

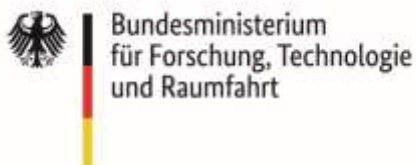
Stuttgart, 31.03.2026

Verbundvorhaben H2Giga_TP_HTs: HTEL-Stacks – Ready for Gigawatt; Teilvorhaben Fortgeschrittene Materialien und Grenzflächen für die Hochtemperatur-Elektrolyse

Sachbericht zum Verwendungsnachweis – Teil I + II

Stand:	31.03.2026
Einreichungsdatum TIB (Teil I+II):	31.03.2026
Partnerin/Partner:	Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt e.V.
Autorinnen/Autoren:	S. Wolf, R. Wurster, P. Szabo, M. Riegraf, F. Han, N. Sata, M. Lang, R. Ruckdäschel, R. Costa
Fördertitel:	Sondervermögen Klima- und Transformationsfonds
Laufzeit:	01.05.2021 bis 31.12.2025
Förderkennzeichen:	03HY1124E
Disclaimer:	Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Gefördert durch:



Teil I – Kurzbericht

1. Ursprüngliche Aufgabenstellung sowie wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Die Hochtemperaturelektrolyse (HTEL) ist eine vielversprechende Technologie zur effizienten Herstellung von grünem Wasserstoff aus erneuerbaren Energiequellen. Im Vergleich zu anderen Elektrolysetechnologien wie der alkalischen Wasserstofferzeugung oder der PEM-Elektrolyse bietet die HTEL einen sehr hohen Wirkungsgrad und niedrige Betriebskosten. Der technische Reifegrad (Technology Readiness Level, TRL) der HTEL-Technologie liegt jedoch noch unter dem anderer etablierter Elektrolysetechnologien, was derzeit eine breite Kommerzialisierung behindert. Die ursprüngliche Aufgabenstellung des Vorhabens bestand darin, ausgewählte Komponenten des HTEL-Stacks zu untersuchen und weiterzuentwickeln, um einen messbaren Beitrag zur Erhöhung von Leistung und Langlebigkeit zu leisten. Dabei standen folgende Herausforderungen im Fokus: Verbesserung der Zell-Elektroden: Entwicklung von keramikbasierten Wasserstoffelektroden mit verbesserter Toleranz gegenüber Verunreinigungen im Brenngas und verbesserter Redox-Stabilität. Schutz vor Chrom-Abdampfung: Untersuchung von Schutzschichten zur Verhinderung der Degradation der Sauerstoffelektrode durch Chrom-Abdampfung aus metallischen Interkonnektoren. Optimierung der Ceroxid-basierten Zwischenschichten: Analyse des Verhaltens von GDC-Schichten unter elektrolysespezifischen Betriebsbedingungen, einschließlich hoher Dampfgehalte und Sauerstoffpartialdrücke. Der wissenschaftliche und technische Stand, an den angeknüpft wurde, basierte auf existierenden Nickel-basierten Cermet-Elektroden, die unter bestimmten Betriebsbedingungen zu schnellen Degradationsphänomenen führen. Die Weiterentwicklung zu keramikbasierten Materialien mit gemischter ionischer und elektronischer Leitfähigkeit sollte diese Herausforderungen adressieren und die HTEL-Technologie für die industrielle Anwendung fit machen.

2. Ablauf des Vorhabens

Das Vorhaben gliederte sich in mehrere klar definierte Arbeitspakete, die sequentiell und teilweise parallel bearbeitet wurden:

Materialentwicklung und -charakterisierung: Synthese und Analyse von Perowskit-Materialien (LSCTN, Cr-Manganite, Titanate) einschließlich Untersuchung der Phasenstabilität unter reduzierenden und oxidierenden Bedingungen sowie Herstellung von Halbzellen mittels Siebdruckverfahren.

Zellentwicklung und Skalierung: Elektrochemische Charakterisierung von Einzelzellen bei 800-900°C, Langzeittests unter verschiedenen Betriebsbedingungen sowie Übertragung der Fertigung von Labor- auf Stackgröße.

Schutzschicht- und Interlayer-Entwicklung: Untersuchung von Cr-Abdampf-Schutzschichten sowie Entwicklung und Test von PVD-GDC-Dünnschichten als Diffusionsbarrieren zur Bestimmung der optimalen Schichtdicke.

Stack-Validierung und Langzeittest: Betrieb eines "Regenbogen-Stacks" mit 30 Ebenen über 7200 Stunden, Messung von Leistung, Degradationsraten und Gasdichtigkeit sowie Materialanalyse von getesteten Zellen.

Der gesamte Projektverlauf wurde gemäß dem genehmigten Zeitplan durchgeführt. Alle wesentlichen Meilensteine wurden erreicht, und die definierten Ziele wurden vollumfänglich erfüllt.

3. Wesentliche Ergebnisse

Im Rahmen des Vorhabens wurden folgende wesentliche Ergebnisse erzielt, die einen signifikanten Beitrag zur Verbesserung der HTEL-Technologie leisten:

Entwicklung keramikbasierter Wasserstoffelektroden:

Die entwickelte LSCTN-Elektrode ($\text{La}_{0.2}\text{OSr}_{0.25}\text{Ca}_{0.45}\text{Ti}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{O}_3$) zeigt ein überlegenes Degradationsverhalten mit einer Zellspannungs-Zunahme von nur $0,02 \text{ } \Omega \cdot \text{cm}^2$ über 168 Stunden bei 860°C . Im Vergleich zu anderen getesteten Materialien (LSTN, LCTN, Chrom-Manganite) bietet LSCTN das beste Performance-Stabilitäts-Verhältnis. Die Elektrode wurde erfolgreich auf Stackgröße ($14,2 \times 9 \text{ cm}^2$) übertragbar und ist damit für die Serienproduktion geeignet.

Kompatibilitätsnachweis und Kontaktschicht-Entwicklung:

Die chemische Kompatibilität zwischen LSCTN und Nickel-Kontaktschichten wurde nachgewiesen, was eine Integration in bestehende Stack-Systeme ohne materialbedingte Sekundärphasenbildung ermöglicht. Es konnte keine unerwünschte Reaktion zwischen den Materialien unter den gegebenen Sinter- und Betriebsbedingungen festgestellt werden. Dies ist entscheidend für die industrielle Anwendung, da die Nickel-Kontaktschichten in bestehenden Sunfire-Stacks verwendet werden.

Schutzschicht-Optimierung gegen Chrom-Abdampfung:

Die optimale Dicke von $3 \text{ } \mu\text{m}$ für Spinellschutzschichten zur Verhinderung von Chrom-Abdampfung wurde ermittelt. $1 \text{ } \mu\text{m}$ dicke Schutzschichten erwiesen sich als nicht ausreichend, da Chrom- und Mangan-Diffusion in die Schutzschicht nachgewiesen wurde. Erst bei $3 \text{ } \mu\text{m}$ wurde eine vollständige Barriere Wirkung gegen die Chromdiffusion erreicht, ohne Ausbildung einer zweiten Oxidschicht.

Stack-Validierung unter realistischen Bedingungen:

Ein "Regenbogen-Stack" mit 30 Ebenen wurde über 7200 Stunden erfolgreich im SOEC-Betrieb getestet. Dabei wurde ein Stackwirkungsgrad von 99,5% erreicht, was den hohen Effizienzpotential der HTEL-Technologie bestätigt. Die Degradationsrate betrug $+10,9 \text{ mV} \cdot \text{kh}^{-1}$ ($0,9 \text{ } \%\cdot\text{kh}^{-1}$), was als sehr gering gilt. Die Untersuchung zeigte zudem, dass die PVD-GDC-Schichten auf der Luftseite als effektive Sr-Diffusionsbarrieren fungieren, während Schichten auf der Brennstoffseite während der Herstellung in den YSZ-Elektrolyt aufgelöst werden.

4. Zusammenarbeit mit anderen (Forschungs-)Einrichtungen

Die erfolgreiche Umsetzung des Vorhabens basierte auf enger Kooperation zwischen DLR, den Industriepartnern Sunfire GmbH und Kerafol Keramische Folien GmbH & Co. KG sowie der Universität Bayreuth. Das DLR entwickelte Elektroden inklusive vollständiger Materialcharakterisierung sowie Zell- und Stacktests. Die Universität Bayreuth trug Expertise zur thermo-mechanischen Charakterisierung bei. Kerafol unterstützte mit Know-how aus technischer Keramik und Festoxid-Anwendungen. Sunfire brachte industrielle Perspektive, identifizierte Anwenderprobleme und lieferte Feedback zu HTEL-Herausforderungen. Diese Arbeitsergebnisse flossen direkt in Materialauswahl und Prozessoptimierung ein; die entwickelten Materialien sind materialwissenschaftlich robust und praxistauglich. Regelmäßiger Austausch zwischen allen Partnern ermöglichte Informationsfluss, entscheidend für Projekterfolg und Umsetzung von Forschung in industrielle Prozessoptimierung.

Teil II. Eingehende Darstellung (wird veröffentlicht)

1. Eingehende Darstellung der durchgeführten Arbeiten und Ergebnisse

Die Hochtemperaturelektrolyse (HTEL) zeichnet sich durch einen hohen Wirkungsgrad und niedrige Betriebskosten aus, besitzt jedoch verglichen mit anderen Elektrolisetchnologien einen geringeren technischen Reifegrad. Um die Kommerzialisierung der Technologie zu erleichtern, müssen ihre Investmentkosten weiter gesenkt werden. In diesem Teilvorhaben sollen ausgewählte Komponenten des HTEL-Stacks untersucht und weiterentwickelt werden, um einen Beitrag zur Erhöhung von Leistung und Langlebigkeit zu leisten.

In der momentanen Zelltechnologie der Firma Sunfire wird eine Ni/Gadolinium-dotierte Ceroxid-Wasserstoffelektrode genutzt. Diese Elektrode besitzt eine hohe elektro-katalytische Aktivität und hohe Langlebigkeit im Betrieb mit reinen Brenngasen. Allerdings führt der Betrieb mit Brenngasen, die saure Verunreinigungen enthalten, wie Silizium- oder Schwefelhaltige Verbindungen, zu einer schnellen Degradation und machen eine aufwändige Reinigung der Eingangsgase nötig. Zusätzlich sind Ni-basierte Cermet-Elektroden durch eine Volumenänderung von Ni zu NiO anfällig gegenüber Redoxzyklisierung, was den Betrieb mit reinem Wasserdampf verhindert. Weiterhin wird in Gegenwart hoher Dampfgehalte und hoher Stromdichten der Ni-Katalysator verstärkt aus der Elektrode und insbesondere von der Grenzfläche zwischen dem Elektrolyten und der Elektrode ausgetragen, was zu einer Verarmung des Katalysators führen.

Der erste Aspekt des vorliegenden Teilvorhabens soll deswegen die Entwicklung einer neuartigen, keramik-basierten funktionalen Wasserstoffelektrode sein. Dazu soll eine Komposit-Elektrode entwickelt werden, die auf einer vielversprechenden, am DLR entwickelten Perowskit-Elektrode basiert, die durch das sogenannte elektrochemische Schaltverfahren (Exsolution unter Potenzial) die in-situ-Bildung (Exsolution) metallischer Nanopartikel an der Oberfläche zeigt. Dies ist vor allem für den 'trockenen' Start des Elektrolyseurs ohne Wasserstoff von Interesse. Die entwickelte Elektrode solle eine hohe Toleranz gegenüber sauren Verunreinigungen im Brenngas, wie beispielsweise SiO₂, zeigen. Zusätzlich soll eine keramikbasierte, mit der funktionalen Elektrode kompatible Kontaktschicht entwickelt werden, mit der die Elektrode in dem Stack integriert werden kann. Das Ziel ist die Weiterentwicklung der Elektrode und die Untersuchung des Betriebsverhaltens und der Langlebigkeit in Stackbetrieb-ähnlichen Bedingungen (z.B. hoher Umsatz)

Ein weiterer Degradationsaspekt, der im vorliegenden Teilvorhaben untersucht werden soll, ist die Cr-Abdampfung aus dem metallischen Interkonnektors, die zu einer massiven Degradation der Aktivität der Sauerstoffelektrode und der elektronischen Leitfähigkeit des Interkonnektors führt. Dieser Prozess ist, unter anderem, abhängig von der Höhe des Sauerstoffpartialdrucks und deswegen im Elektrolysebetrieb besonders ausgeprägt. Allerdings wurden die meisten Untersuchungen bis jetzt bei Luftatmosphäre durchgeführt, da dies den gängigen Brennstoffzellenbetriebs-Bedingungen entspricht. Deswegen soll die Untersuchung der Wirksamkeit von Cr-Abdampf-Schutzschichten, die von Sunfire auf den im Stack verwendeten Interkonnektor-Stahl aufgebracht werden. Der beschichtete Interkonnektor soll anschließend mit der Zelle durch eine LSCF-Kontaktpaste verbunden werden und die gesamte Anordnung bei hohen Sauerstoffpartialdrücken > 0.21 bar untersucht werden. Ziel dieser Untersuchung ist die Charakterisierung der Veränderung der Materialeigenschaften, die eine schnelle und irreversible Degradation hervorrufen könnte. Dadurch sollen Empfehlungen für optimierte Materialkombinationen und Betriebsstrategien gegeben werden, die zu einer Verminderung der Degradation führen.

Das dritte Ziel des Teilvorhabens ist das Verständnis des Verhaltens der Ceroxid-basierten Zwischenschichten zwischen Elektrode und Elektrolyt im Elektrolysebetrieb. Dazu sollen mithilfe von physikalischer Gasphasenabscheidung (PVD) verschiedene Dünnschichten hergestellt werden, mit dem Ziel die mechanischen Eigenschaften der Zellen zu erhöhen. Dazu wird die Auswahl optimierter

Zwischenschichten durch die Bestimmung relevanter thermo-mechanischer Kennwerte (Festigkeiten, Ausdehnungskoeffizienten, Wärmeleitung) von der Universität Bayreuth unterstützt. Weiterhin soll deren thermo-chemische Kompatibilität mit dem Elektrolytmaterial und dem Elektrodenfunktionsmaterial untersucht werden. Das Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der Schicht unter Betriebsbedingungen spezifisch für die Elektrolyse, (beispielsweise der chemischen Expansion der Ceroxid-basierten Schicht bei hohem pO₂), die Stabilität bei hohem Dampfanteil im Gas, und die Evaluierung des Preis-/Leistungs-Verhältnis bezüglich der Integration von Dünnschichten in den Hochtemperatur-Elektrolyse-Stack. Die weiterentwickelten Materialien sollen letztendlich in einem Stack integriert werden, um ihre Funktionalität in realitätsnahen Betriebsbedingungen zu testen und mit der Referenz-HTeL-Technologie zu vergleichen.

Eine detaillierte Darstellung der Arbeiten in den verschiedenen Aufgaben ist im Folgenden aufgeführt.

AP HTs.1.2 Zellentwicklung und Langzeitvalidierung

HTs.1.2.DLR.2 Weiterentwicklung der Wasserstoffelektrode für reine SOEC-Fähigkeit

Die Entwicklung einer neuartigen, keramikbasierten funktionalen Wasserstoffelektrode mit erhöhter Toleranz gegenüber sauren Verunreinigungen im Brenngas wurde in einer initialen Phase über mehrere parallel verfolgte Material- und Konzeptansätze realisiert. Als Zellgeometrie wurden das Elektrolyt-gestützte Zellkonzept ausgewählt, welches auch vom Projektpartner Sunfire verbaut wird. Kommerzielle 3YSZ-Elektrolyte mit einer CGO10 Barrierschicht zu den Elektroden wurde verwendet, um eine chemische Reaktion zwischen dem Elektrolyten und den Elektrodenmaterialien zu verhindern.

Der Fokus der Elektrodenentwicklung lag auf Perowskitmaterialien mit gemischter ionischer und elektronischer Leitfähigkeit (MIEC), welche häufig eine überlegener Phasen- und Strukturstabilität in oxidierenden und reduzierenden Atmosphären aufweisen. Eisenmolybdat-Doppelperowskite mit der Formel Sr₂Fe_{1-x}Mo_xO_{6-δ} haben besonderes Forschungsinteresse auf sich gezogen, da ihre Perowskitstruktur, bei der die FeO₆- und MoO₆-Oktaeder auf den B-Plätzen geordnet sind, zu einer hohen elektronischen Leitfähigkeit führt, die für Sr₂FeMoO_{6-δ} bis zu 300 S·cm⁻¹ erreichen kann. Allerdings zeigte sich, dass der Wärmeausdehnungskoeffizient von SrFe_{0.75}Mo_{0.25}O_{3-δ} (SFM) mit $\alpha_{\text{SFM}} = 16,8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ im Bereich von 100-1190°C nicht zur Ausdehnung der CGO-Zwischenschicht ($\alpha_{\text{CGO}} = 12,7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) passte, weshalb die SFV-Elektrode in Folge großer thermischer Eigenspannungen während der Herstellung delaminierte. Im Gegensatz dazu zeigten die SrFe_{0.75}Mo_{0.25}O_{3-δ}/Ce_{0.9}Gd_{0.1}O_{2-δ} Komposit-Brenngaselektrode nach dem Sintern bei 1100°C eine gute Haftung an der CGO-Zwischenschicht, was höchstwahrscheinlich auf die Verringerung des Wärmeausdehnungskoeffizient der Elektrodenschicht zurückzuführen ist. Nach dem Tempern wurde eine Dicke der Brennstoffelektrode von $\approx 15 \mu\text{m}$ erreicht. Das Röntgendiffraktogramm der Komposit-Brenngaselektroden in Abbildung 1 zeigt, dass das Material nach der Kalzinierung bei 1100 °C an Luft phasenrein war und sich keine unerwünschten Nebenphasen bildeten.

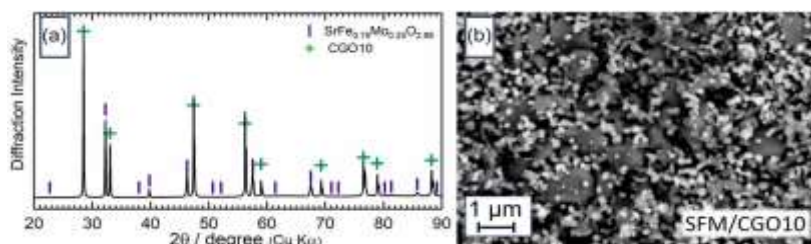


Abbildung 1: Diffraktogramm des SFM/CGO Pulvers und b) REM-Bild des SFM/CGO Pulvers. Alle Proben wurden bei 1100 °C für 1 h an Luft kalzinieren. (Matthias Riegraf et al. 2026 Adv. Energy Sustainability Res. 7, e202500361).

Die Phasenstabilität der Brenngaselektrode wurde in reduzierender Atmosphäre bei 5% H₂/Ar und 100% H₂ charakterisiert, um das Materialverhalten bei Einsatzbedingungen zu testen (Abbildung 2). Im Zuge der

Elektrodenreduzierung kam es zu einer Änderung der Gitterparameter durch umfangreiche Auslösung von Fe-Nanopartikel. Bei 800 °C, in 5% H₂/Ar, zeigt sich, dass die SFM-Phase auf 6,3 mol% zurück geht und es zu einem Anstieg der Fe-Phase auf 16,4 mol% kommt. Darüber hinaus wurden die Ruddlesden-Popper (R-P) Phasen Sr₂(MoFe)O₄ (4,4 mol%) und Sr₃(MoFe)₂O₇ (8,9 mol%) gebildet, was auf Zersetzungsreaktionen wie in Gleichung 1 und 2 hindeutet.

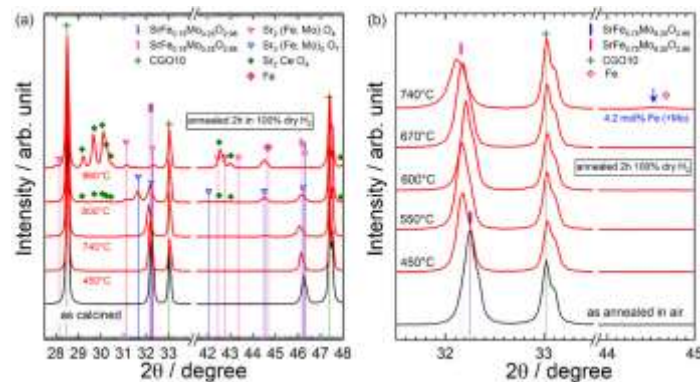
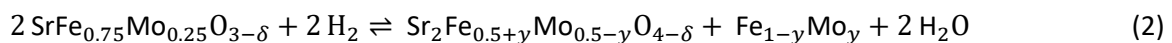
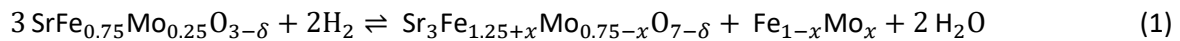


Abbildung 2: Diffraktogramm des kalzinierten SFM/CGO-Pulvers und des Pulvers, das in reinem Wasserstoff für 2 Stunden bei verschiedenen Temperaturen reduziert wurde. (Matthias Riegraf et al. 2026 Adv. Energy Sustainability Res. 7, e202500361).

Halbzellen wurden mittels Siebdruck- und des Sinterverfahren hergestellt und für 2 h bei 800 °C in reinem Wasserstoff reduziert. Abschließend wurden die reduzierten Proben und eine nicht reduzierte Referenzprobe mit Hilfe der NanoSIMS-Analyse untersucht. Die präparierte SFM/CGO-Elektrode der Referenzprobe in Abbildung 3c-e zeigt zwei klar getrennte Phasen. Die blaue Farbe, die dem Ce-Signal entspricht, zeigt das Vorhandensein der CGO-Phase an. Die gelbe Farbe ergibt sich aus der Mischung der Sr- (grün) und Fe-Signale (rot) und zeigt eine homogene Zusammensetzung der ursprünglichen SFM-Phase. Im Gegensatz dazu zeigt das SIMS-Bild der reduzierten SFM/CGO-Elektrode in Abbildung 3g,h eine Reihe anderer Farben, die auf das Vorhandensein weiterer Phasen in der Elektrode hinweisen. Während die blaue CGO-Phase immer noch in großer Menge vorhanden ist, hat die Fläche der gelben SFM-Phase im Querschnitt deutlich abgenommen, was auf ihre Zersetzung hinweist. Dies ist demnach konsistent mit den Pulverergebnissen aus Abbildung 2.

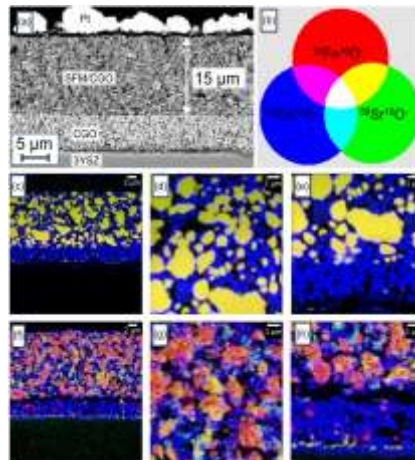


Abbildung 3: SEM-Bild der polierten Probe der SFM/CGO-Brennstoffelektrode im Herstellungszustand, b) Überlagerung der RGB-Zusammensetzung der analysierten Sekundärionenintensitäten von $56\text{Fe}16\text{O}$ -, $88\text{Sr}16\text{O}$ - und $140\text{Ce}16\text{O}$ -. c-h) SIMS-Elementkartierung, die ihre Verteilung in der interessierenden Region zeigt, die die SFM/CGO-Brennstoffelektrode (c-e) im Herstellungszustand und (f-h) reduziert in reinem Wasserstoff bei 800 °C für 2 h umfasst. c,f: $30\text{ }\mu\text{m}$ Rastergröße; d,e,g,h: $10\text{ }\mu\text{m}$ Rastergröße. (Matthias Riegraf et al. 2026 Adv. Energy Sustainability Res. 7, e202500361).

Die anfängliche Leistung der hergestellten Einzelzellen bei 800 °C wurde mit Hilfe der Strom-Spannungskennlinie (i-V-Kurve) und der elektrochemischen Impedanzspektroskopie bewertet. Es wurde ein Vergleich zwischen Zellen einer industriell eingesetzten Ni/CGO-Brennstoffelektrode und einer SFM/CGO-Elektrode durchgeführt. Die durchschnittliche Performanz der Zellen ist in Tabelle 1 dargestellt und zeigt, dass die SFM/CG-Elektrode nah an der Leistung der Ni/CGO Elektrode liegt. Ein detaillierter Vergleich der Zellwiderstände im Bode-Plot zeigte auf, dass sich die Zelleistung auf einen höheren Widerstand der SFM/CGO -Elektrode im Frequenzbereich 1-10 Hz zurückführen lässt, welcher höchstwahrscheinlich mit der Brennstoffelektrode zusammenhängt.

Tabelle 1: Vergleich der elektrochemischen Performanz von Elektrolyt-gestützten Einzelzellen mit Ni/CGO und SFM/CGO Brenngaselektroden.

	Ohmscher Widerstand	Polarisationswiderstand	Leistungsdichte	Stromdichte i @ 0.6 V
	$R_{\text{ohm}} @\text{OCV} [\Omega \text{ cm}^2]$	$R_{\text{pol}} @\text{OCV} [\Omega \text{ cm}^2]$	$P_{@0.6\text{V}} [\text{W cm}^{-2}]$	$i_{@0.6\text{V}} [\text{A cm}^{-2}]$
SFM/CGO	0.67 ± 0.06	0.19 ± 0.03	0.37 ± 0.04	0.62 ± 0.06
Ni/CGO	0.64 ± 0.00	0.14 ± 0.00	0.40 ± 0.01	0.68 ± 0.01

Die Langzeitleistung und Haltbarkeit der SFM/CGO-Brennstoffelektrode wurde des Weiteren mit und ohne Zusatz von H_2S im Brenngas bei 800 °C und $0,375\text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ über Zeiträume von 600-700 h untersucht. Die Zelle ohne Schwefelzusatz zeigt in Abbildung 4a im Dauerbetrieb einen Spannungsabfall von 32 mV über 573 h, während die Zelle, zu deren Betriebsatmosphäre 20 ppm Schwefelwasserstoff ausgesetzt war, nur einen Spannungsabfall von 12 mV aufwies.

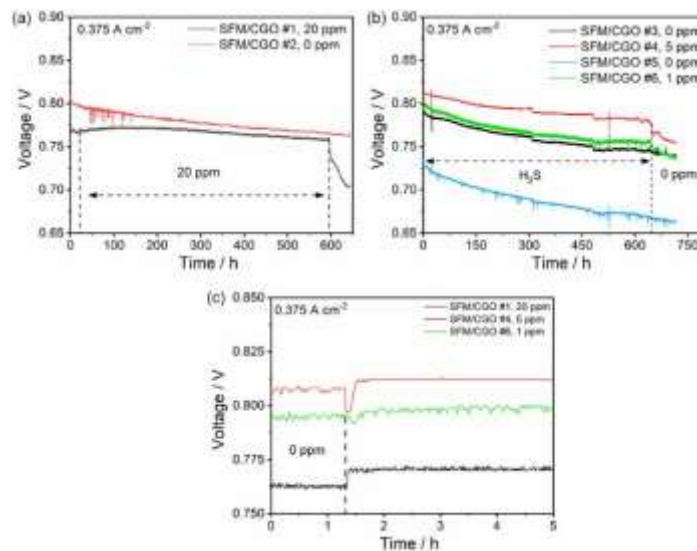


Abbildung 4: Haltbarkeitstests von Zellen auf SFM/CGO-Basis bei 800 °C, 97% H₂, 3% H₂O und 0,375 A·cm⁻² mit a) 0 (SFM/CGO #2) und 20 ppm H₂S (SFM/CGO #1) über 644 h, b) 0 (SFM/CGO #3 und SFM/CGO #5), 5 ppm H₂S (SFM/CGO #4) und 1 ppm H₂S (SFM/CGO #6) über 670 h. c) Kurzzeitige Schwefelvergiftungstests für die Zellen mit 1, 5 und 20 ppm H₂S. Die Zellspannungen in Abbildung b) zeigen zwei Einbrüche bei 300 und 500 h, die auf die Erschöpfung des Wassers im Bubbler zurückzuführen sind.

Nach dem Wiederauffüllen erholten sich die Spannungen. (Matthias Riegraf et al. 2026 Adv. Energy Sustainability Res. 7, e202500361).

Nach dem Langzeittest wurden die Zellen im Rasterelektronenmikroskop mittels Energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) untersucht. Die Ergebnisse in Abbildung 5 zeigen eine homogene Verteilung von Ce in beiden Elektroden, während die Elemente Sr, Fe und Mo heterogen verteilt sind. Eine reduzierte EDX-Intensität für Fe und Mo wurde innerhalb von 5 µm des Pt-Stromkollektors in beiden Elektroden beobachtet. Zudem wurden Strontiumausscheidungen aus den SFM-Elektroden in beiden Fällen entdeckt und ähnliche Ausscheidungen auch in den CGO-Zwischenschichten beobachtet. Dieses Verhalten deutet auf eine Entmischung der SFM-Phase und eine hohe elementare Mobilität innerhalb der Elektrode hin. Die gebildeten metallischen FeMo-Partikel weisen ebenfalls eine hohe Diffusionsmobilität auf, die die bevorzugte Diffusion von Fe und Mo weg vom Stromkollektor hin zu Regionen, in denen sie sich in verschiedenen Formen stabilisieren, wie z. B. R-P-Phasen, vorantreiben könnte. Aufgrund der Instabilität der SFM-Phase, wurde das Material nicht weiter für den Elektrolysebetrieb eingesetzt.

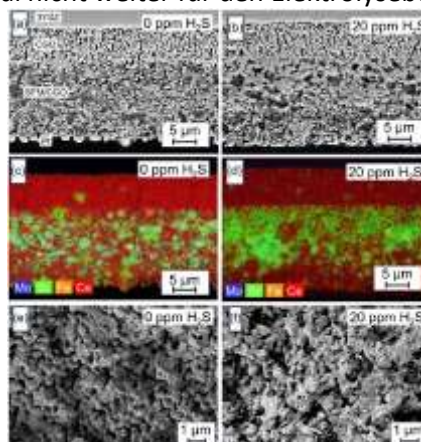


Abbildung 5: a,b) Polierte REM-, c,d) EDX- und e,f) Bruch-SEM-Bilder von (a,c,e) SFM/CGO #2 und (b,d,f) SFM/CGO #1. Die polierten SEM/EDX-Bilder der SFM/CGO #2 Proben zeigen noch die Pt-Stromabnehmerschicht, während die Pt-Schicht von SFM/CGO #1 nach dem Test entfernt wurde. (Matthias Riegraf et al. 2026 Adv. Energy Sustainability Res. 7, e202500361).

Zwei weitere Materialklassen, welche im Rahmen des Arbeitspaketes erforscht wurden, sind Chrom-Manganit- und Titanat-basierte Perowskite. Die Adhäsion der Materialien mit dem Elektrolytsubstrat wurde untersucht und mittels Variation der Sinter Temperatur und Schichtdicke wurde eine gute Haftung der Elektroden in Vollzellen erhalten. Beide Materialklassen zeigen ähnlich dem SFM eine Herauslösung von metallischen Nanopartikeln nach erfolgter Reduktion in Formiergas (5%H₂/Ar). Die Porosität der Elektroden und die Partikelgröße < 1 µm konnte ebenfalls mittels energiedispersiver Röntgenstrukturanalyse erfolgreich nachgewiesen werden.

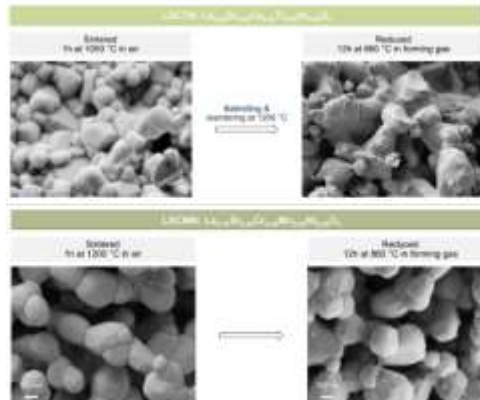


Abbildung 6: Nachweis der Herauslösung von Nanopartikeln nach erfolgter Reduktion in Formiergas mittels Rasterelektronenmikroskopie.

Ausgehend von den Versuchen zur Adhäsion wurden elektrolytgestützte Vollzellen mit 1x1 cm² aktiver Fläche und den verschiedenen Brenngaselektrodenmaterialien mithilfe von Siebdruck und Sinterverfahren hergestellt und anschließend elektrochemisch charakterisiert. Impedanzen wurden bei OCV aufgenommen und die Zellen bis zu 500 h elektrochemisch bei -750 mA·cm² gealtert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7 und Tabelle 2 dargestellt. **La_{0.40}Sr_{0.40}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃** (LSTN) zeigt über den Alterungstests in 50% H₂O + 50% H₂ bei 860 °C eine deutliche Erhöhung des Polarisationswiderstandes von 0,16 Ω·cm² auf 0,23 Ω·cm² (Δ_{500h}=0,07 Ω·cm²). Die Änderung des ohmschen Widerstands dagegen ist gering. **La_{0.20}Sr_{0.25}Ca_{0.45}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃** (LSTCN) zeigt bis 168 h nur eine geringere Degradation von 0,02 Ω·cm² auf und bleibt danach stabil. Dagegen zeigt **La_{0.40}Ca_{0.40}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃** (LCTN) die höchste Degradation der Titanat-Materialien mit Δ_{500h}=0,23 Ω·cm².

Die Chrom-Manganit-basierten Materialien zeigen im Vergleich zu den Titanat-Materialien eine sehr ausgeprägte Degradation des ohmschen Widerstandes mit einer nur geringen Degradation des Polarisationswiderstandes. Sowohl **La_{0.70}Sr_{0.30}Cr_{0.50}Mn_{0.50}O₃** (LSCM) als auch **La_{0.70}Sr_{0.30}Cr_{0.45}Mn_{0.50}Fe_{0.05}O₃** (LSCMF) zeigen zudem, dass sich die ohmschen Degradation nach etwa 300 h verlangsamt.

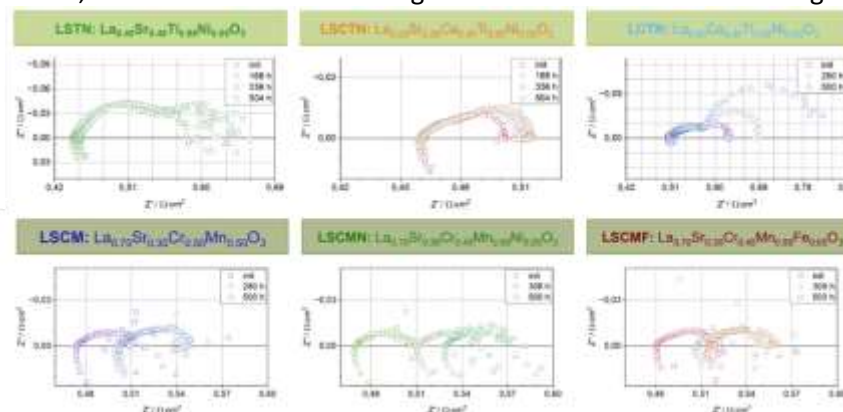


Abbildung 7: Impedanzspektren der Einzelzellen mit den unterschiedlichen Chrom-Manganit- und Titanat-basierten Brenngaselektroden.

Tabelle 2: Elektrochemische Leistung von Einzelzellen.

	Abb.	Zellspannung @ -750 mA·cm ² / V	Zunahme Zellspannung mV / kh
La_{0.40}Sr_{0.40}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃	LSTN	1.36	72.9
La_{0.20}Sr_{0.25}Ca_{0.45}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃	LSCTN	1.29	44.0
La_{0.40}Ca_{0.40}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃	LCTN	1.39	374
La_{0.70}Sr_{0.30}Cr_{0.50}Mn_{0.50}O₃	LSCM	1.30	61.1
La_{0.70}Sr_{0.30}Cr_{0.45}Mn_{0.50}Ni_{0.05}O₃	LSCMN	1.29	92.9
La_{0.70}Sr_{0.30}Cr_{0.45}Mn_{0.50}Fe_{0.05}O₃	LSCMF	1.31	92.9

Basierend auf den Ergebnissen der unterschiedlichen Chromat- und Titanatelektroden wurden Kompositelektroden aus einer Mischung von Titanat- und Chromatmaterialien auf den bekannten 3 YSZ-Substraten mithilfe von Siebdruck und Sinterverfahren hergestellt und anschließend elektrochemisch charakterisiert bei 860 °C über 500 h. Diese neuen Kompositelektroden zeigten keine Verbesserung des Degradationsverhaltens im Vergleich zu LSCTN. Auf Grundlage der durchgeführten elektrochemischen Charakterisierungen von Chromat- und Titanat-basierten Materialien, wurde La_{0.20}Sr_{0.25}Ca_{0.45}Ti_{0.95}Ni_{0.05}O₃ (LSCTN) als vielversprechendstes Elektrodenmaterial zur Stackintegration ausgewählt. Der Fertigungsprozess dieser Elektrode für 5x5 cm² Zellen wurde erfolgreich auf die für den Stack vorgesehenen 14,2x9 cm² Substrate übertragen (Abbildung 8).

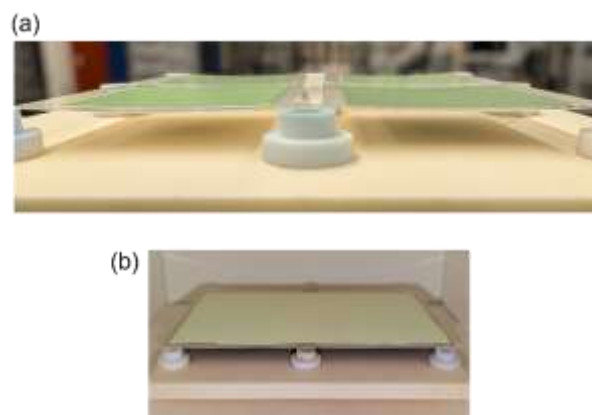


Abbildung 8: (a) Vergleich der Zellkrümmung hergestellter Einzelzellen mit LSCTN und industriell hergestellten Sunfire Zellen. (b) Hergestellte 7 x 10 cm² - Einzelzelle mit LSCTN Brenngaselektrode.

Die keramikbasierte (Perowskit-)Elektrode mit Platinkontaktierung zeigten auf Zelllevel zuverlässig ähnliche Performance wie die SoA Nickel-Cermet-Elektrode, sowie geringe Degradationsraten. Eine nickelbasierte Kontaktschicht wurde entwickelt, um die auf Stackgröße hochskalierten Zellen in dem Sunfire-Stack einzubauen, welcher Nickelkontaktschichten nutzt. Die Zellen in der Größe 5x5 cm zeigen mit dieser nickelbasierten Kontaktschicht identisch gute ohmsche Widerstände, wie bei der Platinkontaktierung. Allerdings kommt es bei der Nutzung der nickelbasierten Kontaktschicht zu Performance Einbußen aufgrund eines noch nicht näher identifizierten niedrigfrequenten Polarisationsprozesses. Wegen begrenzter Kapazitäten zur Fertigung und wegen des dann geringeren TRLs wurde seitens Sunfire auch kein Stacktest mit Platinkontaktierung der Elektrode gewünscht, weshalb die Leitfähigkeit der Kontaktschicht und die chemische Kompatibilität der beiden Materialien LSCTN und Nickel in Abhängigkeit von Temperatur und Gasatmosphäre charakterisiert wurde. Dafür wurde der Widerstand von Nickel-LSCTN-Schichtstrukturen bei unterschiedlichen Bedingungen gemessen sowie Pulverproben der beiden Materialien nach den jeweiligen Prozess- und Betriebsschritten mittels XRD analysiert.

Zunächst wurde die chemische Kompatibilität von NiO und LSCTN mittels Röntgendiffraktometrie untersucht. Dazu wurden alle Pulver bei der späteren Zellsinter-temperatur von 1050 °C vorgesintert und anschließend bei 960 °C in Formiergas (5% H₂-N₂) reduziert. Die Röntgendiffraktogramme für NiO Pulver, LSCTN, und die, in der Kugelmühle vermischte, LSCTN-NiO-Mischung sind in Abbildung 9 dargestellt. Das Ergebnis zeigt, dass es zu keiner Sekundärphasenbildung bei den gegebenen Sinter- und Messbedingungen zwischen der NiO-Kontaktschicht und dem Elektrodenmaterial kommt.

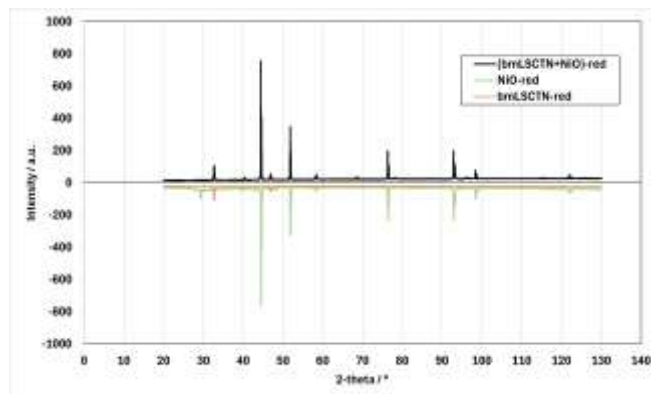


Abbildung 9: Röntgendiffraktogramme für die Pulver NiO, LSCTN und die NiO-LSCTN-Pulvermischung nach Reduktion in 5% H₂-N₂ bei 960 °C für 10 h.

Im nächsten Schritt wurden dichte Pelletproben hergestellt, welche mit unterschiedlichen Kontaktschichten auf ihren Widerstand in unterschiedlichen Gasatmosphären und variabler Temperatur gemessen werden sollten. Pelletproben mit einem Durchmesser von 19,434 mm und einer Dicke von 1,396 mm wurden mittels Isostatischem Druck hergestellt. Die anschließende Dichtemessung nach Archimedes zeigte eine relative Dichte von 97,6%. Die Probe wurde in ein kommerzielles Zwei-Elektroden-Vier-Sonden-Testsystem (ProboStat, NORECS AS, Norwegen) eingebaut. Mit 1 K·min⁻¹ wurde die Probe in N₂ auf 900 °C aufgeheizt und danach schrittweise reduziert, indem der N₂ Anteil verringert und der H₂ Anteil erhöht wurde. Eine potentiostatische Spannung von 10 mV wurde angelegt und der Strom wurde beobachtet. Nachdem es keine weitere Veränderung im Strom gab, wurde der Widerstand der reduzierten Probe zunächst in Formiergas, danach in 100% H₂ und in bei 3% H₂O-97% H₂ zwischen 740 °C und 900 °C gemessen. Die Ergebnisse in Abbildung 10 zeigen den erwarteten Trend, dass die Probe mit steigendem Wasserstoffanteil eine zunehmende Leitfähigkeit aufweist. Die Messungen im befeuchteten Wasserstoff allerdings weisen nur eine unmerklich höhere Leitfähigkeit auf als in 100% H₂. Die Ergebnisse dieses Testes weisen darauf hin, dass das Messprotokoll für die Einzelzellen zu komplett reduzierten Zellen führt und die Kontaktierung mit NiO-Paste möglich ist. Die Ursache für die abweichenden Messergebnisse bei der experimentellen Testung der Einzelzellen konnte nicht eruiert werden. Die chemische Kompatibilität und auch die ausreichende Leitfähigkeit der Probe mit NiO Kontaktschicht ist nachgewiesen. Die NiO-Kontaktschicht könnte mit dem Elektrodenmaterial als Gemisch hergestellt und somit eine Misch-Kontaktschicht als neuer Ansatz verfolgt werden.

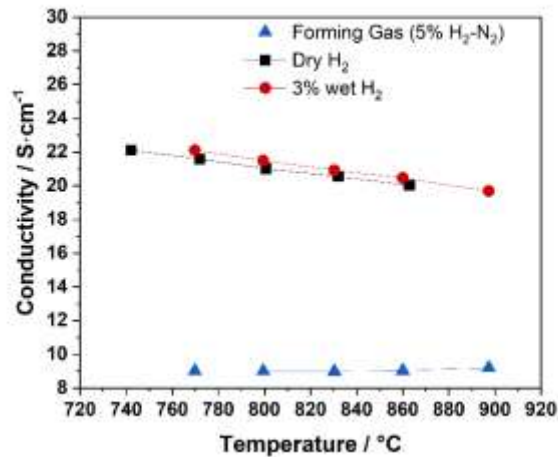


Abbildung 10: Leitfähigkeitsmessung eines LSCFN-Pellets mit NiO Kontaktschicht.

AP HTs.1.3 Materialentwicklung für Stackkomponenten

HTs.1.3.DLR.2: Untersuchung von neuen Materialien für Metallkomponenten im Stack (neue Materialien, neue Schutzschichten)

Ziel dieses Teilpaketes war die Untersuchung der Wirksamkeit von Cr-Abdampf- Spinellschutzschichten, die von Sunfire auf den im Stack verwendeten Interkonnektor-Stahl aufgebracht wurden. Bei den Versuchen wurde die Auslagerung der verschiedenen Materialkombinationen in der Größe 50x50 mm² bei 100% Sauerstoff und 860 °C für 1000-1500 h mit gefügten Sandwichproben Crofer mit Schutzschicht/Glaslot/Crofer, sowie als Vergleich Crofer/Glaslot/Crofer durchgeführt. Anschließend wurde die Wirksamkeit der Spinellschutzschichten mittels strukturanalytischer Methoden untersucht. Bei den Referenzproben ohne Schutzschicht zeigt sich der für das Crofer 22 APU typische CrMn-Spinell als Oxidschicht. Diese reicht jedoch nicht aus, um eine Diffusion von Legierungselementen ins Glaslot zu verhindern. Dabei zeigte sich, dass die 1 µm dicken Spinellschutzschicht noch nicht ausreichend ist und eine verminderte Barrierewirkung aufweist. Es wurden Legierungsbestandteile wie Chrom und Mangan in der Schutzschicht als auch in einer zweiten Al-reichen Oxidschicht, die sich oberhalb der Schutzschicht gebildet hat, nachgewiesen.

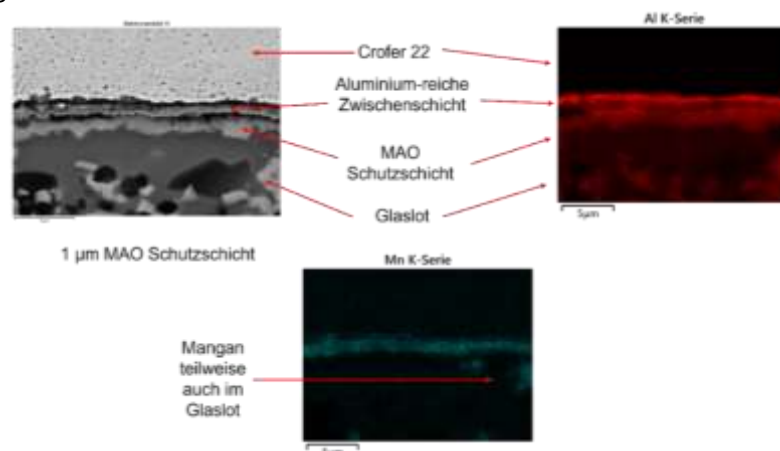


Abbildung 11: Nachuntersuchte Sandwichprobe mit 1 µm dicken MAO-Spinellschutzschicht.

Bei der 3 µm dicken Schicht ist die Schutzwirkung gegen die Chromdiffusion gegeben und es findet sich nichts in der Schutzschicht und auch keine zweite Oxidschicht oberhalb der Schutzschicht.

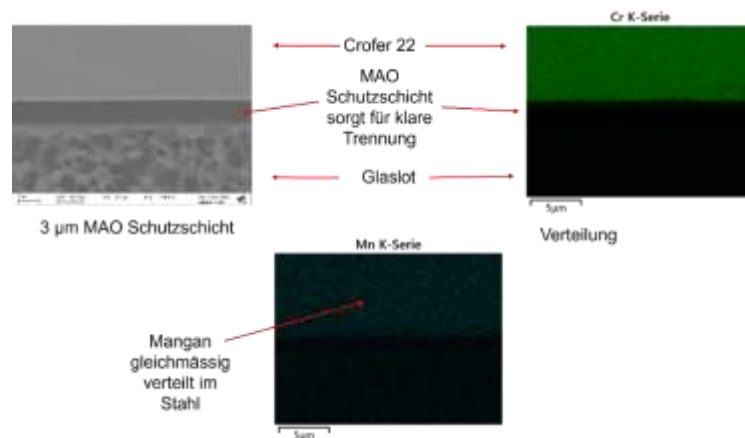


Abbildung 12: Nachuntersuchte Sandwichprobe mit 3 µm dicken MAO-Spinellschutzschicht.

AP HTs.1.3.DLR.3: Untersuchung der verbesserten Materialien auf neuartige Umgebungsbedingungen (hoher Druck, Co-SOEC-Atmosphäre)

Um das Verhalten der Ceroxid-basierten Zwischenschichten zwischen Elektrode und Elektrolyt im Elektrolysebetrieb zu testen, wurde ein Regenbogen-Stack mit CGO-Dünnschichten betrieben. Die RUs vom unteren Ende des Stapels bis zum oberen Ende wurden als RU1 bis RU 30 nummeriert, darunter RU6, RU19 und RU26 mit EB-PVD-GDC-Schichten an der Sauerstoffelektrode und siebgedruckter GDC an der Brennstoffelektrode (PVDx1). RU 8, RU 17 und RU 28 wurden mit EB-PVD GDC-Schichten an beiden Elektroden (PVDx2) ausgestattet, während die restlichen 24 RUs siebgedruckte GDC-Schichten an beiden Elektroden (SoA) hatten.

Der Stack mit 30 Ebenen, bei dem 7 Zellen CGO-Dünnschichte enthielten (sog. „Regenbogen-Stack“), wurde im SOEC-Betrieb über eine Gesamtdauer von 7200 h getestet. Der Stack wurde dazu bei einer Temperatur von 837 °C mit einer Dampfzufuhr von 14,62 SLPM H₂O + 1,83 SLPM H₂ + 1,83 SLPM N₂ und einer Luftzufuhr von 60 SLPM betrieben. Der Stack zeigte dabei eine sehr hohe Gasdichtigkeit und ein gutes und reproduzierbares Leistungsverhalten. Um 75% des Dampfes bei einer Stromdichte von -0,41 A·cm⁻² in H₂ umzusetzen, waren eine Elektrolysespannung von 37,8 V bzw. eine Elektrolyseleistung von 1980 W erforderlich. Dies entspricht einem sehr hohen elektrischen Stackwirkungsgrad von 99,5 %. Abbildung 13 zeigt die Elektrolysespannungen der 30 RUs bei einer Stromdichte von -410 mA·cm⁻² (75% Dampfumwandlung) mit der Gasversorgung von 80% H₂O + 10% H₂ + 10% N₂/Luft. Leistungsschwankungen der RUs mit unterschiedlicher Orientierung im Stack wurden in früheren Arbeiten beobachtet und berichtet. Die Elektrolysespannungen aller anderen RUs lag im Bereich von 1,24 V bis 1,28 V. Die durchschnittlichen Elektrolysespannung der PVDx1-Zellen betrug ca. 1,265 V, was sehr nahe an der durchschnittlichen Betriebsspannung von 1,259 V lag, die von SoA-Zellen und PVDx2-Zellen erhalten wurde. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass Zellen mit den fortschrittlichen Dünnschicht-EB-PVD-GDC-Schichten eine ähnliche Anfangsleistungen wie Zellen mit SoA-Siebdruck-GDC-Schichten erreichen.

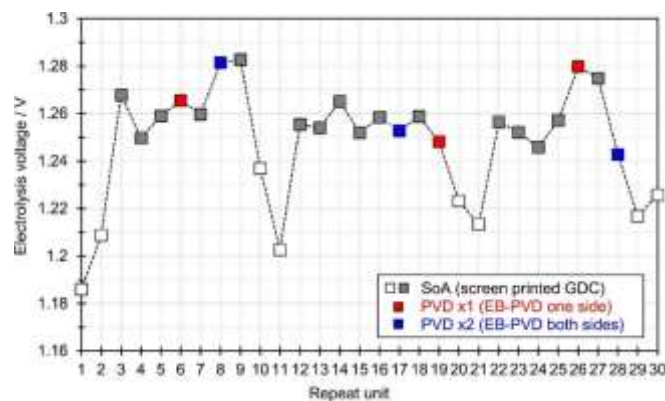


Abbildung 13: Anfängliche Elektrolysespannungen von RU mit SoA-Zellen und Zellen mit Dünnschicht-GDC-Schichten bei 846 °C (T₁₃) bei 75% Dampfumwandlung mit einer Brenngaszusammensetzung von 80% H₂O + 10% H₂ + 10% N₂ und Luft bei -410 mA·cm⁻². (Feng Han et al 2024 J. Electrochem. Soc. 171 054515).

Im SOEC-Langzeitbetrieb wurde eine Spannungsdegradation von +10,9 mV·kh⁻¹ pro Ebene beobachtet, was einer sehr niedrigen relativen Degradation von +0,9 %·kh⁻¹ entspricht. Die Ebenen mit CGO-Dünnschicht-Zellen zeigten ähnlich niedrige Degradationsraten wie die Ebenen mit den Standardzellen. Die Degradationsraten der einzelnen Zellvarianten mit und ohne Barrierschichten wurden ermittelt und mit Impedanzmessungen verglichen. Die Standardzellen zeigten eine Degradationsrate von +10,1 mV·kh⁻¹. Für die Zellen mit GDC-Barrierschicht nur auf der Lufterktrdenseite belief sich die Degradationsrate auf +9,4 mV·kh⁻¹ und bei beidseitigen GDC-Barrierschicht dann auf +12,0 mV·kh⁻¹ (Abbildung 14). Die Zellen liegen somit in einem ähnlichen Bereich. Impedanzmessungen am Stack zeigten, dass die Degradation wesentlich durch die Veränderung des Beitrages des Polarisationswiderstandes bestimmt wird, welcher unabhängig ist von den GDC-Schichten.

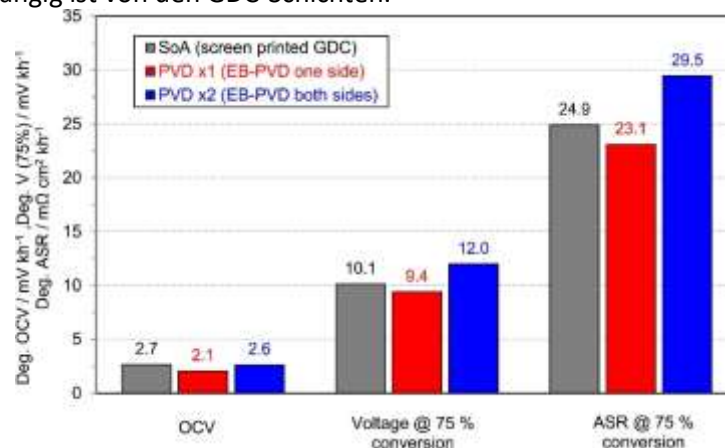


Abbildung 14: Durchschnittliche Degradation von OCV, Betriebsspannung und ASR der verschiedenen Zelltypen während des SOEC-Langzeittests bei einer konstanten Stromdichte von -410 mA·cm⁻². (Die durchschnittliche Degradation der SoA RUs wird ohne RU 1, RU 2, RU 10, RU 11, RU 20, RU 21, RU 29 und RU 30 berechnet). (Feng Han et al 2024 J. Electrochem. Soc. 171 054515).

Um die Degradationsmechanismen im Stack zu verstehen, wurden repräsentative Ebenen und Zellen des getesteten Stacks zur Material- und Strukturanalyse (Metallografie, Rasterelektronenmikroskopie und Energiedispersiver Röntgenstrukturanalyse) ausgewählt.

Die entsprechenden Grenzflächen des Elektrolyten zur Lufterktrdenseite und zur Brennstoffelektrode sind in Abbildung 15b bzw. 9c dargestellt. Die PVD-GDC als Sr-Diffusionssperrschicht auf der Lufterktrdenseite (Abbildung 15b) blieb während des Langzeitbetriebs stabil. An der Grenzfläche GDC/YSZ blieb die Interdiffusionsschicht, die sich während der Kalzinierung der Lufterktrdenseite bei 1050 °C gebildet hatte, etwa 100 nm dick und zeigte keine sichtbaren mikrostrukturellen Veränderungen. Die PVD-GDC-

Dünnschicht mit einer Dicke von 0,5 μm kann als effektive Sr-Diffusionsbarriereschicht im ESC-Stack für den Langzeitbetrieb sowohl im SOFC- als auch im SOEC-Modus eingesetzt werden. Im Gegensatz dazu wurde die PVD-GDC-Schicht auf der Seite der Brennelektrode (Abbildung 15) während der Herstellung der Brennelektrode bei einer viel höheren Kalzinierungstemperatur vollständig in der YSZ-Schicht aufgelöst und bildete einen GDC-YSZ-Mischkristall. Im Vergleich dazu wurde in SoA-Zellen mit siebgedruckten GDC-Schichten ebenfalls eine Interdiffusion in die YSZ-Schicht beobachtet, allerdings nicht mit vollständiger Auflösung in den YSZ-Elektrolyten.

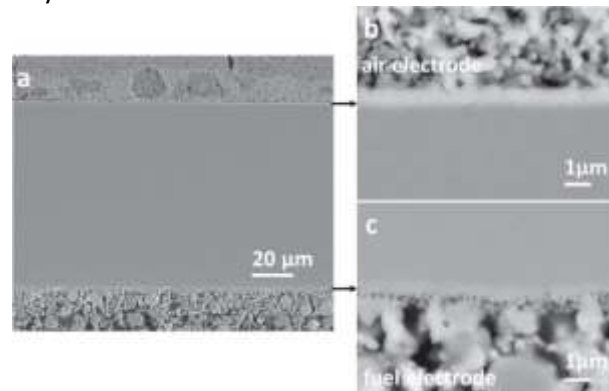


Abbildung 15: REM-Querschnitt der Zelle von RU 17 mit beidseitiger PVD-GDC (PVDx2) nach dem Test: (a) Überblick über die Zellstruktur, (b) PVD-GDC auf der Lufterlektrodenenseite, (c) PVD-GDC auf der Brennstoffelektrodenenseite. (Feng Han et al 2024 J. Electrochem. Soc. 171 054515).

Zur Untersuchung der SrZrO-Zwischenschicht, wurde eine Zelle des Projektpartners Sunfire nach 11.00 h SOEC-Betrieb im FIB-SEM untersucht, um die genauen strukturellen Änderungen an der Elektrolyt/CGO Schnittstelle zu bestimmen. Dies war nicht in den Projektzielen formuliert, aber wurde priorisiert, da die Vermeidung der Sr-Diffusion zu den entscheidenden Entwicklungszielen der Industrie gehört und auch von Seiten es Projektpartner als dringlich angesehen wird.

Dazu wurde die Zelle gebrochen und der zu untersuchende Querschnitt mit dem Cross-section polisher von Hitachi (Ion Milling System ArBlade 5000) ionenstrahlpoliert (Abbildung 16a). Zur weiteren Untersuchung wurde ein Rasterelektronenmikroskop Zeiss Crossbeam 350 (high-end Field Emission with FIB) genutzt, welche mit einem Gallium liquid metal ion source ausgestattet ist. Nach der Probenpräparation wurden schrittweise Schichten von 10 nm abgetragen (Abbildung 1216b). Dabei wurde auf der Seite der LSCF/CGO Lufterlektrode (3 μm) angefangen, gefolgt von der CGO-Schutzschicht (5 μm), einer SrZrO-Zwischenschicht (300 nm) und des ScsZ Elektrolyten (6 μm).

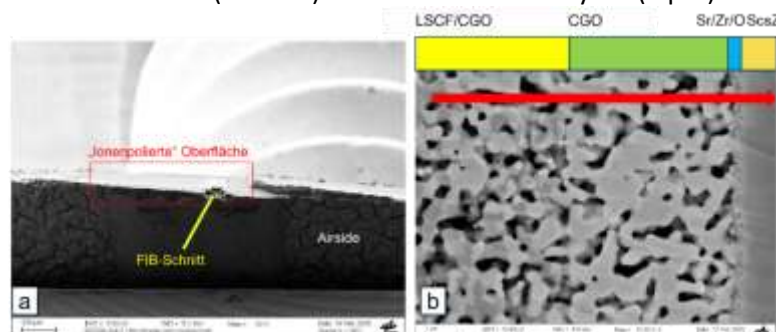


Abbildung 16: (a) Probenpräparation auf der Zell-Luftseite mittels eines FIB-Schnittes. (b) Schnittreihenfolge der einzelnen Schichten mittels REM-FIB.

Die Ergebnisse der Materialanalyse mittels energiedispersiven Röntgenspektroskopie-untersuchung ist in Abbildung 17 dargestellt. Die Ergebnisse zeigen eine deutliche Diffusion des Strontium aus der LSCF/CGO-

Luftelektrode durch die CGO-Barrierschicht an die Schnittstelle zwischen der CGO und dem ScsZ-Elektrolyten, wo sich eine SrZrO-Schicht ausbildet.

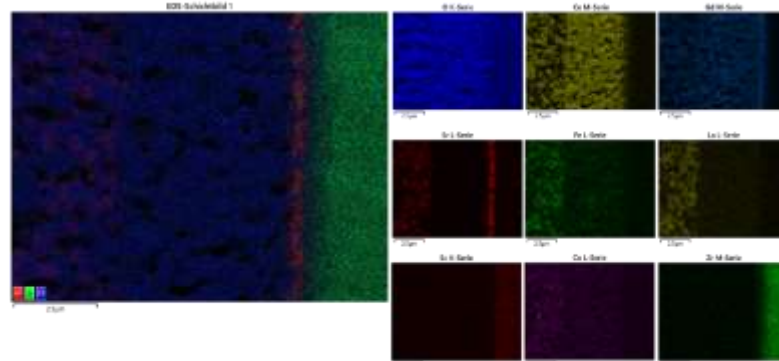


Abbildung 17: Ergebnisse der energiedispersiven Röntgenspektroskopieuntersuchung des Zellquerschnitts auf der Luftseite.

Um die 3-D-Mikrostruktur der SOEC-Zellen rekonstruieren zu können, wurden gezielt DLR interne FIB-SEM-Kompetenzen ausgebaut. Durch die fortschrittliche Mikrostruktur-rekonstruktion konnte die Porenverteilung exakt in einem 3D Modell dargestellt und somit potenzielle Alterungsprozesse der Zellmikrostruktur sichtbar gemacht werden (Abbildung 18). Die daraus gewonnenen Daten wurden dem Industriepartner zur Verfügung gestellt, sodass er diese Erkenntnisse direkt in die Weiterentwicklung und Optimierung seiner Zellen integrieren kann.

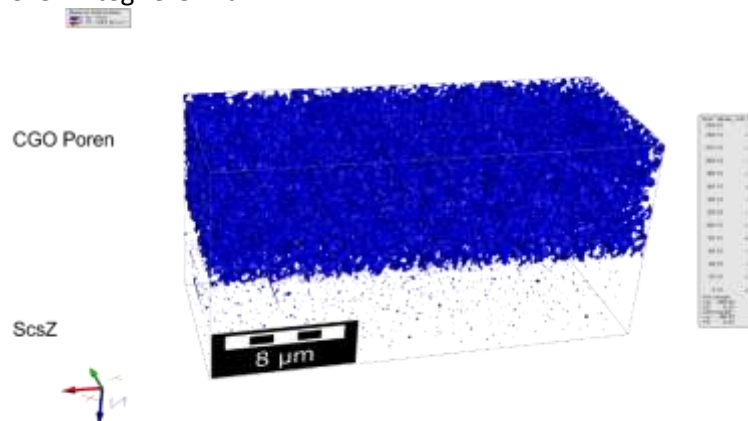


Abbildung 18: 3D Rekonstruktion der CGO-Mikrostruktur mittels FIB-SEM.

2. Darstellung der wichtigsten Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

2.1 Teststände und Prüfeinrichtungen

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden folgende wesentliche Teststände und Prüfeinrichtungen eingesetzt, die notwendig waren, um die technischen Ergebnisse zu validieren:

Elektrochemische Teststände:

- **Einzelzell-Teststände:** Elektrolytgestützte Einzelzellen (1x1 cm² und 5x5 cm²) wurden mittels Siebdruckverfahren hergestellt und in Testständen bei konstanten Strömen im SOEC-Betrieb getestet.

Begründung: Diese Tests waren notwendig, um die Degradation unter Betriebslast nachzuweisen.

Stack-Test ("Regenbogen-Stack"):

- Ein HTEL-Stack mit 30 Ebenen (RUs 1 bis RU 30) wurde über 7200 Stunden Gesamtlaufzeit betrieben.
- Testparameter: Temperatur 837°C, Dampfung 14,62 SLPM H₂O + 1,83 SLPM H₂ + 1,83 SLPM N₂, Luftzufuhr 60 SLPM.
- Testbedingungen: Stromdichte -0,41 A·cm⁻², Umwandlungsgrad 75%, Elektrolysespannung 37,8 V, Elektrolyseleistung 1980 W.
- Wirkungsgrad: Ein elektrischer Stackwirkungsgrad von 99,5% wurde erreicht.

Begründung: Dies war notwendig, um das Verhalten von Zellen mit neuartigen Dünnschichten (EB-PVD GDC) im großflächigen Stackkontext zu validieren und die Gasdichtigkeit sowie den Stackwirkungsgrad unter Last zu prüfen. Der Vergleich zwischen Standardzellen und Zellen mit GDC-Schutzschicht konnte nur im Stack-Betrieb verlässlich durchgeführt werden.

FIB-SEM und Mikroanalyse:

- **Geräte:** FIB-SEM Systeme (Hitachi ArBlade 5000 für Ion Milling; Zeiss Crossbeam 350 für hochauflösende REM-Mikroskopie) wurden eingesetzt, um Analysen in Nanometer-Skala durchzuführen.
- **Probenpräparation:** Schichtweise Abtragung von 10 nm ermöglichte die 3D-Rekonstruktion der Zellmikrostruktur.
- **Begründung:** Diese Investitionen waren notwendig, um Degradationsmechanismen auf atomarer Ebene zu verstehen und nicht nur makroskopische Spannungsverläufe zu dokumentieren. Die FIB-SEM-Kompetenzen wurden gezielt ausgebaut.

Materialherstellung:

- Die Entwicklung von 3 µm dicken Spinellschutzschichten und die Produktion von LSCTN-Pulvern wurden als Investitionen in die Prozesskette notwendig erachtet, um die spezifischen Anforderungen an Cr-Abschirmungsschutz und elektrochemische Aktivität im Hochtemperaturbetrieb zu erfüllen.
- Pelletproben: Dichte Pelletproben mit einem Durchmesser von 19,434 mm und einer Dicke von 1,396 mm wurden mittels isostatischem Druck hergestellt (relative Dichte: 97,6%).

Sandwich-Proben für Cr-Abdampfungstests:

- Größe: 50x50 mm²
- Zusammensetzung: Crofer/Schutzschicht/Glaslot/Crofer sowie Referenz Crofer/Glaslot/Crofer.
- Bedingungen: 100% Sauerstoff und 860°C für 1000-1500 Stunden.

2.2 Quantitative Ergebnisse des Nachweises

Parameter	Wert	Messbedingung	Bedeutung
Zellwirkungsgrad Stack	99,5%	75% Dampfumwandlung	Bestätigung hoher Effizienz
Degradationsrate Stack	+10,9 mV·kh ⁻¹	SOEC-Betrieb 837°C	Akzeptable Langzeitstabilität
Relative Degradation	+0,9%·kh ⁻¹	pro Ebene	Sehr niedrige relative Degradation
PVD-GDC Schichtdicke (Luftseite)	0,5 µm	Stabil als Sr-Diffusionsbarriere	Wirksame Barrierschicht
PVD-GDC Schichtdicke (Brennstoffseite)	0,5 µm	Auflösung in YSZ bei Herstellung	Keine Barrierefunktion
Spinellschutzschicht Dicke wirksam	≥3 µm	Cr-Diffusionsbarriere	Minimale effektive Dicke

2.3 Begründung der Notwendigkeit

Die oben genannten Teststände und Messungen waren unerlässlich, da:

- Der SOEC-Betrieb sich von den Standard-SOFC-Bedingungen durch höhere Sauerstoffpartialdrücke (> 0,21 bar) und hohe Dampfgehalte unterscheidet. Die meisten Untersuchungen wurden bis dato bei Luftatmosphäre durchgeführt, was nicht dem Elektrolysebetrieb entspricht.
- Die Validierung im Stackbetrieb notwendig war, um Skalierungseffekte und Wechselwirkungen zwischen den Zellen zu erfassen.
- FIB-SEM-Analysen notwendig waren, um die genauen strukturellen Änderungen an der Elektrolyt/CGO-Schnittstelle zu bestimmen, was von Seiten des Projektpartners als dringlich angesehen wurde.

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Notwendigkeit der Zuwendung:

Das beantragte Teilvorhaben bearbeitet grundlegende Fragestellungen für die Verbesserung der Leistung und Lebensdauer von Hochtemperatur-Elektrolyseuren im Hinblick auf die Skalierung der Technologie im Bereich von mehreren Gigawatt. Trotz vielversprechender funktionaler Eigenschaften und hoher Toleranz gegenüber Verunreinigungen im Brenngas ist die Integration von Perowskit-Elektroden in den Stack eine große technische Herausforderung, die mit erheblichen Optimierungsarbeiten verbunden ist, um die Einhaltung der Lebensdauernanforderungen von HTEL zu garantieren. Insbesondere bei der gleichzeitigen Integration der neuartigen Brenngaselektrode und der dünnen, dichten Ceroxid-basierten Zwischenschichten in elektrolytgestützte Zellen mit dünnen Elektrolyten auf Stack-Ebene besteht eine hohe Gefahr der Verbiegung und damit mechanischen Schädigung der Zellen. Um dies zu vermeiden, muss die thermische Behandlung der Brenngaselektrode, der Sauerstoffelektrode und der Stromkollektoren optimiert werden. Dabei müssen die in der momentanen Technologie verwendeten Sinterparameter angepasst werden, um hohe Eigenspannungen in den Zellen zu verhindern.

Die Hochskalierung der Zelltechnologie in dem Stack erfordert einen signifikanten Arbeitsaufwand mit der Herstellung einer hohen Anzahl an Einzelzellen, bei denen Reproduzierbarkeit und Leistungsstabilität

gewährleistet sein müssen, um sie erfolgreich in dem Stack zu integrieren. Dies erfordert einen intensiven technischen Aufwand, eine große fachliche Expertise und die lange Mobilisierung der Testinfrastruktur, um die Leistung bei relevanter Zellgröße auszuwerten und das geeignete Betriebsfenster zu definieren. Ebenso erfordert die Untersuchung und Optimierung von auf HTEL-Stacks der nächsten Generation angepasste Zwischen- und Barrierschichten genaues Wissen über die aktuellen Technologien und Materialien, Kenntnisse der vielfältigen Herausforderungen der HTEL, und einen hohen technischen Aufwand. Die Integration der Materialinnovationen, die in diesem Teilvorhaben geplant sind, auf Stack-Ebene und die Bearbeitung der assoziierten Fragestellungen ist mit einem hohen technologischen Risiko und Kosten verbunden, der nicht mit der Grundfinanzierung des DLR übernommen werden kann.

Angemessenheit der geleisteten Arbeiten:

Die durchgeführten Arbeiten sind angesichts der hohen technischen Reifegrads (TRL) und der spezifischen Herausforderungen der HTEL-Technologie notwendig und angemessen für das Projektkonsortium. Der Einsatz von DLR-internen Expertisen in der Materialcharakterisierung und dem Stack-Betrieb war essenziell, um die Materialien bis zur Integration in den Großstack zu validieren. Die Zusammenarbeit mit dem Projektpartner Sunfire ermöglichte eine praxisnahe Validierung der Ergebnisse. Alle definierten Ziele bezüglich Materialcharakterisierung, Langzeittests und Skalierung der Elektrodenfertigung wurden erreicht.

4. Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit des Ergebnisses – auch konkrete Planungen für die nähere Zukunft - im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans

4.1 Primärer Nutzen für den Industriepartner

Der primäre Nutzen liegt in der direkten Anwendbarkeit der Ergebnisse für die industriellen Partner (Sunfire) zur Optimierung der nächsten HTEL-Generation. Die Ergebnisse sind nicht nur wissenschaftlich, sondern direkt in Produktion und Produktentwicklung übertragbar.

Elektroden-Fertigung:

- **LSCTN-Elektrode:** Die Skalierung der LSCTN-Elektrode auf Stackgröße (ca. 14 x 9 cm²) ist nutzbar für die Produktion größerer Module. Dies stellt einen direkten Transfer von Laborkompetenz in Serienfertigung dar.
- **Nickel-Kontaktierung:** Die Entwicklung der kompatiblen Nickel-Kontaktschicht ermöglicht eine Integration in bestehende Stack-Geometrien ohne Wechsel des Kontaktsystems. Dies reduziert die Umstellungskosten für den Industriepartner signifikant.

Schutzschichten-Integration:

- **Cr-Schutzschichten:** Die Bestimmung einer minimalen Schichtdicke von 3 µm für Spinellschutzschichten fließt direkt in die Fertigungsprozesse der Interkonnektoren ein, um Betriebsstunden vorzeitig Degradation durch Cr-Eindiffusion zu verhindern.
- **Materialauswahl:** Die Ergebnisse zur Wirksamkeit der 3 µm Schicht gegenüber der 1 µm-Schicht geben spezifische Prozessanweisungen für die zukünftige Stack-Produktion.

Stack-Design:

- **PVD-GDC-Schichten:** Die Erkenntnis zur Stabilität der PVD-GDC-Schicht auf der Luftseite als Sr-Diffusionsbarriere und die Identifikation des PVD-Stoffes auf der Brennstoffseite (Auflösung in YSZ) geben spezifische Prozessanweisungen für die zukünftige Zellenfertigung.

4.2 Konkrete Planungen für die nähere Zukunft

Integration und Validierung:

1. **Stack-Integration der LSCTN-Elektrode:** Die nächste unmittelbare Maßnahme ist die Integration der LSCTN-Elektrode in den nächsten HTEL-Stack mit Nickel-Kontaktierung zur Validierung im Dauerbetrieb (TRL 6-7).
2. **FIB-SEM-Datenübertragung:** Übertragung der 3D-Mikrostruktur-Rekonstruktionsdaten an den Industriepartner, um dort die Zelloptimierung und Alterungsvorhersagen zu verbessern.
3. **Weiterentwicklung Kontaktschicht:** Weiterführung der Untersuchungen zum niedrigfrequenten Polarisationsprozess bei der Nickel-Kontaktierung zur Leistungsverbesserung in zukünftigen Zellen.

Langfristige Verwertungsziele:

1. **Markteinführung:** Die entwickelten Ergebnisse sollen die Markteinführung der HTEL-Technologie durch Lebensdauerverlängerung und Kostensenkung unterstützen.
2. **Wissensweitergabe:** Die erarbeiteten Methoden zur FIB-SEM-Mikrostruktur-Rekonstruktion sollen auch für zukünftige Projekte des Instituts verfügbar gemacht werden.

4.3 Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Während der Projektdurchführung wurde das generelle Verständnis für die kritischen Degradationsmechanismen im SOEC-Betrieb bestätigt, ohne dass spezifische, konkurrierende Erkenntnisse bekannt wurden, welche den eingeschlagenen Forschungsansatz in Frage stellen würden.

Stand-der-Technik-Vergleiche:

- Der Fokus auf die Vermeidung der Strontium-Diffusion (SrZrO₃-Bildung) wird im gesamten Forschungsfeld als entscheidendes Ziel angesehen, wie von Seiten des Projektpartners Sunfire als dringlich bestätigt wurde.

Wettbewerbsanalyse:

- Es wurden keine signifikanten neuen Ergebnisse von anderen Instituten oder Firmen bekannt, die den eingeschlagenen Ansatz infrage stellen.

5. Während der Durchführung des Vorhabens bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

5.1 Branchenweite Entwicklungsschwerpunkte

Im Verlauf dieses Projekts hat sich bestätigt, dass die identifizierten technologischen Herausforderungen breit diskutiert werden:

- **Strontium-Diffusion:** Die Vermeidung der Sr-Diffusion gehört zu den entscheidenden Entwicklungszielen der Industrie und wurde auch von Seiten des Projektpartners als dringlich angesehen. Dies zeigt, dass die Projektziele mit dem Branchenbedarf übereinstimmen.
- **Chrom-Abscheidung:** Der Chromverdampfungs-Prozess aus Interkonnektoren ist ein allgemein bekanntes Problem in der SOFC/SOEC-Community. Die im Vorhaben entwickelte 3 µm Schutzschicht stellt eine spezifische Lösung dar, die auf den bekannten Mechanismen basiert.
- **Redox-Stabilität:** Die Weiterentwicklung zu keramikbasierten Wasserstoffelektroden zur Vermeidung von Redoxzyklen stellt nicht nur einen allgemein bekannten technischen Bedarf in der SOFC/SOEC-Community dar, sondern gewinnt durch die EU-Strategie zur Reduzierung kritisch-strategischer Materialien wie Nickel (Ni) erheblich an strategischer Bedeutung.

5.2 Spezifische Entwicklungen bei anderen Stellen

Während der Projektdurchführung wurden folgende Erkenntnisse aus der Fachwelt relevant:

- **Cr-Abscheidung:** Die jüngsten Entwicklungen zeigen deutlich, dass der Fokus vermehrt auf mehrschichtigen und funktionellen Beschichtungen liegt, die die Chrom-Flüchtigkeit reduzieren.

6. Liste der erfolgten oder geplanten Veröffentlichungen des Ergebnisses nach Nr. 5 der NKBF/NABF

Datum	Art der Veröffentlichung	Titel, Quelle/Zitat (Journal, Konferenz)	Autoren	Link
2024	Wissenschaftlicher Artikel	Journal of The Electrochemical Society	F. Han, M. Lang, P. Szabo, C. Geipel, C. Walter, R. Costa	https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad4781
02.01.2026	Wissenschaftlicher Artikel	Advanced Energy & Sustainability Research	M. Riegraf, N. Satya, K. Develos-Bagarinao, R. Costa	https://doi.org/10.1002/aesr.202500361
21.-23.03.23	Poster		A. Koksharov, C. Grosselindemann, M. Riegraf, F. Kullmann, D. Esau, N. Russner, R. Costa, A. Weber, A. Latz, T. Jahnke	
2023	Wissenschaftlicher Artikel	ECS Transactions	F. Han, M. Lang, P. Szabo, C. Geipel, C. Walter, R. Costa	https://doi.org/10.1149/11106.2015ecst
2024	Konferenzvortrag	16th EUROPEAN SOFC & SOE FORUM 2024, Luzern	R. Wurster, M. Riegraf, R. Costa, K.-A. Friedrich	
2024	Konferenzvortrag	19th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells, Stockholm	R. Wurster, M. Riegraf, R. Costa, K.-A. Friedrich	
2025	Poster	H2Giga Abschlusskonferenz, Frankfurt a. Main	R. Wurster, S. Wolf, R. Costa, K.-A. Friedrich	