlich auf für sich aus der Kunststoffindustrie bekannten Extrusions- oder Spinnanlagen durchgeführt werden. Dabei können als Leiter stabförmig angeordnete Drähte leicht in die Elektrodenschichten mit eingearbeitet werden. Auch
25 eine Spiralfeder bzw. ein spiralförmig gewickelter Leiter kann während des Spritz- oder Spinnvorganges in das Lumen des entstehenden Hohlleiters bzw. des entstehenden Schlauches eingeführt werden.

30 Neben den sehr gut leitfähigen Leitern wird unter einem Elektronen leitenden Material auch mit Blick auf die Elektroden ein zur Leitung von Elektronen befähigtes Material verstanden, aus welchem die Anode bzw. die Kathode hergestellt werden. Diese Materialien können zugleich auch
35 als Stützgewebe für das Hohlleiter-Brennstoffzellenelement bzw. den Gesamtverbund dienen und in bevorzugter Ausführungsform katalytische Eigenschaften aufweisen.

Die Leiter können vorteilhafterweise wahlweise gerade oder wendelförmig durch die Schichten hindurchgeführt werden. In bevorzugter Ausführungsform kann ein Hohlleiter-

5 Brennstoffzellenelement auch eine Vielzahl solcher Leiter in den Schichten aufweisen. Bereits Leiter mit einem Durchmesser von 0,005 bis 1,5 mm können je nach Durchmesser der Hohlleiter-Brennstoffzelle ausreichend Strom aus dem Hohlleiter ableiten. Große Steigungen bei wendelförmigen

10 Leitern bieten den Vorteil von großen Zwischenräumen zwischen benachbarten Leiterwänden, so dass ein guter Durchtritt von Protonen und dem Brennstoff ermöglicht wird. Eine geringe Steigung bietet hingegen eine große Oberfläche des Leiters gegenüber dem umgebenen Anoden- bzw. Kathodenmaterial, so

15 dass ein guter Elektronenübergang zwischen Leiter und dem Elektrodenmaterial gewährleistet wird. Je nach Dimensionierung der Brennstoffzelle ist ein entsprechend geeignetes Verhältnis zu wählen.

20 Neben dem Einsatz eines einzelnen spiralförmigen Leiters im Innenraum des Lumen ist auch der Einsatz mehrerer solcher spiralförmiger Leiter vorteilhaft, da diese zum Transport der gleichen Strommenge einen jeweils einzeln betrachtet geringeren Durchmesser benötigen, als ein einzelner Leiter.

25 Dadurch wird der freie Innenraum des Lumen, durch den der Brennstoff strömt, größer, so dass der Widerstand beim Hindurchführen des Brennstoffs verringert wird. Je nach erforderlicher Dimensionierung des Lumen erscheinen gemäß erster Betrachtungen Leiter bzw. Drähte mit einem

30 Materialdurchmesser von 0,015 bis 2 mm als besonders vorteilhaft. Die Steigung der spiralförmigen Leiter kann vorteilhafterweise wiederum so ausgewählt werden, dass einerseits eine optimale Zuführung der Edukte zu den Schichten und andererseits eine gute Kontaktierung der

35 Elektroden mit den Leitern ermöglicht wird.

Als Materialien für die Leiter allgemein bieten sich insbesondere einfache Metalldrähte, Edelmetalldrähte, Drähte aus korrosionsfesten Metallen, z.B. Nickel, Platin, Palladium, Titan, Gold oder Silber sowie Leiter aus
5 Legierungen daraus an. Besonders vorteilhaft ist der Einsatz von Verbundmaterialien und Kohlefasern sowie beliebigen Mischprodukten daraus.

10 Für die spiralförmigen Leiter ist dabei zusätzlich die Verwendung eines elastischen Materials besonders vorteilhaft, z.B. ein Material für die Fertigung von Metallfederdrähten, Edelmetallfederdrähten oder Federdrähten aus korrosionsfesten Metallen.

15 Sofern der Einsatz von den Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen unter besonderen Bedingungen erfolgen soll, sind auch spezielle elektrisch leitende Materialien wie Supra- oder Halbleiter denkbar. Neben der Herstellung von linearen Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen
20 sind auch nicht-lineare Formen möglich. Beispielsweise ist bei der Verwendung von U-förmigen Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen der elektrische und der versorgungstechnische Anschluss besonders einfach realisierbar. Bei nach der eigentlichen Hohlleiterherstellung
25 im Fall von keramischen Material noch zu brennenden Hohlleitern kann die entsprechende Formung vor dem Sinter- bzw. Brennvorgang vorgenommen werden.

Insbesondere ist es möglich, eine Vielzahl von mit ihren
30 Längsachsen parallel zueinander angeordneten und/oder tubulär gewebten Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen oder Verbünden daraus in einem Modul zusammenzufassen, was einen effizienten Einsatz bei kleiner Dimensionierung als Brennstoffzelle oder Ionentauschermembran ermöglicht. Die bei bisher üblichen
35 plattenweisen Anordnungen der Membranen notwendige aufwendige Strömungsführung und komplizierte Kompartimentierung entfällt weitgehend. Eine Vielzahl derartiger Module kann wiederum in

einem Rahmen zusammengefasst werden, um einen weiter vereinfachten modularen Aufbau einer Brennstoffzelle zu ermöglichen. Derartige Rahmen können vorzugsweise aus Kunststoff oder korrosionsbeständigem Metall hergestellt werden.

Vorteilhaft ist ein Einsatz insbesondere bei sowohl Niedertemperatur-Polymer-Brennstoffzellen (PEM) als auch bei Hochtemperatur-Brennstoffzellen (z.B. keramischen SOFC), Methylalkohol-Brennstoffzellen und Brennstoffzellen aus biologischem Material.

Abgesehen von der Verwendung einer derartigen Hohlleiter-Anordnung als Brennstoffzellenelement ist ein solcher tubulärer Verbund auch als Sauerstoff-, Wasserstoff-, Kohlenmonoxid- oder Methan-Sensor verwendbar.

Unterschieden wird hier zur Veranschaulichung der verschiedenen Einzelbestandteile zwischen dem Hohlleiter-Brennstoffzellenelement als ganzes Bauelement und den Leitern als Bestandteilen davon, wobei die Leiter zum Leiten von Strom dienen. Ferner soll unter dem Begriff Hohlleiter als Unterform auch eine Hohlfaser verstanden werden, soweit es sich um ein geflochtenes bzw. textil gefertigtes Material handelt.

Ausführungsbeispiele werden nachfolgend anhand der Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen:

- Fig. 1 eine perspektivische Ansicht eines teilweise zerlegten Hohlleiter-Brennstoffzellenelements gemäß einem ersten Ausführungsbeispiel;
- Fig. 2 ein Hohlleiter-Brennstoffzellenelement gemäß einem zweiten Ausführungsbeispiel und

Fig. 3 einen stirnseitigen Schnitt durch ein Hohlleiter-Brennstoffzellenelement gemäß einem dritten Ausführungsbeispiel.

- 5 Wie dies aus Fig. 1 ersichtlich ist, weist ein Brennstoffzellen-Hohlleiter 1 einen mehrschichtigen Aufbau auf. Dabei wird ein innerer Durchtrittsraum, nachfolgend auch als Lumen 2 bezeichnet, von einer Innenelektrode 3 umgeben. Durch das Lumen 2 strömt ein für Brennstoffzellen geeigneter
10 Brennstoff, z.B. Wasserstoff, Erdgas oder Methanol. Die Innenelektrode 3, die eine Anode oder eine Kathode ausbildet, besteht z.B. aus einem porösen Material, welches einen Durchtritt von dem Brennstoff, insbesondere Wasserstoff H ermöglicht. Die Innenelektrode 3 ist von einem Elektrolyten 4
15 umgeben, welcher für den Brennstoff selbst undurchlässig ist, aber den Durchtritt von Protonen ermöglicht. Der Elektrolyt 4 ist wiederum von einer Außenelektrode 5 umgeben, welche entsprechend als Kathode bzw. Anode dient und ebenfalls aus einem porösen Material besteht. Die Außenelektrode 5 ist von
20 einem freien Raum 6 umgeben, welcher als Leiter für ein Reaktant, z.B. zweiwertigem Sauerstoff dient. Üblicherweise befinden sich innerhalb der Innenelektrode 3 und der Außenelektrode 5 metallische Katalysatoren.
- 25 In für Brennstoffzellen üblicher Funktionsweise wird das Lumen 2 von einem Brennstoff, z.B. H_2 , durchströmt, welcher am Katalysator Wasserstoffionen (H^+ -Ionen) abspaltet. Dessen Protonen wandern zum Elektrolyt 4 und durch diesen hindurch. Die Elektronen werden dabei abgeleitet. Die
30 Wasserstoffprotonen reagieren im Bereich der Außenelektrode 5 oder hinter dieser mit dem zweiten Reaktant, z.B. zweiwertigem Sauerstoff O_2 . Bei der Reaktion der Wasserstoffionen mit dem zweiwertigen Sauerstoff entsteht unter Hinzufügung von hinzugeleiteten Elektronen, die aus dem
35 Leiter 10-14 kommen, Wasser, welches durch den freien Raum bzw. Reaktantleiter 6 abgeführt wird.

Je nachdem, ob der Brennstoff durch das Lumen 2 und das andere Reaktant durch den Reaktantleiter 6 geleitet wird oder umgekehrt, werden bei diesem Vorgang über die Innenelektrode 3 Elektronen abgeführt und über die Außenelektrode 6 Elektronen zugeführt bzw. umgekehrt. Die beiden Elektroden 3, 5 haben dann entsprechend die Funktionalität als Kathode bzw. Anode.

Bei dem dargestellten Ausführungsbeispiel bestehen die Elektroden 3, 5 aus einem zu Elektronenaustausch, das heißt zur Elektronenabgabe bzw. zur Elektrodenaufnahme geeignetem Material, z.B. Kohlenstoffgemischen. Jedoch sind die Elektroden 3, 5, insbesondere mit Blick auf ihre große Länge und das Ohm'sche Gesetz bei dem Einsatz in Brennstoffzellen-Hohlleitern 1 nicht ausreichend geeignet, um den Elektronentransport von den Enden aus zum jeweiligen Elektronenaustrittspunkt bzw. Elektroneneintrittspunkt in ausreichendem Maße ermöglichen zu können. Zur Verbesserung der Elektronenleitung sind daher in der Innenelektrode 3 und der Außenelektrode 5 Leiter 10 eingesetzt, welche vorzugsweise längs, das heißt in Längsrichtung des Hohlleiter-Brennstoffzellenelements 1 durch dieses hindurchführen. Diese Leiter 10 bestehen aus einem möglichst leitfähigen Material, um einen relativ zu deren Querschnitt möglichst guten Elektronentransport zu ermöglichen und außerdem nur möglichst wenig Raum innerhalb der Innenelektrode 3 bzw. der Außenelektrode 5 zu beanspruchen. Außerdem bieten sich Vorteile bezüglich Korrosions- und Leitungsaspekten. Um die Kontaktfläche zwischen den Leitern 10 und dem Material der Elektroden 3 bzw. 5 zu vergrößern, können die Leiter 10 auch nicht geradlinig geführt werden. Möglich ist auch der Einsatz von quer zu den Leitern 10 verlaufenden Querstegen 11, welche seitlich von den Leitern 10 abstehen oder benachbarte Leiter 10 miteinander verbinden.

Bei den dargestellten Ausführungsbeispiel dienen zum verbesserten Elektronentransport außerdem spiralförmige

Leiter 12, 13, welche sich innerhalb des Lumen 2 bzw. außerhalb der Außenelektrode 5 in dem freien Raum bzw. Reaktantleiter 6 längs des Hohlleiter-

Brennstoffzellenelements 1 erstrecken. Auch diese

5 spiralförmigen Leiter 12, 13 bestehen aus einem möglichst leitfähigen Material. Die relative Größe der Kontaktfläche zwischen den spiralförmigen Leitern 12, 13 und den zu diesen benachbarten Elektroden 3 bzw. 5 sind insbesondere durch die Höhe der Steigung der Spiralwendeln bestimmbar.

10 Vorteilhafterweise besteht insbesondere der innere spiralförmige Leiter 12 aus einem elastischen Material, welches beispielsweise auch für Spiralfedern verwendet wird, so dass dieser innere spiralförmige Leiter 12 nicht nur zur verbesserten Elektronenableitung sondern auch zur Stützung

15 des Hohlleiter-Brennstoffzellenelements 1 dient. Ein spiralförmiger Leiter 12 bzw. 13 bietet insbesondere in diesem Fall vorteilhafte Eigenschaften mit Blick auf die Elastizität des Hohlleiter-Brennstoffzellenelements 1, so dass das Hohlleiter-Brennstoffzellenelement 1 z.B. vor dem
20 Sintern U-förmig oder selber spiralförmig gebogen oder direkt bei der Herstellung gewoben werden kann, ohne dass die Leiter zum Ableiten von Elektronen aufgrund der Dehnung des in Windungsbereichen außenseitigen Materials reißt oder hinsichtlich des Durchmessers aufgrund der Zugspannung zu
25 sehr verjüngt wird.

Vorteilhafterweise werden Durch-Kontaktierungen 14 in Form von Leitern zwischen den spiralförmigen Leitern 12 bzw. 13 und den benachbarten im wesentlichen längs durch die

30 Elektroden 3 bzw. 5 führenden Leiter 10 ausgebildet. Dies ermöglicht den Einsatz besonders feiner Leiter 10 innerhalb des Elektrodenmaterials der Elektroden 3 bzw. 5 zum Aufnehmen von Elektronen aus deren Umfeld und die überwiegende Ableitung solcher Elektronen durch die spiralförmigen Leiter
35 12 bzw. 13 aus dem Brennstoffzellen-Hohlleiter 1 heraus bzw. den Transport in diesen Brennstoffzellen-Hohlleiter 1 hinein.

Alternative Ausführungsformen ermöglichen beliebige Kombinationen mit nur innerhalb des Elektrodenmaterials führenden diskreten Leitern 10 und/oder nur am Elektrodenmaterial der Elektroden 3,5 anliegenden Leitern 12 bzw. 13. Möglich ist auch ein teilweises Einbringen der Leiter 10, 12, 13 in den Randbereich des Materials der Elektroden, so dass ein Teil der Leiter 10, 12, 13 innerhalb des Elektrodenmaterials liegt, zumindest ein Teil dieser Leiter 10,12,13 aber auch einen freien Kontakt zu dem Lumen 2 bzw. dem äußeren Reaktantenleiter 6 hat oder teilweise in diesem angeordnet ist. Insbesondere sind auch Kombinationen mit Elektroden in für sich bekannter Art und Weise möglich, welche aus feinmaschigen Netzen bzw. Geweben bestehen, aber zum weiten Transport von Elektronen nicht ausreichend dimensioniert sind. In derartige Elektrodenmaterialien sind dann entsprechend Leiter gemäß dem vorstehend beschriebenen Ausführungsbeispiel einflechtbar bzw. innerhalb oder außerhalb von diesem anordbar. Insbesondere bei sehr gering dimensionierten Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen 1 als Hohlleiter-Brennstoffzelementen bestehen die eigentlichen Elektrodenmaterialien jedoch vorzugsweise aus extrudierten Materialien.

Wie dies aus Fig. 2 ersichtlich ist, sind bei dem zweiten Ausführungsbeispiel für vorzugsweise sehr gering dimensionierte Hohlfasern als Hohlleiter-Brennstoffzellenelement 1 zum Ableiten der Elektronen nach außen hin nur Leiter 10 im wesentlichen längs durch das Hohlleiter-Brennstoffzellenelement 1* hindurchführend angeordnet. Im wesentlichen besteht dieses Hohlleiter-Brennstoffzellenelement 1* von innen nach außen wiederum aus einem zentralen Lumen 2, einer Anode als Innenelektrode 3, einem Katalysator 7, einem Elektrolyt 4, einem weiteren Katalysator 7, einer Kathode als Außenelektrode 5 und dem darum befindlichen freien Raum 6, welcher als Reaktantleiter bzw. zum Abführen des entsprechenden Reaktionsproduktes dient.

Das in Fig. 3 dargestellte dritte Ausführungsbeispiel zeigt eine Ausführungsform mit einem spiralförmigen Leiter 12, welcher innenseitig an der Innenelektrode 3 innerhalb des Lumen 2 verläuft. Zwischen Anode 3 und dem spiralförmigen Leiter 12 ist bei der dargestellten Ausführungsform zusätzlich ein netzförmiger Schlauch aus einem leitenden Material angeordnet, welcher zum regionalen Übertragen von freien Elektronen dient, während der spiralförmige Leiter 12 zum außenseitigen Transport der freien Elektronen dient. Eine solche Ausführungsform mit einem zusätzlichen netzförmigen Schlauch 8 ist insbesondere bei der Herstellung größer dimensionierter Hohlleiter 1** vorteilhaft. Die innere Elektrode 3 wird wiederum von einem Elektrolyten 4, welcher beidseitig mit einem Katalysator 7 beschichtet oder einstückig mit der Elektrode ausgebildet ist, und einer Außenelektrode 5 umgeben. Für die Herstellung größer dimensionierter Hohlleiter 1** können diese auch in für sich bekannter Art durch Aufwickeln der einzelnen Lagen 3,4,5,8 auf dem zentralen spiralförmigen Leiter 12 angeordnet werden. Zur Befestigung dient in deren Überlappungsbereich ein Kleber oder wie dies dargestellt ist, an deren aneinander anstoßenden Kanten ein entsprechender Kleber 9.

Gemäß ersten Simulationsrechnungen erscheint der Einsatz der Ausführungsformen gemäß dem dritten Ausführungsbeispiel mit einem zentralen spiralförmigen Leiter 12 und optional zusätzlich längs geführten Leitern 10 insbesondere bei der Verwendung von Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen 1** mit einem Durchmesserbereich von mehr als 1 mm, insbesondere 3 bis 10 mm in Verbindung mit der Netzstruktur und einem Festkern vorteilhaft. Die Verwendung der Ausführungsform gemäß dem zweiten Ausführungsbeispiel mit nur einem oder mehreren in wesentlichen längs gerichteten Leitern 10 erscheint für Ausführungsformen mit Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen 1* mit einem Durchmesser von weniger oder gleich 0,5 mm, insbesondere 0,3-0,005 mm

besonders vorteilhaft. Ausführungsformen gemäß dem ersten Ausführungsbeispiel mit sowohl zumindest einem spiralförmigen Leiter 12 und zusätzlich im wesentlichen längs gerichteten Leitern 10 erscheinen insbesondere in einem Bereich mit
5 Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen 1 mit einem Durchmesser von 3 bis 0,5 mm besonders vorteilhaft.

Zu den dargestellten Ausführungsbeispielen gibt es eine Vielzahl von möglichen Varianten und Kombinationen.
10 Insbesondere ist die Herstellung mit Hilfe verschiedener für sich bekannter Verfahren bei nur überraschend einfachen Abwandlungen möglich.

Beispielsweise kann für die Herstellung größer
15 dimensionierter Brennstoffzellen-Hohlleiter 1** eine spiralförmige Feder mit einer Länge von z.B. 10-20 cm mit einer konventionellen Protonen-Austauschmembranen umwickelt werden, wie dies z.B. aus DE 198 38 089 für sich bekannt ist. Vor dem Schlissen des Wickels werden entsprechend die im
20 wesentlichen längs gerichteten Leiter 10 auf dem Folienstreifen aufgelegt, so dass beim Wickelvorgang ein Kontakt zur innenseitig längs verlaufenden Feder entsteht und somit eine Übertragung von Elektronen zwischen den längs gerichteten Leitern 10 und dem spiralförmigen Leiter 12
25 ermöglicht wird, wodurch eine weitere in der Zeichnung nicht dargestellte Ausführungsform ausgebildet wird.

Eine ökonomischere Verfahrungsweise zum Herstellen einer derartigen Brennstoffzelle mit kleinem Durchmesser ist unter
30 Verwendung einer für sich bekannte Extrusionsanlage möglich. Dabei wird über drei verschiedene Extrusionsmaschinen über eine einzige Düse eine als 3-lagige, co-extrudierte, hohle Schlauchform erzeugt. Die dabei hergestellten dreilagigen Schläuche, die bereits für andersartige Verwendungszwecke für
35 sich bekannt sind, können prinzipiell auch mit den Materialien verarbeitet bzw. hergestellt werden, welche zu der Ausbildung eines Hohlleiter-Brennstoffzellenelements benötigt

werden. Insbesondere kann anstelle des Metalldrahts, der zentral von hinten in eine Extrusionsdüse eingeführt wird, an der gleichen Stelle zum gleichen Zeitpunkt während der Extrusion mittels einer Federmaschine eine Feder erzeugt und im Gleichklang mit dem Extrusions- bzw. Spritzarbeitsgang in den Hohlleiter eingearbeitet werden. Zweckmäßigerweise sind dafür Extrusions- bzw. Spritzköpfe bereitzustellen, welche in ihren äußeren und inneren Co-Extrusionsschichten so ausgebildet sind, dass während des Extrusionsvorgangs der Längsleiter bzw. eine Vielzahl solcher Längsleiter mit in die Außen- und/oder Innenschichten eingeführt wird, um dabei auch die im wesentlichen längs gerichteten Leiter 10 in die Elektrodenmaterialien einzuarbeiten. Da üblicherweise die Extrusionsgeschwindigkeit bei sehr kleinen Hohlkörpern nur sehr gering ist, zumeist nicht über einen Meter pro Minute beträgt, ist es zeitlich möglich, sowohl eine Feder als spiralförmiger Leiter 12 bzw. 13 zu erzeugen und zuzuführen als auch feinste Drähte zum Ausbilden der im wesentlichen längs führenden Leiter 10 über die Extrusionsköpfe in das Lumen 2 bzw. in die Elektroden-schichten 3,5 des entstehenden Brennstoffzellen-Hohleleiters 1,1*,1** einzuleiten und einzuarbeiten.

Während bis zu Dimensionen von ca. 0,5 mm die Extrusion von Schläuchen zur Herstellung von Brennstoffzellen-Hohleleitern gemäß ersten Simulationen besonders vorteilhaft ist, erscheint für die Herstellung von hohlen Körpern bzw. Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen mit einem Durchmesser unter 0,5 mm ein Spinnverfahren besonders vorteilhaft, wobei ein solches Spinnverfahren für sich genommen prinzipiell bekannt ist. Im wesentlichen kann dabei ein Werkzeugkopf bei den Spinnverfahren verwendet werden, so dass auch dabei während des Spinnvorgangs eine Drahtzuführung über übergeordnet angebrachte Positionen innerhalb des Spinnkopfes während des Spinnvorgangs stattfinden kann. Auch bei den dabei möglichen höheren Spinn-geschwindigkeiten ist die Zuführung von Drähten zur Ausbildung von im wesentlichen

längs verlaufenden Leitern möglich, wenn solche Drähte von Rollen oder Spulen abgewickelt werden.

Bei der Fertigung von Brennstoffzellen-Hohleleitern 1, 1*, 1** mit Hilfe eines Flecht- bzw. Extrusionsverfahrens entsprechend der für sich bekannten Herstellung von Koaxialkabeln wird die rohrförmige Innenelektrode, die zweckmäßigerweise aus Kohlefaser und/oder Metalldrähten gefertigt wird, auf einer Flechtmaschine erzeugt. Das entstehende tubuläre Geflecht läuft zur Zentrierung auf einem Dorn bis zur Auftragsdüse für die Katalysatorbeschichtung. Dabei bestimmt der Düsendurchmesser die Dicke der Katalysatorschicht. Nach einer kurzen Trockenstrecke durch z.B. einen Keramikheizkörper durchläuft das beschichtete Geflecht eine Ringspaltdüse, über welche die ionenleitfähige Membran 4 in Form einer Polymerlösung aufgetragen wird. Diesem Schritt schließt sich eine längere Trockenstrecke zur Austreibung eines Lösungsmittels an. Nachfolgend wird die zweite Katalysatorschicht mit einer Auftragsdüse aufgebracht. Danach wird die Außenelektrode 5 um die noch pastöse Katalysatorschicht geflochten. Die pastöse Konsistenz der Katalysatorschicht ermöglicht ein Eindringen der Geflechtstränge und damit einen innigen Verbund zwischen Katalysator und Kathode. Zum Schluss durchläuft die Hohlfaser eine Endtrocknungsstrecke. Zusätzlich zu diesen Schritten werden zusätzlich die in den vorstehend Ausführungsbeispielen beschriebenen längs verlaufenden Leiter 10 und/oder spiralförmigen Leiter 12,13 entsprechend mit eingearbeitet. Möglich ist auch die Verwendung des innen liegenden spiralförmigen Leiters 12 innerhalb der rohrförmigen Elektrode für im wesentlichen überwiegend die Stützfunktion.

Durch den tubulären Aufbau des vorstehend beschriebenen Verbundes ist es möglich, eine Vielzahl mit ihren Längsachsen parallel zueinander angeordneten tubulären Verbünden in einem Modul zusammenzufassen, wobei auf engem Raum und mit kleinen Dimensionen ein effizienter Einsatz z.B. als PEM- oder SOFC-

Brennstoffzellenelement oder als Ionentauschermembranen möglich ist. Die bei einer üblichen plattenweisen Anordnung der Membranen notwendige aufwendige Strömungsführung und komplizierte Kompartimentierung entfällt weitgehend.

5

Vorteilhafterweise kann eine derartige Ionentauschermembran zusammen mit einer Vielzahl weiterer derartiger Ionentauschermembranen bzw. entsprechend einer Vielzahl von Brennstoffzellen-Hohlleitern 1, 1*, 1** zu einem Modul

10

zusammengefasst werden. Ein derartiges Modul kann in bevorzugter Weise einen Rahmen sowie eine Matrix, insbesondere ein Geflecht, aufweisen, welche mit ihren Längsachsen parallel zueinander angeordnete Ionentauschermembranen bzw. Hohlleiter-

15

Brennstoffzellenelemente fixiert. Ein derartiger Aufbau kann auch für den modulartigen Aufbau einer Brennstoffzelle eingesetzt werden. Ein entsprechender Rahmen kann vorzugsweise aus Kunststoff oder korrosionsbeständigem Metall hergestellt werden. Die Matrix wird in vorteilhafter Weise aus thermoplastischem oder duoplastischem Polymer hergestellt.

20

Vorteilhafterweise ermöglicht die vorstehend beschriebene Vorgehensweise, insbesondere die des zweiten

25

Ausführungsbeispiels mit der Verwendung der längs verlaufenden stabförmigen Leiter 10, den ausreichenden Transport von Brennstoff, z.B. molekularem Wasserstoff, in und durch den nur noch winzigen Hohlraum, der durch das Lumen 2 ausgebildet wird. Der Transport erzeugter Elektronen über die Leiter 10 ist dabei auch bei länger ausgebildeten Hohlleiter-Brennstoffzellenelementen noch ohne zu große Widerstandsverluste und dergleichen möglich.

30

Der molekulare Wasserstoff verlässt das Lumen 2 der tubulären Brennstoffzellen in den Elektrodenbereich zwischen den längs verlaufenden Leitern 10 bzw. beim Einsatz eines spiralförmigen Leiters 12 zwischen dessen beabstandeten

35

Wendeln, das heißt über den Steigungsabstand und dringt in die darüber angeordnete Katalysatorschicht ein. Dabei wird der molekulare Wasserstoff zu einzelnen Wasserstoffatomen und letztendlich zu Protonen aufgespalten. Die Protonen wandern durch die über der Katalysatorschicht angeordnete ionenleitende Schicht, vorliegend beispielsweise den eine membranausbildenden Elektrolyten 4, in Richtung der außenseitig angeordneten Katalysatorschicht. In dieser außenseitigen Katalysatorschicht und/oder der benachbarten Außenelektrode 5 befinden sich zweckmäßigerweise wieder die im wesentlichen längs gerichteten Leiter 10 und/oder spiralförmige Leiter 13. Sauerstoff oder ein sauerstoffhaltiges Gasgemisch wie Luft, welches außerhalb des tubulären Verbundes in dem freien Raum bzw. Reaktantleiter 6 geführt wird, kommt mit dem außenliegenden Geflecht oder dem spiralförmigen Leiter 13 des Elektronen-leitenden Materials in Kontakt. Dort und an der innen hin unmittelbar folgenden Katalysatorschicht wird der molekulare Sauerstoff zu Sauerstoffatomen und Sauerstoffionen umgewandelt. Die sich im Bereich der innenliegenden Membran treffenden Protonen und Sauerstoffionen bilden Wasser, welches als Wasserdampf je nach Ausführungsform einerseits durch die Membran ins Lumen 2 und/oder andererseits durch die Katalysatorschicht und die Kathode 5 in den Außenraum 6 abgeführt wird. Gleichzeitig wird dabei ein Elektronenstrom erzeugt, welcher über insbesondere die längsgerichteten Leiter 10 und/oder die spiralförmigen Leiter 12, 13 nach außen hin abgeführt wird.

Zwar sind in den Ausführungsbeispielen nur kreisrunde Hohlleiter-Brennstoffzellenelemente 1, 1*, 1** beschrieben, prinzipiell ist das vorstehend beschriebene Prinzip mit den Leitern 10, 12, 13 zum Elektronentransport aber auch auf Hohlleiter-Brennstoffzellenelemente mit anders geformten Querschnitten anwendbar.

Insbesondere kann ein flächiges Mehrschichtmaterial zum Herstellen von Brennstoffzellenelementen vorteilhaft

entwickelt werden. In diesem Mehrschichtmaterial sind entsprechend den vorstehenden Ausführungsbeispielen Leiter in den Elektroden eingearbeitet. Zur Herstellung von Brennstoffzellen können diese flächigen

- 5 Mehrschichtmaterialien zu Halmen bzw. Hohlleitern aufgerollt werden. Die Mehrschichtmaterialien können auch zu flächigen Brennstoffzellen verarbeitet werden, wobei der Abstand der einzelnen Lagen und/oder die Dicke der Elektroden besonders gering ausgeführt werden kann, da die eingearbeiteten Leiter
- 10 den Elektronentransport übernehmen.

Patentansprüche

1. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement (1; 1*; 1**) mit
- einem innenseitigen Lumen (2),
 - 5 - einer Innenelektrode (3),
 - einer Außenelektrode (5) und
 - zwischen Innenelektrode (3) und Außenelektrode (5) einer katalytischen, zumindest Protonen durchlassenden Schicht (4),
- dadurch **g e k e n n z e i c h n e t**, dass
- 10 - zumindest teilweise innerhalb des Materials der Innenelektrode (3) und/oder zumindest teilweise innerhalb des Materials der Außenelektrode (5) zumindest ein Leiter (10, 12, 13), der zum Hin- bzw. Abtransport von Elektronen zu bzw. von zumindest einem Elektrodenbereich der Innenelektrode (3)
- 15 bzw. der Außenelektrode (5) ausgelegt ist, angeordnet ist, wobei dieser Elektrodenbereich von den Enden des Hohlleiter-Brennstoffzellenelements beabstandet ist.
2. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement, insbesondere nach
- 20 Anspruch 1, mit
- einem innenseitigen Lumen (2),
 - einer Innenelektrode (3),
 - einer Außenelektrode (5) und
 - zwischen Innenelektrode (3) und Außenelektrode (5) einer
- 25 katalytischen, zumindest Protonen durchlassenden Schicht (4),
- dadurch **g e k e n n z e i c h n e t**, dass
- innenseitig der Innenelektrode (3) und insbesondere außenseitig der Außenelektrode (5) daran anliegend ein Leiter (12,13) spiralförmig in Längsrichtung durch das Lumen (2)
- 30 bzw. um die Außenelektrode (5) herumführt, wobei zwischen einzelnen Wendeln des spiralförmigen Leiters (12,13) ein Zwischenraum zum Durchtritt eines Brennstoffs oder Reaktants ausgebildet ist.

3. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 2, bei dem
der spiralförmige Leiter (12,13) aus einem federelastischen, leitfähigen Material besteht.

5

4. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 2 oder 3, mit
einem Hohlleiterdurchmesser im Bereich von 0,3 - 3 mm.

10 5. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach einem der Ansprüche 2 - 4, bei dem
der spiralförmige Leiter (12,13) zum Hin- bzw. Abtransport von Elektronen zu bzw. von zumindest einem Elektrodenbereich der Innenelektrode (3) bzw. der Außenelektrode (5) ausgelegt
15 ist, wobei dieser Elektrodenbereich von den Enden des Hohlleiter-Brennstoffzellenelements beabstandet ist.

6. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach einem der Ansprüche 2 - 5, bei dem
20 der spiralförmige Leiter (12,13) einen freien Innendurchmesser zum Transport von Brennstoff oder Reaktant aufweist.

7. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 1, bei dem
25 zumindest ein Teil des Leiters (10; 12, 13) im wesentlichen längs durch das Material der Innenelektrode (3) und/oder der Außenelektrode (5) hindurch führt.

30 8. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 7, mit einem Hohlleiterdurchmesser kleiner/gleich 3 mm, insbesondere kleiner/gleich 0,5 mm.

9. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 7 oder 8,
35 der hinsichtlich des Querschnitts mit offenem Lumen (2) formstabil aufgebaut ist und bei dem der Leiter (10) im wesentlich geradlinig längs parallel zum Lumen (2) verlaufen.

10. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach Anspruch 7 oder 8,

5 der hinsichtlich der Formstabilität des Lumen (2) nicht formstabil, aber durch innenseitigen Druck aufblähbar ausgebildet ist und bei dem der Leiter (10) im wesentlichen geradlinig längs und parallel zum Lumen (2) verlaufen.

10 11. Hohlleiter-Brennstoffzellenelement nach einem vorstehenden Anspruch, bei dem von den Leitern (10, 12, 13) seitlich wegführende Leiter (11, 14) ausgebildet sind, insbesondere seitlich wegführende Leiter zum Kontaktieren anderer der Leiter (10, 12, 13).

15 12. Verfahren zum Herstellen eines Hohlleiter-Brennstoffzellenelements nach einem der Ansprüche 1 bis 10, bei dem der bzw. die Elektronen zu- bzw. abführende Leiter (10, 12, 13) bei einem Extrudierverfahren zugleich in den entstehenden
20 Hohlleiter-Brennstoffzellenelement (1; 1*, 1**) eingearbeitet wird.

13. Verfahren zum Herstellen eines Hohlleiter-Brennstoffzellenelements nach einem der Ansprüche 1 bis 10,
25 bei dem der bzw. die Elektronen zu- bzw. abführende Leiter (10, 12, 13) bei einem Spinn- oder Wickelverfahren zugleich in das entstehende Hohlleiter-Brennstoffzellenelement (1; 1*, 1**) eingearbeitet wird.

30

14. Brennstoffzellen-Mehrschichtmaterial mit

- einer Innenelektrode (3),
 - einer Außenelektrode (5) und
 - zwischen Innenelektrode (3) und Außenelektrode (5) einer
- 5 katalytischen, zumindest Protonen durchlassenden Schicht (4),
dadurch **g e k e n n z e i c h n e t**, dass
- zumindest teilweise innerhalb der Innenelektrode (3)
- und/oder zumindest teilweise innerhalb der Außenelektrode (5)
- zumindest ein Leiter (10, 12, 13), der zum Hin- bzw.
- 10 Abtransport von Elektronen zu bzw. von zumindest einem
Elektrodenbereich der Innenelektrode (3) bzw. der
Außenelektrode (5) ausgelegt ist, angeordnet ist, wobei
dieser Elektrodenbereich von den Enden des
Brennstoffzellenelements beabstandet ist.

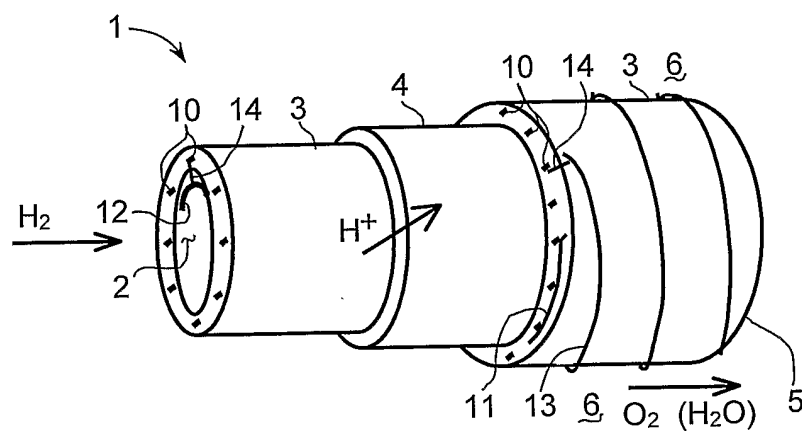


Fig. 1

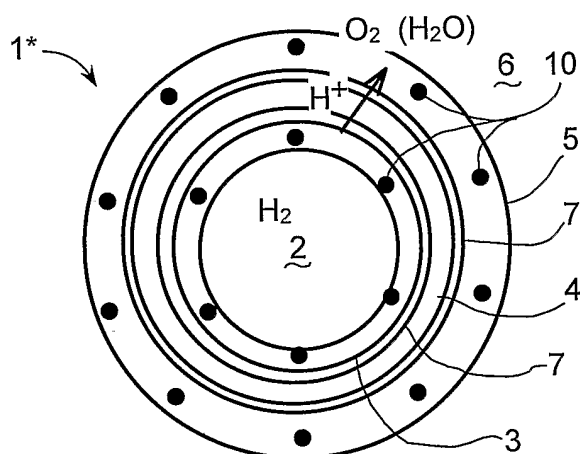


Fig. 2

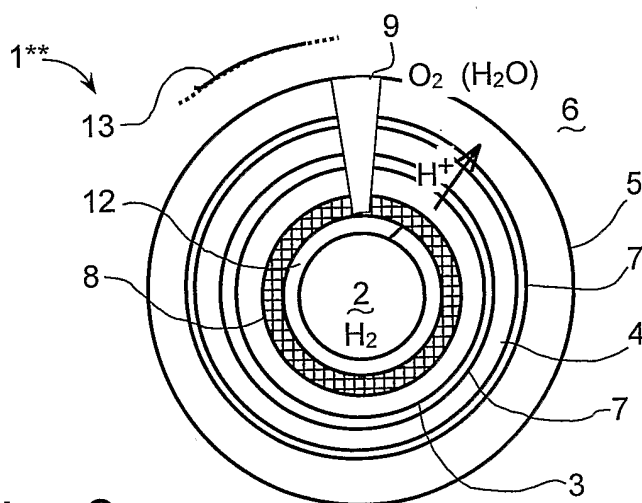


Fig. 3