



(10) **DE 10 2023 109 509 A1** 2024.10.17

(12) **Offenlegungsschrift**

(21) Aktenzeichen: **10 2023 109 509.9**

(22) Anmeldetag: **14.04.2023**

(43) Offenlegungstag: **17.10.2024**

(51) Int Cl.: **C25B 15/021** (2021.01)

C25B 15/027 (2021.01)

C25B 15/033 (2021.01)

C25B 9/70 (2021.01)

H01M 8/2425 (2016.01)

H01M 8/04701 (2016.01)

H01M 8/04537 (2016.01)

H01M 8/04007 (2016.01)

(71) Anmelder:
SIVONIC GmbH, 39179 Barleben, DE

(74) Vertreter:
**BRANDT & NERN PATENTANWÄLTE, 12489
Berlin, DE**

(72) Erfinder:
**Benecke, Robert, 39112 Magdeburg, DE; Benecke,
Hannes, 39114 Magdeburg, DE**

(56) Ermittelter Stand der Technik:

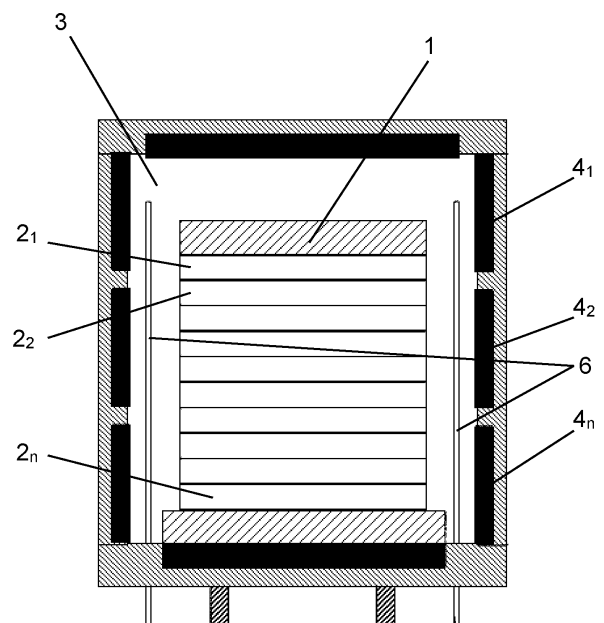
US	2015 / 0 162 632	A1
WO	2021/ 115 538	A1

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Verringerung der Degradation zu einem Stack zusammengefügtter Hochtemperatur-Festoxid-Zellen**

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Lösung für den Betrieb eines aus als Hochtemperaturzellen ausgebildeten Festoxid-Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) zusammengeführten Stacks (1), bei welchem der Stack (1) in einem Ofen (3) mit mehreren, jeweils mindestens ein Heizelement aufweisenden Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) unter Temperatureinwirkung betrieben wird. Während des Betriebs des Stacks (1) erfolgt ein Monitoring der Temperaturverhältnisse in dem Stack (1), indem in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus mithilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie EIS jeweils die Impedanz von SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1) gemessen wird. Aus den Messwerten werden durch eine Steuereinrichtung des Ofens (3) damit korrelierende, in den Zellen jeweils herrschende Zelltemperaturen sowie Temperaturgradienten zwischen benachbarten Zellen berechnet und mittels dieser errechneten IST-Werte die Heizleistung der Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) des Ofens (3) voneinander unabhängig temperaturgeführt geregelt.



Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine Lösung, betreffend den Betrieb von aus Festoxid-Zellen SOxC zusammengefügt Stacks, welche dazu dient, während des Betriebs eines solchen Stacks in den Zellen auftretende Degradationserscheinungen zu verringern und hierdurch letztlich die Lebensdauer eines entsprechenden Stacks aus SOxC zu erhöhen. Sie bezieht sich hierbei insbesondere auf Stacks aus Hochtemperatur-SOxC, welche in der Regel bei Temperaturen zwischen 800°C bis 1.000°C betrieben werden. Gegenstände der Erfindung sind ein Verfahren und ein zur Durchführung dieses Verfahrens geeignetes System. Bei dem im Kontext der nachfolgend beschriebenen Erfindung betrachteten Stacks kann es sich sowohl um Stacks aus Elektrolyseur-Zellen (SOEC) als auch um Stacks aus Brennstoffzellen (SOFC) handeln, welche oberbegrifflich auch als SOxC bezeichnet werden.

[0002] Stacks aus Hochtemperatur-SOxC werden notwendigerweise zum Zweck einer effizienten Erfüllung ihrer Funktion, nämlich der Erzeugung von Wasserstoff im Falle von Elektrolyseurzellen (SOEC) oder der Bereitstellung einer stabilen elektrischen Spannung auch beim Betrieb mit höheren Lasten im Falle von Brennstoffzellen (SOFC), unter hohen Temperaturen in dem zuvor bereits angegebenen Bereich betrieben. Hohe Temperaturen kommen aber auch bereits bei der Herstellung der Stacks, insbesondere im Zusammenhang mit einem Fügeprozess zur Verbindung mehrerer Zellen des SOxC mittels eines Glaslots zum Einsatz.

[0003] Auch wenn entsprechende Temperaturen sowohl für die Fertigung als auch für den Betrieb der Stacks erforderlich sind, bedeuten diese für die Zellen Stress und führen dadurch zu strukturellen Veränderungen und Erscheinungen innerhalb der Zellen, welche man zusammenfassend als Degradation bezeichnet. Die fortwährende Degradation und die Stärke der ihr zugrundeliegenden, in den Zellen auftretenden Erscheinungen bestimmen dabei maßgeblich die Lebensdauer der einzelnen Zellen und eines aus ihnen zusammengefügt Stacks. Daher gilt es, zu hohe Temperaturen in einem jeweiligen Stack zu vermeiden und möglichst für eine gleichmäßige Temperaturverteilung innerhalb des Stacks Sorge zu tragen. Was die Temperaturverteilung innerhalb eines Stacks aus SOxC anbelangt, so hat es sich gezeigt, dass innerhalb des Stacks auftretende Temperaturgradienten von mehr als 5 bis 10 K zu einer vorzeitigen Alterung der Zellen und damit einhergehend zu einer verkürzten Lebensdauer der Gesamtanordnung führen können.

[0004] Aufgabe der Erfindung ist es daher, eine Lösung für den Betrieb von Stacks aus SOxC bereitzustellen, welche es ermöglicht, die angesprochenen

Degradationserscheinungen möglichst gering zu halten. Mit geeigneten Maßnahmen soll dabei insbesondere eine Verringerung der durch den bei hohen Temperaturen erfolgenden Betrieb von Stacks aus Hochtemperatur-Festoxid-Zellen hervorgerufenen Degradation erreicht werden. Hierzu sind ein entsprechendes Verfahren und ein zur Durchführung dieses Verfahrens geeignetes System anzugeben.

[0005] Die Aufgabe wird durch ein Verfahren mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst. Ein zur Durchführung dieses Verfahrens geeignetes, die Aufgabe lösendes System wird durch den unabhängigen Sachanspruch, den Patentanspruch 6, charakterisiert. Vorteilhafte Aus- und Weiterbildungen sind durch die jeweiligen Unteransprüche gegeben.

[0006] Gemäß dem zur Lösung der Aufgabe vorgeschlagenen Verfahren für den Betrieb von Stacks, welche aus Hochtemperatur-Festoxid-Zellen (SOxC) zusammengefügt sind, erfolgt zur Verringerung der Degradation während des Betriebs eines solchen Stacks ein Monitoring der Temperaturverhältnisse in dem Stack. Dabei bezieht sich das Verfahren auf eine Konstellation, bei welcher der Betrieb des aus mehreren Hochtemperatur-Festoxid-Zellen bestehenden Stacks unter Temperatureinwirkung auf den sich dabei in einem Ofen befindenden Stack erfolgt, wobei der betreffende Ofen mehrere in der Stapelrichtung des Stacks aufeinanderfolgende, durch jeweils mindestens ein Heizelement ausgebildete Heizzonen aufweist.

[0007] Das Monitoring der Temperaturverhältnisse im Stack erfolgt, indem in einem sich während des Betriebs des Stacks ständig wiederholenden Messzyklus mit Hilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie jeweils die Impedanz von Zellen, also von SOxC, des Stacks gemessen wird. Aus der jeweils gemessenen Impedanz werden damit korrelierende, in den Zellen jeweils herrschende Zelltemperaturen sowie Temperaturgradienten zwischen benachbarten Zellen unter Verwendung eines den Zusammenhang zwischen Temperatur und Impedanz abbildenden Modells berechnet.

[0008] Durch den Einsatz der Impedanzspektroskopie, insbesondere unter Verwendung einer entsprechenden mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung, ist es dabei möglich, Temperaturverläufe im Inneren des Stacks sowie dabei gegebenenfalls dabei in dem Stack auftretende hohe (im Hinblick auf die Zelldegradation schädliche) Temperaturgradienten zu erfassen, wohingegen die Temperatur einer SOxC mittels eines Temperatursensors, wie zum Beispiel eines Thermoelements, nur am Rand der Zelle gemessen werden könnte und somit mittels mehrerer derartiger Sensoren lediglich an der Außenseite des Stacks. Zudem ist mittels solcher Sensoren die Messung an einer einzelnen Zelle

innerhalb eines Stapels regelmäßig nicht möglich, da beispielsweise der Durchmesser eines Thermoelementes viel zu groß ist, um dieses etwa zwischen den Zellen in den Stack einzuführen. Auch würde hierdurch die Verbindung und Abdichtung zwischen den Zellen gestört.

[0009] An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass im Kontext dieser Erfindungsbeschreibung und der Patentansprüche für den Begriff Impedanzspektroskopie zur sprachlichen Vereinfachung auch das Kürzel EIS gebraucht wird. In Bezug auf einen Stack als Ganzes und die dabei für mehrere Zellen des Stacks gleichzeitig erfolgende Impedanzspektroskopie handelt es sich dabei um eine mehrkanalige EIS, auch wenn dies im Einzelnen nicht ausdrücklich angegeben sein sollte.

[0010] Zur Erreichung einer möglichst geringen Degradation in den zum dem Stack zusammengeführten Hochtemperaturzellen wird gemäß dem vorgeschlagenen Verfahren bei der während des Betriebs erfolgenden Temperierung des Stacks die Heizleistung für die einzelnen, in der Stapelrichtung des Stacks aufeinanderfolgenden Heizzonen des Ofens voneinander unabhängig temperaturgeführt geregelt. Die Regelung der Heizleistung für die einzelnen Heizzonen erfolgt hierbei im Hinblick auf die Einhaltung einer maximalen Zelltemperatur sowie eines maximalen Temperaturgradienten in der Stapelrichtung des Stacks, also in aufsteigender oder absteigender Richtung innerhalb des Stapels, respektive quer zu den großen aneinanderliegenden Oberflächen einander benachbarter Zellen. Sie erfolgt entsprechend einer durch eine Steuereinrichtung des Ofens verarbeiteten Regelfunktion. In diese Regelfunktion werden für den Bereich einer jeweiligen Heizzone jeweils aktuell berechnete Werte für Zelltemperaturen und Temperaturgradienten als Ist-Größen einbezogen.

[0011] Soweit vorstehend und im Patentanspruch 1 von einem Messzyklus bei der sich wiederholenden Impedanzmessung gesprochen wird, begründet sich dies dadurch, dass die Impedanz der Zellen mittels EIS innerhalb eines Zyklus bei einer Mehrzahl von Frequenzen des sie dabei anregenden Signals gemessen wird. Hierbei wird ein Spektrum von niedrigen Frequenzen (LF) bis zu als Hochfrequenz (HF) anzusehenden Frequenzen oder auch umgekehrt durchlaufen.

[0012] Bei dem vorgeschlagenen Verfahren macht man es sich zunutze, dass die für eine SOxC mittels EIS gemessene Impedanz temperaturabhängig ist. das heißt im Umkehrschluss, dass es möglich ist, ausgehend von der für eine SOxC aktuell gemessenen Impedanz auf deren aktuelle Temperatur zu schließen, wobei es sich hierbei streng genommen um eine mittlere Temperatur der jeweiligen Zelle(n)

handelt und insoweit von einer annähernd harmonischen Temperaturverteilung innerhalb einer jeweiligen Zelle ausgegangen wird, das heißt ein innerhalb der Zelle quer zur Stapelrichtung des Stacks möglicherweise bestehender Temperaturgradient vernachlässigbar ist.

[0013] Die Impedanz von Zellen kann dabei wahlweise durch Aufprägen eines Stroms und Messen der Spannung oder durch Anlegen einer Spannung und Messen des Stroms durch die Zelle(n) bestimmt werden. Welche dieser beiden Möglichkeiten gewählt wird, ist für die Durchführung des Verfahrens irrelevant. Ungeachtet dessen sei an dieser Stelle ferner darauf hingewiesen, dass sich das Verfahren auch im Zusammenhang mit der Fertigung von Stacks der vorgenannten Art anwenden lässt, nämlich insbesondere im Zusammenhang mit dem Fügeprozess, bei dem die übereinander gestapelten Festoxid-Zellen unter Verwendung eines Glaslots durch entsprechende Temperierung und Aufschmelzen des zwischen den Zellen befindlichen Glaslots sowie unter Druckeinwirkung zu dem Stack zusammengefügt werden. Hierbei kann beim Aufheizen der Anordnung aus Zellen und Glaslot die dafür vorgesehene Aufheizkurve, das heißt der für das Aufheizen festgelegte zeitliche Verlauf in den einzelnen Heizzonen eines für den Fügeprozess verwendeten Ofens durch eine die jeweils berechneten Zelltemperaturen und die Temperaturgradienten als Ist-Größen verwendende Regelfunktion überlagert werden.

[0014] Grundsätzlich ist es denkbar, bei einem während des Betriebs des Stacks ausgeführten Messzyklus die Impedanz, bezogen auf die Stapelrichtung des Stacks, nur für einige Bereiche, respektive Zellen des Stacks zu messen. Um einer sehr präzise Regelung der Heizleistung in den einzelnen Heizzonen zu ermöglichen, ist es jedoch besser, wiederholt, das heißt jeweils in einem Messzyklus, die Impedanz aller Zellen des Stacks zu messen. Sofern hierbei eine über ausreichend viele Messkanäle verfügende Impedanzmesseinrichtung zum Einsatz gelangt, kann gegebenenfalls in einem jeweiligen Messzyklus gleichzeitig die Impedanz aller einzelnen Zellen des Stacks gemessen werden.

[0015] Eine andere Möglichkeit, das Temperaturverhalten aller Zellen des Stacks zu berücksichtigen, besteht darin, jeweils mehrere innerhalb des Stacks einander benachbarte Zellen zu einer Gruppe zusammenzufassen und einer solchen Gruppe einen Messkanal einer entsprechenden, mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung zuzuordnen, respektive jeweils eine solche Gruppe an einen Messkanal der Impedanzmesseinrichtung anzukoppeln. In einem Messzyklus wird dabei gleichzeitig für alle gebildeten Zellengruppen die Impedanz gemessen. Ausgehend von der für eine solche Gruppe von Zellen in einem Messzyklus gemessenen Impedanz

wird dabei durch die bereits früher angesprochene Steuereinrichtung für diese Gruppe von Zellen eine mittlere Zellentemperatur bestimmt, also eine Temperatur, die zum jeweiligen Messzeitpunkt unterstelltemaßen in gleicher Höhe in allen Zellen der insoweit betrachteten Zellengruppe besteht. Ferner werden Temperaturgradienten zwischen allen gebildeten, innerhalb des Stacks einander benachbarten Zellengruppen jeweils als Differenz der mittleren Zellentemperatur der benachbarten Zellengruppen berechnet. Ungeachtet dessen, welche der beiden zuvor beschriebenen Möglichkeiten der Verfahrensgestaltung gewählt wird, sollte (muss aber nicht zwingend) das dafür verwendete System so konfiguriert werden, dass die Größe einer Heizzone in der Stapelrichtung des Stacks, das heißt die Höhe der Heizzone und die Größe des jeweils mittels eines Kanals der Impedanzmesseinrichtung gemonitorten Bereichs des Stacks (Höhe einer Zelle oder einer Zellengruppe) an einander angeglichen sind.

[0016] Auch was die zeitliche Aufeinanderfolge der einzelnen Messzyklen anbelangt sind unterschiedliche Ausgestaltungen des Verfahrens denkbar. Im Hinblick auf eine möglichst präzise Regelung ist es dabei zu bevorzugen, wenn sich an einen Messzyklus, das heißt nach dem Erreichen der niedrigsten oder der höchsten Frequenz des bei der EIS innerhalb eines Messzyklus jeweils durchlaufenen Frequenzspektrums, unmittelbar der nächste Messzyklus anschließt. Denkbar ist es aber auch, die einzelnen Messzyklen im Abstand einiger Sekunden oder weniger Minuten auszuführen. Das insoweit unter zeitlichen Gesichtspunkten zu wählende Verfahrensregime ist dabei sicherlich abhängig von der jeweiligen Art, respektive Beschaffenheit der zu dem Stack zusammengeführten SOxC und von der an die Präzision der Regelung der Heizleistung für die einzelnen Heizkreise zu stellenden Anforderungen.

[0017] Sofern an die Regelung sehr hohe Anforderungen zu stellen sind, insbesondere auch im Hinblick auf deren Dynamik, das heißt auf eine möglichst schnelle Regelantwort, kann das Verfahren noch dadurch weitergebildet sein, dass die für die Zellentemperatur und die Temperaturgradienten jeweils ermittelten Werte zusätzlich für eine Regelfunktion verwendet werden, nach welcher durch die Steuereinrichtung des Ofens die Temperatur mindestens eines sich in der Stapelrichtung entlang des Stacks erstreckenden Kühlrohres mit einer Mehrzahl von Auslässen geregelt wird. Im Wechselspiel zwischen der Regelung der Temperatur in dem Kühlrohr einerseits und der Heizleistung für die Heizzonen andererseits kann hierdurch sehr schnell auf sich ändernde Temperaturverhältnisse in dem Stack reagiert werden, was insbesondere im Hinblick auf die Sicherstellung eines 5 K bis 10 K nicht überschreitenden Temperaturgradienten innerhalb des Stacks sehr günstig ist.

[0018] Eine zusätzliche Dynamik der Regelung kann außerdem noch dadurch erreicht werden, dass die jeweils aktuell berechneten Zellentemperatur als Ist-Wert für eine Regelfunktion verwendet wird, nach welcher durch eine Steuereinrichtung der durch einen Stack von Elektrolysezellen SOEC fließende Strom oder eine an einem Stack von Brennstoffzellen SOFC betriebene Last geregelt wird.

[0019] Gemäß den vorstehenden Ausführungen umfasst ein die Aufgabe lösendes, zur Durchführung des Verfahrens geeignetes System für den Betrieb eines aus als Hochtemperaturzellen ausgebildeten Festoxid-Zellen SOxC zusammengeführten Stacks, einen Ofen und den während seines Betriebs temperierten, sich dazu in dem Ofen befindenden Stack aus Zellen, das heißt aus SOxC. Hierbei weist der Ofen mehrere in der Stapelrichtung des sich in ihm befindenden Stacks aufeinanderfolgende Heizzonen und eine Steuereinrichtung auf. Jede der Heizzonen des Ofens wird durch ein oder mehrere diese Heizzone temperierende Heizelemente ausgebildet.

[0020] Das System ist weiterhin mit einer Einrichtung zur Impedanzspektroskopie EIS, nämlich mit einer mehrere Messkanäle aufweisenden Impedanzmesseinrichtung ausgestattet. Innerhalb des Systems sind mehrere der Messkanäle der vorgenannten Impedanzmesseinrichtung während des Betriebs des Stacks mit Zellen des Stacks verbunden. Dabei ist jeweils einer dieser Messkanäle der Impedanzmesseinrichtung entweder mit jeweils einer einzelnen Zelle des Stacks oder mit einer durch einander benachbarte Zellen des Stacks gebildeten Gruppe von Zellen gekoppelt.

[0021] Die Steuereinrichtung des Systems ist dazu ausgebildet ist, während des Betriebs des Stacks

- die mehrkanalige Impedanzmesseinrichtung dazu anzusteuern, in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus die Impedanz von Zellen oder von Gruppen einander benachbarter Zellen (Zellengruppen) des Stacks zu messen,
- aus den Messwerten der Impedanzmesseinrichtung, jeweils damit korrelierende, in den Zellen oder Zellengruppen herrschende Zellentemperaturen sowie Temperaturgradienten zwischen benachbarten Zellen oder Zellengruppen zu berechnen,
- in den Heizzonen des Ofens die Heizleistung voneinander unabhängig temperaturgeführt im Hinblick auf die Einhaltung einer maximalen Zellentemperatur sowie eines maximalen Temperaturgradienten in der Stapelrichtung des Stacks nach einer dafür in der Steuereinrichtung hinterlegten Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperatur-

gradienten berechneten Werte als Ist-Größen eingehen.

[0022] Entsprechend einer möglichen Ausbildungsform des Systems kann der Ofen zudem mit mindestens einem Kühlrohr, vorzugsweise mehreren sich in der Stapelrichtung entlang des Stacks erstreckenden Kühlrohren ausgestattet sein. Wie zum Verfahren dargestellt, ist in diesem Falle die Steuereinrichtung des Ofens außerdem dazu ausgebildet, auch die Temperatur in dem mindestens einen Kühlrohr nach einer Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperaturgradienten berechneten Werte ebenfalls als Ist-Größen eingehen. Hierdurch ist es möglich, die durch die Regelung der Heizleistung in den Heizzonen jeweils gewünschte Temperaturveränderung, durch das Kühlrohr dynamisch unterstützt, schneller zu bewirken.

[0023] Das System kann außerdem mit einer Steuereinrichtung ausgestattet sein, welche im Falle seiner Auslegung für einen Betrieb eines Stacks aus Elektrolysezellen SOEC einen durch den Stack fließenden Strom oder im Falle seiner Auslegung für den Betrieb eines Stacks aus Brennstoffzellen SOFC eine an dem Stack betriebene Last regelt. Auch hierbei erfolgt die Regelung jeweils nach einer Regelfunktion, in welche die auf der Basis der Messwerte der mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung errechneten Zellentemperaturen und Temperaturgradienten als Ist-Größen einfließen.

[0024] Bei der zuletzt beschriebenen Ausbildungsform sind die Steuereinrichtung zur Regelung der Heizleistung in den Heizzonen des Ofens und gegebenenfalls zur Regelung der Temperatur in mindestens einem Kühlrohr sowie die zur Regelung eines Stroms durch den Stack oder einer Last an dem Stack vorgesehene Steuereinrichtung vorzugsweise in Form einer gemeinsamen Steuereinrichtung ausgebildet.

[0025] Anhand von Zeichnungen sollen nachfolgend ein Ausführungsbeispiel für die Erfindung gegeben und nochmals einige Aspekte erläutert werden. Die Zeichnungen zeigen im Einzelnen:

Fig. 1: die schematische Darstellung einer möglichen Ausbildungsform des erfindungsgemäßen Systems,

Fig. 2: ein Schema für den Anschluss der Messkanäle einer mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung an die Zellen des Stacks bei dem System gemäß **Fig. 1**

Fig. 3: beispielhaft die Impedanz einer SOx-C-Zelle als Funktion der Temperatur,

Fig. 4: einen möglichen Verlauf für die Zellen-Impedanzen innerhalb eines Stacks bei einer bestimmten Betriebstemperatur,

Fig. 5: die aus dem Impedanzverlauf gemäß **Fig. 4** berechnete Temperaturverteilung in der Stapelrichtung des Stacks.

[0026] Die **Fig. 1** zeigt beispielhaft in einer schematischen Darstellung eine mögliche Ausbildungsform eines erfindungsgemäßen Systems zum Betrieb eines aus Hochtemperatur-Festoxid-Zellen SOx_C 2₁, 2₂, ... 2_n bestehenden Stacks 1. Wesentliche Elemente dieses Systems sind demnach ein mehrere Heizzonen aufweisender 4₁, 4₂, ... 4_n Ofen 3 und der sich während seines Betriebs in dem Ofen 3 befindende, durch entsprechende Ansteuerung von Heizelementen der Heizzonen temperierte Stack 1, in welchem bei dem gezeigten Beispiel zehn Zellen, respektive zehn Hochtemperatur-SOx_C 2₁, 2₂, ... 2_n, miteinander verbunden sind. Auf der Oberseite und auf der dem Boden des Ofens 3 zugewandten Unterseite wird der Stack 1 durch jeweils eine (schraffiert gezeichnete) Endplatte begrenzt. Eine ebenfalls zu dem System gehörende mehrkanalige Impedanzmesseinrichtung sowie die mindestens eine Steuereinrichtung, welche die Regelkreise zur Regelung der Heizleistung die Heizzonen 4₁, 4₂, ... 4_n ausbildender Heizelemente steuert ist in der Zeichnung nicht dargestellt.

[0027] Wie aus der Abbildung ersichtlich, sind die einzelnen Heizzonen 4₁, 4₂, ... 4_n des Ofens 3 in der Stapelrichtung des darin befindlichen Stacks 1 aufeinanderfolgend ausgebildet, nämlich jeweils durch ein oder mehrere Heizelemente. Während des Betriebs sind die Zellen des Stacks 1, das heißt in dem gezeigten jede einzelne Zelle, jeweils mit einem Kanal 5₁, 5₂, ... 5_n einer mehrkanaligen (selbst nicht dargestellten Impedanzmesseinrichtung zur Impedanzspektroskopie EIS gekoppelt, was in der insoweit mit der **Fig. 1** zusammenzudenkenden **Fig. 2** dargestellt ist. Jede der Hochtemperaturzellen (Zellen 1 bis 10) ist jeweils mit einem Kanal 5₁, 5₂, ... 5_n der mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung gekoppelt. Das heißt, ausgehend von der Stack-Oberseite sind eine erste, unmittelbar angrenzend zur oberen, schraffiert gezeichneten Endplatte angeordnete SOx_C 2₁ (Zellennummer 1) mit einem Kanal A und eine untere SOx_C 2₁₀ (Zellennummer 10) mit einem Kanal J der Impedanzmesseinrichtung gekoppelt.

[0028] Mit Hilfe der mehrkanaligen Impedanzmesseinrichtung werden die sich in dem Stack 1 während seines im Ofen 3 erfolgenden Betriebs einstellenden Temperaturverhältnisse gemonitort, indem, wie bereits bei der Erläuterung des Verfahrens ausgeführt, in einem sich wiederholenden Messzyklus für jede mit einem Messkanal (Kanäle 5₁, 5₂, ... 5_n) dieser Impedanzmesseinrichtung gekoppelte Zelle

SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ des Stacks 1 jeweils die Impedanz mittels Impedanzspektroskopie EIS gemessen wird. Aus der jeweils gemessenen Impedanz kann die damit korrelierende Zelltemperatur der jeweiligen Zelle berechnet werden, wobei sich durch die fortwährende Wiederholung der Messung und des Berechnungsvorgangs für die Impedanz und damit für die Zelltemperatur ein zeitlicher Verlauf ergibt.

[0029] Aus den zwischen benachbarten Zellen SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ bestehenden Differenzen der Zelltemperaturen können zudem in der Stapelrichtung des Stacks 1 jeweils Temperaturgradienten ermittelt werden. Auf der Basis der während des Betriebs jeweils ermittelten Zelltemperaturen und Temperaturgradienten wird die Heizleistung in den einzelnen Heizzonen $4_1, 4_2, \dots 4_n$ des Ofens 3 zur Einhaltung einer maximalen Temperatur und eines maximalen Temperaturgradienten im Stack 1 entsprechend einer Regelfunktion geregelt, in welche die jeweils aktuell berechneten Messwerte als Ist-Größen einfließen. Ein insoweit möglicher Zusammenhang zwischen einem Impedanzverlauf und einem Temperaturverlauf innerhalb des Stacks 1, welcher insbesondere von der Art der zum Stack 1 verbundenen Zellen, von deren Geometrie und von der Geometrie des Stacks 1 abhängt, ist beispielhaft durch die **Fig. 4** und **5** dargestellt, wobei in der **Fig. 4**, wie aus der **Fig. 5** ersichtlich, eine Zellengruppe (Stack group) einer einzelnen Zelle SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ entspricht. Korrespondierend mit der **Fig. 1** umfasst der Stack 1, auf den sich die in der **Fig. 4** (Impedanzverlauf) und in der **Fig. 5** (Temperaturverlauf) gezeigten Verläufe beziehen, zehn zwischen Endplatten angeordnete Hochtemperaturzellen SOxC, welche beispielsweise beginnend mit der oberen Zelle aufsteigend von 1 bis 10 durchnummeriert sind.

[0030] Die **Fig. 3** zeigt beispielhaft einen möglichen grundsätzlichen funktionellen Zusammenhang zwischen Impedanz und Temperatur einer SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$, wobei die Impedanz in dem dazu wiedergegebenen Diagramm flächenbezogen dargestellt ist, es sich also gewissermaßen, bezogen auf die betrachtete Zelle, um eine Querschnittsimpedanz handelt. Die Impedanz ist hierbei in dem Diagramm, wie im Übrigen ebenso in der **Fig. 4**, als auf eine Flächeneinheit (pro cm^2) bezogener Wechselstromwiderstand, also als ein Querschnitts-(Wechselstrom-) Widerstand dargestellt.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Betrieb eines aus als Hochtemperaturzellen ausgebildeten Festoxid-Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) zusammengeführten Stacks (1), bei welchem der Stack (1) in einem Ofen (3) mit mehreren, jeweils mindestens ein Heizelement aufweisenden Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) unter Tem-

peratureinwirkung betrieben wird, **dadurch gekennzeichnet**, dass während des Betriebs des Stacks (1) ein Monitoring der Temperaturverhältnisse in dem Stack (1) erfolgt, indem in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus mithilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie EIS jeweils die Impedanz von Zellen, nämlich von SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1), gemessen wird und hieraus durch eine Steuereinrichtung des Ofens (3) damit korrelierende, in den Zellen jeweils herrschende Zelltemperaturen sowie Temperaturgradienten zwischen benachbarten Zellen berechnet werden und dass bei der während des Betriebs erfolgenden Temperierung des Stacks (1) für die einzelnen, in der Stapelrichtung des Stacks (1) aufeinanderfolgenden Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) des Ofens (3) die Heizleistung voneinander unabhängig temperaturgeführt im Hinblick auf die Einhaltung einer maximalen Zelltemperatur sowie eines maximalen Temperaturgradienten in der Stapelrichtung des Stacks (1) geregelt wird entsprechend einer durch die Steuereinrichtung verarbeiteten Regelfunktion, in welche für den Bereich einer jeweiligen Heizzone jeweils aktuell berechnete Werte für Zelltemperaturen und Temperaturgradienten als Ist-Größen einbezogen werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass mittels der EIS wiederholt für alle Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1) die Impedanz gemessen wird, wobei entweder die Impedanz für jede einzelne Zelle gemessen und daraus die Zelltemperatur der einzelnen Zellen sowie Temperaturgradienten zwischen allen einander in dem Stack (1) benachbarten Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) als Differenz zwischen ihren Zelltemperaturen bestimmt werden oder die Impedanz für jeweils mehrere, aus einander in dem Stack jeweils benachbarten Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) gebildete Gruppen gemessen und daraus jeweils für jede der in dem Stack (1) gebildeten Gruppen eine mittlere Zelltemperatur sowie Temperaturgradienten zwischen allen einander benachbarten Gruppen von Zellen als Differenz zwischen den mittleren Zelltemperaturen der Gruppen bestimmt werden.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich an einen Messzyklus, bei welchem die Impedanz der Zellen gemessen wird und hieraus Zelltemperaturen und Zellengradienten berechnet werden unmittelbar ein weiterer Messzyklus anschließt.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass die jeweils aktuell berechnete Zelltemperatur und der jeweils aktuell berechnete Temperaturgradient außerdem als Ist-Werte für eine Regelfunktion verwendet werden nach welcher durch die Steuereinrichtung des

Ofens (3) die Temperatur mindestens eines sich in der Stapelrichtung entlang des Stacks(1) erstreckenden Kühlrohres (6) geregelt wird.

5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, dass die jeweils aktuell berechneten Zellentemperaturen als Ist-Werte für eine Regelfunktion verwendet werden nach welcher durch eine Steuereinrichtung der durch einen Stack (1) aus Elektrolyseurzellen SOEC fließende Strom oder eine an einem Stack (1) von Brennstoffzellen SOFC betriebene Last geregelt wird.

6. System für den Betrieb eines aus als Hochtemperaturzellen ausgebildeten Festoxid-Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) zusammengeführten Stacks (1), mit einem mehrere, jeweils durch mindestens ein Heizelement ausgebildete Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) sowie eine Steuereinrichtung aufweisenden Ofen (3) und mit einem während seines Betriebs temperierten, sich dazu in dem Ofen (3) befindenden Stack(1) aus Zellen, das heißt aus SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$), **dadurch gekennzeichnet**, dass das System mit einer mehrere Messkanäle ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) zur Impedanzspektroskopie EIS aufweisenden Impedanzmesseinrichtung ausgestattet ist, wobei mit dem Stack (1) während seines Betriebs mehrere der Messkanäle ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) der Impedanzmesseinrichtung verbunden sind, indem jeweils einer dieser Messkanäle ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) entweder mit jeweils einer einzelnen Zelle SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1) oder jeweils einer dieser Messkanäle ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) mit einer durch einander benachbarte Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1) gebildeten Zellengruppe gekoppelt ist, und dass die Steuereinrichtung dazu ausgebildet ist, während des Betriebs des Stacks

- die Impedanzmesseinrichtung dazu anzusteuern, in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus die Impedanz von Zellen oder Zellengruppen, nämlich Gruppen einander benachbarter Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$), des Stacks (1) zu messen,
- aus den Messwerten der Impedanzmesseinrichtung, jeweils damit korrelierende, in den Zellen oder Zellengruppen herrschende Zellentemperaturen sowie Temperaturgradienten zwischen benachbarten Zellen oder Zellengruppen zu berechnen,
- in den Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) des Ofens (3) die Heizleistung voneinander unabhängig temperaturgeführt im Hinblick auf die Einhaltung einer maximalen Zellentemperatur sowie eines maximalen Temperaturgradienten in der Stapelrichtung des Stacks (1) nach einer dafür in der Steuereinrichtung hinterlegten Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperaturgradienten berechneten Werte als Ist-Größen eingehen.

7. System nach Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass in dem Ofen (3) zusätzlich mindestens ein sich in der Stapelrichtung entlang erstre-

ckendes Kühlrohr (6) angeordnet ist und die Steuereinrichtung außerdem dazu ausgebildet ist die Temperatur in diesem mindestens einen Kühlrohr (6) nach einer dafür in der Steuereinrichtung hinterlegten Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperaturgradienten berechneten Werte als Ist-Größen eingehen.

8. System nach Anspruch 6 oder 7, wobei der Stack (1) aus Elektrolyseurzellen SOEC besteht, **dadurch gekennzeichnet**, dass das System eine Steuereinrichtung umfasst, welche dazu ausgebildet ist, den beim Betrieb des Stacks (1) durch ihn fließenden Strom nach einer dafür in der Steuereinrichtung hinterlegten Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperaturgradienten berechneten Werte als Ist-Größen eingehen.

9. System nach Anspruch 6 oder 7, wobei der Stack (1) aus Brennstoffzellen SOFC besteht, **dadurch gekennzeichnet**, dass das System eine Steuereinrichtung umfasst, welche dazu ausgebildet ist, beim Betrieb des Stacks (1) eine an ihm betriebene Last nach einer dafür in der Steuereinrichtung hinterlegten Regelfunktion zu regeln, in welche die jeweils für Zellentemperaturen und Temperaturgradienten berechneten Werte als Ist-Größen eingehen.

10. System nach Anspruch 8 oder 9, **dadurch gekennzeichnet**, dass die zur Regelung der Heizleistung in den Heizzonen ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) des Ofens (3) ausgebildete Steuereinrichtung und die zur Regelung des Stromes durch einen Stack (1) aus SOEC oder zur Regelung einer an einem Stack (1) aus SOFC betriebenen Last ausgebildete Steuereinrichtung durch eine gemeinsame Steuereinrichtung realisiert sind.

Es folgen 5 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

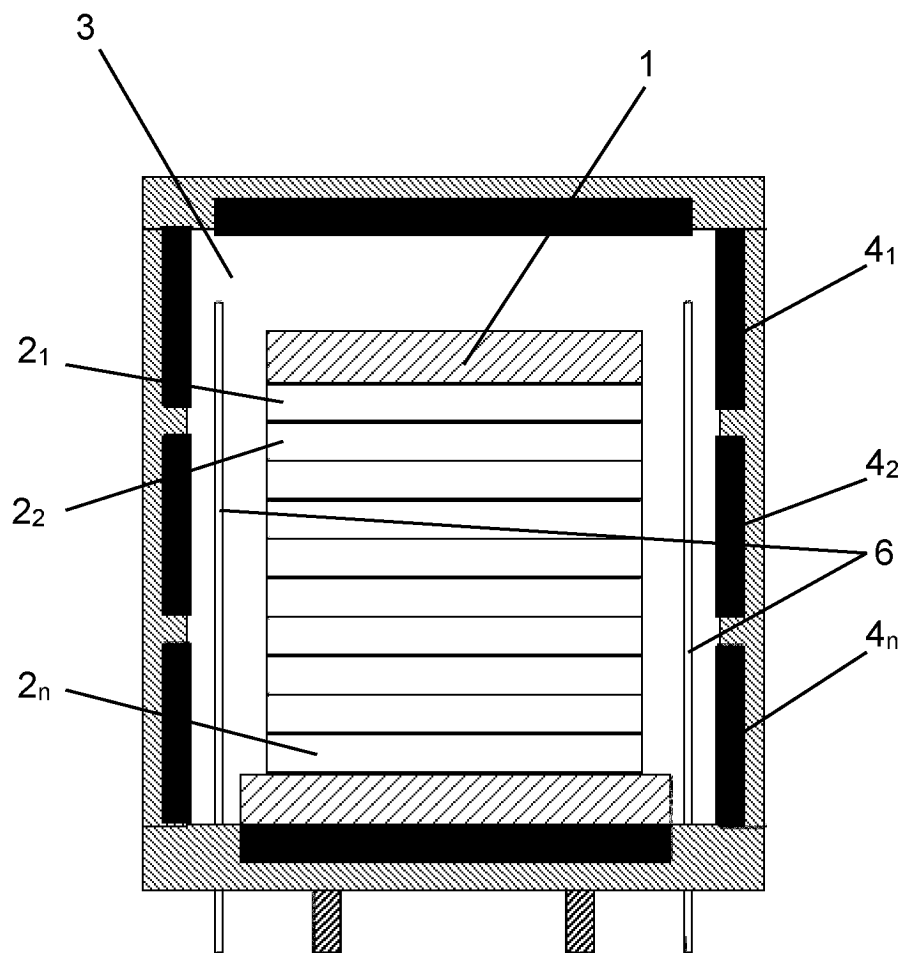


Fig. 1

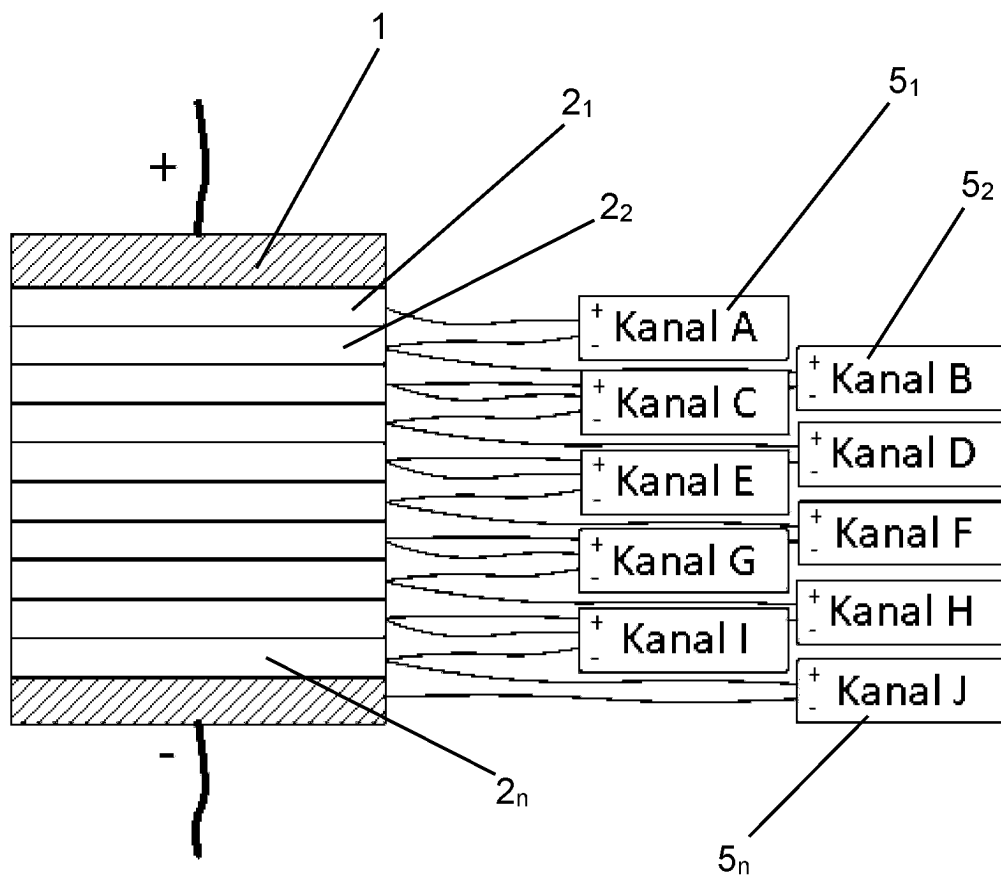


Fig. 2

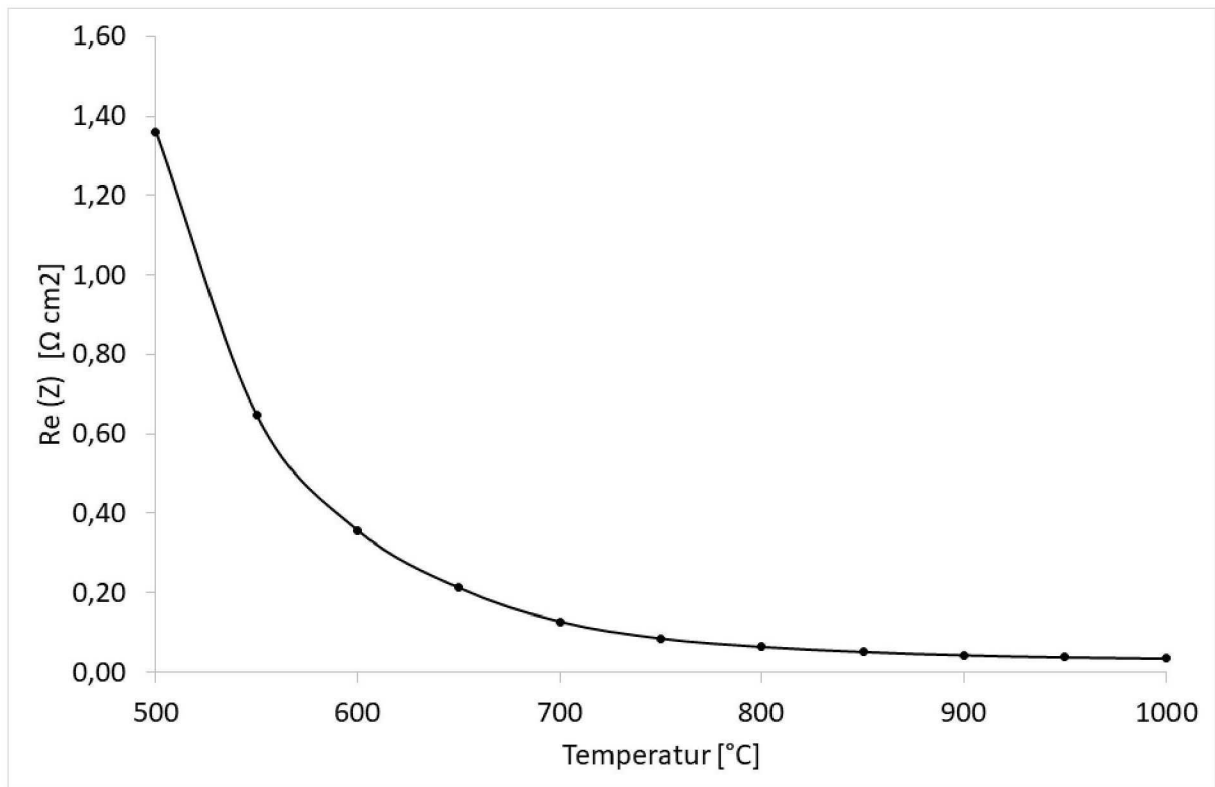


Fig. 3

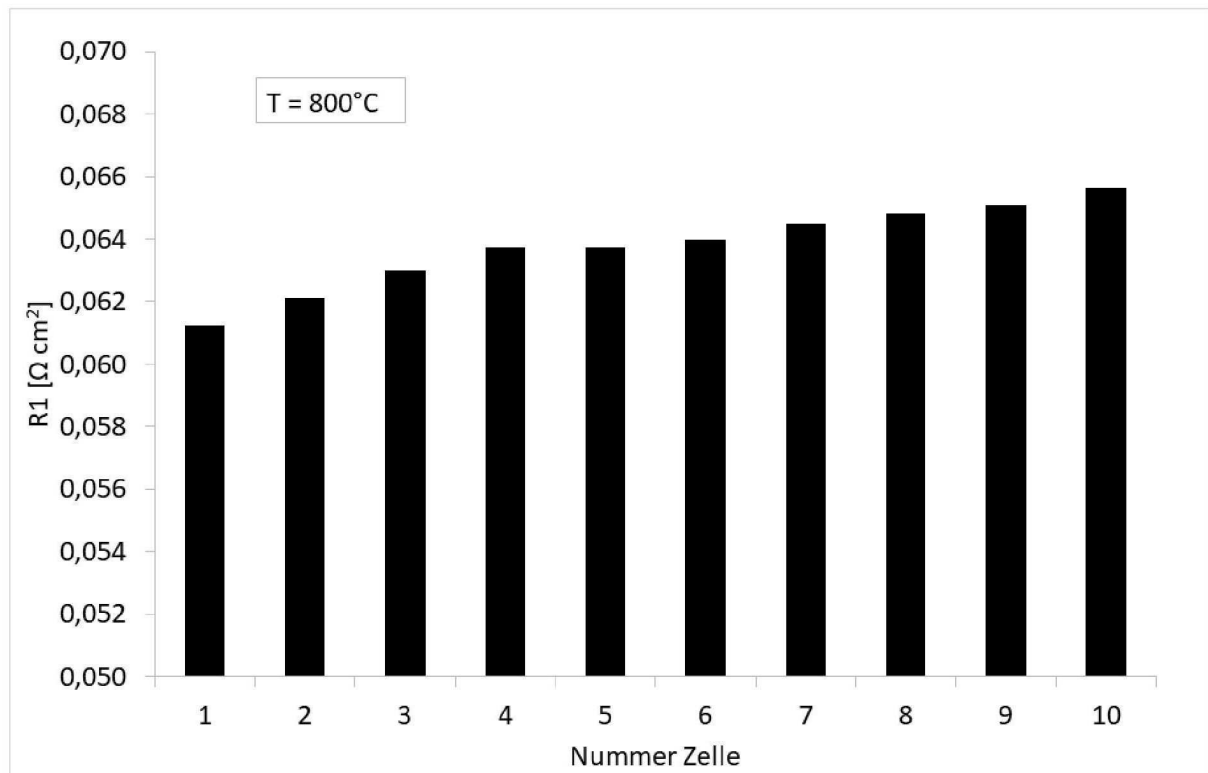


Fig. 4

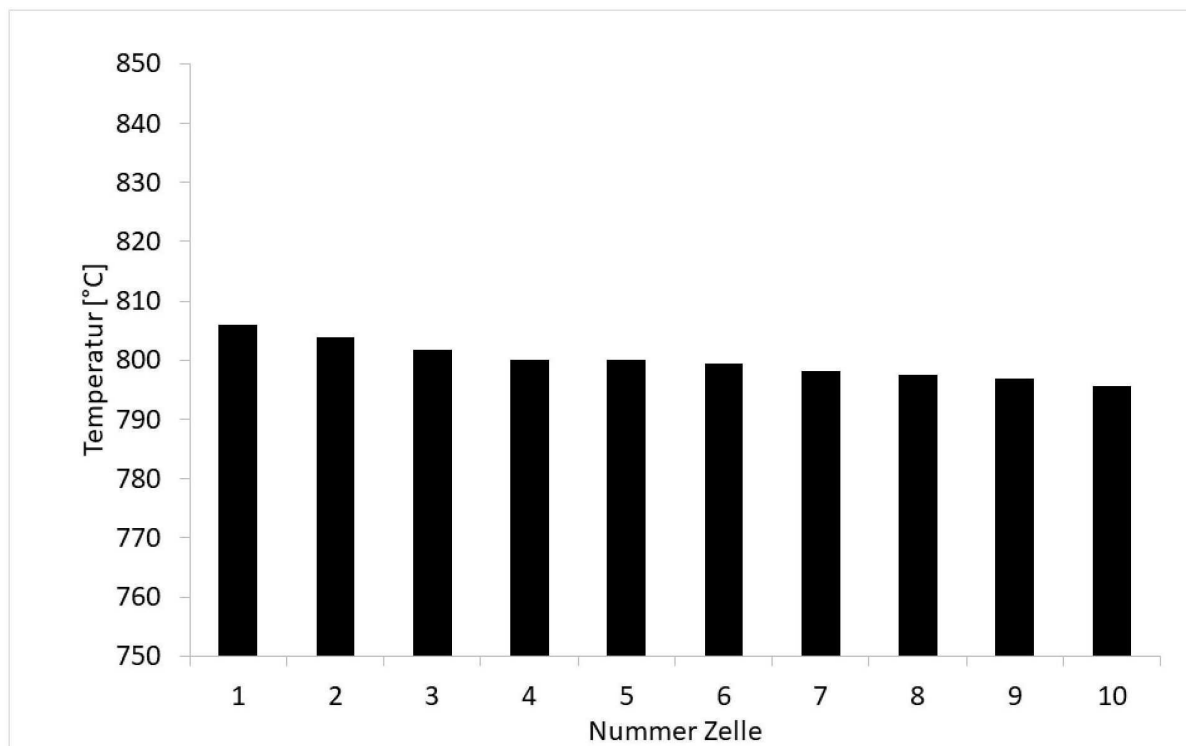


Fig. 5