



(10) **DE 11 2011 101 295 T5** 2013.01.31

(12)

Veröffentlichung

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2011/127541**
in deutscher Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2 IntPatÜG)
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2011 101 295.0**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/AU2011/000439**
(86) PCT-Anmeldetag: **15.04.2011**
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **20.10.2011**
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **31.01.2013**

(51) Int Cl.: **H01M 8/04 (2013.01)**
H01M 8/12 (2013.01)
H01M 8/24 (2013.01)

(30) Unionspriorität:
2010901603 15.04.2010 AU

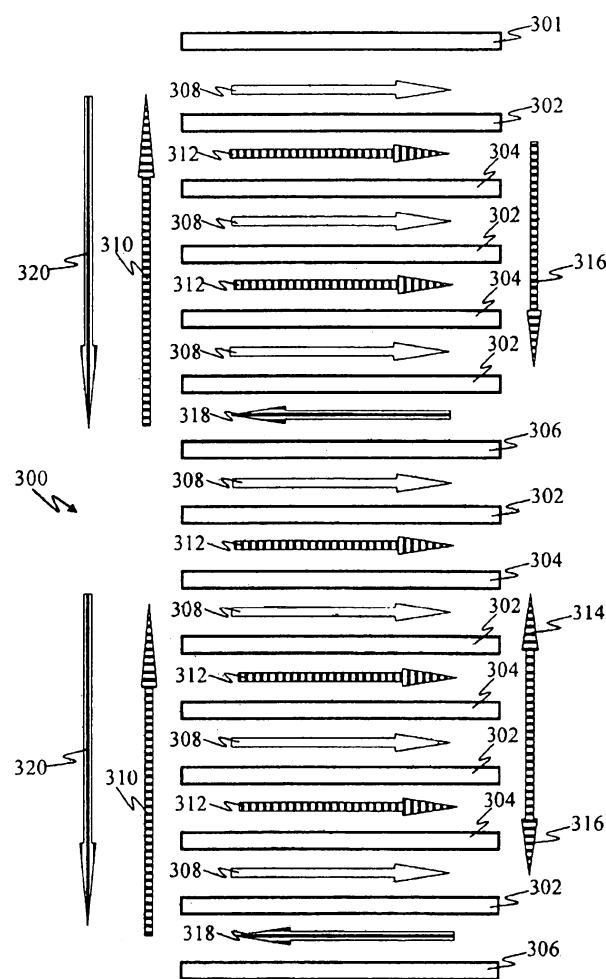
(74) Vertreter:
von Kreisler Selting Werner, 50667, Köln, DE

(71) Anmelder:
Ceramic Fuel Cells Ltd., Noble Park, AU

(72) Erfinder:
KAH, Michael, Frankston, AU; BOLDEN, Roger, Geelong, AU

(54) Bezeichnung: **Wärmemanagement in einem Brennstoffzellenstapel**

(57) Zusammenfassung: Ein Brennstoffzellenstapel (300), der aufweist: mehrere Arrays von einem oder mehreren Brennstoffzellen (302), die jeweils eine Elektrolytschicht, eine Anodenschicht und eine Kathodenschicht aufweisen; Gasabscheiderplatten (304, 306) zwischen aneinander angrenzenden Brennstoffzellen; und Oxidationsgas-Verteilungsleitungen (308) und Brenngas-Verteilungsleitungen (312, 318) zwischen aneinander angrenzenden Brennstoffzellen; und Gasabscheider, die sich zu den Kathodenschichten bzw. den Anodenschichten der Brenngaszellen hin öffnen. Die Brennstoffzellenarrays umfassen mindestens Brennstoffzellenarrays einer ersten Stufe, denen erste Brenngas-Verteilungsleitungen (312) zugeordnet sind zum Aufnehmen von Brenngas von einem oder mehreren Brenngas-Zuführsammlern (310) und Brennstoffzellenarrays einer zweiten Stufe, denen zweite Brenngas-Verteilungsleitungen (318) zugeordnet sind, die Brennstoffabgas von den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe aufnehmen. Die Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe sind in dem Stapel zwischen den Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe geschaltet, um Wärmegradienten zu verbessern. Andere Zwischenschaltungsanordnungen sind möglich.



Beschreibung

TECHNISCHES GEBIET

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft im Allgemeinen Brennstoffzellen und im Besonderen das Verbessern von Wärmegradienten in einem Brennstoffzellenstapel, wobei hohe Brennstoffausnutzungen ermöglicht werden.

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

[0002] Eine Brennstoffzelle ist eine elektrochemische Vorrichtung, die ein Elektrolyt und jeweilige Elektroden (eine Anode und eine Kathode) auf gegenüberliegenden Seiten des Elektrolyts aufweist. Brennstoffzellen können eine Vielfalt von unterschiedlichen Konfigurationen aufweisen, einschließlich planare und rohrförmige Konfigurationen. Elektrochemische Reaktionen werden dadurch an den Elektroden bewirkt, dass ein Brennstoffstrom über die Anode und ein Oxidationsgasstrom über die Kathode geführt werden. Bei der reinsten Form der Reaktionen, bei der der Brennstoff Wasserstoff ist, ist das Resultat Elektrizität und Wasser sowie Wärme, da die Reaktionen exotherm sind.

[0003] Um eine geeignete Menge an Elektrizität zu erzeugen, wird eine Vielzahl von Brennstoffzellen in Schichten gestapelt, wobei die gestapelten Brennstoffzellen elektrisch in Reihe geschaltet sind und eine Last elektrisch mit den Enden des Stapels verbunden ist. Das Schalten der Schichten in Reihe ermöglicht die gleiche Strom/Strom-Dichte in jeder Schicht. Eine Vielzahl dieser Stapel kann elektrisch miteinander verbunden sein, die vorliegende Erfindung betrifft jedoch insbesondere einzelne Stapel. Mehr als eine Brennstoffzelle kann in jeder Schicht des Stapels vorgesehen sein, wobei eine Vielzahl solcher Brennstoffzellen in einer Schicht (einem Array) elektrisch parallel geschaltet sind. Aneinander angrenzende Brennstoffzellen oder Arrays von Brennstoffzellen in dem Stapel können mittels eines oder mehrerer von Gasabscheider, Abstandshalter, Stromkollektor, Dichtung und möglicherweise anderer Schichtkomponenten voneinander getrennt sein. Bei einem planaren Brennstoffzellenstapel sind die Brennstoffzellen und andere Stapelkomponenten zwischen Anschlussplatten angeordnet und können ferner eine Sammlerfunktion zum Zuführen und Abführen des Brennstoffs und der Oxidationsgase bieten.

[0004] Wie oben beschrieben ist, kann Brenngas als Wasserstoff, wahlweise aus Kohlenwasserstoff vorreformiert, den Brennstoffzellen zugeführt werden, oder es kann alternativ in einem geeigneten Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel, wie z. B. einem Festoxid-Brennstoffzellen-(solid Oxide fuel cell SOFC-)Stapel oder einem Schmelzkarbonat-Brennstoffzellen-(molten carbonate fuel cell MCFC-)Stapel, als Kohlenwasserstoff zugeführt werden, wie z. B. Erdgas, das in dem Stapel reformiert wird. Das Oxidationsgas kann reiner Sauerstoff sein, ist jedoch üblicherweise Luft. Die Gase werden normalerweise über Brennstoff- und Oxidationsmittel-Zuführ- und Abführsammler mit Brennstoff- und Oxidationsmittel-Verteilerleitungen, die sich zu den Anoden bzw. Kathoden hin öffnen, der gestapelten Vielzahl von Brennstoffzellen oder Brennstoffzellenarrays zugeführt und aus diesen abgeführt.

[0005] Das Reformieren von Kohlenwasserstoffen zum Bereitstellen von Wasserstoff als Brennstoff ist eine endotherme Reaktion, die, wenn sie in dem Stapel erfolgt, durch die exotherme Oxidation des Brennstoffs an den Anoden der Hochtemperatur-Brennstoffzellen ($\geq 650^{\circ}\text{C}$) unterstützt wird. Es muss darauf geachtet werden, eine übermäßige Abkühlung von der endothermen Reformierungsreaktion zu vermeiden.

[0006] Ein hohe Effizienz bei der Elektrizitätserzeugung in einem Brennstoffzellenstapel erfordert eine hohe Brennstoffausnutzung – zum Beispiel wird bis zu 80 bis 95% des den Anoden zugeführten Brennstoffs bei der Brennstoffzellenreaktion oxidiert. Eine 100%ige oder nahezu 100%ige Brennstoffausnutzung führt nicht zu einer hohen Effizienz, da die Zellenspannung dazu neigt, zusammenzubrechen. Bei einer inadäquaten Brennstoffzufuhr zu einer der Brennstoffzellen kann diese Brennstoffzelle oxidieren und bewirken, dass die Zelle und schließlich der Stapel ausfällt.

[0007] Ein Brennstoffstrom zu jeder einzelnen Zelle oder Array wird über einen Druckabfall über die Brennstoffzuführleitungen, zum Beispiel Kanäle in einem Gasanschluss, für die Zelle/das Array gesteuert und wird somit durch die Fertigungstoleranz bestimmt. Die Fertigungskosten steigen mit höherer Genauigkeit des Fertigungsprozesses stark an. Zum Erreichen einer Brennstoffausnutzung von ungefähr 90% muss die Strömungsänderung gut unter 10% liegen, was eine sehr hohe Genauigkeit erforderlich macht und daher bei einer Ausführungsform teure Gasabscheider zum Verhindern eines Zellen- und Stapelausfalls. Ein Ausfall aufgrund einer Über-Ausnutzung einzelner Zellen/Arrays kann nur vermieden werden, wenn die Strömungsänderung be-

kannt ist und bei Betrieb berücksichtigt wird. Wenn zum Beispiel die Strömungsänderung (aufgrund von Fertigungstoleranzen und Wärmeeffekten) $\pm 20\%$ für einen Zweischicht-Stapel beträgt und wenn die Zellen bei einer Brennstoffausnutzung von bis zu 95% betrieben werden können, darf die Gesamt-Brennstoffausnutzung des Stapels 76% nicht übersteigen, um eine Beschädigung durch Über-Ausnutzung zu vermeiden. Die einzelne Brennstoffausnutzung für den oben beschriebenen Fall würde 95% für die Schicht mit niedrigem Brennstoffstrom und 63% für die Schicht mit hohem Brennstoffstrom betragen. Eine Ausfalltoleranz eines Brennstoffzellenstapels aufgrund einer Leistungsveränderung oder ein anderer Ausfall der Brennstoffzelle kann durch die Verwendung von Arrays von Brennstoffzellen in einem Stapel verringert werden, es muss jedoch ausnahmslos ein Überschuss an Brenngas den Brennstoffzellen zugeführt werden, um das Risiko der Brennstoffzellenoxidation zu minimieren. Das Resultat ist, dass es ungenutzten Brennstoff in dem Brenngas gibt, das aus den Brennstoffzellen abgeführt wird, das heißt, dass einzelne Brennstoffzellen und Brennstoffzellenarrays mit relativ niedrigen Brennstoffausnutzungen arbeiten. Die Veränderlichkeit der Brennstoffausnutzung über unterschiedliche Zellen/Arrays führt ferner zu einem veränderten Wärmeprofil – höheren Wärmegradienten in Zellen/Arrays mit einer höheren Brennstoffausnutzung und umgekehrt. Dies kann ferner zu Stapelausfällen beitragen oder zumindest die maximale Brennstoffausnutzung einschränken, um Ausfälle zu vermeiden.

[0008] Zum Verbessern der Gesamt-Brennstoffausnutzung und daher der Effizienz des Brennstoffzellenstapels ist vorgeschlagen worden, das Brennstoffabgas zu dem Brennstoffzellenstapel zurückzuführen und mit frisch zugeführtem Brenngas zu mischen. Der Hauptvorteil dieser Vorgehensweise liegt darin, dass die tatsächliche Brennstoffausnutzung innerhalb jeder Zelle/jedes Arrays reduziert wird, während die Gesamtausnutzung je nach Rückführungsverhältnis sehr hoch sein kann. Dies bietet ferner den Vorteil des Einleitens von Dampf als ein Produkt der Brennstoffzellenreaktion in das frisch zugeführte Brenngas. Dampf ist für das interne Reformieren von Kohlenwasserstoffen zu Wasserstoff-Brennstoff erforderlich, und das Rückführen bedeutet, dass das frisch zugeführte Brenngas weniger zugefügten Dampf benötigt. Siehe zum Beispiel WO 2003/019707.

[0009] Es ist ferner vorgeschlagen worden, die Gesamt-Brennstoffausnutzung eines Brennstoffzellensystems, das eine Vielzahl von Stapeln von Brennstoffzellen aufweist, dadurch zu verbessern, dass Brennstoffabgas von einem oder mehreren Stapeln als Brenngas verwendet wird, das einem anderen Stapel zugeführt wird. Ein solcher Vorschlag ist in EP 0263052 enthalten, bei dem zwei Ausführungsformen beschrieben sind: eine erste, bei der das Brennstoffabgas von zwei Brennstoffzellenstapeln in einer ersten Stufe zusammengeführt wird und als die Brenngaszufuhr zu einem dritten Stapel in einer zweiten Stufe verwendet wird; und eine zweite, bei der das Brennstoffabgas von einem Stapel (Stufe 1) als die Brenngaszufuhr für einen zweiten Stapel (Stufe 2) verwendet wird und das Brennstoffabgas von diesem Stapel als die Brenngaszufuhr für einen dritten Stapel (Stufe 3) verwendet wird. Dieser Vorschlag ist in US 7108929 so beschrieben, dass er "die Verwendung einer Vielzahl von Reaktionsmittel-Übertragungsleitungen von einer Stufe zu der nächsten, die kompliziert werden kann und komplizierte Übertragungsleitungseinheiten erforderlich macht" umfasst.

[0010] US 7108929 betrifft eine einteilige Sammlereinheit zum Verwenden beim Steuern der Strömung von Reaktionsgasströmen zwischen einer Vielzahl von Brennstoffzellenstapeln und insbesondere zum Zusammenführen der Brennstoffabgase von einer Vielzahl von Brennstoffzellenstapeln in einer ersten Stufe und Zuführen der zusammengeführten Brennstoffabgase von der ersten Stufe zu mindestens einem weiteren Brennstoffzellenstapel in einer zweiten Stufe.

[0011] In US 7482073 ist ebenfalls eine Mehrstapelanordnung mit einer Ausnutzung des Brennstoffabgases von einem Stapel in einem anderen Stapel beschrieben. Bei einer beschriebenen Ausführungsform wird das Brennstoffabgas von drei parallelen Stapeln in einer ersten Stufe zusammengeführt und als die Brenngaszufuhr zu einem vierten Stapel in einer zweiten Stufe verwendet. Das Brennstoffabgas von der vierten Stufe wird als die Brenngaszufuhr zu einem fünften Stapel in einer dritten Stufe verwendet, und das Brennstoffabgas von diesem Stapel wird als die Brenngaszufuhr zu einem sechsten Stapel in einer vierten Stufe verwendet. Bei diesem Vorschlag ist kein Reformieren des Brenngases erforderlich, da es hermetisch abgedichtet ist und Wasserstoff als Brennstoff und reines O_2 als Oxidationsmittel verwendet werden. Wasser kondensiert zwischen jeder Stufe aus dem Brennstoffabgas.

[0012] Das Verwenden von Brennstoffabgas von einem oder mehreren Brennstoffzellenstapeln in einer ersten Stufe als Brenngaszufuhr zu einem anderen Stapel in einer zweiten Stufe und so weiter hat den Vorteil, dass die Brennstoffausnutzung in den einzelnen Brennstoffzellenstapeln reduziert werden kann und daher Fertigungstoleranzen verringert und Kosten reduziert werden können, wobei eine relativ hohe Gesamt-Brennstoffausnutzung erreicht wird. Es ist jedoch wahrscheinlich, dass die Stapel in den unterschiedlichen Stufen bei unterschiedlichen Temperaturen arbeiten, was, sofern sie nicht spezifisch dafür ausgelegt sind, Auswirkungen auf ihre Lebensdauer und ihre Leistung hat. Ferner sind kompliziertere Sammler zum Übertragen des

Brennstoffabgases von einem Stapel zu einem anderen erforderlich. Außerdem ist entweder eine einzelne Stromsteuerung für jeden Stapel oder eine zusätzliche Verdrahtung erforderlich, was in beiden Fällen höhere Kosten zur Folge hat, und in letzterem Fall besteht das erhöhte Risiko eines elektrischen Kurzschlusses der Stapel und möglicherweise höherer Wärmeverluste.

[0013] In US 6033794 ist ebenfalls ein Mehrstufen-Brennstoffzellensystem beschrieben, das in einem gemeinsamen Druckbehälter dargestellt ist, wobei jede Stufe einen Stapel von Brennstoffzellen aufweist und das Brennstoffabgas von einem Stapel als die Brenngaszufuhr zu einem nächstfolgenden Stapel verwendet wird, in diesem Fall ist das System jedoch dazu ausgelegt, die unterschiedlichen Betriebstemperaturen jeder Stufe aufzunehmen. Dies wird dadurch erreicht, dass jede Stufe aus einem anderen Material gefertigt ist, was beträchtlich zu der Komplexität des Systems beiträgt. Der Vorschlag ermöglicht eine höhere Brennstoffausnutzung im Vergleich zu einem normalen Stapel, jedoch nur auf Kosten einer niedrigeren Stromdichte in den nachfolgenden Stufen und daher in den nachfolgenden Stapeln. Zum Beispiel arbeiten sowohl Stufe 1 als auch Stufe 2 bei einer 50%igen Brennstoffausnutzung, was zu einer 75%igen Gesamt-Brennstoffausnutzung führt, jedoch arbeitet Stufe 2 bei halber Stromdichte, da ihr nur 25% des Brennstoffstroms zur Verfügung steht.

[0014] Im Gegensatz zu den vorstehenden, dem Stand der Technik entsprechenden Vorschlägen, bei denen das Brennstoffabgas von einem Stapel in einer Mehrstapelanordnung einem nächstfolgenden Stapel als Brennstoff zugeführt wird, beschreibt US 5478662 (die EP 0596366 entspricht, auf die in der oben genannten US 7482073 Bezug genommen wird) einen Brennstoffzellenblock oder -stapel, der mehrere aufeinanderfolgende Stufen umfasst. Bei diesem Vorschlag umfasst jede Stufe eine Vielzahl von Brennstoffzellen, die in Gruppen zusammengefasst sind (wahlweise mit einer einzelnen Brennstoffzelle in der letzten Stufe), wobei ein Teil des Brennstoffabgases von einer Stufe zusammen mit frischem Brenngas als die Brenngaszufuhr in der nächstfolgenden Stufe entlang des Stapels verwendet wird. Das übrige Brennstoffabgas von einer Stufe wird ausgetragen, um Wasser und Inertgaskomponenten zu entfernen, die sich entlang des Brenngas-Strömungswegs aufbauen. Diese Anordnung führt zu einer verbesserten Brennstoffausnutzung, jedoch nur als Ergebnis des Austragens von inerten Stoffen und des zusätzlichen frischen Brenngases. Daher kann die Menge an Brennstoff, die für die elektrochemische Reaktion in den Brennstoffzellen in jeder Stufe zur Verfügung steht, konstant oder zumindest auf einem ähnlichen Niveau gehalten werden, der Gesamt-Brennstoffstrom muss sich jedoch aufgrund der größeren Menge an Reaktionsprodukten erhöhen.

[0015] Temperaturgradienten treten in und zwischen Brennstoffzellenstapeln aufgrund von Brennstoffströmungsänderungen über die Brennstoffzellen auf, was zu unterschiedlichen Zellenspannungen führt. Bei Hochtemperatur-SOFC- oder MCFC-Stapeln können Temperaturgradienten auch aufgrund von unterschiedlichen Levels an Kohlenwasserstoff-Brennstoff-Reformierung innerhalb des oder jedes Stapels sowie aufgrund von Unterschieden beim Wärmeverlust auftreten.

[0016] Bei einem Hochtemperatur-Brennstoffzellensystem, insbesondere einem SOFC-System, können solche Temperaturdifferenzen oder -gradienten entlang eines und über einen Brennstoffzellenstapel durch von unterschiedlicher Wärmedehnung hervorgerufenen Belastungen entlang des Stapels und daraus folgendem Brechen und Ausfallen der Komponenten führen.

[0017] Es wäre wünschenswert, einen Stapel von Brennstoffzellen oder Brennstoffzellenarrays bereitzustellen, der in der Lage ist, mit einer hohen Brennstoffauslastung zu arbeiten, wobei Temperaturdifferenzen entlang des Stapels verringert werden und daher eine durch unterschiedliche Wärmedehnung hervorgerufene Belastung verringert wird.

ZUSAMMENFASSENDE ÜBERSICHT ÜBER DIE ERFINDUNG

[0018] Nach der vorliegenden Erfindung wird eine Brennstoffzelleneinheit bereitgestellt, die aufweist:
 einen Stapel von mehreren Brennstoffzellenarrays, wobei jedes Brennstoffzellenarray eine oder mehrere Brennstoffzellen aufweist und jede Brennstoffzelle eine Elektrolytschicht, eine Anodenschicht auf einer Seite der Elektrolytschicht und eine Kathodenschicht auf einer gegenüberliegenden Seite der Elektrolytschicht aufweist, wobei der Stapel ferner Brenngas-Verteilungsleitungen aufweist, die sich zu den Anodenschichten der Brennstoffzellen in dem Stapel hin öffnen;
 einen oder mehrere Brennstoff-Zuführsammler zum Zuführen von Brenngas zu den Brenngas-Verteilungsleitungen in dem Stapel;
 wobei die Brennstoffzellenarrays mindestens Brennstoffzellenarrays einer ersten Stufe aufweisen, denen erste Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die mit dem einen oder den mehreren Brenngas-Zuführsammlern verbunden sind, um Brenngas direkt von diesen aufzunehmen, und Brennstoffzellenarrays einer zweiten

Stufe, denen zweite Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die dazu vorgesehen sind, Brennstoffabgas von den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe aufzunehmen zwecks Zuführens des Brennstoffabgases zu den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in dem Stapel; und

wobei mindesten eine der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays Brennstoffzellenarrays aufweist, die in dem Stapel zwischen den Brennstoffzellenarrays der anderen der ersten und zweiten Stufe von Brennstoffzellenarrays angeordnet sind.

[0019] Bei der vorliegenden Erfindung ist eine hohe Brennstoffausnutzung und daher eine hohe Brennstoffzelleneffizienz in dem Gesamtstapel dadurch erreichbar, dass Brennstoffabgas von den Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in mindestens den Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe verwendet wird. Dies kann bei Beibehaltung gleicher oder ähnlicher Stromdichten über die Stufen und Verwendung eines leicht verfügbaren Brennstoffs, wie z. B. vorreformierten Erdgases, erreicht werden. Da die hohe Brennstoffausnutzung bei relativ niedriger Brennstoffausnutzung in einzelnen Brennstoffzellenarrays erreicht werden kann, können Toleranzen bei den Brenngas-Verteilungsleitungen reduziert werden, wodurch die Fertigungskosten reduziert werden. Ein reduzierter Temperaturgradient entlang des Stapels im Vergleich zu einem Stapel, bei dem sich sämtliche Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe an einem Ende des Stapels befinden und sich sämtliche Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe an dem entgegengesetzten Ende des Stapels befinden, wird dadurch erreicht, dass bewirkt wird, dass die Brennstoffzellenarrays mindestens einer der ersten und der zweiten Stufe Brennstoffzellenarrays umfassen, die in dem Stapel zwischen Brennstoffzellenarrays der anderen der ersten und der zweiten Stufe von Brennstoffzellenarrays angeordnet sind, wodurch Wärmeübertragung und -ausgleich entlang des Stapels verbessert werden. Bei einer solchen Anordnung sind die Brennstoffzellenarrays jeder der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays derart in dem Stapel angeordnet, dass nicht alle aneinander angrenzen. Die Anordnung, bei der ein oder mehrere der Brennstoffzellenarrays der Brennstoffzellenarrays der ersten und der zweiten Stufe zwischen zwei der Brennstoffzellenarrays der anderen der Brennstoffzellenarrays der ersten und der zweiten Stufe geschaltet sind, ermöglicht eine Wärmeübertragung zwischen aneinander angrenzenden Brennstoffzellenarrays unterschiedlicher Stufen und daher reduzierte Wärmegradienten entlang des Stapels. Ein solches Zwischenschalten kann im Hinblick auf weitere reduzierte Wärmegradienten in dem Stapel wiederholt werden, und in diesem Fall kann jede der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays Brennstoffzellenarrays aufweisen, die in dem Stapel zwischen Brennstoffzellenarrays der anderen Stufe angeordnet sind. Bei einer Ausführungsform ist jedes Brennstoffzellenarray einer der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays angrenzend an mindesten ein Brennstoffzellenarray der anderen der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays angeordnet.

[0020] Wie nachstehend beschrieben wird, können Brennstoffzellenarrays einer dritten und sogar einer vierten Stufe ebenfalls in dem Stapel vorgesehen sein, wobei jedes Brennstoffzellenarray der dritten Stufe Brennstoffabgas von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe aufnimmt und jedes Brennstoffzellenarray der vierten Stufe Brennstoffabgas von Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe aufnimmt. "Angrenzend an mindesten ein Brennstoffzellenarray der anderen der ersten und zweiten Stufen" bei der oben beschriebenen Ausführungsform bedeutet, dass kein weiteres Brennstoffzellenarray derselben Stufe in dem Stapel zwischen den Brennstoffzellenarrays angeordnet ist. Wie nachstehend ferner beschrieben wird, können andere Stapelkomponenten zwischen aneinander angrenzenden Brennstoffzellenarrays angeordnet sein.

[0021] Bei der vorliegenden Erfindung weist vorzugsweise jedes Brennstoffzellenarray eine Vielzahl von Brennstoffzellen auf, zum Beispiel zwei, drei, vier oder mehr, die parallel geschaltet sind. Das hat den Vorteil, dass das Risiko für den Stapel reduziert wird, wenn eine Brennstoffzelle eine reduzierte Leistung erbringt oder ausfällt, dass die Kosten einzelner Brennstoffzellen reduziert werden und dass die Wärmebelastung im Vergleich zu einer einzelnen Brennstoffzelle reduziert wird. Die sich daraus ergebende gleichmäßigere Temperatur über das Array kann zu einer verbesserten Leistung und Lebensdauer der Brennstoffzellen führen. Die Kosten und Wärmebelastung einzelner Brennstoffzellen in einem solchen Array können aufgrund der geringeren Größe reduziert werden.

[0022] Eine Temperaturdifferenz kann aufgrund von Änderungen der Brennstoffströmungszusammensetzung und unterschiedlichen Spannungspegeln in einer Stufe im Vergleich zu einer anderen zwischen Brennstoffzellenarrays unterschiedlicher Stufen auftreten. Bei einer Ausführungsform eines Hochtemperatur-Brennstoffzellensystems umfassen jedoch zumindest einige der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe Anodenschichten und/oder diesen zugeordnete erste Brenngas-Verteilungsleitungen, die einen Dampfreformierkatalysator für die Dampfreformierung von Kohlenwasserstoff in Wasserstoff und andere Reaktionsgase in dem Brenngas aufweisen, welches die Anodenschichten und/oder ersten Brenngas-Verteilungsleitungen berührt. Wie oben beschrieben ist, ist die Dampfreformierreaktion endotherm mit dem Ergebnis, dass diese Brennstoffzellenar-

rays der ersten Stufe eine niedrigere Temperatur aufweisen können als ein Brennstoffzellenarray einer daran angrenzenden nachfolgenden Stufe. Eine reduzierte Dampfreformierung des Brenngases würde in nachfolgenden Brennstoffzellenarrays durchgeführt, selbst wenn diese einen Reformierkatalysator aufweisen (sie können die gleiche Struktur und Materialien aufweisen wie die Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe), da ein Kohlenwasserstoff-Brenngas bereits zumindest in einem größeren Maße einer Dampfreformierung hinsichtlich der Brennstoffzellenreaktionen in den Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe unterzogen worden ist. Generell ist eine Dampfreformierung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffs in den Brennstoffzellen der ersten Stufe zu mindestens 75% abgeschlossen, kann jedoch in einem effizienten System zu mindestens 90% abgeschlossen sein. Es ist am stärksten bevorzugt, dass diese Reformierrate 99% oder mehr beträgt, sie kann sich jedoch mit der Zeit über den Verwendungszeitraum des Brennstoffzellenstapels vermindern.

[0023] Bei einer weiteren Ausführungsform weist der Brennstoffzellenstapel ferner spezifische Dampfreformier-Nichtbrennstoffzellen-Schichten zwischen einigen aneinander angrenzenden Brennstoffzellenarrays auf, damit dort interne Dampfreformierreaktionen zusätzlich zu denen in einigen oder sämtlichen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und/oder den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen auftreten. Solche Nichtbrennstoffzellen-Reformierschichten können im Wesentlichen Nickel oder einen anderen Reformierkatalysator umfassen. Da keine exothermen Brennstoffzellenreaktionen in solchen Schichten auftreten, werden sie nicht direkt erwärmt und absorbieren Wärme von den angrenzenden Brennstoffzellenarrays. Aus diesem Grunde sollte nicht mehr als eine solche Schicht zwischen aneinander angrenzenden Brennstoffzellenarrays angeordnet sein. Jede Dampfreformier-Nichtbrennstoffzellen-Schicht kann zwischen zwei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe, zwischen einem Brennstoffzellenarray der ersten Stufe und einem Brennstoffzellenarray einer nachfolgenden Stufe oder zwischen zwei Brennstoffzellenarrays nachfolgender Stufen (die zu derselben oder unterschiedlichen Stufen gehören können) angeordnet sein.

[0024] Durch das Ermöglichen der Durchführung eines Teils der internen Dampfreformierung durch Nichtbrennstoffzellen-Schichten kann die Anzahl der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe relativ zu einem Stapel mit interner Reformierung ohne solche Nichtbrennstoffzellen-Schichten reduziert werden.

[0025] Bei einer Ausführungsform mit den Dampfreformier-Nichtbrennstoffzellen-Schichten nehmen solche Schichten Brenngas von der einen oder den mehreren Brenngas-Zuführsammlern auf und führen den Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe dampfreformiertes Brenngas zu, und der Ausdruck "um Brenngas direkt von diesen aufzunehmen", wie er hier verwendet wird, muss entsprechend ausgelegt werden. Somit bedeutet der Ausdruck "Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe, denen erste Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die mit dem einen oder den mehreren Brenngas-Zuführsammlern verbunden sind, um Brenngas direkt von diesen aufzunehmen", dass das Brenngas, das von den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen aufgenommen wird, nicht durch Brenngas-Verteilungsleitungen geströmt ist, die anderen Brennstoffzellenarrays in dem Stapel zugeordnet sind.

[0026] Eine Einlassseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen, die sich zu der Anodenschicht jeder Brennstoffzelle der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe hin öffnen, kann direkt mit einer Abführseite der ersten Brenngas-Verteilungsleitungen verbunden sein, die sich zu den Anodenschichten von mindestens zwei Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe hin öffnen.

[0027] Alternativ und bei einer stärker bevorzugten Ausführungsform ist mindesten ein Brennstoffsammler zwischen einer Einlassseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen und einer Abführseite der ersten Brenngas-Verteilungsleitungen vorgesehen, um Brennstoffabgas von einigen oder sämtlichen ersten Brenngas-Verteilungsleitungen einigen oder sämtlichen zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen zuzuführen. Die Vorteile umfassen ein stärkeres Mischen der Brennstoffabgase von den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen, eine höhere Zuverlässigkeit für den Stapel aufgrund des Ausgleichens von Strömungsveränderungen und größere Toleranz gegenüber Fehlern, die in einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenarray der ersten Stufe auftreten. Bei dieser Ausführungsform kann der mindestens eine Brennstoffsammler einen Brennstoffabgas-Auslasssammler aufweisen, der mit einem Brennstoffabgas-Einlasssammler verbunden ist, wodurch Brennstoffabgas von einigen oder sämtlichen ersten Brenngas-Verteilungsleitungen in einer Richtung durch den Brennstoffabgas-Auslasssammler und in entgegengesetzter Richtung durch den Brennstoffabgas-Einlasssammler zu einigen oder sämtlichen zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen strömt. Die Brennstoffabgas-Auslass- und Einlasssammler können mit einer Anschlussendplatte des Stapels verbunden sein. Bei einem vertikalen Stapel ist vorzugsweise die eine Richtung eine Aufwärtsrichtung, und die entgegengesetzte Richtung ist eine Abwärtsrichtung. Dies bietet Vorteile bei der Brennstoff-Strömungsverteilung zu den einzelnen Schichten innerhalb jeder Stufe und kann Vorteile hinsichtlich des Wärmegradienten entlang des Stapels bieten.

[0028] Vorteilhafterweise verläuft die Strömungsrichtung des Brenngases durch den einen oder die mehreren Brennstoff-Zuführsammler ebenfalls in der einen Richtung, so dass die Brennstoffzufuhr zu den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen in der gleichen Richtung verläuft wie der des Abgases von diesen Leitungen. Vorzugsweise verläuft die Sammler-Brenngaszufuhr zu den Brenngas-Verteilungsleitungen jeder nachfolgenden Stufe in der gleichen Richtung wie der der Sammler-Brennstoffabgasströme von diesen Leitungen und zumindest bei den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen entgegengesetzt zu den entsprechenden Strömen zu den Brennstoffzellenarrays der vorhergehenden Stufe. Diese Anordnung unterstützt das Erreichen einer Gleichförmigkeit bei der Brennstoffverteilung zu den verschiedenen Schichten in dem Stapel. Die Sammler-Brennstoffabgaszufuhren zu den zweiten und nachfolgenden Stufen verlaufen zweckmäßigerweise in der gleichen Richtung.

[0029] Die besondere Anordnung der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und der zweiten Stufe und der Arrays einer nachfolgenden Stufe, falls in dem Stapel vorhanden, hängt ab von dem Wärmeausgleich, der in dem Stapel erforderlich ist, und daher von der erwarteten Brennstoffausnutzung an jedem Array und den Reaktionen, die in jedem Array erfolgen sollen, sowie dem Vorhandensein und den Orten von Dampfreformier-Nichtbrennstoffzellen-Schichten. Bei einer Ausführungsform ist jedoch jedes Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe in dem Stapel zwischen jeweiligen zwei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe angeordnet. Bei einem Beispiel ist in mindestens einem Teil des Stapels ein sich wiederholendes Muster von drei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und einem Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe vorgesehen. Bei einem weiteren Beispiel ist in mindestens einem Teil des Stapels ein sich wiederholendes Muster von vier Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und einem Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe vorgesehen. Ein solches sich wiederholendes Muster oder ein anderes sich wiederholendes Muster kann durchgehend durch den Stapel verlaufen. Alternativ kann eine größere Anzahl von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in einer ersten Hälfte des Stapels als in einer zweiten Hälfte des Stapels vorgesehen sein. Zum Beispiel kann die erste Hälfte die untere Hälfte in einem vertikalen Stapel sein, in dem eine Dampfreformierung in den Brennstoffzellen der ersten Stufe durchgeführt wird. Bei dieser Anordnung bewirkt die relativ größere Anzahl von Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in der oberen Hälfte des Stapels eine größere Abkühlung der oberen Hälfte des Stapels. Ferner können bei dieser oder bei einer anderen Anordnung relativ weniger Reformier-Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in Richtung des Endes des Stapels vorgesehen sein als dazwischen, da ein Wärmeverlust von dem Stapel in Richtung der Enden generell höher ist. Jeder Endbereich kann jeweils 25% der Länge des Stapels umfassen, und der Bereich dazwischen kann die mittleren 50% der Länge des Stapels umfassen. Bei Ausführungsformen dieser Anordnung kann die Proportion der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in jeden Endviertel des Stapels mindestens doppelt so groß sein wie in der mittleren Hälfte des Stapels. Bei einem Beispiel dieser Anordnung kann das Verhältnis der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe zu der zweiten Stufe ungefähr 2:1 in den Endbereichen des Stapels betragen im Vergleich zu ungefähr 6:1 in dem mittleren Bereich. Hinsichtlich der Beabstandung der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe zwischen den Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe können die zwei Hälften des Stapels von jeweiligen Enden aus spiegelbildlich zueinander sein. Bei einem vertikalen Stapel kann sowohl bei dieser als auch bei anderen Ausführungsformen die größten Konzentrationen von Brennstoffzellenarrays von Stufe eins bei ungefähr der Hälfte oder ungefähr zwei Dritteln der Höhe des Stapels oder zwischen ungefähr der Hälfte und ungefähr zwei Dritteln der Höhe des Stapels liegen.

[0030] Bei einer Ausführungsform sind sämtliche zweite Brenngas-Verteilungsleitungen mit mindestens einem Brennstoffabgassammler verbunden zwecks Leitens von Brennstoffabgas von den Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe und daher von der Abführseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen zu einer Stelle außerhalb des Stapels oder zwecks Zurückführens zu dem Stapel.

[0031] Alternativ weisen, wie oben beschrieben und wie bei anderen Ausführungsformen, die Brennstoffzellenarrays ferner mindestens ein Brennstoffzellenarray einer dritten Stufe auf, dem dritte Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die dazu vorgesehen sind, Brennstoffabgas von Brennstoffzellen der zweiten Stufe aufzunehmen zwecks Zuführens des Brennstoffabgases zu den Brennstoffzellen des Brennstoffzellenarrays oder der Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe.

[0032] Bei dieser weiteren Ausführungsform kann mindestens ein Brennstoffsammler zwischen einer Einlassseite der dritten Brenngas-Verteilungsleitungen und einer Abführseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen vorgesehen sein, um Brennstoffabgas von den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen den dritten Brenngas-Verteilungsleitungen zuzuführen.

[0033] Der mindestens eine Brennstoffsammler zwischen den zweiten und dritten Brenngas-Verteilungsleitungen kann einen Brennstoffabgas-Auslasssammler aufweisen, der mit einem Brennstoffabgas-Einlasssammler

verbunden ist, wodurch Brennstoffabgas von den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen in einer Richtung, vorzugsweise nach unten in einem vertikalen Stapel, durch den Brennstoffabgas-Auslasssammler und in einer entgegengesetzten Richtung oder zweckmäßigerweise in der gleichen Richtung durch den Brennstoffabgas-Einlasssammler zu den dritten Brenngas-Verteilungsleitungen strömt. Diese Brennstoffabgas-Auslass- und Einlasssammler können in einer Anschlussendplatte des Stapels verbunden sein.

[0034] Jedes Brennstoffzellenarray der dritten Stufe kann bei einer Ausführungsform in dem Stapel angrenzend an mindestens ein Brennstoffzellenarray der ersten Stufe angeordnet sein, zum Beispiel zwischen zwei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe.

[0035] Bei einer Anordnung dieser weiteren Ausführungsform sind sämtliche Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in Richtung eines ersten Endes des Stapels angeordnet, zum Beispiel des oberen Endes in einem vertikalen Stapel, und sämtliche Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe sind in Richtung eines zweiten entgegengesetzten Endes des Stapels angeordnet. Bei einem Beispiel dieser Anordnung wird dem Stapel Brenngas an dem zweiten entgegengesetzten Ende zugeführt, wobei das Brenngas dann durch den einen oder die mehreren Brennstoff-Zuführsammler geleitet wird.

[0036] Die Anzahl von Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in einem Zweistufenstapel kann zum Beispiel im Bereich von 64 bis 82 Prozent der Gesamtanzahl von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel liegen.

[0037] Die Anzahl von Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in einem Dreistufenstapel kann zum Beispiel im Bereich von 50 bis 70 Prozent der Gesamtanzahl von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel liegen. Die Anzahl von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in einem Dreistufenstapel kann zum Beispiel im Bereich von 31 bis 23 Prozent der Gesamtanzahl von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel liegen. Die Anzahl von Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe in einem Dreistufenstapel kann zum Beispiel im Bereich von 19 bis 7 Prozent der Gesamtanzahl von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel liegen.

[0038] Der Stapel kann ferner mindestens ein Brennstoffzellenarray einer vierten Stufe und wahlweise mindestens ein Brennstoffzellenarray einer weiteren Stufe aufweisen, denen Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die dazu vorgesehen sind, Brennstoffabgas von Brennstoffzellen des Arrays oder der Arrays der vorhergehenden Stufe aufzunehmen. Ein einzelnes Brennstoffzellenarray der letzten Stufe kann als eine Spülstufe dienen.

[0039] Bei einer Ausführungsform ist ein Dampfextraktor zwischen den Brenngas-Verteilungsleitungen einer Endstufe von einem oder mehreren Brennstoffzellenarrays und den Brenngas-Verteilungsleitungen einer vorletzten Stufe von Brennstoffzellenarrays geschaltet, um Dampf von dem Brennstoffabgas zu kondensieren, das von den Brennstoff-Verteilungsleitungen der vorletzten Stufe von Brennstoffzellenarrays aufgenommen wird, und zwar vor dem Zuführen des Brennstoffabgases zu den Brenngas-Verteilungsleitungen der vorletzten Stufe von Brennstoffzellenarrays. Somit ist bei einem Zweistufen-Brennstoffzellenstapel der Dampfextraktor zwischen den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen und den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen geschaltet, um Dampf von dem Brennstoffabgas zu kondensieren, das von den ersten Brennstoff-Verteilungsleitungen aufgenommen wird, und zwar vor dem Zuführen des Abgases zu den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen. Bei einem Dreistufen-Brennstoffzellenstapel ist der Dampfextraktor zwischen den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen und den dritten Brenngas-Verteilungsleitungen geschaltet, um Dampf von dem Brennstoffabgas zu kondensieren, das von den zweiten Brennstoff-Verteilungsleitungen aufgenommen wird, und zwar vor dem Zuführen des Abgases zu den dritten Brenngas-Verteilungsleitungen, und so weiter. Weitere Dampfextraktoren können zwischen den Brenngas-Verteilungsleitungen von zwei oder mehr Stufen von Brennstoffzellenarrays in einem Mehrstufenstapel vorgesehen sein. Durch das Entfernen von Wasser aus dem Brennstoff, der dem/den Brennstoffzellenarray(s) der zweiten und/oder einer nachfolgenden Stufe zugeführt wird, werden die Nerst-Spannung dieses Brennstoffs und daher die Stapelspannung sowie die Stapeleffizienz erhöht.

KURZBESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0040] Eine Ausführungsform einer erfindungsgemäßen Brennstoffzelleneinheit wird nun nur beispielhaft mit Bezug auf die beiliegenden Zeichnungen beschrieben. Es zeigen:

[0041] [Fig. 1](#) eine schematische Ansicht eines Basis-Brennstoffzellen-Energieerzeugungssystems, das einen planaren Festoxid-Brennstoffzellenstapel aufweist;

- [0042] [Fig. 2](#) eine schematische Explosionsansicht eines Teils eines Festoxid-Brennstoffzellenstapels nach der Erfindung;
- [0043] [Fig. 3](#) eine weitere perspektivische Teilansicht eines Festoxid-Brennstoffzellenstapels nach der Erfindung;
- [0044] [Fig. 4](#) eine perspektivische Ansicht der Oxidationsmittelseite einer Zwischenverbindung des Stapels von [Fig. 4](#);
- [0045] [Fig. 5\(a\)](#) eine Teil-Draufsicht der Brennstoffseite eines Typs der Zwischenverbindung von [Fig. 4](#);
- [0046] [Fig. 5\(b\)](#) eine Teil-Draufsicht der Brennstoffseite eines weiteren Typs der Zwischenverbindung von [Fig. 4](#);
- [0047] [Fig. 6](#) eine perspektivische Ansicht einer Abdeckplatte für den Stapel von [Fig. 3](#);
- [0048] [Fig. 7](#) eine schematische Seitenansicht einer Anordnung der verschiedenen Platten eines Brennstoffzellenstapels nach der Erfindung und der Sammlers;
- [0049] [Fig. 8](#) eine ähnliche Ansicht wie [Fig. 7](#), jedoch einer anderen Anordnung;
- [0050] [Fig. 9](#) schematisch die Sammler für die Brennstoffseite des einen Typs von Brennstoffzellenstapel nach der Erfindung;
- [0051] [Fig. 10](#) eine ähnliche Ansicht wie [Fig. 9](#), jedoch eines anderen Typs von Brennstoffzellenstapel nach der Erfindung;
- [0052] [Fig. 11](#) ein Diagramm mit Darstellung der Brennstoffausnutzung in dem Brennstoffzellenstapel nach der Erfindung; und
- [0053] [Fig. 12](#) und [Fig. 13](#) Diagramme mit Darstellung des Temperaturprofils entlang des Stapels und über die Brennstoffzellen von dem Brenngaseinlass zu dem Brennstoffabgas-Auslass für die Stapel von Beispielen 1 bzw. 4.

DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

- [0054] Die vorliegende Erfindung betrifft einen Brennstoffzellenstapel, bei dem die Gesamt-Brennstoffausnutzung dadurch verbessert wird, dass das Brennstoffabgas von einigen der Brennstoffzellen in dem Stapel als Brennstoff verwendet wird, der anderen der Brennstoffzellen in dem Stapel zugeführt wird. Wärmegradienten entlang des Stapels, die sich zum Beispiel aus unterschiedlichen Spannungen in einzelnen Brennstoffzellen-Schichten des Stapels und/oder aus unterschiedlichen Funktionen der Schichten in dem Stapel ergeben, werden erfindungsgemäß dadurch verringert, dass die unterschiedlichen Brennstoffzellen-Schichten entlang des Stapels derart gemischt werden, dass nicht sämtliche Brennstoffzellen-Schichten, die Brennstoffabgas zu anderen Brennstoffzellen liefern, und/oder nicht sämtliche Brennstoffzellen-Schichten, die Brennstoffabgas von anderen Brennstoffzellen aufnehmen, aneinander angrenzen.
- [0055] Die Erfindung ist auf jeden Typ von Brennstoffzellenstapel anwendbar, bei dem die Brennstoffzellen in Schichten angeordnet sind, sie ist jedoch besonders geeignet für Stapel aus Hochtemperatur-Brennstoffzellen, wie z. B. Schmelzkarbonat-Brennstoffzellen und Festoxid-Brennstoffzellen, bei denen Wärmegradienten potentiell größer sind. Ferner ist es bei Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapeln möglich, eine Kohlenwasserstoffquelle, wie z. B. Methan oder Erdgas, innerhalb des Stapels zu Wasserstoff zu reformieren. Die Erfindung ist besonders vorteilhaft bei Brennstoffzellenstapeln, bei denen eine solche interne Reformierung erfolgt, da die Reformierung endotherm ist und daher Wärme aus den Brennstoffzellen entfernt wird. Der Einfachheit halber wird die Erfindung hier anhand eines Stapels aus planaren Festoxid-Brennstoffzellen beschrieben, der dazu vorgesehen ist, bei einer Betriebstemperatur von ungefähr 750°C am Auslass zu arbeiten. Ein bevorzugter Betriebstemperaturbereich am Auslass liegt zwischen ungefähr 750°C und ungefähr 830°C.
- [0056] [Fig. 1](#) zeigt ein Brennstoffzellensystem **10**, das einen Brennstoffzellenstapel **12** aufweist. Brennstoff und Oxidationsmittel werden dem Brennstoffzellenstapel **12** bei **14** bzw. **16** zugeführt.

[0057] Die Brennstoffquelle **18** ist Erdgas, das mittels einer Strahlpumpen-Venturivorrichtung **22** zu einem Dampf-Vorreformer **24** geliefert wird. Dampf für den Vorreformer **24** wird über eine Rinne **26** bereitgestellt und in der Venturivorrichtung **22** mit dem Erdgas gemischt. Der Dampf wird in einem Wärmetauscher-Dampferzeuger **28** gebildet, wobei Wasser für den Dampferzeuger von einer Wasserzuführung **30** abgeleitet wird.

[0058] Durch eine Dampfreformierung bei einer hohen Temperatur auf einem Nickelkatalysator in dem Vorreformer **24** wird der Kohlenwasserstoff-Brennstoff teilweise in Wasserstoff- und Kohlenstoffoxide umgewandelt. Das Maß an Reformierung in dem Vorreformer **24** ist eine Funktion der Temperatur und des Dampf-zu-Kohlenstoff-Verhältnisses, die Reaktion ist jedoch endotherm, und der Brennstoff, der von dem Vorreformer dem Brennstoffeinlass **14** des Stapels **12** zugeführt wird, wird in dem Wärmetauscher **28** vorgewärmt.

[0059] Luft, die als das Oxidationsmittel **46** verwendet wird, wird zu dem Brennstoffzellenstapel **12** geliefert, nachdem sie ebenfalls in dem Wärmetauscher **28** erwärmt worden ist.

[0060] Einzelheiten des Brennstoffzellenstapels **12** sind in [Fig. 1](#) nicht gezeigt, er weist jedoch abwechselnd Schichten aus Brennstoffzellen und Gasabscheidern auf mit Anschlussplatten an den Enden des Stapels. Die Brennstoffzellen weisen eine vollständig dichte Schicht aus Elektrolytmaterial auf mit einer porösen Schicht aus Kathodenmaterial und einer porösen Schicht aus Anodenmaterial auf gegenüberliegenden Seiten. Bei einer Festoxid-Brennstoffzelle kann das Elektrolytmaterial mit Yttrium dotiertes Zirkonoxid sein, während das Kathodenmaterial Lanthan-Strontium-Manganit sein kann und das Anodenmaterial ein Zirkon-Nickel-Cermet sein kann. Solche Brennstoffzellenstapel sind an anderer Stelle ausreichend dokumentiert.

[0061] Die Gasabscheiderplatten trennen die Brennstoffzellen und insbesondere das Brenngas, das zu dem Anodenmaterial einer Brennstoffzelle geliefert wird, von dem Oxidationsgas, das zu dem Kathodenmaterial einer angrenzenden Brennstoffzelle geliefert wird. Die Gasabscheiderplatten und die Anschlussendplatten enthalten zweckmäßigerweise darin ausgebildete Rillen oder Kanäle auf gegenüberliegenden Flächen jeweils zum Verteilen des Brenngases und des Oxidationsgases über das Anodenmaterial und das Kathodenmaterial der aneinander angrenzenden Brennstoffzellen, es können jedoch auch andere Formen der Gasverteilung angewendet werden. Die Gasabscheider können aus einer Vielfalt von unterschiedlichen Materialien gebildet sein, wenn sie jedoch elektrisch leitend sind, können sie als Zwischenverbindungen dienen, die von den Brennstoffzellen in dem Stapel erzeugte Elektrizität zwischen den Anschlussendplatten übertragen. Bei einer Ausführungsform sind die Zwischenverbindungen aus einem ferritischen nichtrostenden Stahl gebildet, wie z. B. ZMG232L von Hitachi Metals.

[0062] Die abwechselnd angeordneten Brennstoffzellenplatten und Zwischenverbindungsplatten und die Anschlussendplatten können in dem Stapel gegeneinander abgedichtet sein unter Verwendung von Glasdichtungen, die in der Lage sind, die Dichtungsfunktion bei der hohen Temperatur des Brennstoffzellenstapels von ungefähr 750°C aufrechtzuerhalten.

[0063] Bei dieser Temperatur können Kohlenwasserstoffe, die nicht in dem Dampfvorreformer **24** dampfreformiert werden und die dem Brennstoffeinlass **14** des Stapels **12** zugeführt werden, können in dem Stapel intern dampfreformiert werden, und zwar durch eine katalytische Reaktion mit Nickel-Anodenmaterial und/oder mit Nickel, das in Brenngas-Zuführleitungen zu dem Anodenmaterial der Brennstoffzellen angeordnet ist, einschließlich der Brennstoff-Zuführtrillen oder -kanäle, die in den Gasabscheiderplatten und einer Anschlussendplatte ausgebildet sind.

[0064] Wasserstoff in dem Brennstoff und Sauerstoff in dem Oxidationsmittel werden jeweils an den Brennstoffzellenanoden und -kathoden oxidiert und reduziert, wodurch eine ionische Leitfähigkeit durch das Elektrolytmaterial der Brennstoffzellen in dem Stapel **12** erzeugt wird, die durch einen Stromfluss durch den Stapel, der abgezogen wird, ausgeglichen wird.

[0065] Wie nachstehend beschrieben wird, bilden bei den dargestellten Ausführungsformen die Brennstoff- und Oxidationsgasströme in dem Stapel über die jeweiligen Seiten jeder Brennstoffzelle im Wesentlichen alle einen Gleichstrom, das heißt, alle in der gleichen Richtung, oder eine Mischung aus Gleichstrom und Gegenstrom, das heißt, in entgegengesetzte Richtungen entsprechend der Stufe der Brennstoffzellenarrays. Die Ströme können jedoch Gleichstrom, Gegenstrom oder Querströmung bilden, das heißt, im rechten Winkel zueinander. Alternativ können die Strömungsrichtungen entsprechend der Position in dem Stapel verändert werden. Zum Beispiel können bei einer Ausführungsform die ersten zwölf Schichten der Brennstoffzellenarrays in dem Stapel von unten aus einen Gleichstrom bilden, und die übrigen können einen Gegenstrom bilden, um die Wärmegradienten weiter zu verbessern.

[0066] In [Fig. 1](#) ist nur ein Stapel **12** gezeigt, das Brennstoffzellensystem kann jedoch eine Vielzahl von Stapeln **12** aufweisen, die in Reihe oder parallel geschaltet sind.

[0067] Das abgeführte Brenngas und Oxidationsgas von dem dargestellten Brennstoffzellenstapel **12** werden über Rinnen **52** und **53** zwecks Verbrennung des Brenngases zu einem Brenner **54** übertragen. Das Verbrennungsabgas **62** von dem Brenner **54** wird über eine Rinne **64** zu dem Wärmetauscher **28** geliefert, um Wärme für den Dampferzeuger sowie zum Erwärmen des vorreformierten Brennstoffs und des Oxidationsmittels, die dem Brennstoffzellenstapel zugeführt werden, zu erzeugen. Das Brennstoffzellen-Abgas und daher das Verbrennungsabgas **62** enthalten Dampf.

[0068] [Fig. 2](#) zeigt schematisch den oberen Teil eines Festoxid-Brennstoffzellenstapels **100** nach der Erfindung als Explosionsansicht und mit nur einigen der Komponenten. Aus Gründen der Klarheit zeigt die Figur nur die drei obersten Gasabscheiderplatten **102** des Stapels, eine Sammler-Endplatte **104** und eine obere Platte **106**. Die Brennstoffzellenplatten, die zwischen aneinander angrenzenden Gasabscheiderplatten **102** und zwischen der Sammler-Endplatte **104** und der angrenzenden Gasabscheiderplatte **102** angeordnet wären, sind in der Figur aus Gründen der Klarheit weggelassen, wie auch andere Komponenten, wie z. B. Abstandshalter und Dichtungen und der Luftstrom zu den und über die Seiten gegenüber denjenigen, die bei den Gasabscheiderplatten **102** und der Sammler-Endplatte **104** gezeigt sind. Sämtliche Brennstoffzellen wären identisch, und bei der Ausführungsform, die in [Fig. 2](#) gezeigt ist, würde jede Brennstoffzellenplatte nur eine einzelne Brennstoffzelle aufweisen und nicht ein Array aus einer Vielzahl von Brennstoffzellen.

[0069] Wie dargestellt ist, gibt es zwei Typen von Gasabscheiderplatten, zwei Platten **102a** einer ersten Stufe, wobei die obere an die Sammler-Endplatte **104** angrenzt, und eine Gasabscheiderplatte **102b** einer zweiten Stufe, die zwischen den Gasabscheiderplatten **102a** geschaltet ist. Die Brennstoffseite des dargestellten Stapels ist intern verzweigt und umfasst ausgerichtete Öffnungen **108** durch die Gasabscheiderplatten für den Brennstoff-Zuführsammler, ausgerichtete Öffnungen **110** durch die Gasabscheiderplatten **102** für den Brennstoffabgas-Auslasssammler, ausgerichtete Öffnungen **112** durch die Gasabscheiderplatten **102** für einen Brennstoffabgas-Einlasssammler und ausgerichtete Öffnungen **114** für einen Brennstoffabgassammler. Diese Öffnungen würden auch durch die anderen Gasabscheiderplatten in dem Stapel sowie Abstandshalter oder Abdeckplatten verlaufen und können durch die Brennstoffzellenplatten verlaufen.

[0070] Jede Gasabscheiderplatte **102** weist über sie verlaufende parallele Kanäle **116** auf, die einen Brennstoffzuführraum **118** mit einem Brennstoffabgasraum **120** verbinden. Die Kanäle **116** sind zwischen Rippen **122** ausgebildet, sie sind beide jedoch nur schematisch dargestellt. Die Kanäle **116** sind dazu vorgesehen, als Brenngas-Verteilungsleitungen zum Verteilen von Brennstoff über die Anode der jeweiligen Brennstoffzelle zu dienen, die an diese Seite jeder Gasabscheiderplatte **102** angrenzt, und transportieren Brenngas sowohl zu der Anode als auch von der Anode.

[0071] In den Gasabscheiderplatten **102a** ist der Brennstoffzuführraum **118** mit der Öffnung **108** verbunden, die den Brennstoff-Zuführsammler bildet, während der Brennstoffabgasraum **120** mit der Öffnung **110** verbunden ist, die den Brennstoffabgas-Auslasssammler bildet. Andererseits ist in der Gasabscheiderplatte **102b** der Brennstoffzuführraum **118** mit der Öffnung **112** verbunden, die den Brennstoffabgas-Einlasssammler bildet, und der Brennstoffabgasraum **120** ist mit der Öffnung **114** verbunden, die den Brennstoffabgassammler bildet.

[0072] Wie von dem Pfeil **124** dargestellt ist, strömt die Brennstoffzufuhr von dem unteren Teil des Stapels nach oben durch die Öffnungen **108**, bevor sie in den Brennstoffzuführraum **118** jeder Gasabscheiderplatte **102a** eintritt. Ähnlich strömt, wie von dem Pfeil **126** dargestellt ist, das von den Gasabscheiderplatten **102a** kommende Brennstoffabgas von den Brennstoffabgasräumen **120** dieser Platten in die Öffnungen **110** und nach oben durch den Brennstoffabgas-Auslasssammler, der von diesen Öffnungen gebildet ist.

[0073] An dem oberen Teil des Stapels strömt das Brennstoffabgas von den Gasabscheiderplatten **102a** durch eine mit den Öffnungen **110** in der Gasabscheiderplatte ausgerichtete erste Öffnung **128** in der Sammler-Endplatte **104** und über diese Platte in einen Kanal **130**, bevor sie über eine ausgerichtete zweite Öffnung **132** in der Sammler-Endplatte **104** in den Brennstoffabgas-Einlasssammler eintritt, der von Öffnungen **112** in den Gasabscheiderplatten gebildet ist. Die obere Platte **106** verschließt den Kanal **130**.

[0074] Das Brennstoffabgas von den Gasabscheiderplatten **102a** strömt dann nach unten durch den Brennstoffabgas-Einlasssammler, der von den Öffnungen **112** gebildet ist, und tritt in den Brennstoffzuführraum **118** der Gasabscheiderplatte **102b** über die Öffnung **112** in dieser Platte ein. Die Abwärtsströmung des Brennstoffabgases durch die Öffnungen **112** wird von dem Pfeil **134** dargestellt.

[0075] Das Brennstoffabgas von der Gasabscheiderplatte **102b** strömt von dem Raum **120** über die Öffnung **114** in den Brennstoffabgassammler und weiter nach unten zu dem unteren Teil des Stapels, wie von dem Pfeil **136** dargestellt ist.

[0076] In der Praxis tritt daher Brennstoff, der Erdgas oder ein anderer Kohlenwasserstoff sein kann und der teilweise vorreformiert sein kann, über die Öffnung **108** in die ersten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** in den Gasabscheiderplatten **102a** und den Brennstoffzuführraum **118** in diesen Platten ein, wo er die Anode der jeweiligen angrenzenden Brennstoffzellenplatte berührt und auf der Anode und an der Anoden/Elektrolyt-Grenzfläche reagiert. An der Anode wird der Brennstoff einer internen Reformierung in Wasserstoff- und Kohlenstoffoxide unterzogen, und der Wasserstoff wird dann an der Anoden/Elektrolyt-Grenzfläche bei einer hohen Betriebstemperatur der Brennstoffzelle oxidiert, während Sauerstoff in der Luft oder ein anderes Oxidationsmittel auf der anderen Seite der Brennstoffzelle (nicht gezeigt) reduziert wird, was zusammen einen ionischen Stromfluss durch das Elektrolyt bewirkt. Während die Brennstoffzellen-Oxidations-/Reduktionsreaktion exotherm ist, ist die interne Reformierungsreaktion endotherm, was zu einer relativen Abkühlung der Gasabscheiderplatten **102a** und angrenzender Brennstoffzellen führt.

[0077] Das Brennstoffabgas von diesen Reaktionen strömt über die Brennstoffabgasräume **120** und Öffnungen **110** von einer Austrittseite der ersten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** in den Brennstoffabgas-Auslasssammler, wie von dem Pfeil **126** dargestellt ist, nach oben zu dem oberen Teil des Stapels, wo es die Richtung in der Sammler-Endplatte **104** umkehrt und nach unten durch den Brennstoffabgas-Einlasssammler, der von den Öffnungen **112** gebildet ist, strömt, wie von den Pfeilen **134** dargestellt ist.

[0078] An der Gasabscheiderplatte **102b** strömt Brennstoffabgas von den Gasabscheiderplatten **102a** der ersten Stufe und diesen zugeordneten Brennstoffzellen von den jeweiligen Öffnungen **112** in den Brennstoffzuführraum **118** und die zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** dieser Platte, wo es die Anode der jeweiligen angrenzenden Brennstoffzellenplatte berührt und an der Anode und an der Anoden/Elektrolyt-Grenzfläche reagiert. Da zumindest der Großteil des verbleibenden Brennstoffs in dem Brennstoffabgas von den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** bereits intern reformiert worden ist, ist der Betrag an interner Reformierung an der Anode, die den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen der Gasabscheiderplatte **102b** zugeordnet ist, relativ klein mit einem entsprechenden begrenzten Maß an Abkühlung. Andererseits tritt, da reichlich Restbrennstoff in dem Brennstoffabgas von den ersten Brenngas-Verteilungsplatten **116** vorhanden ist, die gleiche Brennstoffzellenreaktion auf, wenn Sauerstoff der Kathodenseite der zugeordneten Brennstoffzelle zugeführt wird. Somit sind die Reaktionen an den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** der Gasabscheiderplatte **102b** die gleichen wie diejenigen an den Brennstoffzellen, die den Brenngas-Verteilungsplatten **116** der Gasabscheiderplatten **102a** zugeordnet sind, mit der Ausnahme, dass es eine geringere interne Reformierung und daher einen geringeren Abkühleffekt gibt. Es gibt daher einen Temperaturgradienten zwischen der Brennstoffzelle, die der Gasabscheiderplatte **102b** zugeordnet ist, und den Brennstoffzellen, die den Gasabscheiderplatten **102a** zugeordnet sind.

[0079] Das Brennstoffabgas von den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen **116** in der Gasabscheiderplatte **102b** strömt über den Brennstoffabgasraum **120** und die Öffnungen **114** in der Gasabscheiderplatte **102b** in den Brennstoffabgassammler, der von den ausgerichteten Öffnungen **114** gebildet ist, wie von dem Pfeil **136** dargestellt ist, nach unten zu dem unteren Teil des Stapels und wird aus dem Stapel ausgetragen.

[0080] Der oben beschriebene Temperaturgradient wird durch Schalten der Gasabscheiderplatte **102b** der zweiten Stufe und der dieser zugeordneten Brennstoffzelle zwischen den zwei Gasabscheiderplatten **102a** der ersten Stufe und des Kühlers und diesen zugeordneten Brennstoffzellen verringert. Das Verringern des Temperaturgradienten kann beträchtliche Vorteile hinsichtlich Wärmedehnungsunterschieden z. B. zwischen Komponenten der ersten und der zweiten Stufe bieten, wodurch die Lebensdauer des Brennstoffzellenstapels erhöht und seine Leistung verbessert werden.

[0081] Diese Zwischenschaltungsanordnung kann durchgehend durch den Stapel von Brennstoffzellenplatten und entsprechenden Gasabscheiderplatte in einer Vielfalt von Anordnungen wiederholt werden, so dass entweder Gasabscheiderplatten der ersten Stufe und diesen zugeordnete Brennstoffzellen in dem Stapel zwischen zwei Gasabscheiderplatten der zweiten Stufe und diesen zugeordneten Brennstoffzellen angeordnet sind oder Gasabscheiderplatten der zweiten Stufe und diesen zugeordnete Brennstoffzellen zwischen zwei Gasabscheiderplatten der ersten Stufe und diesen zugeordneten Brennstoffzellen angeordnet sind oder beides.

[0082] Einige Beispiele dieser Anordnungen sind in Tabelle 1 für 51-schichtige Stapel gezeigt, in der s1 eine Schicht einer Stufe 1 aus einer Gasabscheiderplatte und einer dieser zugeordneten Brennstoffzellenplatte darstellt und s2 eine Schicht einer Stufe 2 darstellt, die eine Gasabscheiderplatte einer zweiten Stufe und eine dieser zugeordnete Brennstoffzellenplatte aufweist. s3 in Beispiel 5 stellt eine Schicht einer Stufe 3 aus einer Gasabscheiderplatte und einer dieser zugeordneten Brennstoffzellenplatte dar. Jedes Beispiel in Tabelle 1 wird nachstehend beschrieben.

Tabelle 1

	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5	Beispiel 6
Stufenverhältnis	39:12	39:12	39:12	39:12	42:9	33:13:5
Schicht						
51	s1	s1	s1	s2	s1	s1
50	s1	s1	s1	s1	s1	s2
49	s1	s2	s1	s2	s1	s1
48	s2	s1	s2	s1	s1	s2
47	s1	s1	s1	s1	s2	s1
46	s1	s1	s1	s2	s1	s2
45	s1	s2	s1	s1	s1	s1
44	s2	s1	s1	s1	s1	s1
43	s1	s1	s2	s1	s1	s2
42	s1	s1	s1	s2	s2	s1
41	s1	s1	s1	s1	s1	s1
40	s2	s2	s1	s1	s1	s2
39	s1	s1	s1	s1	s1	s1
38	s1	s1	s2	s1	s1	s1
37	s1	s1	s1	s2	s1	s2
36	s2	s1	s1	s1	s2	s1
35	s1	s2	s1	s1	s1	s1
34	s1	s1	s1	s1	s1	s2
33	s1	s1	s2	s1	s1	s1
32	s2	s1	s1	s1	s1	s1
31	s1	s1	s1	s2	s1	s2
30	s1	s2	s1	s1	s2	s1
29	s1	s1	s1	s1	s1	s1
28	s2	s1	s1	s1	s1	s2
27	s1	s1	s2	s1	s1	s1
26	s1	s1	s1	s1	s1	s1
25	s1	s2	s1	s1	s2	s2
24	s2	s1	s1	s1	s1	s1
23	s1	s1	s1	s1	s1	s1
22	s1	s1	s2	s1	s1	s2
21	s1	s2	s1	s2	s1	s1
20	s2	s1	s1	s1	s2	s1

19	s1	s1	s1	s1	s1	s2
18	s1	s1	s2	s1	s1	s1
17	s1	s2	s1	s1	s1	s1
16	s2	s1	s1	s1	s1	s2
15	s1	s1	s1	s2	s2	s1
14	s1	s1	s2	s1	s1	s1
13	s1	s2	s1	s1	s1	s3
12	s2	s1	s1	s1	s1	s1
11	s1	s1	s2	s1	s1	s1
10	s1	s1	s1	s2	s2	s3
9	s1	s2	s1	s1	s1	s1
8	s2	s1	s2	s1	s1	s1
7	s1	s1	s1	s1	s1	s3
6	s1	s2	s1	s2	s1	s1
5	s1	s1	s2	s1	s2	s1
4	s2	s1	s1	s1	s1	s3
3	s1	s2	s1	s2	s1	s1
2	s1	s1	s2	s1	s1	s3
1	s1	s1	s1	s2	s1	s1

[0083] Bei Beispiel 1 gibt es 39 Schichten der Stufe 1 und 12 Schichten der Stufe 2 in einer sich wiederholenden Anordnung von 1 Schicht der Stufe 2 alle drei Schichten der Stufe 1 von dem unteren Teil des Stapels aus.

[0084] Bei Beispiel 2 gibt es ebenfalls 39 Schichten der Stufe 1 und 12 Schichten der Stufe 2, und zwar von dem unteren Teil des Stapels aus in einem sich wiederholenden Muster aus 1 Schicht der Stufe 2 alle 2 Schichten der Stufe 1, gefolgt von 1 Schicht der Stufe 2 alle 3 Schichten der Stufe 1 bis zur Mitte des Stapels und dann 1 Schicht der Stufe 2 alle 4 Schichten der Stufe 1 bis angrenzend an den oberen Teil des Stapels. Am oberen Teil des Stapels gibt es eine Anordnung aus einer Schicht der Stufe 2 zwischen 3 darunter liegenden Schichten der Stufe 1 und 2 darüber liegenden Schichten der Stufe 1. Durch diese Anordnung wird der Abkühleffekt der Reformierschichten der Stufe 1 in Richtung der oberen Hälfte des Stapels beeinflusst.

[0085] Beispiel 3 zeigt ebenfalls 39 Schichten der Stufe 1 und 12 Schichten der Stufe 2 in einem sich wiederholenden Muster aus 1 Schicht der Stufe 2 alle 2 Schichten der Stufe 1 von Schicht 3 bis Schicht 14, gefolgt von 1 Schicht der Stufe 2 alle 3 Schichten der Stufe 1 bis Schicht 22, gefolgt von 1 Anordnung aus 1 Schicht der Stufe 2 alle 4 Schichten der Stufe 1 und dann 1 Schicht der Stufe 2 alle 5 Schichten der Stufe 1, gefolgt von 1 Schicht der Stufe 2 alle 4 Schichten der Stufe 1 von Schicht 34 bis Schicht 48. Am oberen Teil des Stapels gibt es 3 Schichten der Stufe 1. Auch durch diese Anordnung wird der Abkühleffekt der Reformierschichten der Stufe 1 in Richtung der oberen Hälfte des Stapels beeinflusst.

[0086] Beispiel 4 zeigt eine weitere Anordnung aus 39 Schichten der Stufe 1 und 12 Schichten der Stufe 2. Bei dieser Anordnung sind die zwei Hälften des Stapels von jedem Ende aus Spiegelbilder voneinander mit einer sich graduell vergrößernden Beabstandung der Schichten der Stufe 2 von jedem Ende aus um eine Schicht der Stufe 1, dann zwei Schichten der Stufe 1, dann drei Schichten der Stufe 1, dann vier Schichten der Stufe 1. In der Mitte des Stapels gibt es neun Schichten der Stufe 1 zwischen zwei angrenzenden Schichten der Stufe 2. Somit gibt es eine kleinere Proportion von Schichten der Stufe 2 in der mittleren Hälfte des Stapels (Schichten 13 bis 39) als in jedem Endviertel des Stapels. Die Proportion beträgt weniger als die Hälfte, von ungefähr 1:6 in der mittleren Hälfte bis ungefähr 1:2 in jedem Endviertel. Der Effekt dieser Anordnung ist die Beeinflussung des Abkühleffekts der Reformierschichten der Stufe 1 in Richtung der Mitte des Stapels, wodurch das Ausgleichen des Wärmeverlustes von jedem Ende des Stapels unterstützt wird. Der Effekt davon relativ zu der Anordnung von Beispiel 1 ist in [Fig. 12](#) und [Fig. 13](#) gezeigt, die nachstehend beschrieben werden.

[0087] Bei Beispiel 5 gibt es 42 Schichten der Stufe 1 und 9 Schichten der Stufe 2 mit 1 Schicht der Stufe 2 alle vier Schichten der Stufe 1 bis Schicht 30, 1 Schicht der Stufe 2 alle 5 Schichten der Stufe 1 von Schicht 31 bis Schicht 42 und dann 1 Schicht der Stufe 2 zwischen 4 darüber und darunter liegenden Schichten der Stufe 1 am oberen Teil des Stapels. Bei dieser Anordnung ist die größte Anzahl von Reformier- und Abkühlschichten der Stufe 1 bei ungefähr zwei Dritteln der Höhe des Stapels konzentriert. Ein Verändern des Verhältnisses von Schichten der Stufe 1 zu Stufe 2 hat Auswirkungen auf die maximale Brennstoffausnutzung, bei der der Stapel arbeiten kann.

[0088] Beispiel 6 in Tabelle 1 zeigt eine Veränderung, die in [Fig. 2](#) nicht dargestellt ist, bei der es zusätzlich zu den Schichten der Stufe 1 und Stufe 2 Schichten der Stufe 3 gibt. Die Schichten der Stufe 3 (Gasabscheiderplatten und diesen zugeordnete Brennstoffzellen) nehmen Brennstoffabgas von Schichten der Stufe 2 auf, wie schematisch in [Fig. 10](#) gezeigt ist. Bei dieser Anordnung gibt es 33 Schichten der Stufe 1, 13 Schichten der Stufe 2 und 5 Schichten der Stufe 3, wobei sämtliche Schichten der Stufe 3 in Richtung des unteren Teils des Stapels vorgesehen sind und sämtliche Schichten der Stufe 2 darüber vorgesehen sind. In den ersten vier Schichten von dem unteren Teil des Stapels aus sind die Schichten der Stufe 1 und der Stufe 3 abwechselnd angeordnet, gefolgt von 1 Schicht der Stufe 3 alle 2 Schichten der Stufe 1 bis Schicht 13, gefolgt von 1 Schicht der Stufe 2 alle 2 Schichten der Stufe 1 von Schicht 14 bis Schicht 46. Bei den Schichten 47 bis 51 sind die Schichten der Stufe 1 und der Stufe 2 abwechselnd angeordnet.

[0089] Fachleute auf dem Sachgebiet erkennen, dass [Fig. 2](#) zwar die Brenngas-Verteilungsleitungen so zeigt, dass diese in den Gasabscheiderplatten **102** als Kanäle **116** ausgebildet sind, dies jedoch nicht unbedingt erforderlich ist. Stattdessen können die Gasverteilungsleitungen durch Vorsprünge auf der Anodenseite der Brennstoffzellen oder zum Beispiel durch Mittel gebildet sein, die zwischen den Gasabscheiderplatten und den angrenzenden Brennstoffzellenplatten angeordnet sind. Die Brenngas-Verteilungsleitungen sind daher auf effektive Weise zwischen einer Gasabscheiderplatte und der Anodenseite einer angrenzenden Brennstoffzelle vorgesehen und sind den Brennstoffzellen in dem Sinne zugeordnet, dass sie das Gas über die Brennstoffzelle verteilen.

[0090] [Fig. 3](#) bis [Fig. 6](#) zeigen das bloße Gerüst eines Brennstoffzellenstapels mit Darstellung der Sammleranordnung für einen Zweistufenstapel, bei dem jede Brennstoffzellenschicht ein Array aus vier Brennstoffzellen aufweist, die in einer Abdeckplatte **202** gehalten sind ([Fig. 6](#)), die nachstehend beschrieben wird. In [Fig. 3](#) bis [Fig. 6](#) sind die Gasverteilungsleitungen in den Gasabscheiderplatten **208** vorgesehen ([Fig. 4](#), [Fig. 5a](#), [Fig. 5b](#)). Wie in [Fig. 2](#) gibt es zwei Typen von Gasabscheiderplatten, nämlich eine Platte **208a** der ersten Stufe, die teilweise in [Fig. 5a](#) gezeigt ist, und eine Gasabscheiderplatten **208b** der zweiten Stufe, die teilweise in [Fig. 5b](#) gezeigt ist. In jeder dieser Figuren ist nur eine Hälfte der Anodenseite **210** dargestellt, jede mit zwei Arrays **212** von Brenngas-Verteilungsleitungen, die für zwei der Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays gezeigt sind. Jede Gasabscheiderplatte **208** weist vier Arrays **212** von Brenngas-Verteilungsleitungen auf, wobei in jedem Fall für die Gasabscheiderplatten **208a** und **208b** die nicht gezeigte linke Seite der Anodenseite **210** ein Spiegelbild der rechten Seite ist, die in [Fig. 5a](#) bzw. [Fig. 5b](#) gezeigt ist.

[0091] Da die Oxidationsmittelseite des Brennstoffzellenstapels nicht gestuft ist, ist die Oxidationsmittelseite **214** jeder Gasabscheiderplatte **208** identisch, und eine davon ist in [Fig. 4](#) gezeigt. Somit kann die Anodenseite **210** der Gasabscheiderplatte **208**, die in [Fig. 4](#) gezeigt ist, entweder eine erste Stufe sein, so dass die Gasabscheiderplatte eine Platte **208(a)** ist, die teilweise in [Fig. 5a](#) gezeigt ist, oder eine Gasabscheiderplatte **208(b)** der zweiten Stufe ist, die teilweise in [Fig. 5b](#) gezeigt ist.

[0092] In [Fig. 4](#) weist die Oxidationsmittel- oder Kathodenseite **214** der Gasabscheiderplatte **208** ebenfalls vier Arrays **216** von Oxidationsgas-Verteilungsleitungen zum Verteilen von Luft oder einem anderen Oxidationsmittel über die Kathode von vier jeweiligen Brennstoffzellen in einem angrenzenden Array (nicht gezeigt) auf. Die Gasabscheiderplatte **208** kann aus ferritischem nicht rostenden Stahl gebildet sein, wie oben beschrieben ist, wobei jedes Array **216** von Oxidationsgas-Verteilungsleitungen von mehreren parallel verlaufenden Kanälen mit dazwischen vorgesehenen Rippen gebildet ist, die die Brennstoffzellenplatten berühren und auf ihren oberen Flächen mit einem Spinell-Oxid beschichtet sein können, wie in WO 1996/028855 beschrieben ist.

[0093] Für jedes Array **216** von Oxidationsgas-Verteilungsleitungen gibt es ein Einlassende, das mit einem Oxidationsmittel-Zuführraum **218** verbunden ist, und ein Auslassende, das mit einem Oxidationsabgasraum **220** verbunden ist. Jeder Oxidationsmittel-Zuführraum **218** nimmt ein Oxidationsmittel über in Paar von Oxidationsmittel-Zuführsammleröffnungen **222** auf, während sich die Oxidationsabgasräume **220** zu Oxidationsabgas-Sammleröffnungen **224** hin öffnen. Die Öffnungen **224** verlaufen durch die Mitte der Platte, und jedes

linke und rechte (in der Figur) Paar von Arrays **216** von Oxidationsgas-Verteilungsleitungen nutzt gemeinsam ein jeweiliges Paar von Öffnungen **224**.

[0094] Die Gasabscheiderplatten **208** weisen zusätzliche durch diese verlaufende Öffnungen für das Brenngas auf. Zwischen den Oxidationsmittel-Zuführsammleröffnungen **222** sind zwei einander gegenüberliegenden Brennstoff-Zuführsammleröffnungen **226** vorgesehen. An den äußeren Enden des mittleren Arrays von Oxidationsabgas-Sammleröffnungen **224** sind zwei einander gegenüberliegende Brennstoffabgas-Auslasssammleröffnungen **228** vorgesehen. An den vier Ecken der Gasabscheiderplatte **208** sind jeweilige Brennstoffabgas-Einlasssammleröffnungen **230** vorgesehen, und in der Mitte der Platte ist eine einzelne Brennstoffabgas-Sammleröffnung **232** vorgesehen.

[0095] In Fig. 5a weist jedes Array **212** von Brenngas-Verteilungsleitungen eine Reihe von parallel verlaufenden Kanälen auf, die in der Abscheiderplatte zwischen einem Brennstoff-Zuführraum **234** und einem Brennstoffabgasraum **236** ausgebildet sind. Zwischen den Kanälen der Arrays **212** sind übrige Rippen angeordnet, die an der Anodenseite einer jeweiligen Brennstoffzelle (nicht gezeigt) jedes Arrays **212** angreifen. Zur Gewährleistung eines elektrisch leitenden Kontakts können die oberen Teile der Rippen mit Nickel beschichtet sein.

[0096] Eine Reihe von quer über die Arrays **212** verlaufenden Kanälen **238** gewährleistet einen ausgeglichenen Brenngasstrom von dem Zuführraum **234** zu dem Abgasraum **236** und daher einen ausgeglichenen Kontakt des Brenngases mit den Anoden.

[0097] Jedes Paar von aneinander angrenzenden Arrays **212** nutzt einen gemeinsamen Brennstoff-Zuführraum **234** und Brennstoffabgasraum **236**, und Brenngas wird dem Brenngas-Zuführraum **234** über die Brenngas-Zuführsammleröffnung **226** zugeführt, welche sich zu der Mitte des Raums hin öffnet. Im Gegensatz dazu wird Brennstoffabgas über die Brennstoffabgas-Auslasssammleröffnungen **228** an den Enden des Abgasraums aus dem Brennstoffabgasraum **236** ausgetragen. Diese Brennstoffabgas-Auslasssammleröffnungen **228** werden von dem linken Paar von Arrays **212** gemeinsam genutzt, das, wie oben beschrieben ist, ein Spiegelbild des rechten Paares ist, das in Fig. 5a gezeigt ist.

[0098] In Fig. 5b ist die Anodenseite **210** der Gasabscheiderplatte **208(b)** der oben beschriebenen Anodenseite **210** der Gasabscheiderplatte **208(a)** im Wesentlichen gleich, so dass nur die Unterschiede beschrieben werden. Ferner weisen die entsprechenden Komponenten in Fig. 5a und Fig. 5b die gleichen Bezugszeichen auf.

[0099] In Fig. 5b nimmt der Brennstoff-Zuführraum **234**, der von zwei aneinander angrenzenden Arrays **212** in der Gasabscheiderplatte **208(b)** gemeinsam genutzt wird, Brennstoffabgas über die Brennstoffabgas-Einlasssammleröffnungen **230**, die sich zu dem Raum **234** an dessen Enden hin öffnen, von dem Brennstoffabgas-Auslasssammler auf, der von den Öffnungen **228** gebildet ist. Das Brennstoffabgas von der Platte **208(b)** strömt von dem Brennstoffabgasraum **236** in die einzelne Brennstoffabgas-Sammleröffnung **232**, die von den spiegelbildlich ausgeführten Arrays **212** gemeinsam genutzt wird.

[0100] In Fig. 3 sind die zwei Gasabscheiderplatten **208a** und **208b** und ihre Verbindungen zu dem Sammlern schematisch dargestellt, wobei die Kathodenseite **214** nach oben weist. Es sind nur die zwei Gasabscheiderplatten gezeigt, wobei der Einfachheit halber keine Brennstoffzellenarrays zwischen diesen oder über und unter diesen vorgesehen sind. Wie in Fig. 4 sind die gesamten Gasabscheiderplatten **208** mit den vier Arrays **216** von Oxidationsbrennstoff-Verteilungsleitungen gezeigt.

[0101] Die Sammler, die von den jeweiligen Öffnungen durch die Gasabscheiderplatten **208** und entsprechenden Öffnungen in der Abdeckplatte **202** gebildet sind, sind in Fig. 3 schematisch dargestellt und werden mit dem entsprechenden Bezugszeichen für die jeweiligen Öffnungen durch die Gasabscheiderplatten gefolgt von "" bezeichnet.

[0102] Bei Verwendung des Stapels **200** strömt Brenngas von einer unteren Endplatte des Stapels (nicht gezeigt) durch die Brennstoff-Zuführsammler **226'** nach oben und tritt in die Räume **234** der Gasabscheiderplatten **208a** der ersten Stufe ein, wie in Fig. 5a gezeigt ist. Das Brenngas, das reagiert hat, wird dann aus den Brennstoffabgasräumen **236** der Gasabscheiderplatten **208a** der ersten Stufe nach oben durch die Brennstoffabgas-Auslasssammler **228'** abgeführt. Entsprechend strömt Oxidationsmittel von der unteren Endplatte des Stapels durch die Oxidationsmittel-Zuführsammler **222'** nach oben und tritt in die Oxidationsmittel-Zuführräume **218** auf der Kathodenseite **214** der Gasabscheiderplatten **208** ein.

[0103] Nach dem Reagieren an den jeweiligen Kathoden tritt das Oxidationsabgas von den Oxidationsabgasräumen **220** in die Oxidationsabgassammler **224'** ein und strömt nach unten zu der unteren Endplatte. Dies erfolgt sowohl für die Gasabscheiderplatten **208a** der ersten Stufe als auch die Gasabscheiderplatten **208b** der zweiten Stufe.

[0104] Brennstoffabgas von den Gasabscheiderplatten **208a** der ersten Stufe strömt nach oben durch die Brennstoffabgas-Auslasssammler **228'**, bis es, wie in [Fig. 2](#), eine Sammlerendplatte (nicht gezeigt) am oberen Teil des Stapels erreicht und seine Richtung umgekehrt, um nach unten durch die Brennstoffabgas-Einlasssammler **230'** zu strömen, von wo es in die Brennstoff-Zuführräume **234** der Gasabscheiderplatten **208b** der zweiten Stufe eintritt. Nach dem Reagieren an der Anode der jeweiligen Brennstoffzelle strömt das Abgas der zweiten Stufe von den Brennstoffabgasräumen **236** der Gasabscheiderplatten **208b** in den gemeinsamen Brennstoffabgassammler **232'**. In dem Brennstoffabgassammler **232'** strömt das Brennstoffabgas der zweiten Stufe nach unten zu der unteren Sammlerplatte, von wo dieses und das Oxidationsabgas aus dem Stapel ausgetragen werden, wie mit Bezug auf [Fig. 1](#) beschrieben worden ist.

[0105] Die Anordnung der Gasabscheiderplatten **208a** der ersten Stufe und der Gasabscheiderplatten **208b** der zweiten Stufe in dem Stapel **200** kann mit Bezug auf [Fig. 2](#) und zum Beispiel anhand der Beispiele 1 bis 5 in Tabelle 1 beschrieben werden.

[0106] In [Fig. 6](#) weist die Abdeckplatte **202** eine ähnliche Gesamtform auf wie die Gasabscheiderplatten **208**, und eine jeweilige eine ist zwischen zwei aneinander angrenzenden Gasabscheiderplatten **208** und zwischen einer End-Gasabscheiderplatte **208** und einer angrenzenden Sammler-Endplatte (nicht gezeigt) aufgenommen.

[0107] Die Abdeckplatte **202** weist Sammleröffnungen auf, die denjenigen in den Gasabscheiderplatten **208** entsprechen und die mit den gleichen Bezugszeichen, jedoch gefolgt von "'", bezeichnet sind und hier nicht beschrieben werden. Die Abdeckplatte kann ebenfalls aus ferristischem nicht rostenden Stahl gebildet sei, wie z. B. ZMG232L von Hitachi Metals, und weist ebenfalls vier Hauptöffnungen **240** durch ihre Dicke hindurch in einem Array auf, das den Arrays **212** und **216** von Gasverteilungsleitungen in den Gasabscheiderplatten **208** entspricht. Jeweilige Brennstoffzellenplatten (nicht gezeigt) sind in den Hauptöffnungen **240** aufgenommen, wobei sämtliche Brennstoffzellenplatten identisch sind und oben beschrieben sind. Die Brennstoffzellenplatten sind in den Hauptöffnungen **240** unter Verwendung von Glasdichtungen (nicht gezeigt) abgedichtet, die verhindern, dass Oxidationsmittel und Brenngase von einer Fläche zu der anderen strömen.

[0108] In dem Stapel ist jede Abdeckplatte auch gegenüber den angrenzenden Gasabscheiderplatten abgedichtet, um ein angemessenes Strömen von Gas von einem Einlasssammler zu einem Auslasssammler ohne Leckage zu gewährleisten. Solche Dichtungen können ebenfalls von Glasdichtungen oder zum Beispiel durch Laserverschweißen der Platten **202** und **208** gebildet sein.

[0109] [Fig. 7](#) zeigt auf zweidimensionale Weise eine Abänderung des Teilstapels **100** von [Fig. 2](#) als ein Teilstapel **300**. Der obere Bereich des Stapels ist dargestellt, wobei die verschiedenen Platten von Blöcken dargestellt sind. Die Darstellung umfasst Brennstoffzellenplatten **302** zwischen jedem Paar von anderen Platten mit einer Sammler-Endplatte **304** am oberen Teil. Zwischen den Brennstoffzellenplatten sind eine Vielfalt von Gasabscheiderplatten **304** der ersten Stufe und Gasabscheiderplatten **306** der zweiten Stufe vorgesehen. Die Figur zeigt eine sich wiederholende Einheit von drei aneinander angrenzenden Gasabscheiderplatten der ersten Stufe für jede eine Gasabscheiderplatte der zweiten Stufe, mit Ausnahme des oberen Teils des Stapels, wo zwei Gasabscheiderplatten der ersten Stufe vorgesehen sind. Die Anordnung gibt daher Beispiel 2 aus Tabelle 1 wieder.

[0110] [Fig. 7](#) zeigt ferner die Brenngasströme. Die Oxidationsmittelsammler-Gasströme sind aus Gründen der Klarheit weggelassen, es geht jedoch aus der vorstehenden Beschreibung von [Fig. 3](#) bis [Fig. 6](#) hervor, dass diese durchgehend in dem Stapel die gleichen sind, wobei das Oxidationsmittel nach oben durch den Stapel und über die Schichten zwischen der Kathodenseite der Brennstoffzellen strömt, wie von den Pfeilen **308** dargestellt ist, bevor das Oxidationsabgas wieder nach unten durch einen Oxidationsabgassammler (nicht gezeigt) zu der unteren Sammler-Endplatte transportiert wird, um aus dem Stapel abgeführt zu werden.

[0111] Auf der Brennstoffseite wird das Brenngas von der unteren Sammler-Endplatte (nicht gezeigt) nach oben durch einen Brennstoff-Zuführsammler transportiert, der von den Pfeilen **310** dargestellt ist. Das Brenngas strömt von dem Brennstoff-Zuführsammler zwischen den Gasabscheiderplatten **304** der ersten Stufe und

der Anodenseite der angrenzenden Brennstoffzellenplatten **302** durch die Gasverteilungsleitungen der ersten Stufe, wie von den Pfeilen **312** dargestellt ist.

[0112] Das abgeführte Brenngas der ersten Stufe, das reagiert hat, tritt dann in den Brennstoffabgas-Auslasssammler ein, der von Pfeil **314** dargestellt ist, durch den es nach oben zu der oberen Sammler-Endplatte **301** geführt wird, wo es seine Richtung umkehrt und nach unten durch einen Brennstoffabgas-Einlasssammler, der von den Pfeilen **316** dargestellt ist, zu den Brenngas-Verteilungsleitungen der zweiten Stufe, die von Pfeilen **318** dargestellt sind, zwischen den Brennstoffzellenplatten **306** der zweiten Stufe und der Anodenseite der angrenzenden Brennstoffzellenplatten **302** geführt wird. Das abgeführte Brenngas der zweiten Stufe tritt dann in den Brennstoff-Auslasssammler ein, der von Pfeilen **320** dargestellt ist, durch den es zu der unteren Sammler-Endplatte geführt und aus dem Stapel ausgetragen wird.

[0113] In [Fig. 7](#) sind die untersten Pfeile **314** und **316** zusammengefasst, wodurch gezeigt ist, dass der Brennstoffabgassammler **228** der ersten Stufe und der Brennstoff-Einlasssammler **230** der zweiten Stufe zusammengefasst werden können, und in diesem Fall können die Strömungsraten der Aufwärts- und Abwärtsströmung durch den zusammengefassten Sammler klein sein.

[0114] Bei der in [Fig. 7](#) gezeigten Anordnung verlaufen die Brenngasströme durch die ersten und zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen **312** und **318** in entgegengesetzte Richtungen. Die Oxidationsgasströme durch die Oxidationsgas-Verteilungsleitung **308** können ebenfalls umgekehrt werden, falls gewünscht, um eine Gegenstrom-Anordnung zu erhalten (relativ zu den Leitungen **312**).

[0115] [Fig. 8](#) zeigt eine ähnliche Darstellung wie [Fig. 7](#) eines Teilstapels **330**, bei dem der Einfachheit halber die gleichen Bezugszeichen für die gleiche Teile wie in [Fig. 7](#) verwendet werden.

[0116] Wie [Fig. 7](#) zeigt [Fig. 8](#) eine sich wiederholende Einheit von drei aneinander angrenzenden Gasabscheiderplatten der ersten Stufe für jede eine Gasabscheiderplatte der zweiten Stufe, mit Ausnahme des oberen Teils des Stapels, wo zwei Gasabscheiderplatte der ersten Stufe vorgesehen sind. Die Anordnung gibt daher Beispiel 2 aus Tabelle 1 wieder. Der Unterschied zu [Fig. 7](#) besteht darin, dass wie in [Fig. 2](#) sämtliche Gasströme durch die Gasverteilungsleitungen **312** und **318** der ersten und der zweiten Stufe sowie in den Oxidationsmittelleitungen **308** in der gleichen Richtung verlaufen, nämlich von links nach rechts in der Figur. [Fig. 8](#) zeigt ferner die Übertragung des Brennstoffabgases der ersten Stufe am oberen Teil des Stapels von dem Brennstoffabgas-Auslasssammler **314** in den Brennstoffabgas-Einlasssammler **316** zwischen der Sammler-Endplatte **301** und einer oberen Platte **332**. Der Kanal, durch den diese Übertragung erfolgt, ist von dem Pfeil **334** dargestellt.

[0117] [Fig. 9](#) zeigt schematisch eine Ausführungsform eines der Beispiele 1 bis 4 aus Tabelle 1, wobei jedoch die Gasströme der Stufe eins und der Stufe zwei der Einfachheit halber in zwei in Reihe geschalteten Stapeln gezeigt sind, nämlich einem Stapel **402** der ersten Stufe und einem zweiten Stapel **404** der zweiten Stufe. In der Praxis würden die Gasströme der ersten und der zweiten Stufe natürlich in einem einzigen Stapel verlaufen, wobei die Gasabscheiderplatten der zweiten Stufe zwischen den Gasabscheiderplatten der ersten Stufe geschaltet sind, wie in Tabelle 1 gezeigt ist.

[0118] In [Fig. 9](#) ist der Brenngas-Zuführsammler **406** so dargestellt, dass er das Brenngas von einer unteren Sammler-Endplatte (nicht gezeigt) nach oben zu den Gasabscheiderplatten der ersten Stufe führt, und der Abgassammler **408** der ersten Stufe ist so dargestellt, dass er das Brennstoffabgas der ersten Stufe nach oben zu der oberen Sammler-Endplatte führt. Entsprechend führt der Brennstoffabgas-Einlasssammler **410** der zweiten Stufe das Brennstoffabgas der ersten Stufe nach unten zu den Gasabscheiderplatten der zweiten Stufe, und das Brennstoffabgas der zweiten Stufe wird dann nach unten durch den Abgassammler **412** zu der unteren Sammler-Endplatte (nicht gezeigt) geführt, von wo es aus dem Stapel ausgetragen wird.

[0119] [Fig. 10](#) zeigt eine ähnliche Darstellung wie [Fig. 9](#), jedoch für den Dreistufenstapel von Beispiel 6 aus Tabelle 1. Somit wird das Brennstoffabgas der zweiten Stufe nicht aus dem Stapel ausgetragen, sondern nach unten zu den Gasabscheiderplatten **414** der dritten Stufe und dann nach unten durch einen Brennstoffabgassammler **416** der dritten Stufe geführt, nachdem es zwecks Reaktion des Brenngases auf der Anodenseite der angrenzenden Brennstoffzellen durch Brenngas-Verteilungsleitungen der dritten Stufe geströmt ist, um aus dem Stapel ausgetragen zu werden. Im Gegensatz zu [Fig. 9](#) ist gezeigt, dass die Strömungsrichtungen in dem Brenngas-Zuführsammler **406** der ersten Stufe und dem Brenngasabgassammler **408** beide nach oben verlaufen und dass die Strömungsrichtungen in dem Brennstoffabgas-Einlasssammler **410** der zweiten Stufe und dem Abgassammler beide nach unten verlaufen.

[0120] [Fig. 11](#) zeigt ein Diagramm mit Darstellung einer Gesamt-Brennstoffausnutzung gegenüber der Brennstoffausnutzung eines einzelnen Brennstoffzellenarrays in einem Zweistufenstapel. Das Diagramm zeigt Brennstoffausnutzungen für drei unterschiedliche Verhältnisse von Schichten der Stufe eins zu Schichten der Stufe 2 (1:2, 2,5:1 und 3,25:1) und zeigt, dass bei einem höheren Verhältnis der Stufe eins zu Stufe zwei eine höhere Gesamt-Brennstoffausnutzung bei einer gleichmäßigen Brennstoffausnutzung für beide Stufen erreicht werden kann.

[0121] Insbesondere die Soll-Gesamt-Brennstoffausnutzung bestimmt das Stufenverhältnis. Idealerweise ist aus folgenden Gründen die Brennstoffausnutzung der Stufe 2 immer etwas niedriger als die Brennstoffausnutzung der Stufe 1 (oder zumindest niemals höher in Stufe 2 im Vergleich zu Stufe 1):

- 1) Bedingungen der Stufe 2 können zu einer früheren Oxidation von Teilen der jeweiligen Brennstoffzellen führen als bei Stufe 1, und zwar aufgrund der niedrigeren H_2 -Konzentrationen (niedrigeres Nernst-Potential) – insbesondere da sich die Brennstoffzellen aufgrund starker Benutzung verschlechtern;
- 2) Stufe 2 ist empfindlicher gegenüber einer Veränderung bei der Brennstoffausnutzung – Stufe 1 ist linear, wohingegen Stufe 2 eine höhere Funktion hat;
- 3) Stufe 2 erhält den Restbrennstoff von Stufe 1 – daher belasten sämtliche Fehler zum Beispiel bei den Strömungen, Strom- und Potentialleckagen die Stufe 2.

[0122] Unter Berücksichtigung des Vorgenannten ist ein bevorzugtes Stufenverhältnis 3,25:1 bei einer Soll-Gesamt-Brennstoffausnutzung von 85%, was zu einer Brennstoffausnutzung der Stufe 1 von 66% und einer Brennstoffausnutzung der Stufe 2 von 58% führen würde unter der Annahme der gleichen Strom/Strom-Dichte für jede Schicht/jedes Array unabhängig von der Stufe. Dadurch wird es auch möglich, dass die Gesamt-Brennstoffausnutzung (aufgrund von Fehlern, Leckagen etc.) bis auf 89% steigen kann, wobei beide Stufen immer noch mit der gleichen Ausnutzung arbeiten.

[0123] Ein weiterer Vorteil der Erfindung besteht darin, dass durch Bereitstellen der zwei oder mehr Stufen von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel, in dem aneinander angrenzende Arrays in Reihe geschaltet sind, der gleiche Strom und die gleiche Stromdichte für jedes Array sichergestellt sind. Im Gegensatz zu der Anordnung, bei der Brennstoffzellenarrays der ersten und der nachfolgenden Stufe in jeweiligen Stapeln vorgesehen sind, ist kein separater Steuermechanismus erforderlich, der den gleichen Strom und die gleiche Stromdichte in sämtlichen Arrays sämtlicher Stufen gewährleistet.

[0124] [Fig. 12](#) und [Fig. 13](#) zeigen Diagramme mit Darstellung des Wärmeprofiles beim Durchführen der Reformierung in dem Brennstoffzellenstapel von Beispielen 1 bzw. 4. Die x-Achse jedes Diagramms stellt die Anzahl von Schichten 1 bis 51 in dem Stapel dar, während die y-Achse die Temperatur bei einer Anzahl von Sensoren (von jeder Linie dargestellt) an jeder Schicht zeigt, die von dem Brennstoffeinlass (der unteren Linie in jedem Fall) zu dem Brennstoffabgas-Auslass (der oberen Linie in jedem Fall) für die Brennstoffzelle beabstandet ist. Im Allgemeinen ist ersichtlich, dass die Temperatur von dem Brennstoffeinlass zu dem Brennstoffabgas-Auslass steigt und dass die Temperatur am oberen Teil des Stapels (Schicht 51) höher ist als am unteren Teil (Schicht 1), jedoch mit einem Maximum an einer von den oberen und unteren Enden des Stapels entfernten Stelle teilweise aufgrund der Wärmeverluste an den Enden. Die Spitzen in der unteren Linie jedes Diagramms geben den Ort der Schichten der Stufe 2 und ihren reduzierten Abkühleffekt relativ zu den Reformierschichten der Stufe 1 wieder.

[0125] [Fig. 12](#) zeigt, dass bei der Ausführungsform von Beispiel 1 der reduzierte Abkühleffekt der gleichmäßig voneinander beabstandeten Schichten der Stufe 2 entlang der Länge des Stapels entfaltet worden ist, wodurch der Wärmegradient stark verbessert wird im Vergleich zu einer Anordnung, bei der die Schichten der Stufe 1 alle näher an einem Ende des Stapels liegen und die Schichten der Stufe 2 alle nahe an dem anderen Ende des Stapels liegen, jedoch immer noch mit einer maximalen Temperatur in Richtung der Mitte des Stapels.

[0126] Im Gegensatz dazu zeigt [Fig. 13](#), dass bei einer Beabstandung der Schichten der Stufe 2 wie bei Beispiel 4 das Temperaturprofil derart abgeflacht wird, dass der Temperaturgradient entlang des Stapels reduziert wird.

[0127] In beiden Fällen beträgt der Temperaturgradient über die Brennstoffzellen in Richtung der Mitte des Stapels ungefähr 25°C , und dies gilt auch an dem oberen Teil des Stapels von Beispiel 1. Bei Beispiel 4 beträgt der Temperaturgradient über die Brennstoffzellen an dem oberen Teil des Stapels nur ungefähr 15°C .

[0128] Fachleute auf dem Sachgebiet erkennen, dass an der hier beschriebenen Erfindung andere Veränderungen und Modifikationen durchgeführt werden können als die spezifisch beschriebenen. Es sei darauf hin-

gewiesen, dass die Erfindung alle diese Änderungen und Modifikationen umfasst, die in den Geist und Umfang der Erfindung fallen. Die Erfindung umfasst ferner sämtliche Schritte und Merkmale, auf die in dieser Beschreibung Bezug genommen oder hingewiesen worden ist, und zwar einzeln oder insgesamt, und sämtliche Kombinationen von zwei oder mehr dieser Schritte oder Merkmale.

[0129] In dieser Beschreibung und den nachstehenden Patentansprüchen wird, sofern der Zusammenhang nichts anderes erfordert, durchgehend der Ausdruck "aufweisen" und Varianten davon, wie z. B. "weist auf" und "aufweisend", so verstanden, dass er eine angegebene ganze Zahl oder einen Schritt oder eine Gruppe von ganzen Zahlen oder Schritten einschließt, jedoch nicht eine andere ganze Zahl oder einen Schritt oder eine Gruppe von ganzen Zahlen oder Schritten ausschließt.

[0130] Die Bezugnahme in dieser Beschreibung auf eine früherer Veröffentlichung (oder daraus abgeleitete Informationen) oder auf einen Inhalt, der bekannt ist, wird nicht und sollte nicht als Bestätigung oder Anerkennung oder irgendeine Form von Hinweis angesehen werden, dass diese frühere Veröffentlichung (oder daraus abgeleiteten Informationen) oder bekannte Inhalt Teil des allgemeinen Wissens auf dem Gebiet des Gegenstands, der in dieser Beschreibung behandelt wird, sind.

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- WO 2003/019707 [[0008](#)]
- EP 0263052 [[0009](#)]
- US 7108929 [[0009](#), [0010](#)]
- US 7482073 [[0011](#), [0014](#)]
- US 6033794 [[0013](#)]
- US 5478662 [[0014](#)]
- EP 0596366 [[0014](#)]
- WO 1996/028855 [[0092](#)]

Patentansprüche**1. Brennstoffzelleneinheit, die aufweist:**

einen Stapel von mehreren Brennstoffzellenarrays, wobei jedes Brennstoffzellenarray eine oder mehrere Brennstoffzellen aufweist und jede Brennstoffzelle eine Elektrolytschicht, eine Anodenschicht auf einer Seite der Elektrolytschicht und eine Kathodenschicht auf einer gegenüberliegenden Seite der Elektrolytschicht aufweist, wobei der Stapel ferner Brenngas-Verteilungsleitungen aufweist, die sich zu den Anodenschichten der Brennstoffzellen in dem Stapel hin öffnen;

einen oder mehrere Brennstoff-Zuführsammler zum Zuführen von Brenngas zu den Brenngas-Verteilungsleitungen in dem Stapel;

wobei die Brennstoffzellenarrays mindestens Brennstoffzellenarrays einer ersten Stufe aufweisen, denen erste Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die mit dem einen oder den mehreren Brenngas-Zuführsammlern verbunden sind, um Brenngas direkt von diesen aufzunehmen, und Brennstoffzellenarrays einer zweiten Stufe, denen zweite Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die dazu vorgesehen sind, Brennstoffabgas von den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe aufzunehmen zwecks Zuführens des Brennstoffabgases zu den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in dem Stapel; und

wobei mindesten eine der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays Brennstoffzellenarrays aufweist, die in dem Stapel zwischen den Brennstoffzellenarrays der anderen der ersten und zweiten Stufe von Brennstoffzellenarrays angeordnet sind.

2. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 1, bei der eine Einlassseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen, die sich zu der Anodenschicht jeder Brennstoffzelle der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe hin öffnen, direkt mit einer Abführseite der ersten Brenngas-Verteilungsleitungen verbunden ist, die sich zu den Anodenschichten von mindestens zwei Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe hin öffnen.

3. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 1, bei der mindestens ein Brennstoffsammler zwischen einer Einlassseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen und einer Abführseite der ersten Brenngas-Verteilungsleitungen vorgesehen ist, um Brennstoffabgas von mehreren ersten Brenngas-Verteilungsleitungen mehreren zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen zuzuführen.

4. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 3, bei der der mindestens eine Brennstoffsammler einen Brennstoffabgas-Auslasssammler aufweist, der mit einem Brennstoffabgas-Einlasssammler verbunden ist, wodurch Brennstoffabgas von den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen in einer Richtung durch den Brennstoffabgas-Auslasssammler und in einer entgegengesetzten Richtung entlang des Brennstoffabgas-Einlasssammlers zu den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen strömt.

5. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der die Anodenschichten der Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und/oder die ersten Brenngas-Verteilungsleitungen einen Dampfreformierkatalysator aufweisen zum Dampfreformieren von Kohlenwasserstoff in dem Brenngas, das die Anodenschichten berührt, und/oder in den ersten Brenngas-Verteilungsleitungen.

6. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der jedes Brennstoffzellenarray der einen der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays angrenzend an mindestens ein Brennstoffzellenarray der anderen der ersten und zweiten Stufen von Brennstoffzellenarrays angeordnet ist.

7. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 6, bei der jedes Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe in dem Stapel zwischen jeweiligen zwei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe angeordnet ist.

8. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der in mindestens einem Teil des Stapels ein sich wiederholendes Muster aus drei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und einem Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe vorgesehen ist.

9. Brennstoffzelleneinheit nach einem der Ansprüche 1 bis 7, bei der in mindestens einem Teil des Stapels ein sich wiederholendes Muster aus vier Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und einem Brennstoffzellenarray der zweiten Stufe vorgesehen ist.

10. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der ein sich wiederholendes Muster einer Anordnung von Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe und Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe durchgehend in dem Stapel vorgesehen ist.

11. Brennstoffzelleneinheit nach einem der Ansprüche 1 bis 9, bei der eine größere Anzahl von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in einer ersten Hälfte des Stapels als in einer zweiten Hälfte des Stapels vorgesehen ist.

12. Brennstoffzelleneinheit nach einem der Ansprüche 1 bis 9, bei der eine kleinere Proportion von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in einer mittleren Hälfte des Stapels als in jedem Endviertel des Stapels vorgesehen ist.

13. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 12, bei der die Proportion von Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in jedem Endviertel des Stapels mindestens doppelt so groß ist wie in der mittleren Hälfte des Stapels.

14. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der die Anzahl von Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe in dem Stapel in einem Bereich von 64 bis 82% der Gesamtanzahl von Brennstoffzellenarrays in dem Stapel liegt.

15. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei der sämtliche zweite Brenngas-Verteilungsleitungen mit mindestens einem Brennstoffabgassammler verbunden sind zum Leiten von Brennstoffabgas von den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen zu einer Stelle außerhalb des Stapels oder zum Zurückführen zu dem Stapel.

16. Brennstoffzelleneinheit nach einem der Ansprüche 1 bis 13, bei der die Brennstoffzellenarrays ferner mindesten ein Brennstoffzellenarray einer dritten Stufe aufweisen, dem dritte Brenngas-Verteilungsleitungen zugeordnet sind, die dazu vorgesehen sind, Brennstoffabgas von Brennstoffzellen der Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe aufzunehmen zwecks Zuführens des Brennstoffabgases zu den Brennstoffzellen des mindestens einen Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe in dem Stapel.

17. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 16, bei der mindestens ein Brennstoffsammler zwischen einer Einlassseite der dritten Brenngas-Verteilungsleitungen und einer Abführseite der zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen vorgesehen ist zum Zuführen von Brennstoffabgas von den zweiten Brenngas-Verteilungsleitungen zu den dritten Brenngas-Verteilungsleitungen.

18. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 16 oder 17, bei der als eine Proportion der Gesamtanzahl von Arrays von Brennstoffzellen der ersten, zweiten und dritten Stufe in dem Stapel die Arrays der ersten Stufe 50 bis 70% umfassen, die Arrays der zweiten Stufe 31 bis 23% umfassen und die Arrays der dritten Stufe 19 bis 7% umfassen.

19. Brennstoffzelleneinheit nach einem der Ansprüche 16 bis 18, bei der jedes Brennstoffzellenarray der dritten Stufe in dem Stapel angrenzend an mindestens ein Brennstoffzellenarray der ersten Stufe angeordnet ist.

20. Brennstoffzelleneinheit nach Anspruch 19, bei der jedes Brennstoffzellenarray der dritten Stufe in dem Stapel zwischen zwei Brennstoffzellenarrays der ersten Stufe angeordnet ist.

21. Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 19 oder 20, bei dem sämtliche Brennstoffzellenarrays der zweiten Stufe in Richtung eines ersten Endes des Stapels angeordnet sind und sämtliche Brennstoffzellenarrays der dritten Stufe in Richtung eines zweiten Endes des Stapels angeordnet sind.

22. Brennstoffzelleneinheit nach einem der vorhergehenden Ansprüche, die ferner einen Dampfextraktor aufweist, der zwischen den Brenngas-Verteilungsleitungen einer Endstufe von Brennstoffzellenarrays und den Brenngas-Verteilungsleitungen einer vorletzten Stufe von Brennstoffzellenarrays geschaltet ist, um Dampf aus dem Brennstoffabgas zu kondensieren, das von den Brenngas-Verteilungsleitungen der vorletzten Stufe von Brenngaszellenarrays aufgenommen wird, und zwar vor dem Zuführen des Brennstoffabgases zu den Brenngas-Verteilungsleitungen der vorletzten Stufe von Brennstoffzellenarrays.

Es folgen 11 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

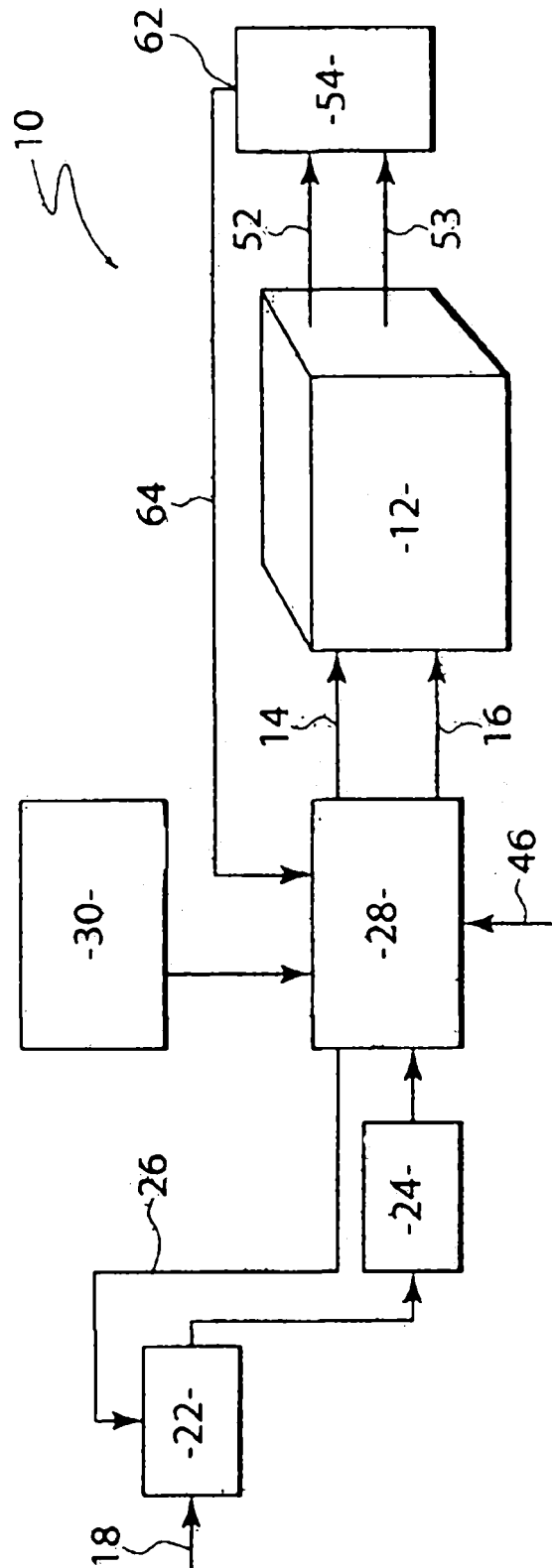


Fig.1

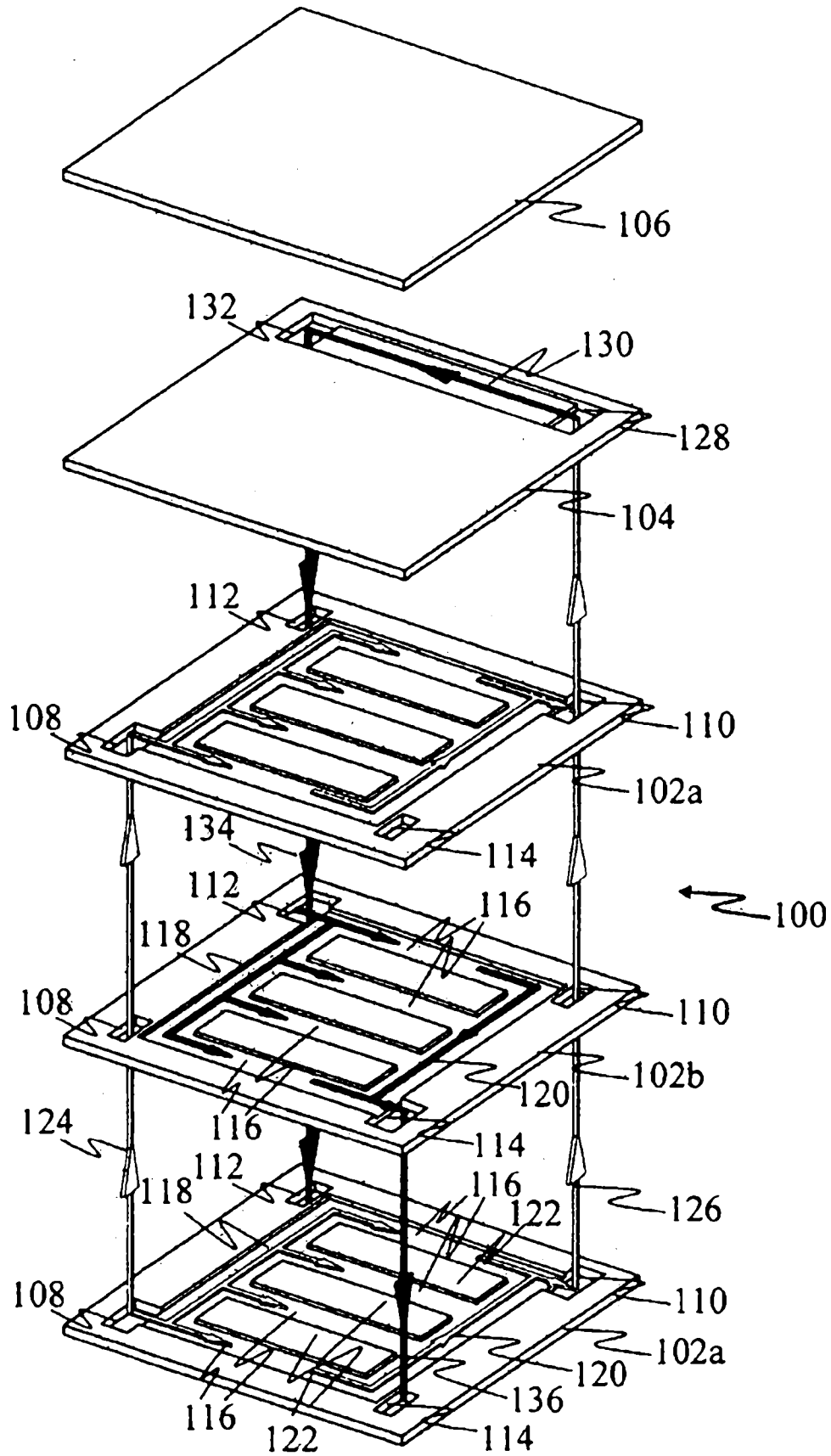


Fig.2

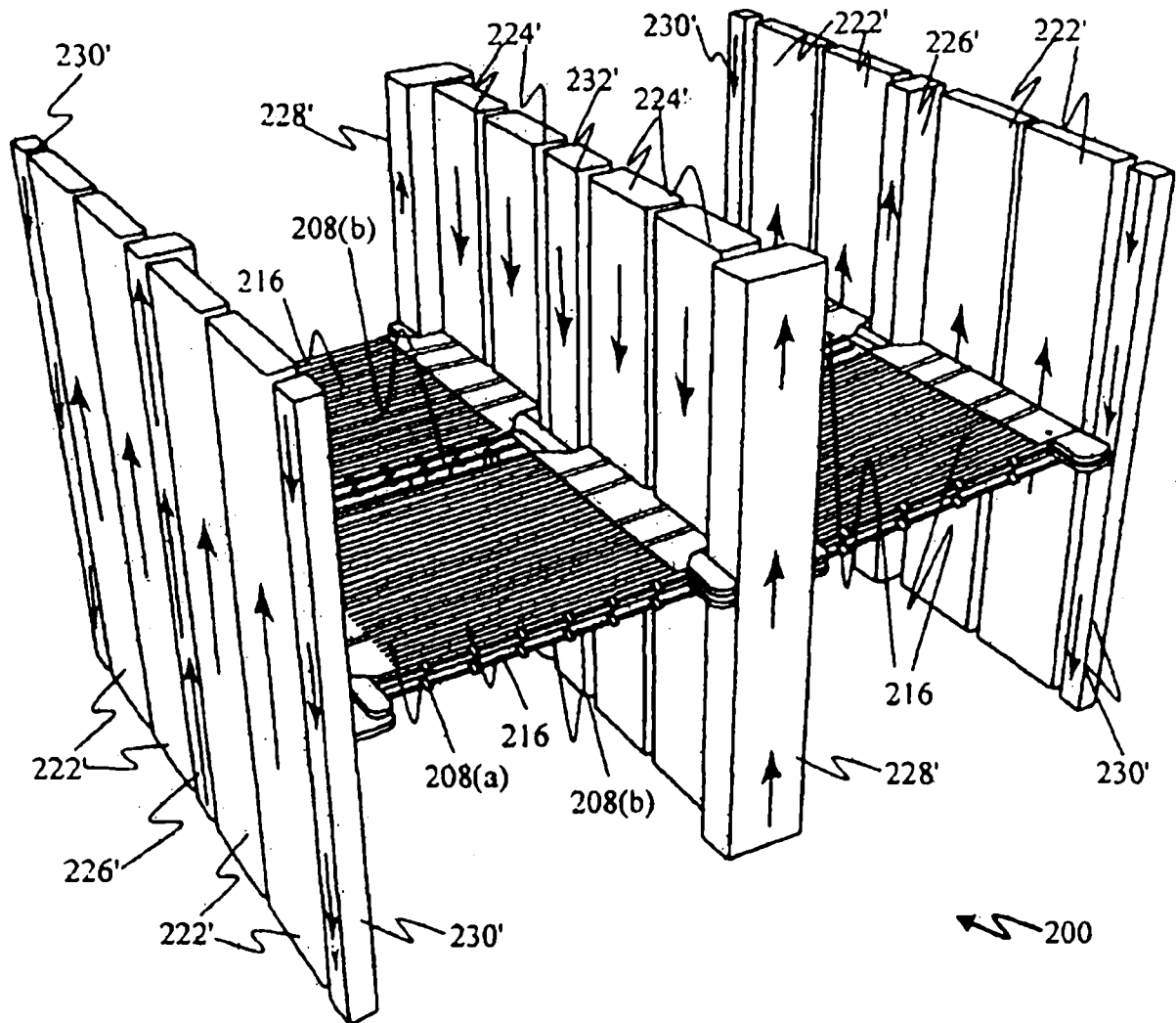


Fig.3

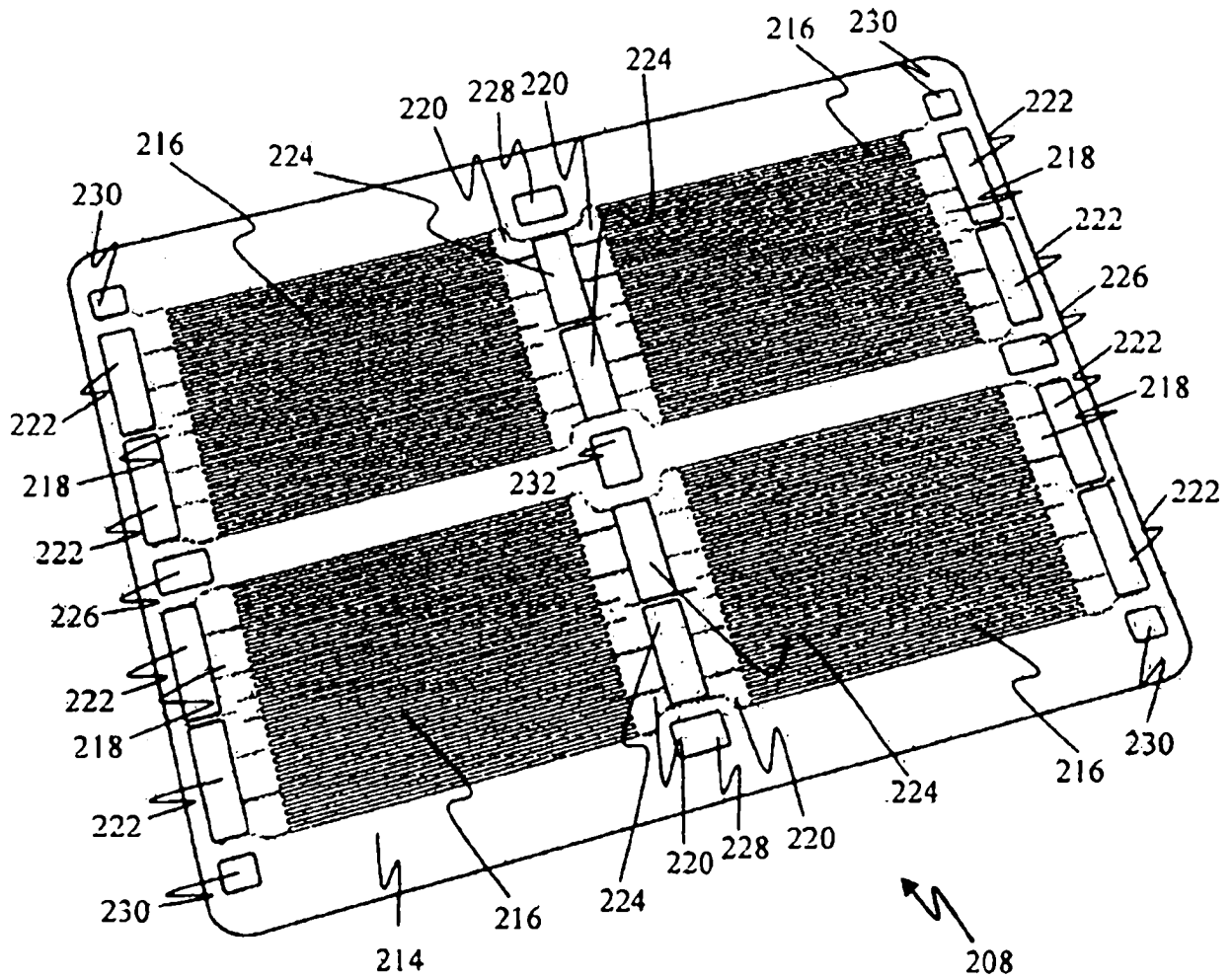


Fig.4

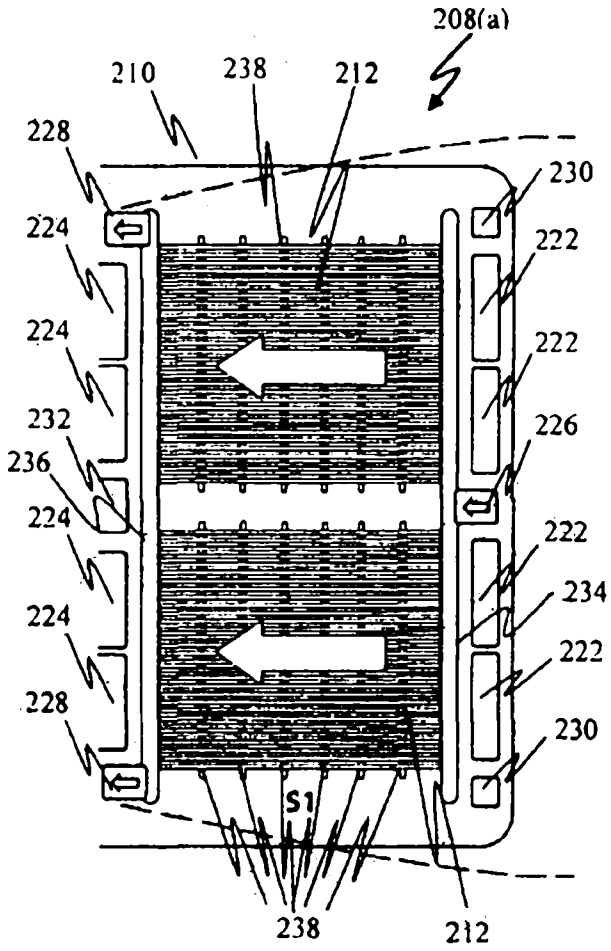


Fig.5(A)

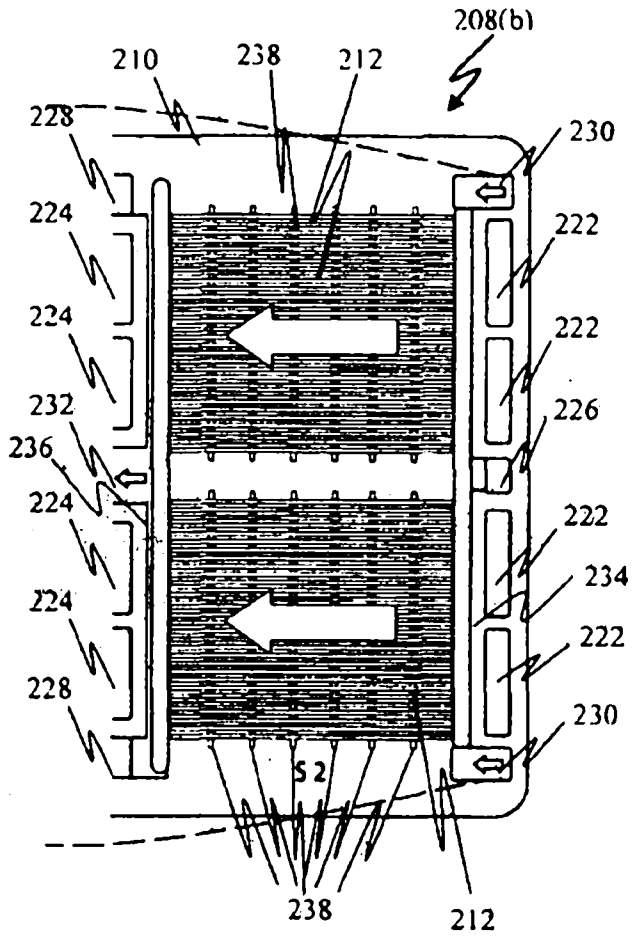


Fig.5(B)

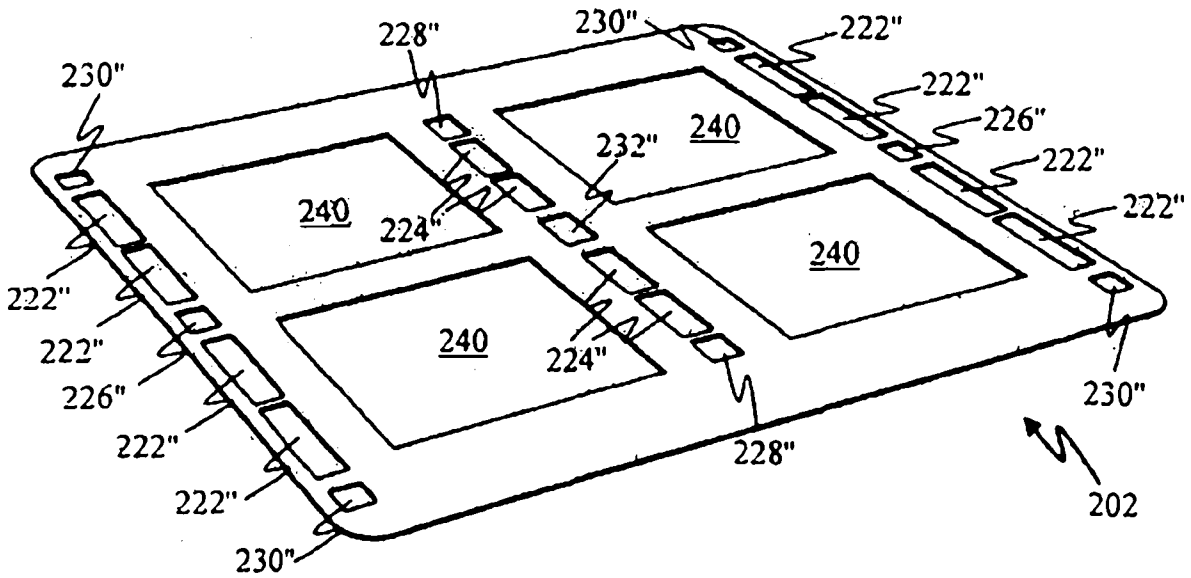


Fig.6

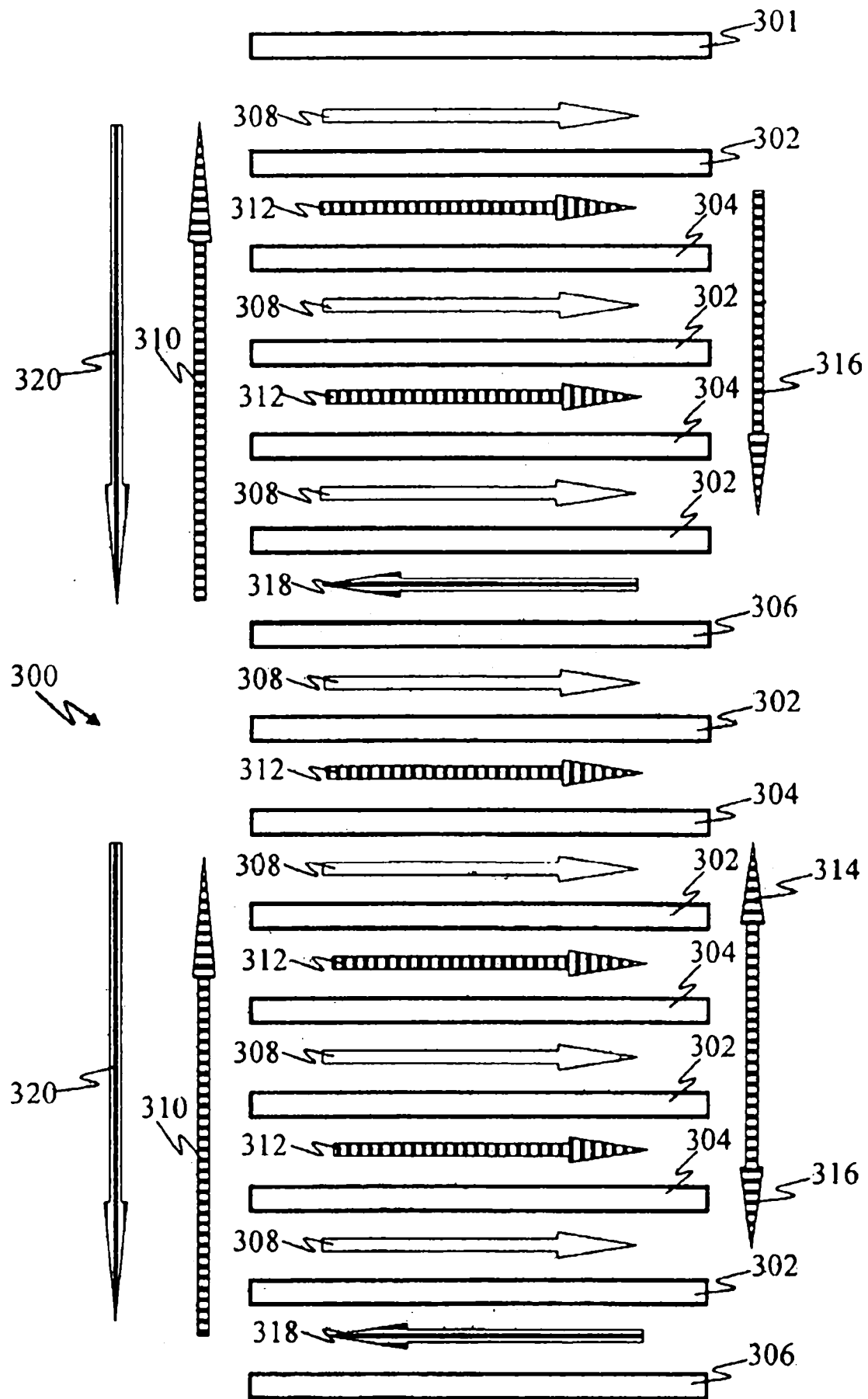


Fig. 7

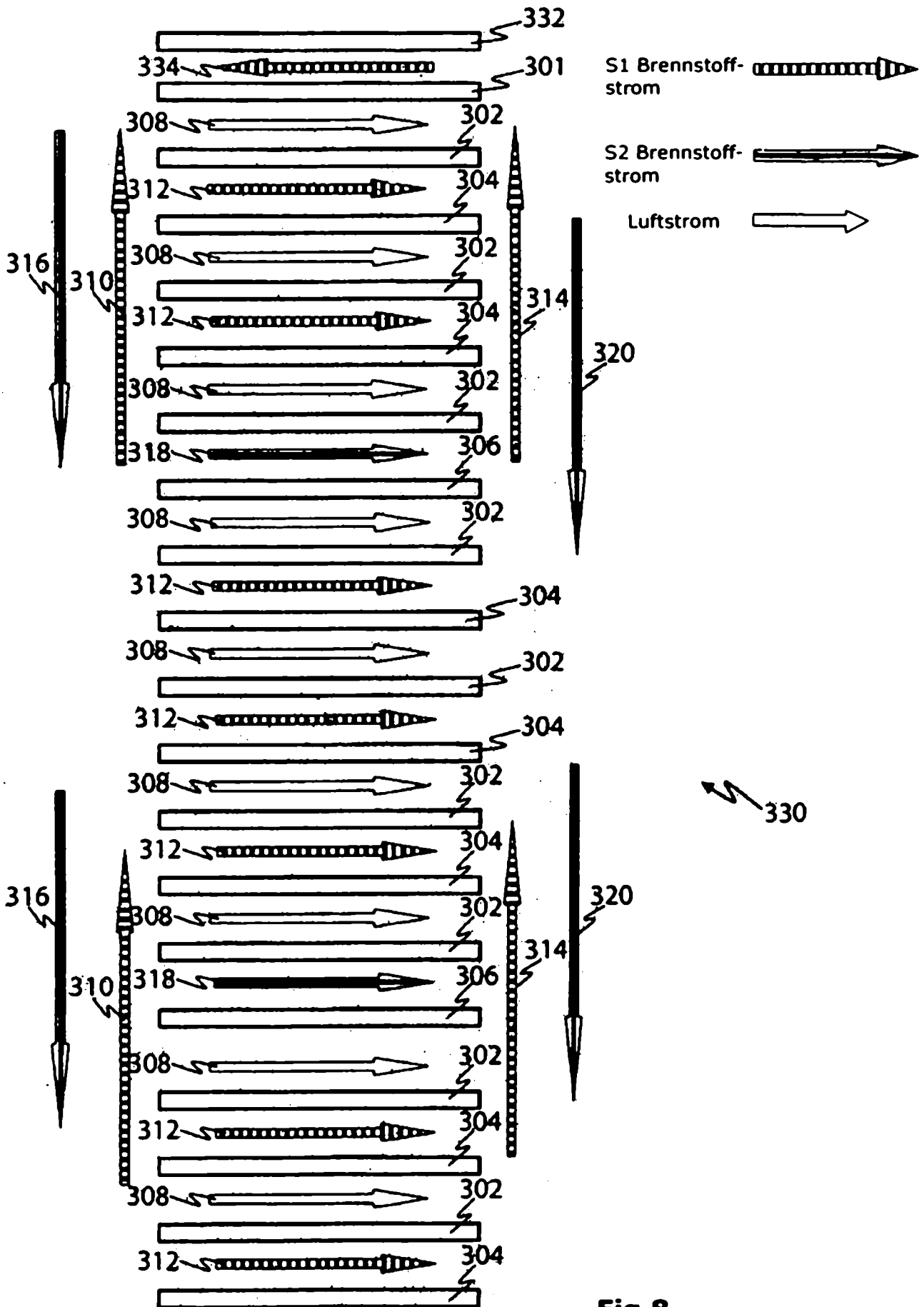


Fig.8

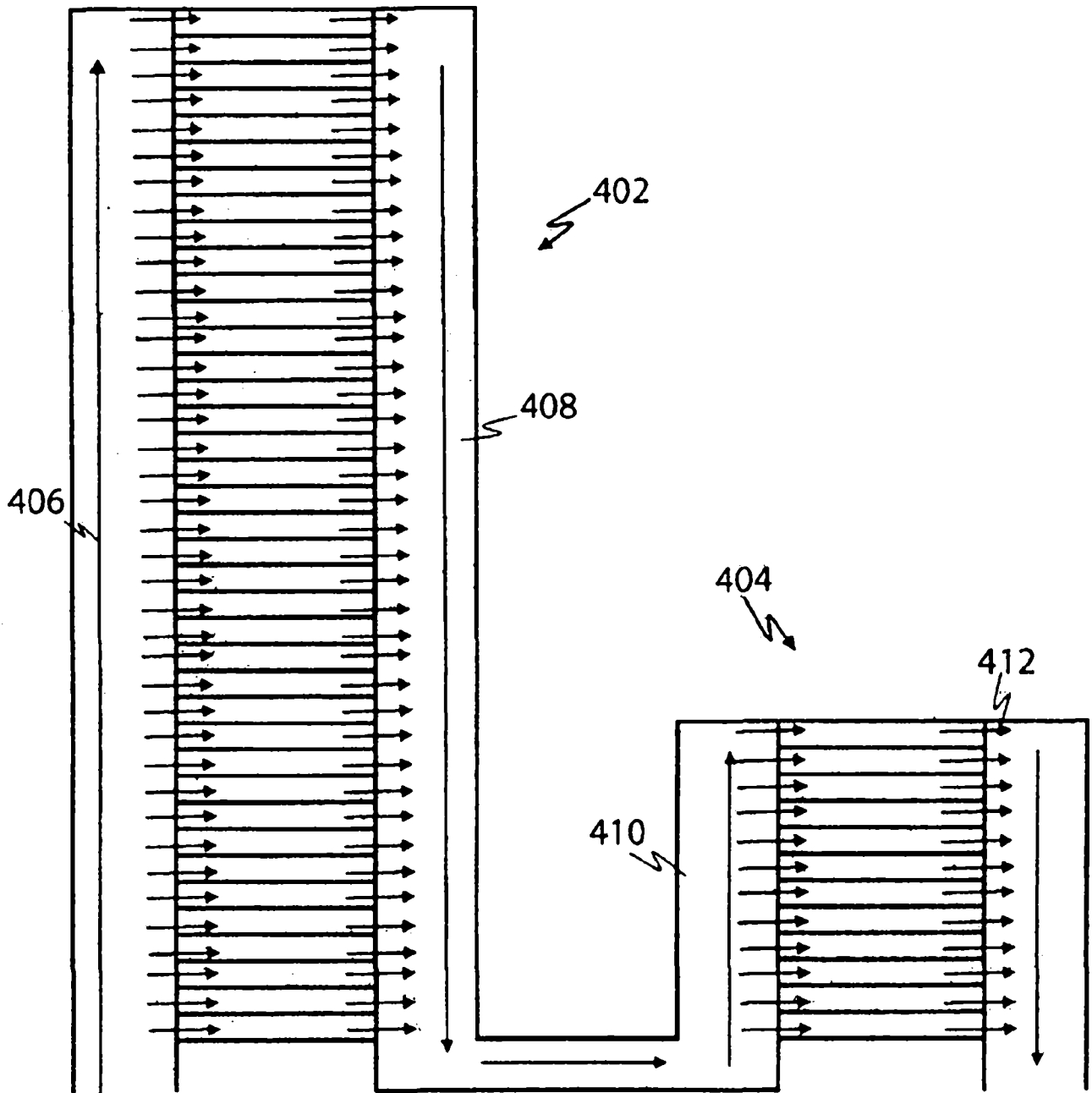


Fig.9

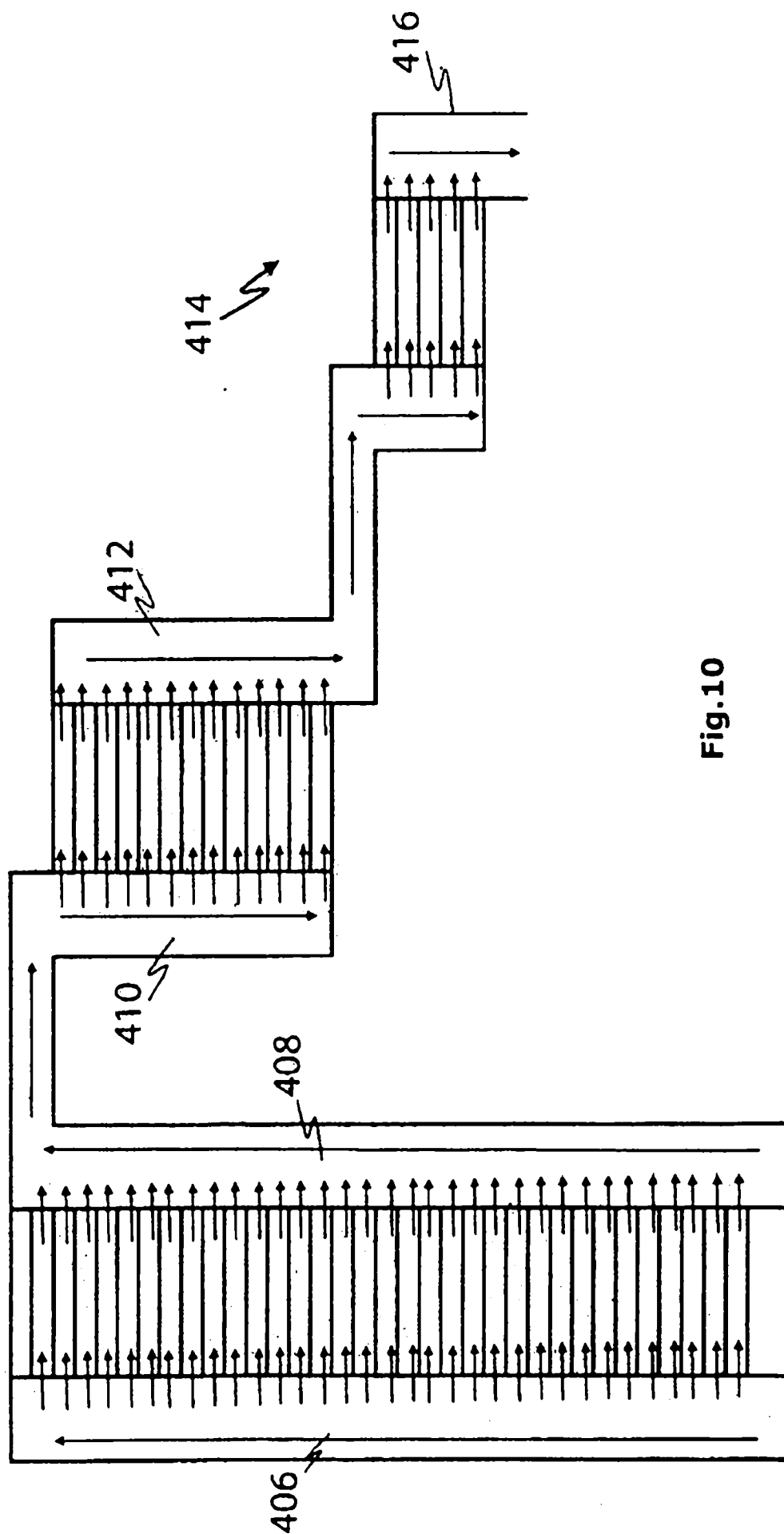


Fig. 10

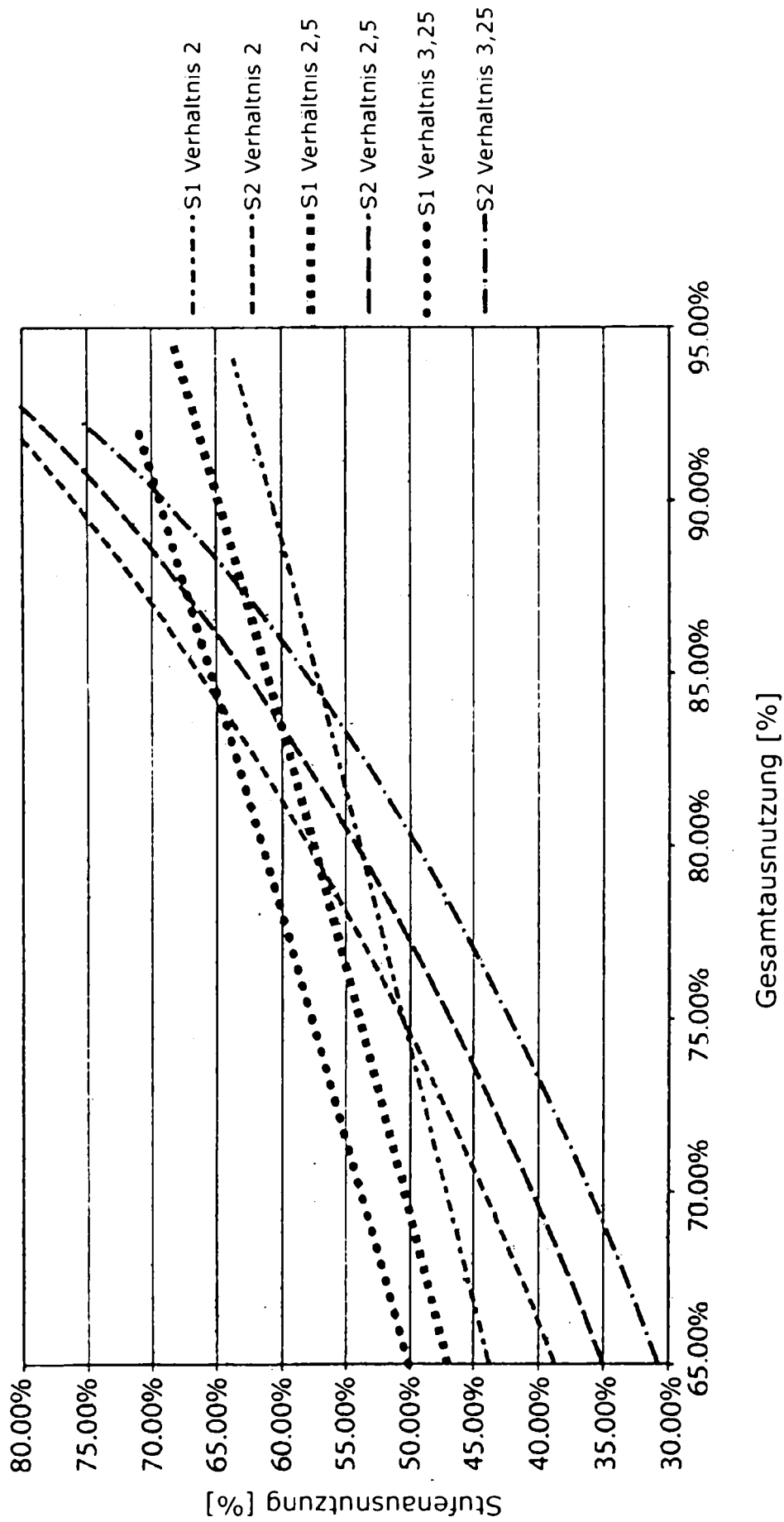


Fig.11

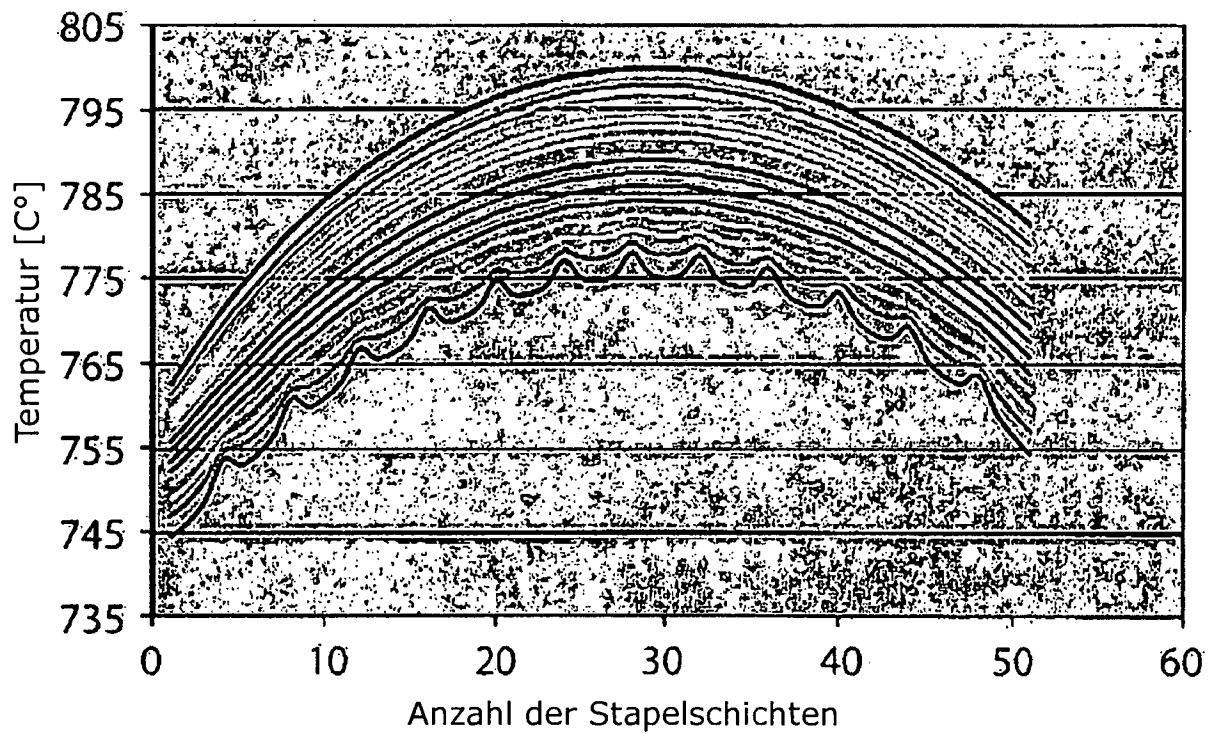


Fig.12

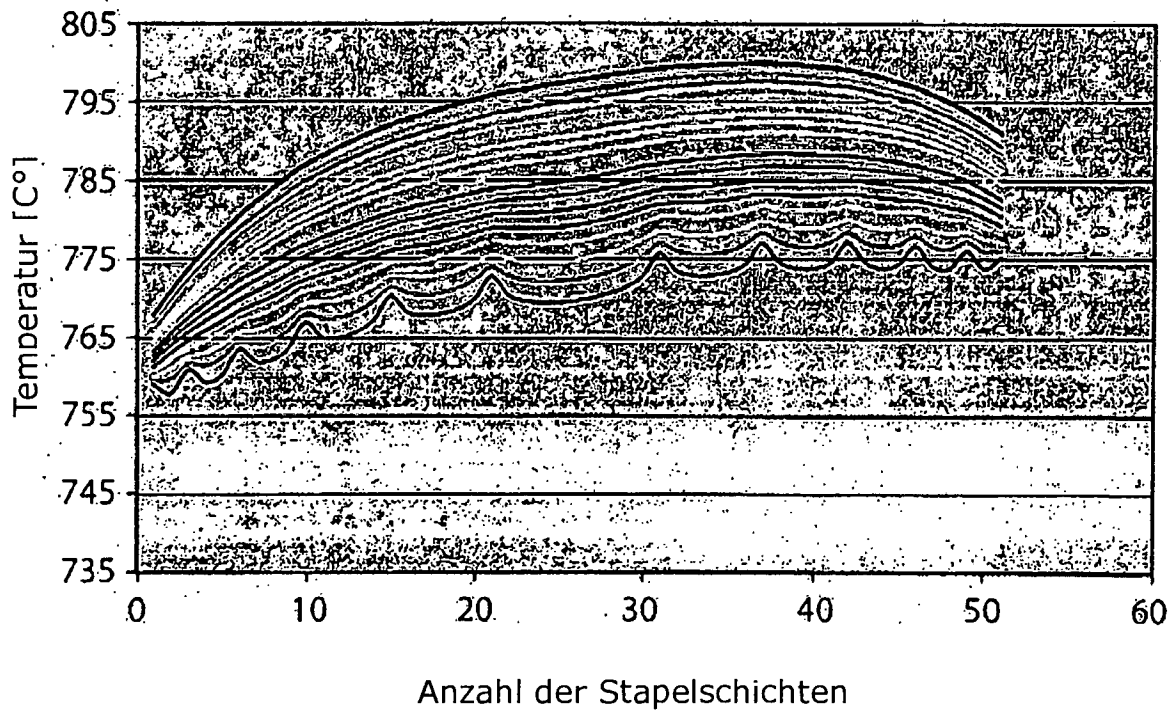


Fig.13