

Hochaufgelöste Strömungsmessungen in den Mikrokanälen einer Brennstoffzelle mittels Zeitmultiplex-Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor

High definition flow measurements in fuel cell micro-channels using time division multiplex laser Doppler velocity profile sensor

A. E. Ramos Ruiz^{*1}, C. Schober¹, F. Schmieder¹, F. Moyon², L. Feierabend², M. Dues³, J. W. Czarske¹, L. Büttner¹

¹ Technische Universität Dresden, Fakultät Elektrotechnik und Informationstechnik
Professur für Mess- und Sensorsystemtechnik
Helmholtzstraße 18, 01062 Dresden, *E-Mail: andres.ramos@tu-dresden.de

² Zentrum für Brennstoffzellen Technik GmbH, Carl-Benz-Str. 201, 47057 Duisburg

³ ILA R&D GmbH, Karl-Heinz-Beckurts-Str. 13, 52428 Jülich

Strömungsmessung, Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor, Brennstoffzelle
Flow measurement, laser Doppler velocity profile sensor, fuel cell

Zusammenfassung

Brennstoffzellen erzeugen Energie durch einen elektrochemischen Umwandlungsprozess, vollkommen ohne die Entstehung von Stickoxiden, Schwefelgasen, Staub und Ruß. Sie eignen sich hervorragend zur dezentralen Stromversorgung und bilden daher eine wichtige Rolle in der zukünftigen Energiewirtschaft. Um technisch relevante Spannungen und Leistungen bereitzustellen, werden mehrere Brennstoffzellen elektrisch in Reihe geschaltet und zu einem kompakten Stapel zusammengefasst. In der Regel werden alle Zellen eines Stapels durch ein gemeinsames Verteilerrohr (Manifold) mit den Reaktionsgasen versorgt, so dass fluidmechanisch eine Parallelschaltung der Zellen vorliegt. Im Fall einer Ungleichverteilung der Stoffströme in einem Brennstoffzellenstapel wirkt sich diese direkt auf die Effizienz aus, da eine Ungleichverteilung der Reaktanden zwischen den Zellen zu einer Differenz der von den Zellen generierten Spannung führen kann.

In diesem Beitrag wird daher ein Ansatz für Strömungsmessungen in den parallelgeschalteten Mikrokanälen eines Brennstoffzellenmodells mittels Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor vorgestellt, um damit die Gleichverteilung in den Kanälen präzise zu untersuchen. Es werden zwei sich überlagernde, fächerförmige Streifensysteme mit entgegengesetzten Gradienten erzeugt. Beide Streifensysteme werden mittels Zeitmultiplex differenziert, was die Nutzung nur einer Wellenlänge ermöglicht. Mit dem realisierten Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor kann in den Mikrokanälen mit Querschnitt $1 \times 4 \text{ mm}^2$ bei einer Ortsauflösung von $1,5 \text{ }\mu\text{m}$ gemessen werden. Da das Messsystem mit nur einer Wellenlänge arbeitet, können fluoreszierende Partikel benutzt werden. Dies unterdrückt den Einfluss von starken Reflektionen und verbessert damit die Signalqualität bei Strömungsmessungen an schwerzugänglichen Orten, e. g. nah an der Kanalwand.

1. Einleitung

Bei Verwendung von nachhaltig produzierten Brennstoffen besitzen Brennstoffzellen ein hohes Potential als elektrochemische Energiewandler und nehmen daher in naher Zukunft eine zentrale Rolle in der Energiewirtschaft und Verkehrstechnik ein. Bei Zusammenschaltung mehrerer Brennstoffzellen zu einem Stapel wird eine erhöhte Leistung erreicht, allerdings kann bei inhomogenen Betriebsbedingungen (Reaktandenversorgung und Temperaturverteilung) die Gesamteffizienz reduziert werden. Deswegen ist ein tiefergehendes Verständnis der fluidmechanischen Prozesse innerhalb einer Brennstoffzelle nötig und damit ein Messsystem zur näheren Untersuchung der Strömungsverteilung in den Mikrokanälen. Hierzu wurden Simulationen und Messungen der Strömungsverteilung in Brennstoffzellenstapeln bereits durchgeführt. Jedoch konnten nicht alle Prozesse vollständig modelliert und charakterisiert werden [1]. Zur weiteren Untersuchung sind In-Situ-Messungen in Brennstoffzellen und durch einen Schlüsselochzugang erforderlich. Hierfür ist ein Messsystem zur Vermessung der Strömung in den Mikrokanälen mit hoher Ortsauflösung notwendig. Dafür müssen bei wandnahen Messungen auftretenden starken Reflexionen unterdrückt werden.

Eine etablierte Messtechnik ist Laser-Doppler-Velozimetrie (LDV), basierend auf dem optischen Dopplereffekt. Dieser beschreibt die Frequenzänderung einer Welle aufgrund der Relativbewegung zwischen Sender und Empfänger. Typischerweise beträgt die relative Messunsicherheit der Geschwindigkeitsmessung ca. 0,5 %. Das Prinzip basiert auf einem Interferenzstreifensystem, das aus der Kreuzung zwei kohärenter Laserstrahlen entsteht. Der Streifenabstand d ist in der Regel konstant. Wenn ein Partikel das Messvolumen durchquert, wird das gestreute Lichtsignal amplitudenmoduliert mit einer Doppler-Frequenz

$$f_D = \frac{v_x}{d}$$

welche vom Streifenabstand d und von der Geschwindigkeit v_x , die orthogonal zu den Streifen system liegt. Die Ortsauflösung wird durch die Größe des Messvolumens determiniert. Für Messungen am Mikrokanälen soll das Messvolumen ausreichend klein sein. Bei Standard-LDV liegt typischerweise ein Messvolumen von $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 1 \text{mm}$, was für Messungen in den Kanälen der Brennstoffzelle unzureichend ist. Durch starkes Fokussieren kann das Messvolumen reduziert werden. Aus der Krümmung der Wellenfront eines Gauß-Strahles variiert der Streifenabstand d bei Verringerung des Messvolumens [2].

Dieser Effekt kann mit dem Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor (LDV-PS) genutzt werden. Der LDV-PS basiert auf dem Prinzip des LDV. Mit dem LDV-PS kann das Geschwindigkeitsprofil entlang der optischen Achse innerhalb des Messvolumens (eindimensional) gemessen werden. Der LDV-PS nutzt die gekrümmten Wellenfronten aus, um einen fächerartige Streifenabstandsverlauf innerhalb des Messvolumens zu erzeugen. Die Position eines Partikels innerhalb des Messvolumens kann dadurch bestimmt werden [3]. Die theoretischen Grundlagen und die experimentelle Realisierung werden im Kapitel 2 beschrieben. Im Kapitel 3 wird die Brennstoffzelle und ihre Funktionen dargestellt. Am Ende dieses Beitrages wird eine Zusammenfassung und ein Ausblick für das weitere Vorgehen dargelegt.

2. Der Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor mit Zeitmultiplexbetrieb

Der LDV-PS-Sensor nutzt zwei übereinanderliegende, fächerartige Interferenzsysteme. Ein Interferenzsystem konvergiert und das andere divergiert entlang der optischen Achse z , d. h. beide Streifenabstandsverläufe besitzen entgegengesetzte Gradienten innerhalb desselben

Messvolumenbereiches. Beide Interferenzsysteme müssen bei der Detektion getrennt werden. Ein einfacher Ansatz, beide Interferenzsysteme physikalisch zu trennen, beruht auf *wavelength division multiplexing* (WDM, dt. Wellenlängen-Multiplex). Es werden zwei verschiedene Wellenlängen benutzt mit jeweils einer angepassten Detektionseinheit. In Flüssigkeiten kann es hierbei jedoch zu Dispersionseffekten kommen, die eine eigene Kalibrierung für jedes Messmedium erfordern. Weiterhin soll die wandnahe Geschwindigkeit im Mikrokanal bestimmt werden, wodurch die Nutzung von Fluoreszenzpartikeln absolut notwendig ist. Eine solche Sensorrealisierung ist mit zwei Wellenlänge technisch nicht umsetzbar. Es soll eine monochromatische Trennung beider Interferenzsysteme ausgelegt werden. Hierfür gibt es drei Möglichkeiten: (a) Polarisationsmultiplex (eng. Polarisation division multiplexing, PDM), (b) Frequenzmultiplex (eng. Frequency division multiplexing, FDM), (c) Zeitmultiplex (eng. Time division multiplexing, TDM) [4]. Bei der Realisierung von Methode (a) kann es bei der Streuung an kleinen Partikeln aufgrund von Depolarisation zu einem signifikanten Übersprechen kommen. Die Methode (b) ist eine heterodyne Methode, bei der eine Trägerfrequenz notwendig ist. Für makroskopische Anwendungen, wie Strömungs- und Turbulenzuntersuchungen [5], wurde diese Messmethode erfolgreich umgesetzt. Hierbei ist ein Detektor mit ausreichend hoher Bandbreite notwendig. Die Methode (c) erlaubt die physikalische Trennung unter Nutzung von Detektoren mit niedrigerer Bandbreite im Vergleich zu Methode (b). Erste Realisierungen des Profilsensors mit Zeitmultiplexbetrieb wurden von König et al. vorgestellt [6], [7]. Im Vergleich zu Frequenzmultiplex kommt Zeitmultiplex auch mit deutlich weniger Komponenten und daher einem instrumentell geringeren Aufwand aus. Zur Realisierung genügen z. B. zwei schnell schaltbare Laser. Aus diesem Grund wurde sich für die Messung an Brennstoffzellen für diese Variante entschieden. In Abbildung 1 ist der monochromatische TDM-Sensoraufbau schematisch dargestellt.

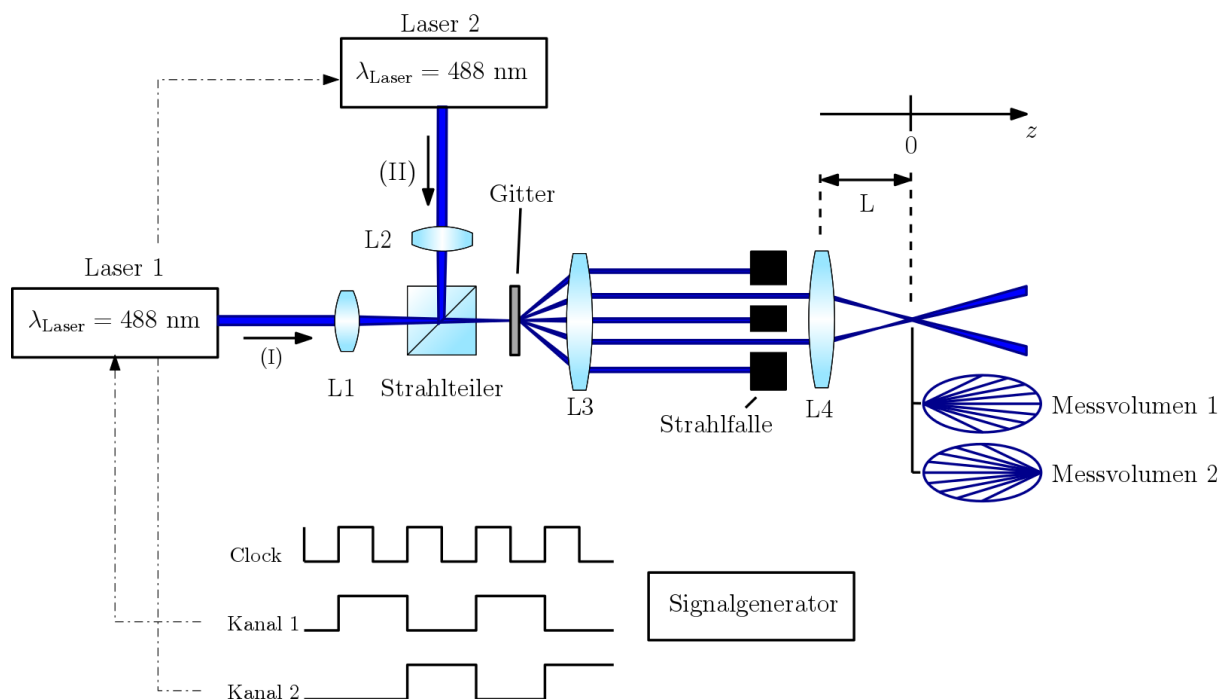


Abbildung 1: schematische Darstellung des monochromatischen Sensoraufbaus im Zeitmultiplexbetrieb. Beide Strahlen I und II werden am Strahlteiler überlagert. Anhand der Linsen L1 und L2 kann der Fokus am Gitter und damit die Steigung der Kalibrierkurve eingestellt werden. Das Messvolumen befindet sich im Abstand L von der Linse L4. Die Amplitudenmodulation beider Lasereinheiten erfolgt durch einen externen Signalgenerator.

Es werden die Strahlen zweier Diodenlaser mit der Wellenlänge $\lambda_{\text{Laser}} = 488 \text{ nm}$ orthogonal zueinander gestellt. Die Laserstrahlen (I und II) werden am Strahlteiler überlagert. Beide Laserstrahlen werden auf ein Gitter fokussiert. Die sich daraus ergebenden n-ten Beugungsordnungen werden mit Hilfe der Linse L3 kollimiert. Alle Beugungsordnungen bis auf die ± 1 . Ordnung werden blockiert. Mit Hilfe der Linse L4 wird der Arbeitsabstand L definiert, wo sich beide Laserstrahlen kreuzen und das Messvolumen bilden. Die Linsen L3 und L4 bilden ein Teleskop mit der Abbildung 5:6. Dadurch ergibt sich einen Streifenabstand $d_{1,2}(z) = 3 \mu\text{m}$ an der Stelle $z = z_0$. Es wurde einen Strahltaillenradius $w(z = z_0) = w_0 = 80 \mu\text{m}$ und eine Messvolumenlänge von $l_z = 500 \mu\text{m}$ eingestellt. Mit Hilfe eines externen Generators sind beide Lasereinheiten bis zu einer Frequenz von 150 MHz amplitudenmodulierbar. Bei der Kalibrierung mit einer $2 \mu\text{m}$ Lochblende wurden die Burstsignale in *Abbildung 2* detektiert.

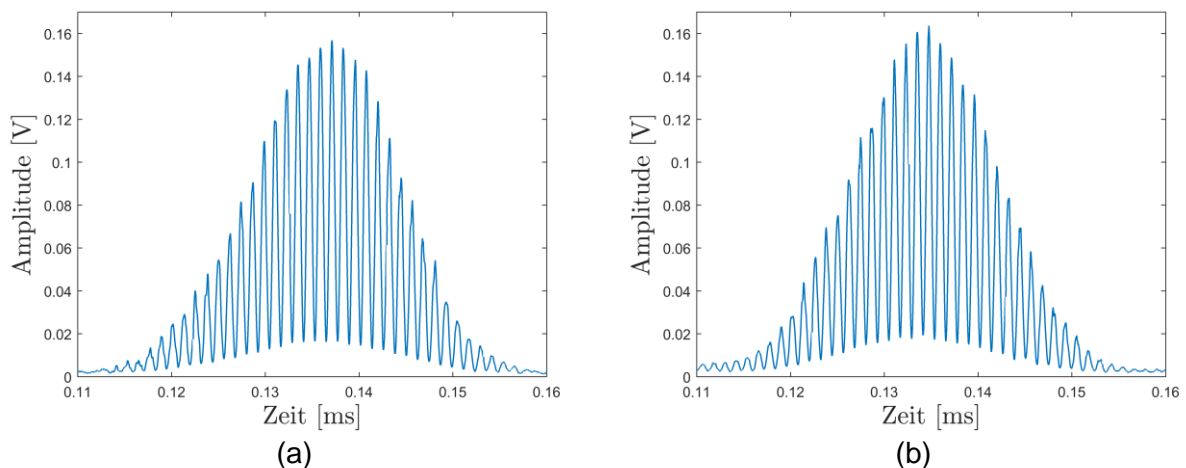


Abbildung 2: Burstsignale der Interferenzsysteme. (a) Burstsinal vom Laser 1 und (b) Burstsinal vom Laser 2.

Anhand dieser Kalibrierung können die Streifenabstandsfunktionen $d_{1,2}(z)$ bestimmt werden. Die dazugehörige Kalibrierfunktion ergibt sich aus dem Quotient der Streifenabstandsfunktionen zu

$$q(z) = \frac{f_{D1}(v, z)}{f_{D2}(v, z)} = \frac{v_x/d_1(z)}{v_x/d_2(z)} = \frac{d_2(z)}{d_1(z)}$$

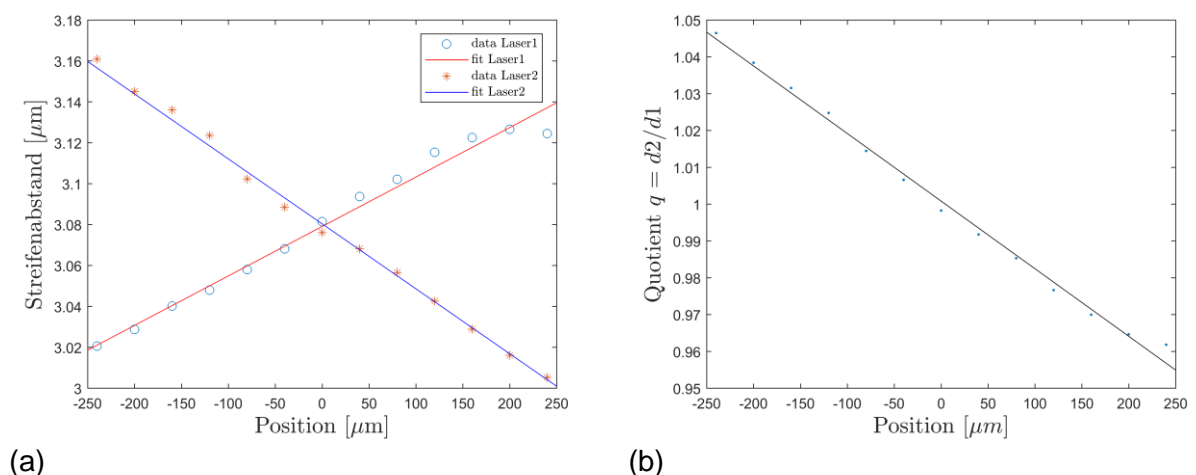


Abbildung 3: Kalibrierung beider Interferenzsysteme im kontinuierlichen Betrieb. (a) Streifenabstandsfunktionen und (b) Kalibrierfunktion (Quotientenfunktion $q(z)$) für die Ortsbestimmung.

Mit Hilfe der Linsen L1 und L2 kann der Fokus am Gitter eingestellt werden. Durch starke Fokussierung auf dem Gitter kann die Wellenfrontkrümmung der Laserstrahlen erhöht werden. Der Radius der Wellenfronten ruft die Änderung des Streifenabstands hervor. Damit kann eine erhöhte Ortsauflösung erreicht werden. Der Verlauf der Gradienten und die sich daraus ergebende Kalibrierfunktionen sind in der Abbildung 3 dargestellt.

Für jedes das Messvolumen durchquerende Partikel werden zwei Dopplerfrequenzen, eine von jedem Interferenzstreifensystem, bestimmt. Die Ermittlung der Partikelposition ergibt sich aus der Kalibrierfunktion und dem Verhältnis der gemessenen Dopplerfrequenzen. Die Messunsicherheit der Geschwindigkeitsbestimmung σ_{vx} hängt nur von der Messunsicherheit bei der Dopplerfrequenzmessung σ_{fD} . Die relative Messunsicherheit der Geschwindigkeit kann durch folgenden Term approximiert sein:

$$\frac{\sigma_{vx}}{v_x} \approx \sqrt{\frac{3}{2}} \frac{\sigma_{fD}}{f_D}$$

Die Ortsauflösung σ_z kann wie folgt geschätzt werden:

$$\sigma_z \approx \sqrt{2} \left| \frac{dq}{dz} \right|^{-1} \frac{\sigma_{fD}}{f_D}$$

Aus dieser Formel kann entnommen werden, dass je größer der Anstieg der Kalibrierfunktion $\frac{dq}{dz}$, desto höher ist die Ortsauflösung. Für die in Abb. 3 dargestellt Kalibrierung wird die Ortsauflösung gemäß obiger Formel zu ca. 1,5 μm abgeschätzt. Dies ist für die anvisierten Messungen am Brennstoffzellen-Dummy mit Kanalquerschnitten von 1 x 4 mm² ausreichend.

3. Brennstoffzelle als Messobjekt

Die Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle (PEM-BZ) hat sich mittlerweile als (netz-) unabhängige Stromversorgung in vielen Anwendungsbereichen etabliert, z. B. für Mobilfunkmasten, in Krankenhäusern, für Computersysteme, für die mobile Kommunikation und auch für die Elektromobilität. Darüber hinaus eignen sich Brennstoffzellen hervorragend zur dezentralen Strom- und Wärmeversorgung (Kraft-Wärme-Kopplung, KWK). Brennstoffzellen erzeugen Energie durch einen elektrochemischen Umwandlungsprozess, vollkommen ohne die Entstehung von Stickoxiden, Schwefelgasen, Staub und Ruß. Hochtemperatur-PEM-BZ (HT-PEM-BZ) eignen sich aufgrund der hohen und somit besser nutzbaren Abwärmemperaturen (120 – 200 °C), der Vermeidung von Flüssigwasser und der geringeren Zelldegradation durch Schadgase, die in aus leichter handhabbaren Kohlenwasserstoffen reformierten Brennstoffen auftreten, für einen verbreiteten Einsatz beim Endkunden. Um technisch relevante Spannungen und Leistungen bereitzustellen, werden mehrere Brennstoffzellen elektrisch in Reihe geschaltet und zu einem kompakten Stapel zusammengefasst. In der Regel werden alle Zellen eines Stapels durch ein gemeinsames Verteilerrohr (Manifold) mit den Reaktionsgasen versorgt, so dass fluidmechanisch eine Parallelschaltung der Zellen entsteht. Im Fall einer Ungleichverteilung der Stoffströme in einem Brennstoffzellenstapel, wirkt sich diese direkt auf die Effizienz aus, da eine Ungleichverteilung der Reaktanden zwischen den Zellen zu einer Differenz der von den Zellen generierten Spannung führen kann. Das Ziel der Untersuchungen besteht daher in der präzisen Bestimmung der (Un-) Gleichverteilung in den parallelgeschalteten Kanälen.

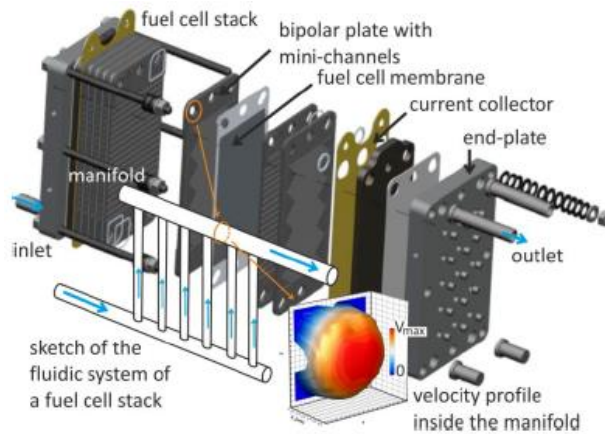


Abbildung 4: Aufbau eines Brennstoffzellenstapels bei einer Z-Konfiguration der durchströmten Strukturen.

Für die Strömungsmessungen wurde ein optisch zugängliches Modell der fluidischen Parallelschaltung eines HT-PEM-Stapels konstruiert, welches die Erfassung der Volumenstromverteilung auf die einzelnen Zellen mit dem Strömungsprofilsensor zulässt. Der Dummy-Stapel wurde mit 40 Zellen in U-Konfiguration konstruiert, analog zu dem hier untersuchten realen HT-PEM-Brennstoffzellen-Stapel. Die Durchströmung des 50-cm²-Strömungsfeldes der HT-PEM-Einzelzelle wurde mit einem CFD-Modell simuliert, um die Volumenstrom-Druck-Kennlinie zu ermitteln (siehe Abbildung 5 links). Um diese Druckverlustcharakteristik im Dummy-Stapel abzubilden, wurde eine benötigte Länge von 650 mm der Strömungskanäle des Dummy-Stapels ermittelt. Diese Kanäle, wovon jeder einzelne eine Zelle des HT-PEM-Stapels repräsentiert, wurden in paralleler Anordnung in eine Plexiglasplatte gefräst (siehe Abbildung 5 rechts), um die Parallelschaltung des HT-PEM-Stapels abzubilden. Die Dimensionen der Kanäle (Tiefe: 1 mm, Breite: 4 mm) ergeben sich aus den maximalen Tiefe (1 mm) und der maximalen Geschwindigkeit (≈ 20 m/s) welche das Messsystem erlaubt. Unter Berücksichtigung der benötigten Volumenströme für die relevanten Betriebspunkte des HT-PEM-Stapels ergab sich eine Breite der Einzelkanäle von 4 mm. Der Abstand zwischen den geraden Kanälen des Dummy-Stapels wurde ähnlich dem Abstand der Zellen im realen Stapel definiert, um ebenfalls eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse mit dem realen BZ-Stapel zu gewährleisten.

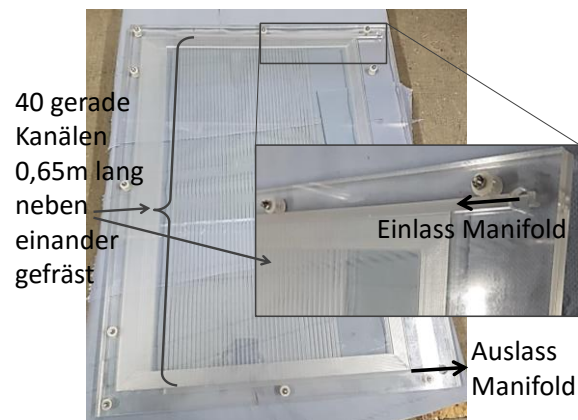
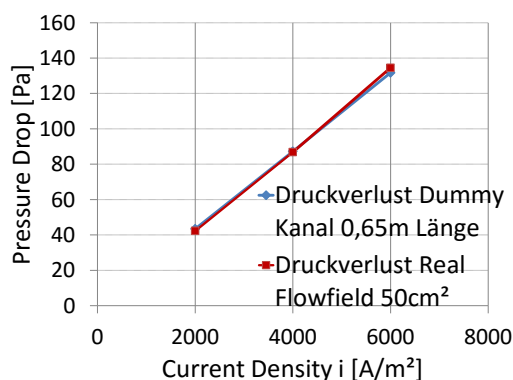


Abbildung 5: Volumenstrom-Druck-Kennlinie von der Dummy Zelle und vom realen Flowfield Anodenseite (links), Bild des Dummy-Stapels (rechts)

Der rein fluidische Dummy-Stapel wurde mit CFD-Modellen in der kommerziellen Software AVL FIRE simuliert. Es wurden 3 Betriebspunkte für die Anodenseite und 3 Betriebspunkte für die Kathodenseite mit verschiedenen Luftmassenströmen berechnet, die mit einer Reynolds-Ähnlichkeit die Strömungsbedingungen mit synthetischem Reformatgas bei der Anodenseite und mit Luft bei der Kathodenseite darstellen. In Abbildung 6 sind die Simulationsergebnisse beim Betriebspunkt $i=6000 \text{ A/m}^2$ (Kathodenseite, turbulent) dargestellt. Die Abweichung der Zellmassenströme vom Mittelwert ist abhängig von der Position der Zelle im Stapel: die Zellen nahe des Manifoldeinlasses werden stärker durchströmt (+10 % Massenstrom) als die hinteren Zellen (-5 % Massenstrom). Ein Manifold-Einsatz soll unter Berücksichtigung dieser Ergebnisse entwickelt werden. Dieser Einsatz soll danach mit dem Design des Dummy-Stapels angepasst und erneut mit den CFD-Modellen simuliert werden.

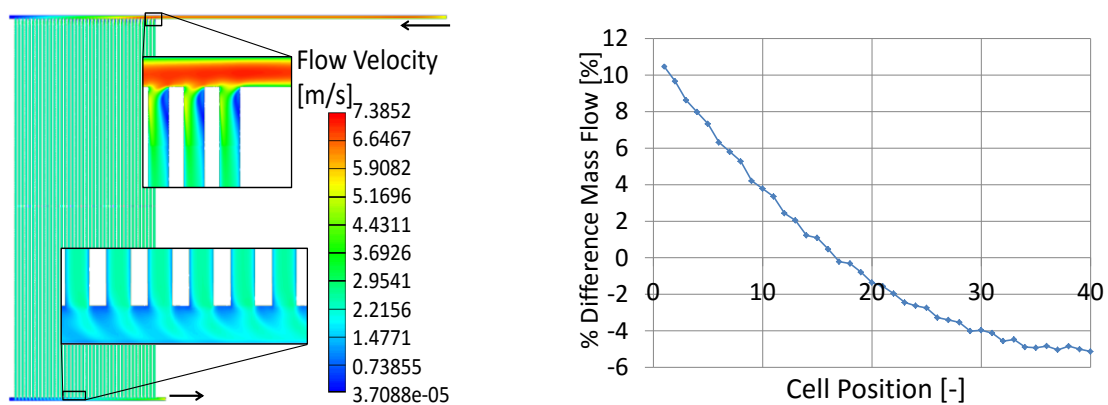


Abbildung 6: Simulation der Strömungsgeschwindigkeit beim Betriebspunkten: $i=6000 \text{ A/m}^2$, Kathodenseite(links), Simulationsergebnisse der Massenstromverteilung beim Betriebspunkten: $i=6000 \text{ A/m}^2$ - U-Konfiguration (rechts)

Der TDM-LDV-PS ist am Stapel-Dummy orthogonal zum Mikrokanal angebracht (siehe Abbildung 7). Eine Vollfeldmessung wird erreicht, in dem das Messvolumen dreidimensional verfahren wird.

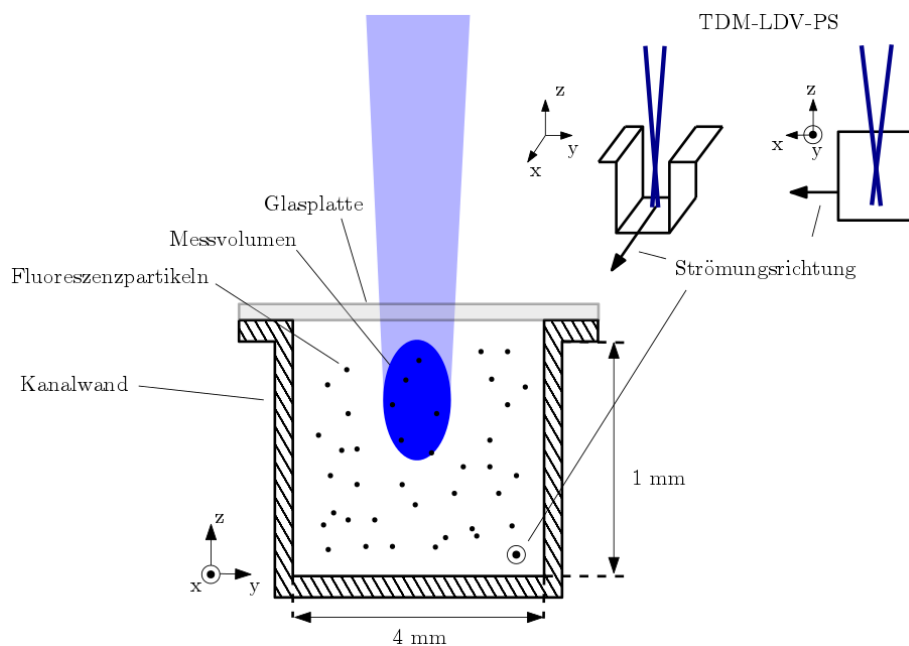


Abbildung 7: Anordnung des Messvolumens im Mikrokanal

Die Messungen sollen zunächst mit Wasser als Arbeitsmedium, später mit Luft durchgeführt werden. Durch die Verwendung fluoreszierender Streupartikel soll unerwünschtes Streulicht von der Deckglasplatte bzw. von den Kanalwänden effektiv unterdrückt werden.

4. Zusammenfassung und Ausblick

Für Mikrokanalapplikationen sind Messsysteme mit hoher Auflösung notwendig. Bisher wurden Messungen am Manifold einer BSZ durchgeführt. Zusätzlich wurde die Strömung im Mikrokanal simuliert. Um die Strömung vollständig zu charakterisieren soll im Mikrokanal gemessen werden. Um dies zu erreichen, wurde ein monochromatischer Laser-Doppler-Geschwindigkeitsprofilsensor im Zeitmultiplexbetrieb (TDM-LDV-PS) aufgebaut. Zunächst wurde ein optisch zugängliches BSZ-Modellexperiment aufgebaut. Die Nutzung von Fluoreszenzpartikel erlauben wandnahe Messungen. Der TDM-LDV-PS nutzt zwei fächerartige Interferenzsysteme um die Position eines Partikels im Messvolumen zu bestimmen. Aus der Kalibrierung ergab sich eine Ortsauflösung von ca. 1,5 μm . Im Rahmen des Vortrags zu diesem Beitrag werden erste Messungen am BSZ-Modellexperiment gezeigt.

Dankesworte

Die Autoren danken die DFG für die Förderung im Rahmen des Projekts BU 2241/4-1 und der AiF im Rahmen des Programms zur Förderung der industriellen Gemeinschaftsforschung (IGF), Förderkennzeichen 18233 BG.

Literatur

- [1] F. Schmieder, M. E. Kinaci, J. Wartmann, J. König, L. Büttner, J. Czarske, S. Burgmann, and A. Heinzel, "Investigation of the flow field inside the manifold of a real operated fuel cell stack using optical measurements and Computational Fluid Mechanics," *J. Power Sources*, vol. 304, pp. 155–163, Feb. 2016.
- [2] P. C. Miles, "Geometry of the fringe field formed in the intersection of two Gaussian beams.," *Appl. Opt.*, vol. 35, no. 30, pp. 5887–95, Oct. 1996.
- [3] J. Czarske, L. Büttner, T. Razik, and H. Müller, "Boundary layer velocity measurements by a laser Doppler profile sensor with micrometre spatial resolution," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 13, no. 12, pp. 1979–1989, Dec. 2002.
- [4] D. Dopheide, M. Rinker, and V. Strunck, "High-frequency pulsed laser diode application in multi-component laser Doppler anemometry," *Opt. Lasers Eng.*, vol. 18, no. 2, pp. 135–143, Jan. 1993.
- [5] L. Büttner, C. Bayer, A. Voigt, J. Czarske, H. Müller, N. Pape, and V. Strunck, "Precise flow rate measurements of natural gas under high pressure with a laser Doppler velocity profile sensor," *Exp. Fluids*, vol. 45, no. 6, pp. 1103–1115, Dec. 2008.
- [6] J. König, A. Voigt, L. Büttner, and J. Czarske, "Precise micro flow rate measurements by a laser Doppler velocity profile sensor with time division multiplexing," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 21, no. 7, p. 074005, Jul. 2010.
- [7] J. König, K. Tschulik, L. Büttner, M. Uhlemann, and J. Czarske, "Analysis of the Electrolyte Convection inside the Concentration Boundary Layer during Structured Electrodeposition of Copper in High Magnetic Gradient Fields," *Anal. Chem.*, vol. 85, no. 6, pp. 3087–3094, Mar. 2013.