

# **Optimierung von Brennstoffzellen-Bipolarplatten für die automobiler Anwendung**

von Philipp Mohr

Die Ergebnisse, Meinungen und Schlüsse der Dissertation sind alleine die der Verfasserin oder des Verfassers

# **Optimierung von Brennstoffzellen-Bipolarplatten für die automobiler Anwendung**

Von der Fakultät für Ingenieurwissenschaften, Abteilung Maschinenbau und Verfahrenstechnik

der

Universität Duisburg-Essen

zur Erlangung des akademischen Grades

eines

Doktors der Ingenieurwissenschaften

Dr.-Ing.

genehmigte Dissertation

von

Philipp Mohr

aus

Kiel

Gutachter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Angelika Heinzl  
Univ.-Prof. Dr.-Ing. Dieter Schramm

Tag der mündlichen Prüfung: 27.02.2018

# Danksagung

Die vorliegende Dissertation entstand während meiner dreieinhalbjährigen Doktorandentätigkeit in der Abteilung Brennstoffzelle der Konzernforschung der Volkswagen AG im Technologiezentrum Elektrotraktion.

Frau Prof. Dr. Angelika Heinzl gilt mein besonderer Dank für die Betreuung meiner Promotion am Lehrstuhl für Energietechnik der Universität Duisburg-Essen, für die hilfreichen Diskussionen und die Unterstützung beim Anfertigen der Dissertation. Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Prof. Dr. Dieter Schramm für die Übernahme des Koreferats und dem Prüfungsvorsitzenden Herrn Prof. Dr. Rüdiger Deike.

Herrn Dr. Ingo Drescher und Herrn Dr. Florian Moll danke ich für das entgegengebrachte Vertrauen und die Möglichkeit meine Promotion in der Abteilung Brennstoffzelle durchführen zu können.

Insbesondere danke ich Herrn Dr. Christian Zillich für die Betreuung meiner Promotion seitens der Volkswagen AG und für seine wertvollen Impulse in den technischen Diskussionen und bei der Anfertigung der Doktorarbeit.

Danken möchte ich auch meinen Doktorandenkollegen der Abteilung Brennstoffzelle, die in unzähligen Diskussionen einen zweiten Blick auf Problemstellungen und Lösungswege ermöglicht haben.

# Kurzfassung

In dieser Arbeit wird das Potential der Bipolarplatten von Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzellen zur Steigerung der Leistung und Lebensdauer untersucht. Für die medienführenden Bereiche der Bipolarplatte werden Designrichtlinien entwickelt, die die Auslegung dieser Bereiche auf hohe Stromdichten und homogene Medienverteilung vereinfachen. Im zweiten Abschnitt wird eine Validierungsmethode für automobiler Brennstoffzellen mittels kleiner Laborzellen entwickelt, um die Kosten für die Validierung der Bipolarplattendesigns zu reduzieren. Abschließend wird mit den entwickelten Designrichtlinien eine automobiler Brennstoffzellenbipolarplatte neu ausgelegt und simulativ und experimentell validiert.

Für die Kanalauslegung im aktiven Bereich wird ein empirisches Rechenmodell entwickelt, das die Wechselwirkungen der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage und der Kanalgeometrie bestimmt. Für die Quantifizierung der Ergebnisse des Modells auf die Spannungsverluste der Brennstoffzelle wird ein neues Messverfahren zur Bestimmung des Kontaktwiderstands zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht vorgestellt. Damit ist die schnelle Bewertung verschiedener Kombinationen aus Kanalgeometrien und Gasdiffusionslagen möglich, um die bestmögliche Kombination für hohe Leistungsdichten zu finden. Als Zielvorgabe des Kontaktdrucks zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht wird ein Minimalwert von über 0,19 MPa empfohlen. Der Einfluss der Stegbreite im aktiven Bereich wird mit Hilfe von Simulationen bestimmt mit dem Ergebnis, dass vor allem bei hohen Stromdichten die Diffusion des Sauerstoffs durch schmale Stege begünstigt werden muss. Für die Betriebsstabilität der Brennstoffzelle durch die Gasgeschwindigkeiten in den Kanälen des aktiven Bereichs spielt die Stegbreite nur eine untergeordnete Rolle im Vergleich zur Permeabilität der Gasdiffusionslage, die bei unter  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  liegen sollte.

Die Bipolarplatte kann einen negativen Einfluss auf die Lebensdauer der PEM-Brennstoffzelle haben. Zur Minimierung des Einflusses und damit Steigerung der Lebensdauer werden für die Verteilstruktur und die Hauptkanäle der Bipolarplatte Designrichtlinien entwickelt, die in Abhängigkeit der Betriebsbedingungen und des Bipolarplattendesigns die Verteilung der Medien im aktiven Bereich optimieren. Die Auslegung der Verteilstrukturen sollte über die Druckverlustanteile der Verteilstrukturen am Gesamtdruckverlust der Bipolarplatte erfolgen, da dieser Einfluss deutlich größer als der der Betriebsbedingungen ist. Für die Hauptkanäle des Brennstoffzellenstapels gibt es je nach Zellanzahl im Stapel und dem Druckverlust der Einzelzellen ein optimales Verhältnis für Wasserstoff-, Luft- und Kühlmittelhauptkanäle, um das der jeweilige Auslasshauptkanal größer als der Einlasshauptkanal sein sollte.

Zur experimentellen Validierung der Bipolarplattendesigns und derer Wechselwirkungen mit der Gasdiffusionslage sind üblicherweise teure Prototypen nötig. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass das Verhalten von automobiler Bipolarplatten auch mittels kostengünstigen kleiner Laborzellen in Abschnitten nachgestellt werden kann, so dass Herstellkosten und -zeit in der Designvalidierung gespart werden.

Als Abschluss der Arbeit werden die Kanäle der Verteilstruktur und des aktiven Bereichs eines bestehenden automobiler Bipolarplattendesigns nach den Designrichtlinien neu ausgelegt, um die elektrische Stromdichte und die Verteilung der Medien zu erhöhen. Mit dem experimentell

und simulativ validierten Design wird eine Stromdichte von  $2,13 \text{ A/cm}^2$  bei  $0,618 \text{ V}$  ( $1,32 \text{ W/cm}^2$ ) erzielt.

## Abstract

This thesis focuses on the polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cell's bipolar plates potential to increase the power density and durability of the fuel cell stack. Design guidelines are developed for the fluid containing areas of the PEM fuel cell to simplify the design process for high current densities and homogenous fluid distribution in these areas. Secondly, a method to validate the design for automotive fuel cell bipolar plates with laboratory sized plates is proposed and with the design guidelines the active area of an automotive fuel cell is redesigned and validated by simulation and experiment.

An empirical model for the interdependencies between the channel width and the mechanical properties of the gas diffusion layer (GDL) is developed. This is combined with the experimental results from a newly developed test method for the contact resistance between the GDL's micro porous layer and the catalyst layer. This new model allows for quick iterations in the design process without time consuming simulations for each individual design. A target of 0,19 MPa is proposed for the minimum contact pressure to reduce electrical losses. For high current density applications the landing width in the active area has to be as small as possible to reduce diffusion losses. In combination with the small landing width the GDL's permeability should be lower than  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  to ensure a stable operation of the fuel cell.

The fluid distribution should be as homogenous as possible to reduce the bipolar plate's effect on the fuel cell durability. For the cross flow region this is achieved by a minimum pressure drop proportion of the total bipolar plate's pressure drop. The fuel cell's header design is dependant on the cell count of the fuel cell stack and the pressure drop across the single cell. For all three fluids - hydrogen, air and coolant - an optimum header size relation exists, of which the outlet header should be larger than the inlet header, in order to improve flow distribution across the cells.

The experimental validation of automotive bipolar plates, and their interdependencies with the gas diffusion layer, typically requires a complex and expensive prototype. In this thesis it is shown that the behavior of automotive fuel cells can be recreated by small fuel cells in laboratory dimensions, which saves time and production cost in the design phase of a new bipolar plate. Finally, the developed design guidelines are applied to an existing automotive bipolar plate to redesign the cross flow region and active area to increase current density and fluid distribution. This design is validated by simulation and experiment and achieves a current density of  $2,13 \text{ A/cm}^2$  at  $0,618 \text{ V}$  ( $1,32 \text{ W/cm}^2$ ).

# Inhaltsverzeichnis

Danksagung .....	IV
Kurzfassung .....	V
Abstract .....	VII
Abbildungsverzeichnis .....	X
Tabellenverzeichnis .....	XIV
Abkürzungs- und Symbolverzeichnis .....	XV
<b>1 Einleitung .....</b>	<b>1</b>
<b>2 Grundlagen PEM-Brennstoffzelle .....</b>	<b>3</b>
2.1 Funktionsweise .....	3
2.2 Aufbau .....	8
2.2.1 Membran-Elektroden-Einheit .....	8
2.2.2 Gasdiffusionslage .....	8
2.2.3 Bipolarplatte .....	9
<b>3 Entwicklung von Designrichtlinien .....</b>	<b>16</b>
3.1 Auslegung der Kanalbreite im aktiven Bereich .....	16
3.1.1 Einfluss der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage .....	17
3.1.2 Kontaktwiderstand zwischen mikroporöser Schicht und Katalysator- schicht .....	36
3.2 Auslegung der Stegbreite im aktiven Bereich .....	43
3.2.1 Elektrische Spannungsverluste aufgrund der Stegbreite .....	43
3.2.2 Querpermeation zwischen benachbarten Kanälen .....	47
3.3 Auslegung der Medienverteilstuktur .....	58
3.3.1 Minimalverteilung .....	58
3.3.2 Kathodenverteilstuktur .....	61
3.3.3 Anodenverteilstuktur .....	66
3.3.4 Kühlmittelverteilstuktur .....	70
3.4 Auslegung der Hauptkanäle .....	74
3.4.1 Gleichverteilung über den Brennstoffzellenstapel .....	76
3.4.2 Kathodenhauptkanal .....	79
3.4.3 Anodenhauptkanal .....	87
3.4.4 Kühlmittelhauptkanal .....	91
<b>4 Simulation und Versuch .....</b>	<b>101</b>
4.1 Laborzellen .....	101
4.2 Automobile Brennstoffzelle .....	106
4.2.1 Design der Bipolarplatte .....	107
4.2.2 Experimentelle Validierung .....	113
<b>5 Zusammenfassung .....</b>	<b>115</b>
<b>Literatur .....</b>	<b>118</b>



---

<b>A Anhang</b> .....	125
A.1 Kompressionshärten des empirischen Rechenmodells .....	125
A.2 Mech. Eigenschaften der GDL der Mikro-Computer-Tomographie-Messung ..	126
A.3 Spannungs-Dehnungs-Kurven der GDLs Typ A und Typ B .....	127
A.4 Betriebsbedingungen für die experimentelle Abschnittsuntersuchung .....	128

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Funktionsprinzip der PEM-Brennstoffzelle .....	3
2.2	Beispielhafte Strom-Spannungs-Kennlinie einer PEM-Brennstoffzelle, (1) Aktivierungsbereich, (2) Arbeitsbereich, (3) Stofftransportlimitierter Bereich .....	5
2.3	Aufteilung der ohmschen Verluste bei $2 \text{ A/cm}^2$ des in Abbildung 2.2 gezeigten Beispiels .....	6
2.4	Vereinfachtes Fließbild des Brennstoffzellensystems im Fahrzeug .....	7
2.5	Funktionsprinzip der Bipolarplatte im Brennstoffzellenstapel .....	9
2.6	Aufbau einer typischen PEM-Brennstoffzellen-Bipolarplatte .....	10
2.7	Typische Strukturen des aktiven Bereichs der Bipolarplatte nach [31] .....	11
2.8	Verteilstrukturkonzepte zur Verbindung des aktiven Bereichs mit den Hauptkanälen. a) direkte Verbindung aktiver Bereich und Hauptkanal, b) offene Verteilstruktur, c) gerichtete Verteilstruktur .....	12
2.9	Durchströmung des Brennstoffzellenstapels U- oder Z-förmig .....	14
3.1	Prinzipdarstellung der maximalen Intrusion der GDL in den Gaskanal und des Orts des minimalen Kontaktdrucks .....	18
3.2	In-plane und through-plane Richtungen der Gasdiffusionslage .....	19
3.3	Spannungs-Dehnungs-Kurven der 6 Kompressionshärten (mathematische Beschreibung in Anhang A.1) .....	20
3.4	Darstellung des FEM-Rechenmodells .....	21
3.5	Einfluss der Kanalbreite auf die maximale Intrusion bei Basisfallparametern ..	25
3.6	Einfluss der mechanischen GDL-Eigenschaften auf die maximale Intrusion bei einem mittleren Kontaktdruck Steg-GDL von $1,0 \text{ MPa}$ .....	26
3.7	Berechneter und simulierter Verlauf der GDL-Intrusion in den Gaskanal .....	27
3.8	Schematische Darstellung eines Ausschnitts des $\mu\text{CT}$ -Messaufbaus a) mit $0,25 \text{ mm}$ Umformradius, b) mit $0,10 \text{ mm}$ Umformradius jeweils mit $1 \text{ mm}$ Kanal- und Stegbreite .....	28
3.9	$\mu\text{CT}$ -Aufnahmen der verpressten Gasdiffusionslage .....	29
3.10	Verteilung gemessenen MEA und GDL Typ A Dicken bei $0,01 \text{ MPa}$ Kompressionsdruck .....	30
3.11	Einfluss der Kanalbreite auf den minimalen Kontaktdruck bei Basisfallparametern .....	34
3.12	Einfluss der mechanischen GDL-Eigenschaften auf den minimalen Kontaktdruck bei einem theoretischen Kontaktdruck von $1,0 \text{ MPa}$ .....	35
3.13	Schematischer Messaufbau der elektrischen Widerstandsmessung .....	37
3.14	Elektrischer Gesamtwiderstand und Bestimmung der relativen Änderung .....	39
3.15	Relativer Kontaktwiderstand in Abhängigkeit des minimalen Kontaktdrucks ..	39
3.16	Empfehlungswert des minimalen Kontaktdrucks .....	40
3.17	Gemessene Zellspannungen der Laborzellen bei $2 \text{ A/cm}^2$ .....	42
3.18	Simulationsmodelle für die 2D Simulation des Einflusses der Stegbreite. a) $0,2 \text{ mm}$ Steg, b) $0,4 \text{ mm}$ Steg, c) $0,5 \text{ mm}$ Steg, d) $0,6 \text{ mm}$ Steg .....	44
3.19	Simulierte Zellspannung in Abhängigkeit der Stegbreite, GDL-Dicke und -Porosität .....	44

3.20	Elektrische Leitungsverluste in der Bipolarplatte aufgrund der Stegbreite . . . . .	46
3.21	Prinzipdarstellung der Querpermeation zwischen benachbarten Kanälen durch die GDL aufgrund lokaler Druckdifferenzen durch Flüssigwasser . . . . .	48
3.22	Simulationsmodell zur Querpermeation . . . . .	48
3.23	Wasserstoff-Permeationsmassenstrom in Abhängigkeit der GDL-Permeabilität und der Druckdifferenz bei 0,5 mm Stegbreite pro Millimeter Kanallänge . . . . .	49
3.24	Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm <sup>2</sup> und 100 % Wasserstoff . . . . .	51
3.25	Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm <sup>2</sup> und 1,0 A/cm <sup>2</sup> und 90 % Wasserstoff . . . . .	52
3.26	Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm <sup>2</sup> , 1,0 A/cm <sup>2</sup> und 0,3 A/cm <sup>2</sup> und 80 % Wasserstoff . . . . .	54
3.27	Luft-Permeationsmassenstrom in Abhängigkeit der GDL-Permeabilität und der Druckdifferenz bei 0,5 mm Stegbreite pro Millimeter Kanallänge . . . . .	55
3.28	Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm <sup>2</sup> , 1,0 A/cm <sup>2</sup> und 0,3 A/cm <sup>2</sup> und Luft . . . . .	57
3.29	Gesamtkanallängen der Bipolarplatte . . . . .	59
3.30	Minimalverteilung der Luft in Abhängigkeit des Verteilstrukturdruckverlusts und der Betriebsbedingungen . . . . .	63
3.31	Minimalverteilung in Abhängigkeit der Stöchiometrie . . . . .	64
3.32	Minimalverteilung in Abhängigkeit der Betriebstemperatur und des Temperaturanstiegs im aktiven Bereich bei 1,5 bar Betriebsdruck und Stöchiometrie 2 . . . . .	64
3.33	Minimalverteilung bei einer Stöchiometrievariation für konstante Kanalstrukturen im aktiven Bereich . . . . .	65
3.34	Einfluss des Druckverlustverhältnisses der Einlassverteilstuktur zum Druckverlust im aktiven Bereich auf die Gleichverteilung . . . . .	67
3.35	Minimalverteilung des Anodengases in Abhängigkeit der Stöchiometrie . . . . .	68
3.36	Einfluss der Temperatur auf die Minimalverteilung bei 1,5 bar Betriebsdruck und einer Stöchiometrie von 2 . . . . .	68
3.37	Einfluss des Stickstoffanteils auf die Minimalverteilung . . . . .	69
3.38	Minimalverteilung des Anodengases bei konstanter Kanalstruktur . . . . .	69
3.39	Minimalverteilung des Anodengases bei konstanter Kanalstruktur und Variation des Stickstoffanteils . . . . .	70
3.40	Einfluss der Temperatur auf die Minimalverteilung mit Wasser . . . . .	71
3.41	Einfluss der Temperatur und des Temperaturanstiegs für Glysantin® . . . . .	72
3.42	Einfluss von Froststartbedingungen auf die Minimalverteilung mit Glysantin® . . . . .	73
3.43	Prinzipdarstellung der Hauptkanäle im Brennstoffzellenstapel mit U - Durchströmung . . . . .	74
3.44	Schematische Darstellung des Stapelsimulationsmodells . . . . .	75
3.45	Verteilung der Luft über einen 300 Zellen Stapel und 25 mm hydr. Einlasskanaldurchmesser bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 . . . . .	76
3.46	Druckverläufe entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 25 mm . . . . .	77

3.47	Relative statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 25 mm . . . . .	78
3.48	Druckverläufe entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 33 mm . . . . .	78
3.49	Relative statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 33 mm . . . . .	79
3.50	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 507 mbar Druckverlust der Einzelzelle . . . . .	80
3.51	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 415 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	81
3.52	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 216 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	81
3.53	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 400 A, Stöchiometrie 2,0 und 223 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	82
3.54	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 370 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	83
3.55	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 20 Zellpaketen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 241 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	84
3.56	Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 40 Zellpaketen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 417 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	85
3.57	Verteilung der Luft bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 238 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	86
3.58	Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 166 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	88
3.59	Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 400 A, Stöchiometrie 2,0 und 261 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	89
3.60	Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 118 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	89
3.61	Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 175 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	90
3.62	Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 375 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	92
3.63	Druckverläufe entlang des Kühlmittelhauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 30 mm und Auslass 30 mm . . . . .	93
3.64	Druckverläufe entlang des Kühlmittelhauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 30 mm und Auslass 50 mm . . . . .	93
3.65	Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 709 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	94
3.66	Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 200 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 372 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	95
3.67	Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 400 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 404 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	96
3.68	Verteilung des Kühlmittels bei 35 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 490 mbar Druckverlust des Zellpakets . . . . .	97

3.69	Verteilung des Kühlmittels bei 35 mm Einlass, 400 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 737 mbar Druckverlust des Zellpakets .....	98
3.70	Verteilung des Kühlmittels bei 40 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 491 mbar Druckverlust des Zellpakets .....	99
4.1	Methodik der Abschnittsvalidierung von automobilen Brennstoffzellen .....	102
4.2	Querschnitt durch das Rechenetz der CFD Einkanalsimulation mit 0,6 mm Kanal und GDL A .....	103
4.3	Verlauf der Stromdichte, des Membranwassergehalts und der GDL-Sättigung mit Flüssigwasser entlang des Kanals (0,6 mm, GDL A) .....	104
4.4	Vergleich der Ergebnisse der Abschnittsuntersuchungen aus Simulation und Experiment .....	106
4.5	Materialumformgrenzen in gepresstem Graphitkomposit .....	107
4.6	Querschnitt durch einen Ausschnitt der Bipolarplatte im aktiven Bereich .....	108
4.7	Geschwindigkeitsprofil der laminaren Fluidströmung im Kühlmittelkanalquerschnitt .....	110
4.8	Größe der Verteilstrukturdreiecke Kathode und Anode der 376 cm <sup>2</sup> Bipolarplatte	111
4.9	Nyquistplot der elektrochemischen Impedanzmessung bei 100 % Gaseintrittsfeuchte und 349 K .....	113
4.10	Strom-Spannungs-Kennlinie der 376 cm <sup>2</sup> Einzelzelle .....	114
A.1	Spannungs-Dehnungs-Kurven der 6 Kompressionshärten .....	125
A.2	Spannungs-Dehnungs-Kurve der Papier GDL für die $\mu$ CT-Messung .....	126
A.3	Spannungs-Dehnungs-Kurven der GDLs Typ A und B .....	127

# Tabellenverzeichnis

3.1	Parameterraum Rechenmodell .....	19
3.2	Materialwerte für den Basisfall .....	20
3.3	Intrusion: Basisfall Parameter .....	22
3.4	Intrusion: Korrekturfaktor Stegbreite Parameter .....	23
3.5	Intrusion: Korrekturfaktor GDL-Dicke Parameter .....	23
3.6	Intrusion: Korrekturfaktor Kompressionshärte Parameter .....	24
3.7	Gemessene Dicken der Gasdiffusionslage in der $\mu$ CT-Aufnahme .....	28
3.8	Vergleich der Dicken der Gasdiffusionslage zwischen Simulation und $\mu$ CT-Aufnahme .....	29
3.9	Min. Kontaktdruck: Basisfall Parameter .....	32
3.10	Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor Stegbreite Parameter .....	33
3.11	Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor GDL-Dicke Parameter .....	33
3.12	Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor Kompressionshärte Parameter .....	34
3.13	Zusammensetzung der Kohlenstoff-Ionomer-Beschichtung .....	38
3.14	Minimaler Kontaktdruck in den 50 cm <sup>2</sup> Laborzellen .....	41
3.15	Berechnete und gemessene Spannungsdifferenzen aufgrund der Kanalbreite ..	42
4.1	Materialeigenschaften der GDL A und B .....	102
4.2	Betriebsbedingungen CFD-Einkanalsimulation bei 2 A/cm <sup>2</sup> .....	103
4.3	Betriebsbedingungen automotive Bipolarplatte bei 752 A .....	108
4.4	Parameter der Kanalquerschnitte im aktiven Bereich der Bipolarplatte .....	109
4.5	Maximale Intrusion in den Gaskanal und minimaler Kontaktdruck MPL-CL bei 1,0 MPa Kontaktdruck zwischen GDL und Kathodensteg und Verwendung der GDL A .....	110
4.6	Parameter der Kanalquerschnitte in den Verteilstrukturen der Bipolarplatte ...	112
A.1	Mechanischen Eigenschaften der Papier-GDL in der $\mu$ CT-Messung .....	126
A.2	Betriebsbedingungen für Abschnitt 1 .....	128
A.3	Betriebsbedingungen für Abschnitt 2 .....	128
A.4	Betriebsbedingungen für Abschnitt 3 .....	129

# Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

## Allgemeine Abkürzungen

$\mu$ CT	Mikrocomputertomographie
AB	Aktiver Bereich
BZ	Brennstoffzelle
CFD	Computational Fluid Dynamics
CL	Katalysatorschicht
DV	Druckverlustverhältnis
E-Modul	Elastizitätsmodul
FCEV	Fuel Cell Electric Vehicle
FEM	Finite Elemente Methode
GDL	Gasdiffusionslage
G-Modul	Schubmodul
HFR	Hochfrequenzwiderstand
IP	in-plane Permeabilität
KAT	Katalysator
MEA	Membran-Elektroden-Einheit
min	minimal
MPL	mikroporöse Schicht
OCV	offene Zellspannung
PEM	Polymer-Elektrolyt-Membran
PTFE	Polytetrafluorethylen

SOFC Solid Oxid Fuel Cell

VS Verteilstruktur

### Lateinische Symbole

$A$	$\text{m}^2$	Fläche
$C$	-	Kompressionshärte
$C_{\text{Kanal}}$	-	Konzentration im Kanal
$C_{\text{KAT}}$	-	Konzentration im Katalysator
$D$	mm	unverpresste Dicke der Gasdiffusionslage
$d_h$	mm	hydraulischer Durchmesser
$E$	MPa	Elastizitätsmodul der Gasdiffusionslage
$F$	$\text{C} \cdot \text{mol}^{-1}$	Faraday-Konstante
$G$	MPa	Schubmodul der Gasdiffusionslage
$G$	$\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$	freie Gibb'sche Enthalpie
$H^\circ$	$\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$	Brennwert
$H_{\text{min}}$	-	Minimalverteilung
$i$	$\text{A} \cdot \text{cm}^{-2}$	Stromdichte
$i_{0,c}$	$\text{A} \cdot \text{cm}^{-2}$	Austauschstromdichte der Kathode
$K$	mm	Kanalbreite
$K_{I,C}$	-	Korrekturfaktor der Basisintrusion für die Kompressionshärte der GDL
$K_{I,D}$	-	Korrekturfaktor der Basisintrusion für die unverpresste Dicke der GDL
$K_{I,S}$	-	Korrekturfaktor der Basisintrusion für die Stegbreite



$K_{K,C}$	-	Korrekturfaktor des Basis min. Kontaktdrucks für die Kompressionshärte der GDL
$K_{K,D}$	-	Korrekturfaktor des Basis min. Kontaktdrucks für die unverpresste Dicke der GDL
$K_{K,S}$	-	Korrekturfaktor des Basis min. Kontaktdrucks für die Stegbreite
$l$	m	Länge
$M$	$\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$	Molmasse
$m$	kg	Masse
$\dot{m}$	$\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$	Massenstrom
$n$	-	Anzahl der ausgetauschten Elektronen
$n_{\text{Kanal}}$	-	Kanalanzahl
$P$	MPa	mittlerer Kontaktdruck
$p$	$\text{N} \cdot \text{m}^{-2}$	Druck
$\Delta p$	$\text{N} \cdot \text{m}^{-2}$	Differenzdruck
$p_{\text{min}}$	$\text{N} \cdot \text{m}^{-2}$	minimaler Kontaktdruck
$\dot{Q}$	$\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$	Volumenstrom
$R_{\text{BZ}}$	Ohm	Ohm'sche Widerstände der Brennstoffzelle
$S$	mm	Stegbreite
$S$	$\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$	Entropie
$T$	K	Temperatur
$U$	V	Zellspannung
$U_{\text{OCV}}$	V	offene Zellspannung
$U_{\text{th}}$	V	theoretische Zellspannung

$U_{\text{rev}}$	V	reversible Zellspannung
$U_{\text{rev}}^0$	V	reversible Zellspannung bei Standardbedingungen

**Griechische Symbole**

$\alpha$	$\text{m}^2$	Permeabilität
$\alpha_c$	-	Transferkoeffizient Kathode
$\eta$	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	dynamische Viskosität
$\eta_{\text{Akt}}$	V	Aktivierungsüberspannungen
$\eta_{\text{Arb}}$	V	Ohm'sche Überspannungen
$\eta_{\text{Sto}}$	V	stofftransportlimitierte Überspannungen
$\lambda$	-	Stöchiometrie
$\mu$	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	kinematische Viskosität
$v$	$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	Geschwindigkeit
$\rho$	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	Dichte

# 1 Einleitung

Die Automobilindustrie ist durch die immer strikteren Emissionsgesetzgebungen, vor allem durch die Limitierungen des Kohlenstoffdioxidausstoßes, dazu gezwungen die Fahrzeugflotten zu elektrifizieren. Hybridmodelle, mit Verbrennungsmotor und batterieelektrischem Antrieb, und rein batterieelektrische Fahrzeuge werden bereits von vielen Herstellern angeboten, um die kombinierten Flottenemissionen zu senken. Die aktuellen Nachteile des batterieelektrischen Fahrens sind die im Vergleich zum Verbrennungsmotor geringen Reichweiten von oftmals unter 500km und die langen Ladezeiten der Batteriemodule [1].

Die Polymer-Elektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle wandelt Wasserstoff und Luftsauerstoff zu Wasser und elektrischer Energie. Der Wasserstoff wird gasförmig in Drucktanks im Fahrzeug mitgeführt und reagiert mit Luftsauerstoff, der während des Betriebs aus der Umgebung angesaugt wird. Durch die direkte Umwandlung der chemischen Energie des Wasserstoffs in elektrische Energie und die damit verbundene Umgehung der Limitierung durch den Carnot-Wirkungsgrad, werden höhere Wirkungsgrade als bei der thermischen Umwandlung des Wasserstoffs in mechanische Energie erreicht [2]. Die Reichweite eines Brennstoffzellenfahrzeugs wird hauptsächlich durch die Menge des mitgeführten Wasserstoffs in den Drucktanks bestimmt. Das Nachtanken des Wasserstoffs ist an Wasserstofftankstellen in wenigen Minuten möglich. Die PEM-Brennstoffzelle bietet somit eine Alternative zum batterieelektrischen Antrieb für Anwendungsanforderungen mit hohen Reichweiten. Aktuelle Ankündigungen von Hyundai geben die Reichweite des Nachfolgemodells des iX35-FCEV mit 800 km an [3].

Die Großserieneinführung des Brennstoffzellenantriebs in Fahrzeugen stellt die Automobilhersteller jedoch aktuell vor einige Herausforderungen. Vor allem die Kosten des Brennstoffzellensystems sind noch weit von den Kostenzielen, zum Beispiel der des US-amerikanischen Energieministeriums, entfernt. Der Hauptanteil der Kosten entfällt auf die Membran-Elektroden-Einheit (MEA) und vor allem auf den Platinkatalysator [4]. Das vorrangige Entwicklungsziel ist die Senkung der Kosten über eine geringe Beladung der MEA mit Platin bei gleicher Leistung und Haltbarkeit der MEA [5] und die Steigerung der Leistungsdichte der Brennstoffzelle im Zusammenspiel der MEA und der Bipolarplatte.

In dieser Arbeit wird der Fokus auf die Auslegung der Bipolarplatten des Brennstoffzellenstapels gelegt und deren Potential zur Steigerung der Leistungsdichte und Lebensdauer der Brennstoffzelle aufgezeigt. Im Grundlagenkapitel wird die Funktionsweise einer PEM-Brennstoffzelle erläutert und deren Aufbau aus Bipolarplatten und Funktionsschichten beschrieben. Für die Bipolarplatten des Brennstoffzellenstapels wird auf die medienführenden Bereiche - aktiver Bereich, Verteilstrukturen und Hauptkanäle - genauer eingegangen und verschiedene strömungstechnische Möglichkeiten der Bereiche vorgestellt.

Im dritten Kapitel werden Designrichtlinien zur Steigerung der Leistungsdichte und Lebensdauer entwickelt, um ein tieferes Verständnis der Zusammenhänge zwischen der Bipolarplatte und den Funktionsschichten der MEA zu schaffen und so die Auslegung zukünftiger Bipolarplatten auf Hochleistungsanforderungen zu vereinfachen und zu beschleunigen. Der Kontaktdruck zwischen der mikroporösen Schicht der Gasdiffusionslage (GDL) und der Katalysatorschicht sollte durch eine geeignete Kombination von Gaskanalbreite und mechanischen GDL-Eigenschaften im Minimum nicht weniger 0,19 MPa betragen. Die Stegbreite des aktiven Bereichs limitiert bei

hohen Stromdichten die Diffusion der Reaktionsgase und sollte so gering wie möglich gewählt werden. In Kombination mit der Stegbreite sollte für einen stabilen Betrieb der Brennstoffzelle eine Permeabilität der Gasdiffusionslage von kleiner  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  angestrebt werden. Bei der Auslegung der Verteilstrukturen ist auf eine homogene Verteilung der Medien durch einen geringen Druckverlustanteil der Verteilstrukturen am Gesamtdruckverlust der Bipolarplatte zu achten. Für eine homogene Verteilung der Medien auf jede einzelne Brennstoffzelle des Brennstoffzellenstapels gibt es in Abhängigkeit der Druckverluste der Bipolarplatten und der Anzahl der Brennstoffzellen im Stapel ein optimales Verhältnis, um das der Auslasshauptanal größer als der Einlasshauptkanal sein sollte.

Im vierten Kapitel der Arbeit wird die Leistungscharakteristik von PEM-Brennstoffzellen simulativ und experimentell untersucht. Es wird gezeigt, dass das Strom-Spannungs-Verhalten von automobilen Brennstoffzellen in Abschnitten mittels kleiner Laborzellen nachgestellt werden kann und so die teuren Prototypen zur Validierung des Bipolarplattendesigns entfallen können. Die entwickelten Designrichtlinien werden auf eine bestehende Bipolarplatte angewendet, um die gasführenden Bereiche neu auszulegen, so dass eine Leistungsdichte von  $1,32 \text{ W/cm}^2$  bei  $0,618 \text{ V}$  erreicht wird.

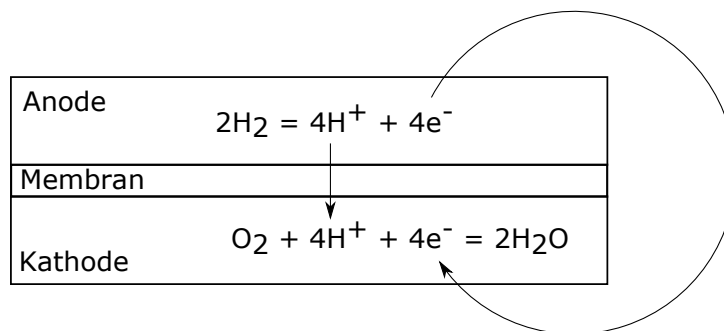
## 2 Grundlagen PEM-Brennstoffzelle

Die Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzelle bietet für die Anwendung im Fahrzeug den Vorteil des emissionsfreien Elektroantriebs mit einer kurzen Betankungszeit von wenigen Minuten und einer hohen Reichweite [1]. Zusätzlich ermöglichen die niedrige Betriebstemperatur von unter 100 °C einen schnellen Start des Brennstoffzellensystems im Vergleich zu anderen Brennstoffzellentypen und die hohe Leistungsdichte eine sehr kompakte Brennstoffzelle [6]. In der PEM-Brennstoffzelle wird die chemische Energie des Brenngases direkt in elektrische Energie umgewandelt [7]. Dies ermöglicht Wirkungsgrade der PEM-Brennstoffzelle im niedrigen Lastbetrieb von bis zu 60 %.

### 2.1 Funktionsweise

In der PEM-Brennstoffzelle wird Wasserstoff und Sauerstoff zu Wasser umgewandelt. Die Halbzellreaktionen, die Oxidation des Wasserstoffs auf der Anode und die Reduktion des Sauerstoffs zu Wasser auf Kathode laufen räumlich durch die Membran getrennt von einander ab.

In Abbildung 2.1 ist das Funktionsprinzip der PEM-Brennstoffzelle dargestellt. Die bei der Oxidation des Wasserstoffs entstehenden Protonen gelangen durch die Membran auf die Kathode und reagieren dort mit dem Sauerstoff und den Elektronen zu Wasser. Die elektrisch isolierende Membran der Brennstoffzelle verhindert einen elektrischen Kurzschluss zwischen Anode und Kathode, so dass die Elektronen außerhalb der Brennstoffzelle von der Anode auf die Kathode geführt werden und den elektrischen Strom nutzbar machen.



**Abbildung 2.1:** Funktionsprinzip der PEM-Brennstoffzelle

Die PEM-Brennstoffzelle wandelt die freie Enthalpie der elektrochemischen Reaktion direkt in elektrische Energie und ist daher nicht der Limitierung durch den Carnot-Wirkungsgrad unterworfen.

Die theoretisch maximale Zellspannung  $U_{\text{th}}$  der Wasserstoff-Sauerstoff-Reaktion ergibt sich aus der Reaktionsenthalpie der Produktwasserbildung bei Standardbedingungen<sup>1</sup> zu

$$U_{\text{th}} = -\frac{\Delta H^{\circ}}{n \cdot F} = -\frac{-286,02 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}}{2 \cdot 96485 \frac{\text{C}}{\text{mol}}} = 1,482 \text{V}. \quad (2.1)$$

Die maximale nutzbare, reversible Zellspannung  $U_{\text{rev}}^0$  ergibt sich aufgrund der Entropiebildung bei der chemischen Reaktion aus der freien Gibb'schen Enthalpie  $\Delta G$  bei Standardbedingungen mit

$$\Delta G = \Delta H^{\circ} - T \Delta S \quad (2.2)$$

zu

$$U_{\text{rev}}^0 = -\frac{\Delta G}{n \cdot F} = -\frac{-237,34 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}}{2 \cdot 96485 \frac{\text{C}}{\text{mol}}} = 1,230 \text{V} \quad (2.3)$$

[7],[2].

Die Abhängigkeit der reversiblen Zellspannung der PEM-Brennstoffzelle von der Temperatur und den Konzentrationen der Reaktionsgase wird über die Nernst-Gleichung bestimmt [8].

$$U_{\text{rev}} = U_{\text{rev}}^0 - 0,85 \cdot 10^{-3} (T - 298,15) + \frac{R \cdot T}{n \cdot F} \cdot \ln \left[ \frac{\left( \frac{p_{\text{H}_2}}{p_{\text{H}_2,\text{rev}}} \right) \cdot \left( \frac{p_{\text{O}_2}}{p_{\text{O}_2,\text{rev}}} \right)^{0,5}}{\left( \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_{\text{H}_2\text{O},\text{rev}}} \right)} \right] \quad (2.4)$$

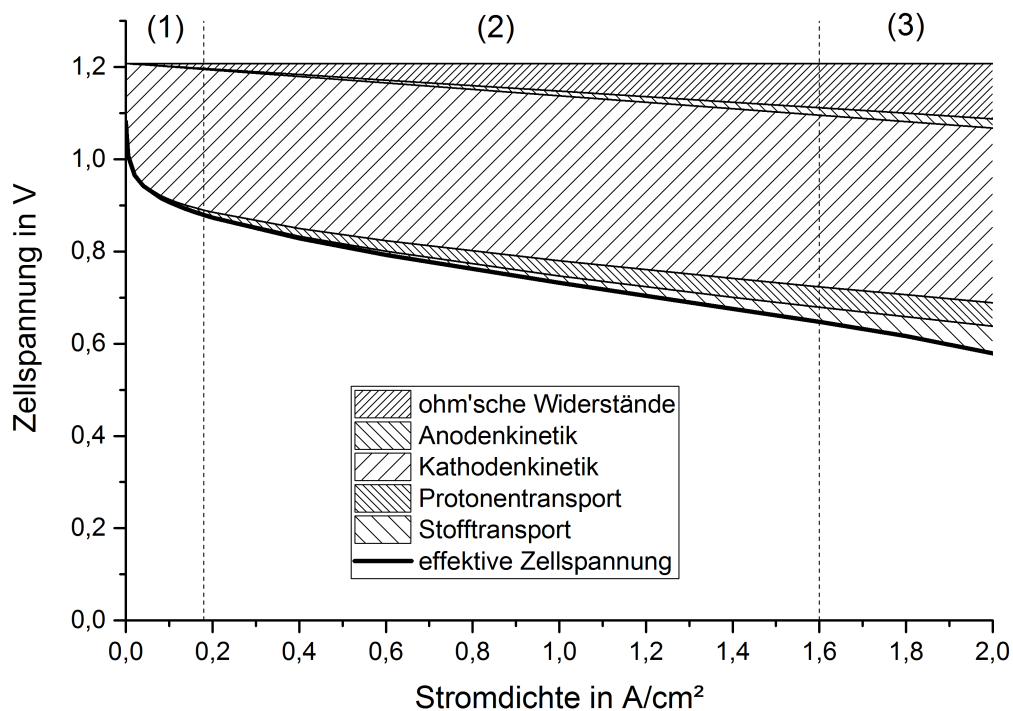
Die temperatur- und konzentrationsabhängige reversible Zellspannung wird in der Realität nicht erreicht, da die Bildung von Platinoxid und die Diffusion von Wasserstoff durch die Membran die Zellspannung reduzieren [8]. In typischen Anwendungen liegt die offene Zellspannung der PEM-Brennstoffzelle zwischen 0,95 V und 1,1 V [9],[10].

Im Betrieb der PEM-Brennstoffzelle ergibt sich der typische, in Abbildung 2.2 dargestellte, Verlauf der Strom-Spannungs-Kennlinie. Die offene Zellspannung  $U_{\text{OCV}}$  sinkt aufgrund verschiedener Verlustmechanismen durch die externe Stromanforderung weiter ab. Die Zellspannung der Brennstoffzelle  $U$  kann aus der offenen Zellspannung  $U_{\text{OCV}}$  abzüglich der Verlustspannungen  $\eta$  in Abhängigkeit der Stromstärke  $i$  berechnet werden.

$$U = U_{\text{OCV}} - \eta_{\text{Akt}} - \eta_{\text{Arb}} - \eta_{\text{Sto}} \quad (2.5)$$

Im Aktivierungsbereich (1), im Bereich kleiner Ströme, entstehen die zusätzlichen Spannungsverluste hauptsächlich durch die Kinetik der Kathodenreaktion und den Übergang der Elektronen zwischen Elektrode und Elektrolyt. Die Spannungsverluste können durch die Butler-Volmer-Gleichung beschrieben werden und steigen logarithmisch mit der Stromstärke [7],[8].

<sup>1</sup> 25 °C und 101325 Pa.



**Abbildung 2.2:** Beispielhafte Strom-Spannungs-Kennlinie einer PEM-Brennstoffzelle, (1) Aktivierungsbereich, (2) Arbeitsbereich, (3) Stofftransportlimittierter Bereich

Gleichung 2.6 zeigt die Berechnung der Spannungsverluste am Beispiel der Kathode im Aktivierungsbereich  $\eta_{\text{Akt,c}}$  mit dem Transferkoeffizienten  $\alpha_c$ , der Austauschstromdichte der Kathode  $i_{0,c}$  und der Stromdichte  $i$  der Brennstoffzelle [11].

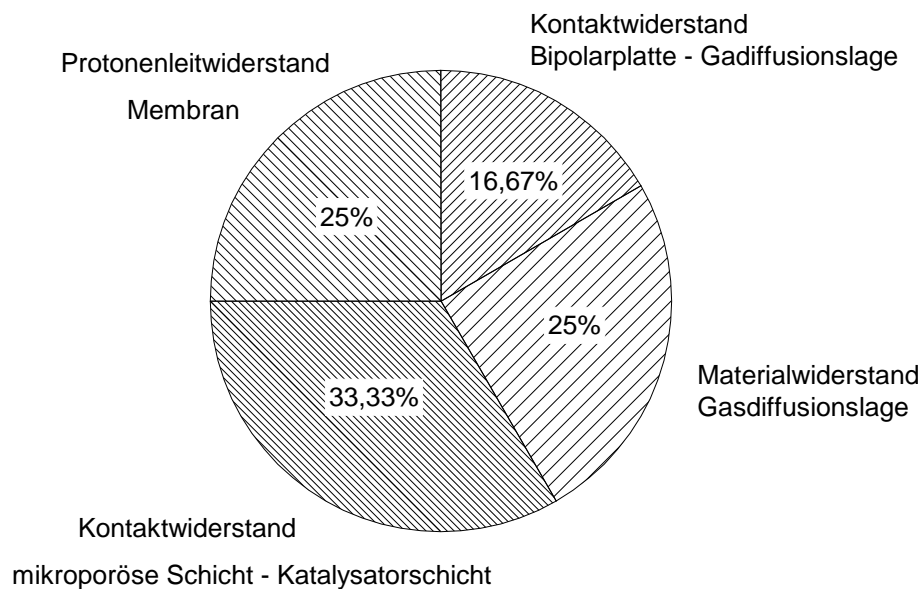
$$\eta_{\text{Akt,c}} = \frac{R \cdot T}{\alpha_c \cdot F} \cdot \ln \left( \frac{i}{i_{0,c}} \right) \quad (2.6)$$

Im sogenannten Arbeitsbereich (2) der Brennstoffzelle erzeugen die ohmschen Widerstände  $R_{\text{BZ}}$  zusätzlich zu den Spannungsverlusten im Aktivierungsbereich einen linearen Abfall der Zellspannung mit zunehmender Stromstärke. Dominiert werden die ohmschen Widerstände durch die elektrischen Kontakt- und Materialwiderstände der Brennstoffzelle und den Transportverlusten der Protonen durch die Membran [7],[2].

$$\eta_{\text{Arb}} = i \cdot R_{\text{BZ}} \quad (2.7)$$

Der Einfluss der ohmschen Widerstände wird mit steigender Stromdichte immer bedeutsamer. In dem in Abbildung 2.2 gezeigten Beispiel erzeugen die ohmschen Widerstände bei einer Stromdichte von  $2,0 \text{ A/cm}^2$  einen Spannungsverlust von  $120 \text{ mV}$ . Abbildung 2.3 zeigt die Aufteilung der ohmschen Verluste des Beispiels bei der Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  aus ex-situ Messungen

und Modellannahmen der Volkswagen AG.



**Abbildung 2.3:** Aufteilung der ohmschen Verluste bei  $2 \text{ A/cm}^2$  des in Abbildung 2.2 gezeigten Beispiels

Der Widerstand der Membran für die Protonenleitung und der elektrische Materialwiderstand für die Gasdiffusionslagen machen je ca. 25 % des Gesamtwiderstands aus. Der elektrische Kontaktwiderstand der Bipolarplatte zu den Gasdiffusionslagen beträgt ca. 17 % und lässt sich über geeignete Materialien und Beschichtungen der Bipolarplatte optimieren [12],[13],[14],[15]. Der Materialwiderstand der Bipolarplatte macht bei aktuell möglichen Materialdicken weniger als 0,01 % des elektrischen Gesamtwiderstands aus.

Den größten Anteil in dem dargestellten Beispiel hat der elektrische Kontaktwiderstand zwischen mikroporöser Schicht der Gasdiffusionslage und der Katalysatorschicht mit ca. 33 %. Dieser Widerstand ist der einzige Widerstand, der durch das Design der Bipolarplatte, insbesondere der Kanal- und Stegstruktur, beeinflusst werden kann. Zur Reduzierung der elektrischen Kontaktwiderstände wird eine Brennstoffzelle verpresst und in einem Spannsystem fixiert. Die Verpresskraft wird dabei über die Bipolarplatte in die Funktionsschichten eingeleitet. Im Bereich der Kanäle wird in die darunterliegenden Funktionsschichten keine direkte Kraft eingebracht. Die Verpressung erfolgt hier indirekt von den Stegen der Bipolarplatte über die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage. Die Kanalbreite bestimmt zusammen mit den mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage, wie gut die Kontaktierung der mikroporösen Schicht mit der Katalysatorschicht der Brennstoffzelle ist.

Der ohmsche Widerstand der Brennstoffzelle kann mittels Impedanzspektroskopie aus dem Hochfrequenzwiderstand bestimmt werden [16]. Durch ex-situ Messungen der einzelnen Kompen-



ten kann anschließend eine Aufteilung des gemessenen Gesamtwiderstands der Brennstoffzelle vorgenommen werden.

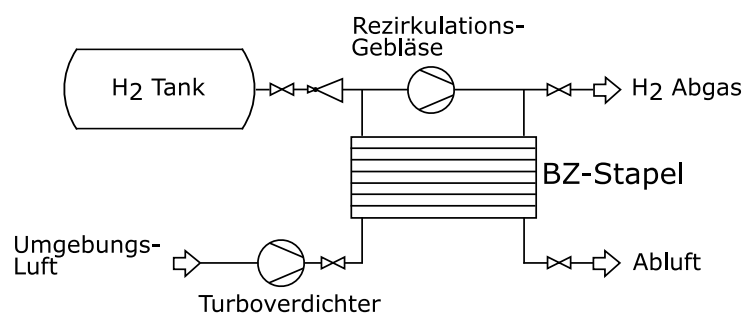
Im stofftransportlimitierten Bereich (3) sinkt die Zellspannung mit zunehmender Stromstärke stark ab. Die Versorgung der Elektroden, maßgeblich der Kathode, mit Reaktionsgas wird geschwindigkeitsbestimmend und limitiert die elektrochemische Reaktion bis zum Erreichen des Grenzstroms [7]. Die Spannungsverluste  $\eta_{\text{Sto}}$  werden aus dem Konzentrationsgradienten der Reaktionsgase zwischen Gaskanal und Katalysatorschicht bestimmt.

$$\eta_{\text{Sto}} = \frac{R \cdot T}{n \cdot F} \cdot \ln \left( \frac{C_{\text{Kanal}}}{C_{\text{Kat}}} \right) \quad (2.8)$$

Die Messung des Grenzstroms kann zur Bestimmung des Stofftransportwiderstands der Brennstoffzelle genutzt werden [17],[18] und auf die Anteile durch die Komponenten der Bipolarplatte aufgeschlüsselt werden [19]. Der Grenzstrom beschreibt die maximal mögliche Stromstärke der Brennstoffzelle und ist hauptsächlich die Stofftransporteigenschaften der Gasdiffusionslage bestimmt. In Katalysatorschichten mit niedriger Katalysatorbeladung ( $< 0,05 \text{ mg}_{\text{Pt}} \text{ cm}_{\text{MEA}}^{-2}$ ) kommt es in diesen zu einem deutlichen zusätzlichen Transportwiderstand [20],[21].

In der automobilen Anwendung wird der Sauerstoff für die elektrochemische Reaktion aus der Umgebungsluft verwendet. Zur Leistungssteigerung wird die Luft verdichtet und befeuchtet und dem Brennstoffzellenstapel zugeführt. Der Wasserstoff wird in Drucktanks bis 700 bar mitgeführt und über Druckregelventile auf den Betriebsdruck gedrosselt.

Die Brennstoffzelle wird mit überstöchiometrischen<sup>2</sup> Volumenströmen betrieben, um die Leistung, Betriebsstabilität und Lebensdauer zu erhöhen. Um die Umsetzungsrate des mitgeführten Wasserstoffs trotz überstöchiometrischem Betrieb zu erhöhen, wird der Wasserstoff im Brennstoffzellensystem rezirkuliert und mit dem Frischgas aus dem Drucktank dem Brennstoffzellenstapel erneut zugeführt.



**Abbildung 2.4:** Vereinfachtes Fließbild des Brennstoffzellensystems im Fahrzeug

<sup>2</sup> Überstöchiometrisch bedeutet, dass mehr Gas, als für die elektrochemische Reaktion nötig ist, der Brennstoffzelle zugeführt wird.

## 2.2 Aufbau

### 2.2.1 Membran-Elektroden-Einheit

Die Membran-Elektroden-Einheit (MEA<sup>3</sup>) ist das elektrochemische Herzstück der Brennstoffzelle. Neben der elektrischen Isolierung der Halbzellen übernimmt die Membran als Elektrolyt den Protonentransport von Anode zu Kathode. Die Membran in PEM-Brennstoffzellen besteht aus chemisch stabilisierten perfluorierten und sulfonierten Polymeren. An den Nebenkettensystemen der PTFE-Hauptkette sind stark saure Sulfonsäuregruppen gebunden, die über die Einlagerung von Wasser den Protonentransport ermöglichen. Die Protonenleitfähigkeit der Membran steigt mit zunehmender Temperatur und zunehmendem Wassergehalt<sup>4</sup> [7],[22].

Auf die Membran werden die Elektroden der Brennstoffzelle aufgebracht. Die Elektroden bestehen aus einem Gemisch aus Edelmetallkatalysatorpartikeln, hauptsächlich Platin oder Platinlegierungen, einem hochporösen Kohlenstoff als Trägermaterial und einem protonenleitfähigen Ionomer. An der sogenannten 3-Phasen-Grenze des Gemischs finden die elektrochemischen Reaktionen der Brennstoffzelle statt [23],[24].

### 2.2.2 Gasdiffusionslage

Die Gasdiffusionslagen (GDL) bestehen aus dem Substratmaterial und einer auf dieses aufgetragenen mikroporösen Schicht (MPL). Das Substratmaterial besteht aus Kohlenstofffasern, die typischerweise zu einem Kohlenstoffpapier, -gewebe oder -vlies verarbeitet und durch einen PTFE-Binder imprägniert werden. Die mikroporöse Schicht besteht aus einer Kohlenstoffruß-Paste, in die zur Erhöhung der Hydrophobizität PTFE zugemischt wird [25].

Die Gasdiffusionslage liegt mit der mikroporösen Schicht zu den Elektroden in der Brennstoffzelle. Die Hauptaufgaben der GDL bestehen in der Verteilung der Reaktionsgase aus der Flussfeldstruktur der Bipolarplatte auf die Katalysatorschicht, dem Transport von Elektronen von und zu der Katalysatorschicht, sowie dem Abtransport von Wärme und flüssigem Produktwasser aus der Katalysatorschicht [26],[25].

Für eine gute Kontaktierung der mikroporösen Schicht zur Katalysatorschicht muss die Gasdiffusionslage die durch die Bipolarplatte eingeleitete Verpresskraft der Brennstoffzelle möglichst homogen verteilen. Das weiche Substrat der GDL wird durch die Verpresskraft unter den Stegen der Bipolarplatte verdichtet. Im Bereich der Gaskanäle wird keine direkte Kraft eingeleitet, so dass es zu einer inhomogenen Kompression der GDL kommt. Die daraus folgenden Auswirkungen auf u.a. Intrusion, Permeabilität, elektrische Widerstände und Kontaktwiderstände wurden von Nitta et al. [27],[28] publiziert.

Der Einfluss der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage auf die Intrusion in den Gaskanal und den Kontaktwiderstand zur Katalysatorschicht werden in Kapitel 3.1.1 und 3.1.2

3 In dieser Arbeit und häufig auch in der Literatur wird die Membran-Elektroden-Einheit mit den zwei Gasdiffusionslagen als MEA bezeichnet.

4 In mol<sub>H<sub>2</sub>O</sub>/mol<sub>SO<sub>3</sub><sup>-</sup></sub>.

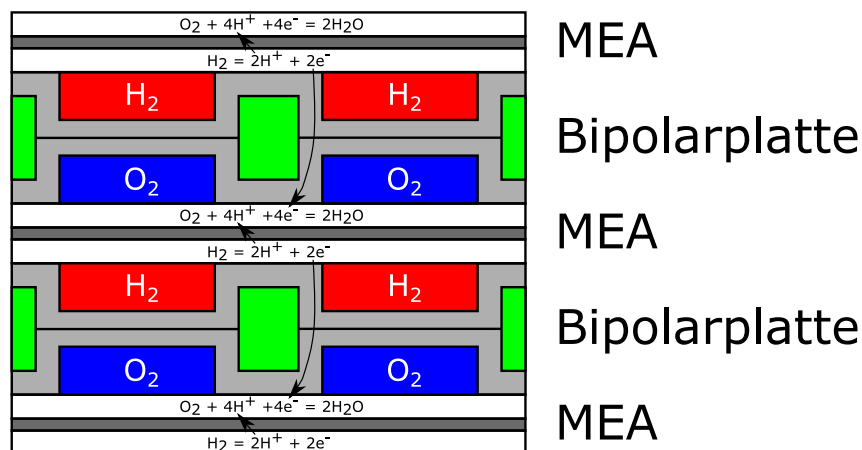
ausführlicher diskutiert.

Eine Zusammenfassung über die Anforderungen an die Gasdiffusionslage in PEM-Brennstoffzellen haben Dhanushkodi et al. 2015 veröffentlicht [29].

### 2.2.3 Bipolarplatte

Die Bipolarplatten, auch Separatorplatten genannte, trennen die chemischen Halbzellen zweier benachbarter Brennstoffzellen im Brennstoffzellenstapel. Durch das elektrische In-Reihe-Schalten der Einzelzellen im Stapel befindet sich auf der einen Halbseite der Bipolarplatte die Anode der einen Zelle und auf der gegenüberliegenden Halbplatte die Kathode der anderen Zelle. Zwischen den gasführenden Bereichen, Anode und Kathode, der Bipolarplatte wird meistens das Kühlmittel geführt.

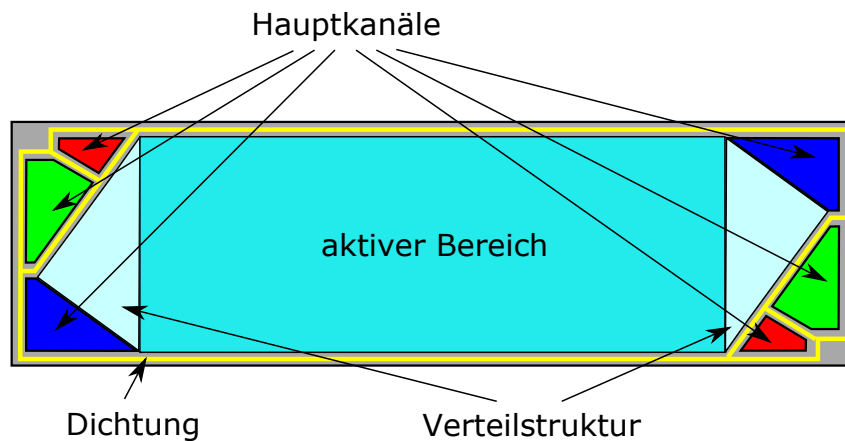
Neben der räumlichen Trennung der Halbzellen, der elektrischen Kontaktierung zweier Brennstoffzellen und der Erzeugung einer gewissen mechanischen Stabilität der Brennstoffzelle gehören zur Hauptaufgabe der Bipolarplatten die homogene Versorgung der Brennstoffzelle mit Reaktionsgasen und die Kühlung des aktiven Bereichs [30].



**Abbildung 2.5:** Funktionsprinzip der Bipolarplatte im Brennstoffzellenstapel

Der typische Aufbau einer Bipolarplatte kann in drei medienführende Bereiche (Hauptkanäle, Verteilstruktur und aktiver Bereich) und die Dichtung unterteilt werden (vgl. Abbildung 2.6).

Der aktive Bereich der Bipolarplatte deckt den elektro-chemisch aktiven Bereich der Brennstoffzelle ab, so dass diese thermisch und elektrisch über die Gasdiffusionslage mit der jeweiligen Elektrode verbunden ist. Die Verteilstruktur dient der homogenen Verteilung der Reaktionsgase auf den aktiven Bereich innerhalb der Bipolarplatte. Die Verteilstrukturen verbinden den aktiven Bereich der Bipolarplatte mit dem jeweiligen Hauptkanal. Durch das Aufstapeln mehrerer Einzelzellen zu einem Brennstoffzellenstapel entstehen aus den Aussparungen innerhalb der Bipolarplatte die sogenannten Hauptkanäle. Die Hauptkanäle der Bipolarplatte erzeugen die Verteilung der Medien (Wasserstoff (rot), Luft (blau), Kühlmittel (grün)) über den gesamten



**Abbildung 2.6:** Aufbau einer typischen PEM-Brennstoffzellen-Bipolarplatte

Brennstoffzellenstapel.

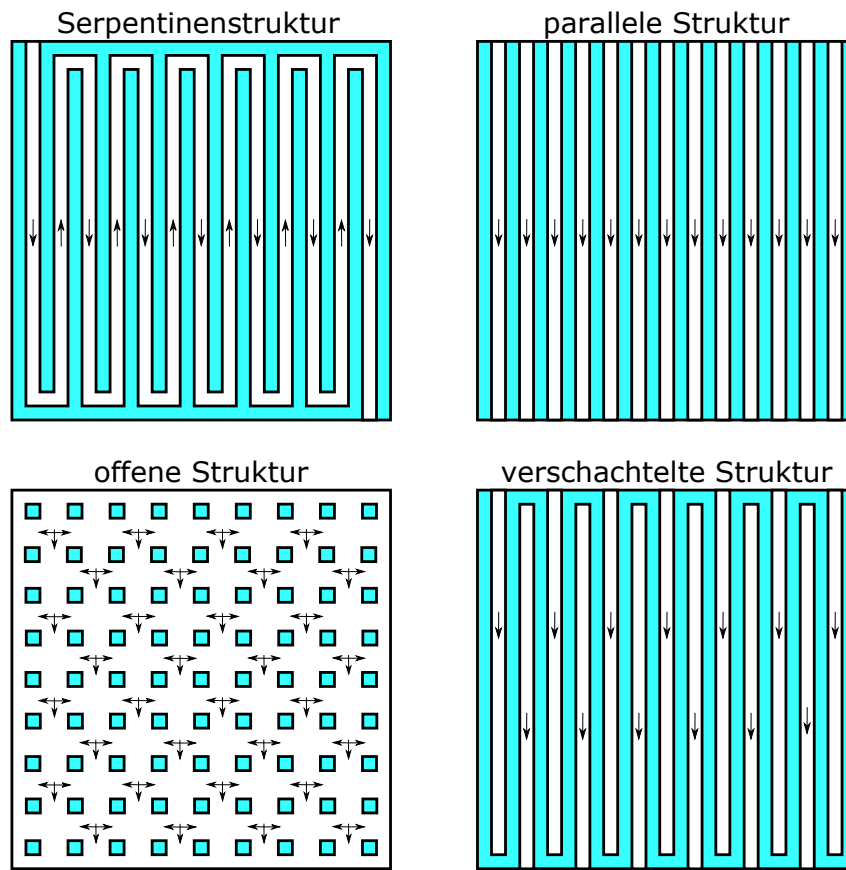
### Aktiver Bereich

Die Flussfeldstruktur im aktiven Bereich der Bipolarplatte muss die Versorgung der Elektrode mit Reaktionsgas und die Abfuhr der Reaktionswärme und des flüssigen Produktwassers gewährleisten. Dabei wird grundsätzlich in vier typische Strukturen des aktiven Bereichs der Bipolarplatte unterschieden.

In der Serpentinstruktur werden ein oder mehrere parallele Kanäle in Windungen über den aktiven Bereich geführt. Der Vorteil der Serpentinstruktur liegt in der sehr homogenen Verteilung der Medien über den aktiven Bereich aufgrund des hohen Druckverlusts der langen Kanäle und der hohen Strömungsgeschwindigkeit und damit stabilen Flüssigwasseraustrags innerhalb der Kanäle aufgrund der geringen Kanalanzahl [31]. Der hohe Druckverlust entlang der Serpentine erzeugt eine Konvektion des Reaktionsgases unter dem Steg aufgrund großer lokaler Druckdifferenzen und damit eine Steigerung der Brennstoffzellenleistung [32], [33]. Der hohe Druckverlust der Serpentinstruktur ist auch der große Nachteil, da dieser vom Brennstoffzellensystem aufgebracht werden muss und die Nettosystemleistung verringert. Im Anodenflussfeld der Brennstoffzelle, in dem das Wasserstoffgas aufgrund der geringen Dichte nur einen geringen Druckverlust erzeugt, bietet die Serpentinstruktur eine sehr gute und einfache Möglichkeit einen stabilen Flüssigwasseraustrag zu erzielen. Die Serpentinstruktur wird daher auch im automobilen Bereich eingesetzt [34].

Eine parallele Flussfeldstruktur bezeichnet die Kanalstruktur im aktiven Bereich mit mehreren, parallelen, geraden Kanälen entlang des aktiven Bereichs. Diese Struktur erzeugt durch die geraden Kanäle einen geringen Druckverlust und damit nur geringe parasitäre Verluste des Brennstoffzellensystems. Aufgrund des geringen Druckverlusts ist es anspruchsvoller als im Serpentinflussfeld eine homogene Verteilung der Medien und einen sicheren Flüssigwasseraustrag zu erzielen [30],[31].

Der Vorteil des parallelen Flussfelds liegt durch den geringen Druckverlust besonders bei Brennstoffzellen mit hohen Leistungsdichten für die Luft und das Kühlmittel aufgrund ihrer hohen



**Abbildung 2.7:** Typische Strukturen des aktiven Bereichs der Bipolarplatte nach [31]

Dichten. Bei hohen Leistungsdichten  $>1,5 \text{ A/cm}^2$  ist die Fluidmenge in den Kanälen so groß, dass der stabile Wasseraustrag gewährleistet ist und der Druckverlust die Nettosystemleistung definiert.

In der offenen Struktur gibt es keine definierten Kanäle. Der Kontakt zwischen Bipolarplatte und Gasdiffusionslage entsteht über sogenannte Pins, so dass auch von einer Pinstruktur gesprochen wird. Diese sind meist in einem wiederkehrenden Muster über den aktiven Bereich angeordnet. Der theoretische Vorteil dieser Struktur durch den großen offenen Bereich und damit kurzen Diffusionswegen wird durch den mangelhaften Wasseraustrag negiert. Durch den offenen Strömungsbereich kann das Gas den Flüssigwassertropfen einfacher ausweichen als diese aus dem Flussfeld auszutragen [31],[35]. Zusätzlich wird von der offenen Struktur nur ein sehr geringer Druckverlust erzeugt, der zu großen Ungleichverteilungen über den aktiven Bereich führen kann [30].

Für die automobilen Anwendung mit hohen Leistungsdichten ist die offene Struktur aufgrund der genannten Nachteile nicht geeignet.

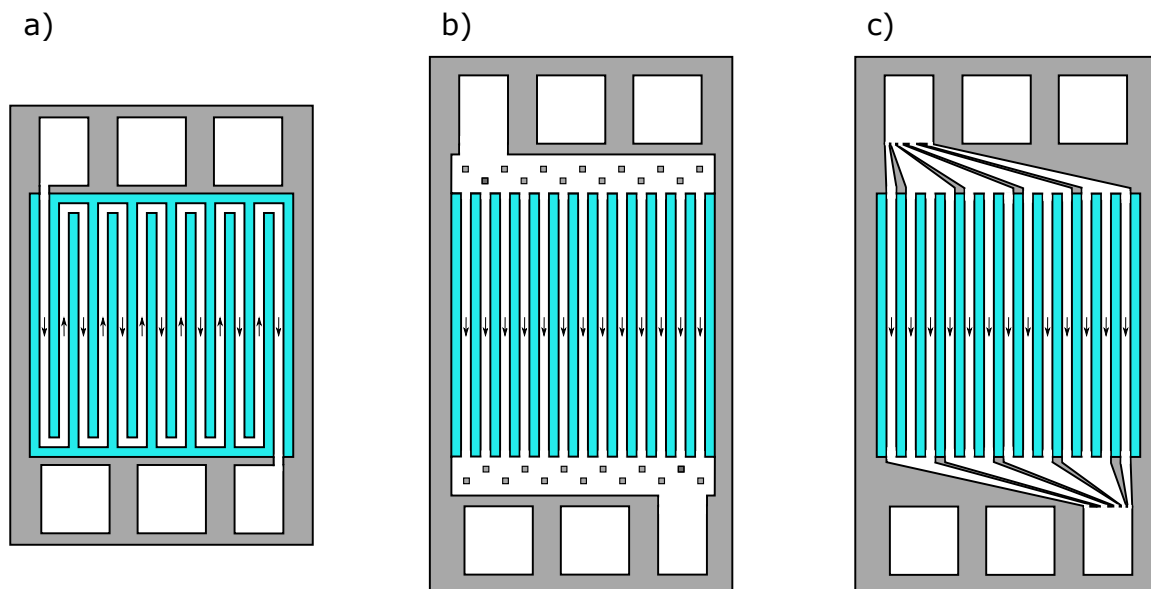
Bei der verschachtelten Struktur gibt es keine durchgehenden Kanäle zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur. Stattdessen verbindet ein Kanal entweder die Einlass- oder die Auslassverteilstuktur. Das Reaktionsgas ist bei diesem Design gezwungen durch die Gasdiffusionslage zu strömen, um von einem Einlasskanal zu einem Auslasskanal zu gelangen, was die Versorgung des Katalysators mit Reaktionsgas verbessert und die Leistung erhöht [31],[36].

Der Nachteil dieser Struktur entsteht bei hohen Stromdichten, wenn das entstehende Produktwasser mit dem Reaktionsgas durch die Gasdiffusionslage konvektieren muss, um in einen Auslasskanal zu gelangen. Des Weiteren erzeugt die erzwungene Konvektion durch die Gasdiffusionslage auch ohne das Auftreten von Flüssigwasser einen so großen Druckverlust, dass die verschachtelte Struktur in der automobilen Anwendung keine Rolle spielt.

### Verteilstruktur

Die Verteilstrukturen der Bipolarplatte verbinden den aktiven Bereich mit den Hauptkanälen des Brennstoffzellenstapels. Sie dienen der homogenen Verteilung der Medien auf den aktiven Bereich, um eine möglichst gleichmäßige chemische Reaktion und Temperaturverteilung zu erzielen.

Je nach Art der Flussfeldstruktur im aktiven Bereich sind unterschiedliche Konzepte der Verteilstruktur möglich.



**Abbildung 2.8:** Verteilstrukturkonzepte zur Verbindung des aktiven Bereichs mit den Hauptkanälen. a) direkte Verbindung aktiver Bereich und Hauptkanal, b) offene Verteilstruktur, c) gerichtete Verteilstruktur

Bei einer ein- oder mehrfach Serpentinstruktur ist es möglich auf eine Verteilstruktur zu verzichten und die Kanäle des aktiven Bereichs direkt an den Hauptkanal anzuschließen.

Bei den anderen Konzepten der Flussfeldstruktur ist für die homogene Verteilung der Medien eine Verteilstruktur zwischen aktivem Bereich und Hauptkanal erforderlich. Dabei wird zwischen zwei typischen Verteilstrukturen unterschieden.

Bei der offenen Verteilstruktur besteht die Verteilstruktur aus einem weitestgehend offenen Bereich, in dem sich das Medium vom Hauptkanal in den aktiven Bereich verteilen kann. Zur Abstützung der MEA oder der Trägerfolie (Subgasket) werden in der offenen Verteilstruktur oft Pins ausgeprägt, um ein Eindringen aufgrund von Druckdifferenzen zwischen Anode und Kathode zu verhindern.

In der gerichteten Verteilstruktur wird der aktive Bereich durch Kanäle mit dem Hauptkanal

verbunden. Dabei kann ein Verteilstrukturkanal mehrere Kanäle im aktiven Bereich versorgen, um den Platzbedarf der Verteilstruktur auf der Bipolarplatte zu reduzieren.

Der Vorteil der direkten Anbindung des aktiven Bereichs an die Hauptkanäle ist die Platzersparnis auf der Bipolarplatte.

Erfordert die Flussfeldstruktur im aktiven Bereich eine Verteilstruktur zu Anbindung an die Hauptkanäle, bietet die offene Verteilstruktur den Vorteil, dass nur ein geringer Druckverlust in der offenen Struktur erzeugt wird und somit eine homogene Verteilung möglich ist. Der Nachteil der offenen Verteilstruktur entsteht durch die Stützpins, in deren Strömungsschatten sich Wassertropfen ansammeln können und nicht mehr ausgetragen werden.

Bei der gerichteten Verteilstruktur gibt es nur sehr wenige Strömungsschatten, in denen sich Wasser ansammeln kann. Durch die Kanalstruktur ist der entstehende Druckverlust größer als bei der offenen Struktur. Aufgrund des begrenzten Platzangebots auf der Bipolarplatte für die Verteilstruktur ist es eine Herausforderung alle Kanäle des aktiven Bereichs mit dem Hauptkanal zu verbinden, so dass eine Gleichverteilung entsteht.

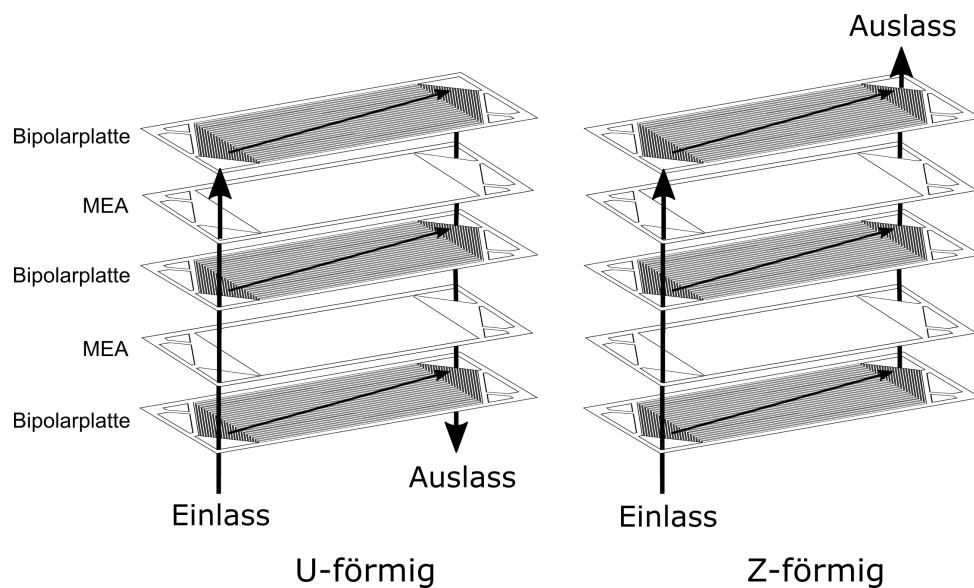
In der Literatur werden weitestgehend offene Verteilstrukturen betrachtet und der generelle Einfluss dieser untersucht [37],[38],[39]. Die internationalen Automobilhersteller publizieren und patentieren sowohl offene [40],[41],[42],[43] als auch gerichtete [43],[44],[45] Verteilstrukturen.

### **Hauptkanal**

Die Hauptkanäle des Brennstoffzellenstapels entstehen durch das Aufstapeln der Einzelzellen zu seinem Brennstoffzellenstapel. Die Größe der Aussparung in der Bipolarplatte für das jeweilige Medium bestimmt den hydraulischen Durchmesser der Hauptkanäle. Die Hauptkanäle haben die Aufgabe die Medien auf jede Einzelzelle des Stapels zu verteilen. Je geringer der Druckverlust der Hauptkanäle im Verhältnis zum Druckverlust in der Bipolarplatte ist, desto besser ist die Verteilung der Medien über den Stapel [46].

Die Durchströmung des Brennstoffzellenstapels kann in U- oder Z-förmig unterschieden werden (vgl. 2.9). Die Z-Durchströmung bietet hinsichtlich der Verteilung bei gleichen Größen der Hauptkanäle einen leichten Vorteil gegenüber der U-Durchströmung [47],[48] oder keinen erkennbaren [49].

Der große Nachteil der Z-Durchströmung ist, dass der Brennstoffzellenstapel auf den gegenüberliegenden Seiten mit dem Brennstoffzellensystem verbunden werden muss und der Bauraum im Kraftfahrzeug begrenzt ist. Aus diesem Grund wird für der automobilen Brennstoffzellenstapel häufig in U-Richtung durchströmt, um einen einfacheren und kompakteren Anschluss und damit auch ein kompakteres Brennstoffzellensystem umsetzen zu können.



**Abbildung 2.9:** Durchströmung des Brennstoffzellenstapels U- oder Z-förmig

### Bipolarplattenmaterial

An das Material der Bipolarplatten werden drei Hauptanforderungen gestellt. Es muss elektrisch und thermisch leitend sein sowie einen geringen Kontaktwiderstand zu den Gasdiffusionslagen aufweisen, es muss dicht gegenüber den Medien in der Bipolarplatte sein und es muss korrosionsbeständig unter allen Betriebsbedingungen sein. Das Augenmerk der Forschung liegt dabei auf der Reduzierung der Kosten und des Gewichts der Bipolarplatten [50].

Die Serienfertigung von Bipolarplatten mit Stückzahlen von über 100000 Stück pro Jahr erfordert die Formung der Strukturen der Bipolarplatte innerhalb weniger Sekunden. Für diese Anforderung hat sich das Umformen von Edelstahl- oder Titanblechen oder das Pressen von Graphitkomposit bewährt.

Metallische Bipolarplatten haben den Vorteil, dass sehr dünne Bleche von ca. 75  $\mu\text{m}$  bis 100  $\mu\text{m}$  umgeformt werden können und so sehr flache Bipolarplatten entstehen. Die Nachteile der metallischen Bipolarplatten sind das hohe Gewicht aufgrund der hohen Dichte und Ausbildung einer Passivierungsschicht auf der Oberfläche, die den Kontaktwiderstand erhöht. Aus diesem Grund werden metallische Bipolarplatten häufig mit einer Gold- oder Kohlenstoffschicht beschichtet [50],[13].

Eine weitere Besonderheit bei metallischen Bipolarplatten ist, dass sich aufgrund des Umformprozesses die Struktur der Kühlmittelkanäle aus der Struktur der Gaskanäle ergibt. Die Auslegung der Kanalstrukturen in metallischen Bipolarplatten muss daher für alle drei Medien gleichzeitig und aufeinander abgestimmt erfolgen.

Bipolarplatten aus gepresstem Graphitkomposit haben eine sehr gute thermische und elektrische Leitfähigkeit und bilden im Betrieb keine Passivierungsschicht aus [51],[52]. Während der Herstellung der gepressten Kompositplatten wird in einem zusätzlichen Arbeitsschritt die entstandene Polymerhaut mechanisch entfernt, um die Leitfähigkeiten zu gewährleisten. Durch das Pressen des Komposits sind die Kanalstrukturen des Kühlmittels und der Gase unabhängig voneinander und können frei designt werden. Der Nachteil der Bipolarplatten aus gepresstem



---

Graphitkomposit ist, dass für die mechanische Stabilität Mindestwandstärken von ca. 150  $\mu\text{m}$  benötigt werden gegenüber den ca. 75  $\mu\text{m}$  Blechdicke bei metallischen Bipolarplatten.

## 3 Entwicklung von Designrichtlinien

Eine Steigerung der Stromdichte im Arbeitsbereich der Brennstoffzelle erhöht deren Leistung und damit deren Leistungsdichte. Mit steigender Leistungsdichte kann aus gleichem Bauraum im Automobil mehr Leistung erzielt werden oder der nötige Bauraum für eine konstante Leistung reduziert werden.

Der Einfluss der Bipolarplatte auf die Strom-Spannungs-Kennlinie der Brennstoffzelle wird besonders bei hohen Stromdichten relevant. Die ohmschen Widerstände müssen so gering wie möglich sein und die gleichmäßige Versorgung der Brennstoffzelle mit Reaktionsgasen und Kühlmittel muss sichergestellt sein.

In diesem Kapitel werden für die gasführenden Bereich der Bipolarplatte Designrichtlinien entwickelt, um die Widerstände zu reduzieren und die Gleichverteilung zu erhöhen.

Mit diesen Designrichtlinien entsteht ein Grundgerüst für die Auslegung einer Bipolarplatte, mit denen einfach und schnell erste Konzepte entworfen und bewertet werden können.

Im aktiven Bereich werden für die Kanal- und Stegstrukturen in Abhängigkeit der Eigenschaften der Gasdiffusionslage Designrichtlinien entworfen, um die elektrischen Spannungsverluste durch die Bipolarplatte zu minimieren und die Betriebstabilität der Brennstoffzelle zu erhöhen. Die Designrichtlinien für die Verteilstruktur und die Hauptkanäle dienen der Optimierung der Verteilung der Medien, um die Betriebsstabilität und damit die Lebensdauer zu erhöhen.

### 3.1 Auslegung der Kanalbreite im aktiven Bereich

In typischen PEM-Brennstoffzellen wird das Reaktionsgas über ausgeformte Kanalstrukturen in der Bipolarplatte über den aktiven Bereich geführt. Zur elektrischen Kontaktierung und Reduzierung der Kontaktwiderstände zwischen der Bipolarplatte und den Funktionsschichten und zwischen den Funktionsschichten selbst wird die Brennstoffzelle verpresst und in einem Spannsystem fixiert. Durch die Verpressung wird das poröse Gewebe der Gasdiffusionslage (GDL) im Bereich der Auflagefläche der Stege komprimiert. Unter den Kanälen besteht kein direkter Kontakt zwischen Bipolarplatte und Gasdiffusionslage, so dass die Kompression hier nur indirekt über das mechanische Verhalten der Gasdiffusionslage erfolgt. Aufgrund der indirekten Verpressung unter den Kanälen kommt es zu einer geringeren Kompression und somit zu einem Eindringen (Intrusion) der Gasdiffusionslage in den Gaskanal und einer schwächeren Verpressung der Funktionsschichten in diesem Bereich.

Die Auswirkungen des Einflusses von Kanalbreite und mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage wurde bereits in mehreren Veröffentlichungen untersucht. 2009 haben Reum et al. [53] mit orts aufgelösten Stromdichtemessungen verschiedene Kanaldesigns evaluiert und gezeigt, dass schmale Kanäle zu höheren Leistungen führen. Han et al. [54] haben 2010 nachgewiesen, dass mit steigender Biegesteifigkeit der GDLs eine bessere Leistung der Brennstoffzelle erreicht und ein geringerer Hochfrequenzwiderstand gemessen wird. Zusätzlich wurde mit steigender Biegesteifigkeit ein geringerer Druckverlust gemessen, der auf eine geringe Intrusion der GDL

in den Gaskanal zurückgeführt wurde. Auch Naing et al. [55] haben 2011 erkannt, dass sich eine erhöhte Biegesteifigkeit positiv auf die Zelleistung auswirkt. Aufbauend auf den Ergebnissen von Han und Naing haben Baik et al. [56] 2012 untersucht, welchen Einfluss die Kanalbreite und die Biegesteifigkeit der GDL auf die Leistung der Brennstoffzelle hat. Sie haben gezeigt, dass mit steigender Biegesteifigkeit der GDL die Zelleistung steigt und die Intrusion in den Gaskanal sinkt. Gleichzeitig sinkt die Leistung mit zunehmender Kanalbreite.

Scholta et al. [57] ermittelten 2006, dass mit sinkendem Steg-Kanal-Breitenverhältnis der Zellwiderstand steigt. Bei  $0,7 \text{ A/cm}^2$  haben sie eine optimale Kanalbreite zwischen 0,5 und 1,0 mm bestimmt. Radhakrishnan et al. [58] haben 2011 die Intrusion von Papier und gewobenen GDLs in den Gaskanal in Abhängigkeit der Kanalbreite untersucht. Die Intrusion ist laut ihrer Ergebnisse der limitierende Faktor in der Auslegung der Kanalbreite. Die Ergebnisse von Maidhily et al. [59] zeigten 2013, dass die kleinste, experimentell untersuchte Kanalbreite von 0,7 mm die höchste Leistungsdichte in einer Brennstoffzelle erzeugt bei gleichzeitig geringstem Hochfrequenzwiderstand gegenüber Kanalbreiten von 1,0 und 2,0 mm.

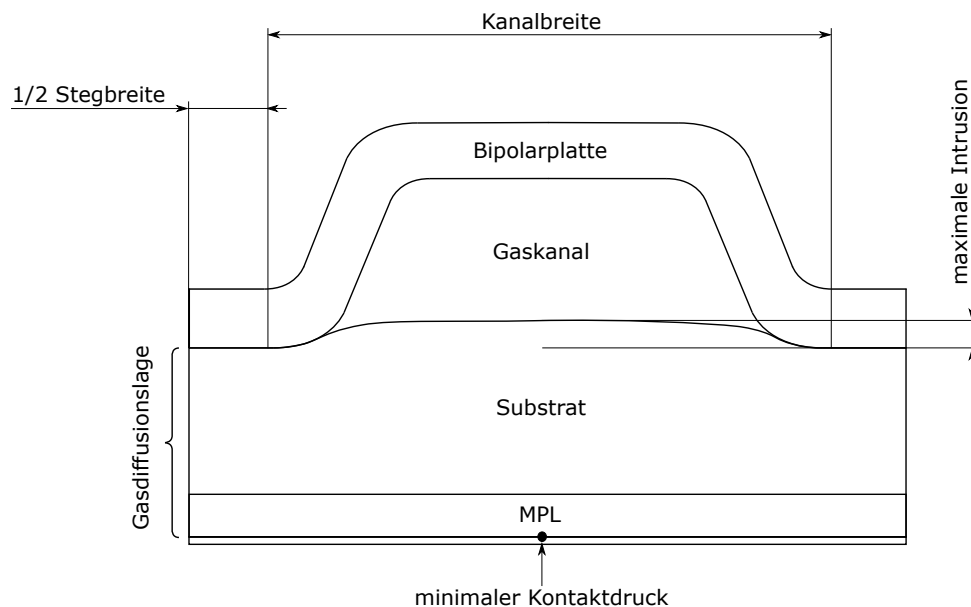
In diesem Kapitel soll ein allgemeines Verständnis für den Zusammenhang der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage und der Breite des Gaskanals geschaffen werden. Für eine exaktere iterative Vorauslegung der Kanalstruktur wird ein empirisches Modell entwickelt, mit dem sich die maximale Intrusion der GDL in den Gaskanal und der minimale Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht (MPL) der GDL und Katalysatorschicht (CL) berechnen lässt. Zur Bestimmung der entstehenden elektrischen Spannungsverluste aus dem minimalen Kontaktdruck zwischen MPL und CL wird ein neues Messverfahren für den Kontaktwiderstand zwischen MPL und CL vorgestellt und daraus eine Designrichtlinie für den minimalen Kontaktdruck abgeleitet.

### 3.1.1 Einfluss der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage

Die Breite der Gaskanäle im aktiven Bereich der Brennstoffzelle bestimmt im Zusammenspiel mit den mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage (GDL) sowohl die Intrusion als auch den Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht (MPL) der Gasdiffusionslage und Katalysatorschicht (CL). Die Intrusion, also das Eindringen der Gasdiffusionslage in den Gaskanal, verringert den Strömungsquerschnitt und damit den hydraulischen Durchmesser des Gaskanals. Als Folge entsteht ein erhöhter Druckverlust entlang des Kanals. Der Druckverlust entlang des Gaskanals ist dabei proportional zum Volumenstrom  $\dot{Q}$  und invers proportional zur 4. Potenz des hydraulischen Durchmessers  $d_h$  des Gaskanals [60]. Eine Verringerung des hydraulischen Durchmessers um 5 % erzeugt eine Steigerung des Druckverlusts um fast 23 %. Durch den erhöhten Druckverlust der Gasströmung entlang der Gaskanäle sinkt der Partialdruck der Reaktionsgase und die Brennstoffzellenspannung sinkt (vgl. Gleichung 2.4). Zusätzlich erfordert der erhöhte Druckverlust einen Mehrbedarf an elektrischer Leistung für die Versorgungskomponenten des Brennstoffzellensystems, da der Druckanstieg durch den Luftkompressor oder das Wasserstoffzirkulationsgebläse aufgebracht werden muss. Mit sinkendem Strömungsquerschnitt durch die Intrusion sinkt auch der kapillare Durchmesser des Gaskanals, der Kapillardruck steigt und der Austrag von flüssigem Wasser wird erschwert.

Der Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht wird maßgeblich durch die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage und die Breite des Gaskanals bestimmt. Über die Stege der Bipolarplatte wird die Verpresskraft in die Funktionsschichten

der Brennstoffzelle eingeleitet, so dass in diesem Bereich der Kontaktdruck am größten ist. Im Bereich des Kanals wird keine direkte Kraft eingeleitet und der Kontaktdruck fällt stark ab, bis das Minimum im Bereich des Zentrums des Gaskanals erreicht wird. An diesem Punkt herrscht der minimale Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht. Der geringe Kontaktdruck auf die Katalysatorschicht führt zu einem erhöhten Kontaktwiderstand zwischen den Funktionsschichten und verringert damit die Leistung der Brennstoffzelle [61].



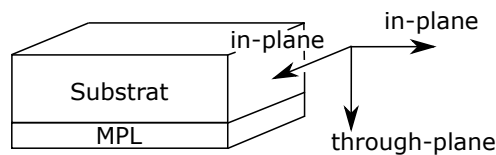
**Abbildung 3.1:** Prinzipdarstellung der maximalen Intrusion der GDL in den Gaskanal und des Orts des minimalen Kontaktdrucks

Für die optimale Auslegung der Bipolarplatte, insbesondere der Kanalstruktur, an die Anforderungen und Vorgaben des Brennstoffzellensystems, müssen die Wechselwirkungen mit den mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage im Auslegungsprozess berücksichtigt werden. Mit Hilfe von FEM (Finite Element Methode) Simulationen lassen sich die Intrusion und der Kontaktdruck berechnen [62],[63],[64],[65]. Jede Änderung in der Kanal- und Stegbreite sowie Änderungen in den Abmessungen der Gasdiffusionslagen erfordern Anpassungen im Rechenmodell und ggf. in der Vernetzung. Für die iterative Vorauslegung des Kanal- und Stegdesigns auf die Anforderungen an die Brennstoffzelle ist die simulative Analyse mit FEM-Programmen ein zeitaufwendiger Prozess, da hier oftmals mehrere dutzend bis hundert verschiedene Designvarianten berechnet werden.

In dieser Arbeit wird daher ein empirisches Rechenmodell entwickelt, das basierend auf FEM-Simulationsergebnissen für verschiedene Kanal-Steg-Paarungen und mechanische Eigenschaften der Gasdiffusionslage die Intrusion in den Gaskanal und den minimalen Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht bestimmt. Damit ist es schon in der Auslegungsphase der Brennstoffzelle möglich, das Zusammenspiel zwischen Kanaldesign und mechanischen Eigenschaften sofort für verschiedene Designvarianten zu evaluieren.

### Empirisches Intrusions- und Kontaktdruckmodell

Die Charakterisierung der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage erfolgte nach Kleemann et al. 2009 [66] am Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW) im Auftrag der Volkswagen AG. Der Elastizitätsmodul wird aus der Biegesteifigkeit berechnet und in den in-plane Richtungen als konstant angenommen. Aus der Steigung der Kompressionshärte in Materialdickenrichtung (through-plane), das aus einer Kraft-Weg-Messung in Abhängigkeit der Druckspannung ermittelt wird, wird der Elastizitätsmodul in through-plane Richtung bestimmt. Der Schubmodul wird über die Vielfach-Kurzbalken-Biegemethode und anschließende FEM-Simulation bestimmt. Aufbauend auf der Dissertation von Kleemann 2012 [64] hat Schmidt 2012 [67] das nicht-lineare, orthotrope Materialmodell für die Strukturmechaniksimulationen in Abaqus/CAE implementiert.



**Abbildung 3.2:** In-plane und through-plane Richtungen der Gasdiffusionslage

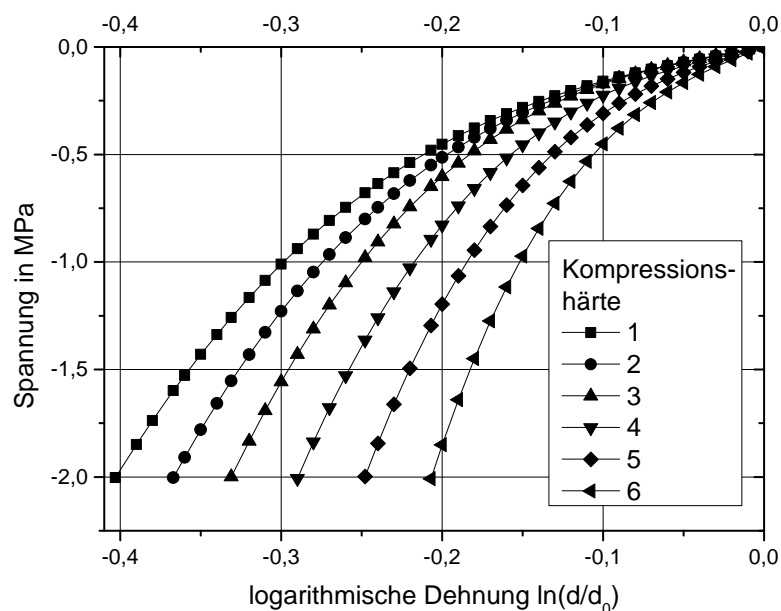
Mit dem empirischen Modell können der Einfluss der Kanal- ( $K$ ) und Stegbreite ( $S$ ), des mittleren Kontaktdrucks ( $P$ ) zwischen GDL und Steg, der unverpressten GDL Dicke ( $D$ ), sowie des Elastizitäts- ( $E$ ) und Schubmoduls ( $G$ ) und die Kompressionshärte ( $C$ ) der GDL abgebildet werden. In Tabelle 3.1 ist der untersuchte Parameterraum für das Modell dargestellt. Zur Bestimmung des empirischen Zusammenhangs zwischen Kanalbreite, E- und G-Modul sowie des Verpressdrucks wird der Basisfall mit den verschiedenen E- und G-Modulen des Parameterraums berechnet und eine Basisformel entwickelt. Um auch den Einfluss der GDL-Dicke, Stegbreite und der Kompressionshärte der GDL abzubilden, werden drei Korrekturformeln entwickelt, die die Basisformel entsprechend korrigieren. In Abbildung 3.3 sind die Spannungs-Dehnungs-Verläufe der sechs untersuchten Kompressionshärten dargestellt. Diese beschreiben einen Bereich, in dem typische kommerzielle GDLs liegen. In Anhang A.1 sind die sechs Kompressionshärten mathematisch beschrieben.

**Tabelle 3.1:** Parameterraum Rechenmodell

Bezeichnung	Variable	Auflösung	Einheit
Elastizitätsmodul	$E$	500, 1000, 2000, 5000	MPa
Schubmodul	$G$	3, 5, 7	MPa
unverp. GDL-Dicke	$D$	0,150, 0,175, 0,200, 0,225, 0,250	mm
Kompressionshärte	$C$	1, 2, 3, 4, 5, 6	-
mittlerer Kontaktdruck	$P$	0,5, 1,0, 1,5, 2,0	MPa
Kanalbreite	$K$	0,4, 0,6, 0,8, 1,0	mm
Stegbreite	$S$	0,2, 0,4, 0,6	mm

**Tabelle 3.2:** Materialwerte für den Basisfall

Bezeichnung	Wert	Einheit
Elastizitätsmodul	1000	MPa
Schubmodul	5	MPa
unverp. GDL-Dicke	0,200	mm
Kompressionshärte	1	-
mittlerer Kontaktdruck	variabel	MPa
Kanalbreite	variabel	mm
Stegbreite	0,2	mm

**Abbildung 3.3:** Spannungs-Dehnungs-Kurven der 6 Kompressionshärten (mathematische Beschreibung in Anhang A.1)

Der Aufbau des Rechenmodells für die Strukturmechaniksimulation ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Als Stegbreite wird nur der horizontale Kontaktbereich der Bipolarplatte bezeichnet. Die Umformradien von  $50\ \mu\text{m}$  zählen mit zur Kanalbreite. Bei der mechanischen Charakterisierung der Gasdiffusionslagen lässt sich nicht zwischen den mechanischen Eigenschaften des Substratmaterials der GDL und der mikroporösen Schicht unterscheiden. Daher wird die eigentliche Gasdiffusionslage und die mikroporöse Schicht vereinfacht als ein homogener Körper simuliert. Eine weitere Annahme für die Vereinfachung des Rechenmodells ist, dass sowohl Membran als auch die Katalysatorschicht inkompressibel sind und somit für die Simulation vernachlässigt werden können. Simuliert wird ein Gaskanal mit je einer halben Stegbreite und Symmetrierandbedingungen als quasi 2D-Modell mit einer Tiefe von  $0,01\ \text{mm}$ . Die Gasdiffusionslage wird mit dreidimensionalen hexaederförmigen Kontinuumelementen mit reduzierter Integration (C3D8R) und einer Auflösung von  $0,02\ \text{mm}$  diskretisiert. Als Kontaktdruck zwischen Gasdiffusionslage und Katalysatorschicht wird der Kontaktdruck zwischen den beiden simulierten Gasdiffusionsla-

gen ausgewertet. Die maximale Intrusion entsteht im Bereich der Kanalmitte.

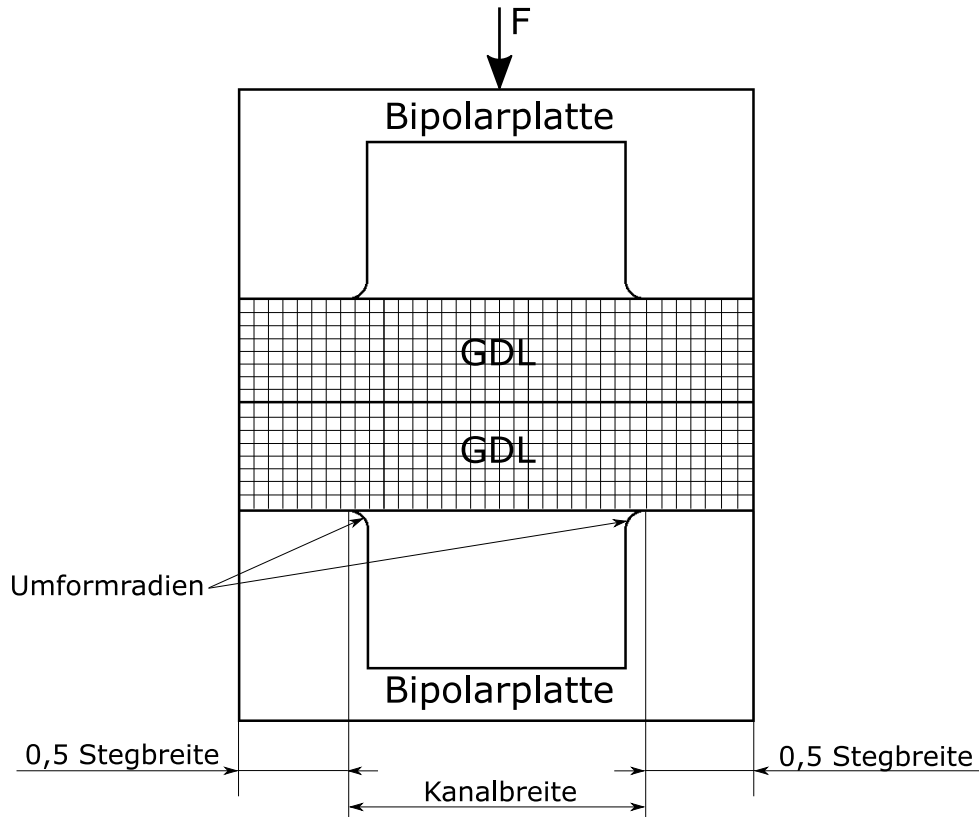


Abbildung 3.4: Darstellung des FEM-Rechenmodells

### Maximale Intrusion in den Gaskanal

Die maximale Intrusion  $I$  beschreibt den höchsten Intrusionspunkt der Gasdiffusionslage im Zentrum des Gaskanals bezogen auf den orthogonalen Abstand zur Stegfläche (vgl. Abbildung 3.1). Berechnet wird diese aus der maximalen Intrusion des Basisfalls und den Korrekturfaktoren für die Stegbreite  $K_{I,S}$ , die unverpresste GDL-Dicke  $K_{I,D}$  und die Kompressionshärte  $K_{I,C}$ . Die Korrekturfaktoren  $K_{I,S}$ ,  $K_{I,D}$  und  $K_{I,C}$  nehmen jeweils für die Parameter des Basisfalls den Wert 1 an.

$$\text{max. Intrusion } \mathbf{I} = \text{Basis Intrusion} \cdot K_{I,S} \cdot K_{I,D} \cdot K_{I,C} \quad (3.1)$$

Als Basisformel wird der Einfluss der Kanalbreite ( $K$ ), des Elastizitätsmodul ( $E$ ) und Schubmoduls ( $G$ ) und dem mittleren Kontaktdruck zwischen Steg und GDL ( $P$ ) bei konstanter unverpresster GDL-Dicke ( $D$ ), Stegbreite ( $S$ ) und Kompressionshärte ( $C$ ) definiert (vgl. Tabelle 3.2). Die Ausgabe der maximalen Intrusion erfolgt in Mikrometern.

Die Variablen  $K$ ,  $E$ ,  $G$ ,  $P$ ,  $S$ ,  $D$  und  $C$  für die Basis- und die Korrekturformeln werden in Abhängigkeit des zu lösenden Modells gewählt und sollten innerhalb der in Tabelle 3.1 dargestellten

minimalen und maximalen Werte des Rechenmodells liegen.

$$\text{Basis Intrusion} = I_{B1} \cdot P^{I_{B2}} \cdot G^{I_{B3}} \cdot P^3 + I_{B4} \cdot P^2 + I_{B5} \cdot P + I_{B6} \cdot E^{I_{B7}} \quad (3.2)$$

**Tabelle 3.3:** Intrusion: Basisfall Parameter

Parameter	Formel
$I_{B1}$	$-49,763 \cdot K^2 + 99,022 \cdot K + 20,0170$
$I_{B2}$	$-2,2375 \cdot K^3 + 4,7212 \cdot K^2 - 3,1302 \cdot K + 1,0835$
$I_{B3}$	$-0,3625 \cdot K^3 + 0,9700 \cdot K^2 - 0,7680 \cdot K + 0,1952$
$I_{B4}$	$0,2083 \cdot K^3 - 1,3500 \cdot K^2 + 1,4617 \cdot K - 0,5000$
$I_{B5}$	$3,1125 \cdot K^3 - 5,3950 \cdot K^2 + 2,8530 \cdot K - 0,2472$
$I_{B6}$	$-4,3750 \cdot K^3 + 8,7750 \cdot K^2 - 5,4050 \cdot K + 0,6660$
$I_{B7}$	$0,0300 \cdot K - 0,1100$

Die Basisformel hat gegenüber den FEM-Simulationen ein Bestimmtheitsmaß von 0,9958 und eine maximale positive Abweichung von +5,8 % und eine maximale negative Abweichung von -6,6 %. Um den Einfluss der Stegbreite ( $S$ ) zu berücksichtigen, wird die Basisformel, die auf eine Stegbreite von 0,2 mm ausgelegt ist, durch eine Korrekturformel  $K_{I,S}$  für die Stegbreite erweitert. Die Simulationsergebnisse werden mit den Material- und Geometrieigenschaften des Basisfalls für einen E-Modul von 1000 MPa und einen G-Modul von 5 MPa und variabler Stegbreite erzeugt.

$$\begin{aligned} K_{I,S} = & (I_{S1} \cdot P^2 + I_{S2} \cdot P + I_{S3}) \cdot S^2 \\ & + (I_{S4} \cdot P^2 + I_{S5} \cdot P + I_{S6}) \cdot S \\ & + (I_{S7} \cdot P^2 + I_{S8} \cdot P + I_{S9}) \end{aligned} \quad (3.3)$$

Die Korrekturformel  $K_{I,S}$  für die Stegbreite hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9365 und eine maximale positive Abweichung von +2,3 % und eine maximale negative Abweichung von -7,6 % gegenüber den FEM-Simulationen.

Zur Bestimmung des Einflusses der unverpressten GDL-Dicke ( $D$ ) wird der Basisfall mit einem E-Modul von 1000 MPa und einem G-Modul von 5 MPa und variabler unverpresster GDL-Dicke verwendet.

$$\begin{aligned} K_{I,D} = & (I_{D1} \cdot P + I_{D2}) \cdot D^2 \\ & + (I_{D3} \cdot P + I_{D4}) \cdot D \\ & + (I_{D5} \cdot P + I_{D6}) \end{aligned} \quad (3.4)$$



**Tabelle 3.4:** Intrusion: Korrekturfaktor Stegbreite Parameter

Parameter	Formel
$I_{S1}$	$-0,5412 \cdot K^2 + 1,0771 \cdot K - 0,7014$
$I_{S2}$	$-0,5211 \cdot K + 1,3701$
$I_{S3}$	$-7,2417 \cdot K^3 + 17,323 \cdot K^2 - 13,292 \cdot K + 1,1122$
$I_{S4}$	$7,7958 \cdot K^3 - 16,030 \cdot K^2 + 10,133 \cdot K - 1,5425$
$I_{S5}$	$-19,531 \cdot K^3 + 40,983 \cdot K^2 - 26,919 \cdot K + 3,9298$
$I_{S6}$	$15,273 \cdot K^3 - 34,223 \cdot K^2 + 24,641 \cdot K - 2,851$
$I_{S7}$	$-1,4542 \cdot K^3 + 3,0063 \cdot K^2 - 1,9226 \cdot K + 0,3061$
$I_{S8}$	$3,7458 \cdot K^3 - 7,8813 \cdot K^2 + 5,2119 \cdot K - 0,8042$
$I_{S9}$	$-2,7667 \cdot K^3 + 6,1538 \cdot K^2 - 4,4001 \cdot K + 1,5253$

**Tabelle 3.5:** Intrusion: Korrekturfaktor GDL-Dicke Parameter

Parameter	Formel
$I_{D1}$	$121,28 \cdot K^3 - 254,77 \cdot K^2 + 172,43 \cdot K - 38,5765$
$I_{D2}$	$-17,037 \cdot K + 6,2043$
$I_{D3}$	$-48,854 \cdot K^3 + 102,51 \cdot K^2 - 69,111 \cdot K + 15,688$
$I_{D4}$	$8,5791 \cdot K - 3,1837$
$I_{D5}$	$5,0313 \cdot K^3 - 10,538 \cdot K^2 + 7,0708 \cdot K - 1,625$
$I_{D6}$	$-1,0412 \cdot K + 1,3938$

Die Korrekturformel  $K_{I,D}$  für die unverpresste GDL-Dicke hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9925 bei einer maximalen Abweichung von +0,6 % und einer minimalen Abweichung von -0,93 %. Der Einfluss der Kompressionshärte ( $C$ ) wird über einen weiteren Korrekturfaktor  $K_{I,C}$  bestimmt. Dazu wird der Basisfall mit einem E-Modul von 1000 MPa und einem G-Modul von 5 MPa und variabler Kompressionshärte bestimmt.

$$\begin{aligned}
 K_{I,C} = & (I_{C1} \cdot P^3 + I_{C2} \cdot P^2 + I_{C3} \cdot P + I_{C4}) \cdot C^2 \\
 & + (I_{C5} \cdot P^3 + I_{C6} \cdot P^2 + I_{C7} \cdot P + I_{C8}) \cdot C \\
 & + (I_{C9} \cdot P^3 + I_{C10} \cdot P^2 + I_{C11} \cdot P + I_{C12})
 \end{aligned} \tag{3.5}$$

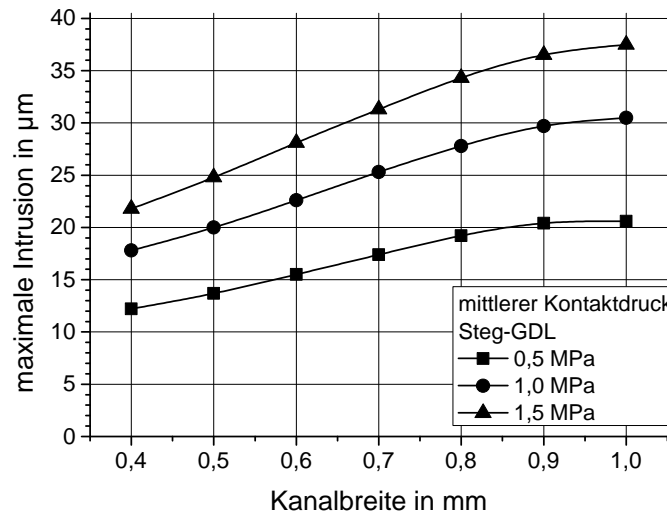
**Tabelle 3.6:** Intrusion: Korrekturfaktor Kompressionshärte Parameter

Parameter	Formel
$I_{C1}$	$0,1729 \cdot K^3 - 0,4025 \cdot K^2 + 0,2931 \cdot K - 0,0638$
$I_{C2}$	$-0,5875 \cdot K^3 + 1,3825 \cdot K^2 - 1,015 \cdot K + 0,2176$
$I_{C3}$	$0,5771 \cdot K^3 - 1,3913 \cdot K^2 + 1,0457 \cdot K - 0,2186$
$I_{C4}$	$-0,1292 \cdot K^3 + 0,3413 \cdot K^2 - 0,2856 \cdot K + 0,0553$
$I_{C5}$	$-1,7875 \cdot K^3 + 4,0388 \cdot K^2 - 2,8743 \cdot K + 0,6247$
$I_{C6}$	$6,4083 \cdot K^3 - 14,548 \cdot K^2 + 10,397 \cdot K - 2,2442$
$I_{C7}$	$-6,7375 \cdot K^3 + 15,4713 \cdot K^2 - 11,21 \cdot K + 2,401$
$I_{C8}$	$1,7542 \cdot K^3 - 4,1888 \cdot K^2 + 3,1926 \cdot K - 0,7124$
$I_{C9}$	$1,8708 \cdot K^3 - 4,1975 \cdot K^2 + 2,9762 \cdot K - 0,6543$
$I_{C10}$	$-7,0125 \cdot K^3 + 15,770 \cdot K^2 - 11,119 \cdot K + 2,4426$
$I_{C11}$	$7,6667 \cdot K^3 - 17,366 \cdot K^2 + 12,443 \cdot K - 2,6962$
$I_{C12}$	$-2,1583 \cdot K^3 + 5,01 \cdot K^2 - 3,7117 \cdot K + 1,8373$

Die Korrekturformel  $K_{I,C}$  für die Kompressionshärte hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9979 bei einer maximalen Abweichung von +2,2 % und einer minimalen Abweichung von -5,3 %.

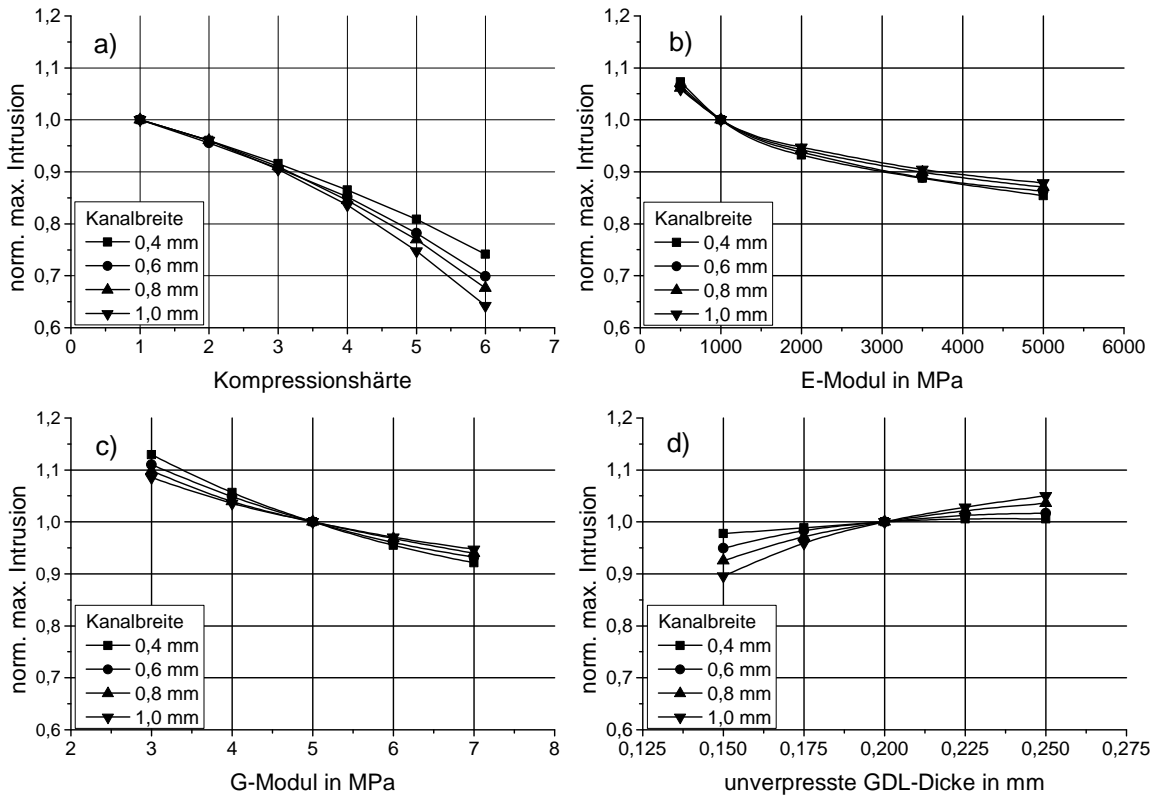
Die maximale Intrusion für alle Einflussgrößen berechnet sich aus dem Produkt der Basis Intrusion und den Korrekturfaktoren für Stegbreite, unverpresste GDL-Dicke und Kompressionshärte (vgl. Gleichung 3.1). Die Gesamtformel der maximalen Intrusion hat gegenüber den 384 FEM-Simulationsergebnissen ein Bestimmtheitsmaß von 0,9912. Die relativen Abweichungen betragen maximal positiv +8,18 % und negativ -12,76 % bei einer mittleren Genauigkeit von 99,74 %. Die absoluten maximalen Abweichungen betragen  $-4,3 \mu\text{m}$  und  $+2,8 \mu\text{m}$  und liegen damit unter der typischen Faserdicke von  $7 \mu\text{m} - 11 \mu\text{m}$  bei Gasdiffusionslagen [68],[69]. Das Modell hat somit für eine Abschätzung der Intrusion in den Gaskanal eine ausreichende Genauigkeit.

In Abbildung 3.5 ist der Einfluss der Kanalbreite auf die maximale Intrusion in den Gaskanal für den Basisfall dargestellt. Die maximale Intrusion steigt mit zunehmendem mittlerem Kontaktdruck zwischen Steg und GDL. Dieser Effekt wird jedoch mit zunehmendem mittlerem Kontaktdruck geringer. Die Intrusion in den Gaskanal steigt nahezu linear mit zunehmender Kanalbreite bis zu einer Kanalbreite von 0,9 mm. Ab 0,9 mm Kanalbreite steigt die Intrusion deutlich geringer mit zunehmender Kanalbreite. Bei einer Reduzierung der Breite des Gaskanals von 1,0 mm auf 0,4 mm nimmt die maximale Intrusion in den Gaskanal um über 40 % ab. Damit hat die Kanalbreite einen sehr großen Einfluss auf die Intrusion der Gasdiffusionslage in den Gaskanal.



**Abbildung 3.5:** Einfluss der Kanalbreite auf die maximale Intrusion bei Basisfallparametern

Der Einfluss der mechanischen Eigenschaften der GDL auf die Intrusion bei einem mittlerem Kontaktdruck zwischen Steg und GDL von 1,0 MPa ist in Abbildung 3.6 normiert auf den Basisfall dargestellt. Die Kompressionshärte 3.6 a) hat einen ähnlich großen Effekt auf die maximale Intrusion wie die Kanalbreite selbst. Vor allem bei großen Kanalbreiten lässt sich die Intrusion mit höherer Kompressionshärte deutlich reduzieren. Eine Erhöhung der Kompressionshärte von 1 auf 6 senkt bei einer Kanalbreite von 1,0 mm die Intrusion um 35 %. Eine Steigerung des in-plane E-Moduls (vgl. 3.6 b)) hat vor allem bei kleinen E-Modulen bis 2000 MPa einen großen, nicht linearen Einfluss. Ab einem E-Modul von 2000 MPa sinkt die Intrusion nahezu linear mit einem Anstieg des E-Moduls. Die Steigerung des E-Moduls von 500 MPa auf 5000 MPa senkt die Intrusion bei einer Kanalbreite von 0,4 mm um 30 %. Eine Steigerung des G-Moduls (vgl. 3.6 c)) hat eine nahezu lineare Abnahme der Intrusion zur Folge. Wie auch beim E-Modul hat die Kanalbreite bei einer Änderung des G-Moduls nur einen geringen Einfluss auf die relative Änderung der Intrusion, wobei der Einfluss mit abnehmender Kanalbreite steigt. Eine Erhöhung des G-Moduls von 3 auf 7 MPa reduziert bei einer Kanalbreite von 0,4 mm die maximale Intrusion um 18 %. Die Dicke der unverpressten Gasdiffusionslage (vgl. 3.6d) hat vor allem bei steigender Kanalbreite einen negativen Einfluss auf die Intrusion in den Gaskanal. Je dünner die Gasdiffusionslage ist, desto geringer ist die Intrusion. Bei einer Kanalbreite von 1,0 mm steigt die Intrusion um 17 % bei einer Erhöhung der unverpressten GDL-Dicke von 0,150 mm auf 0,250 mm.



**Abbildung 3.6:** Einfluss der mechanischen GDL-Eigenschaften auf die maximale Intrusion bei einem mittleren Kontaktdruck Steg-GDL von 1,0 MPa

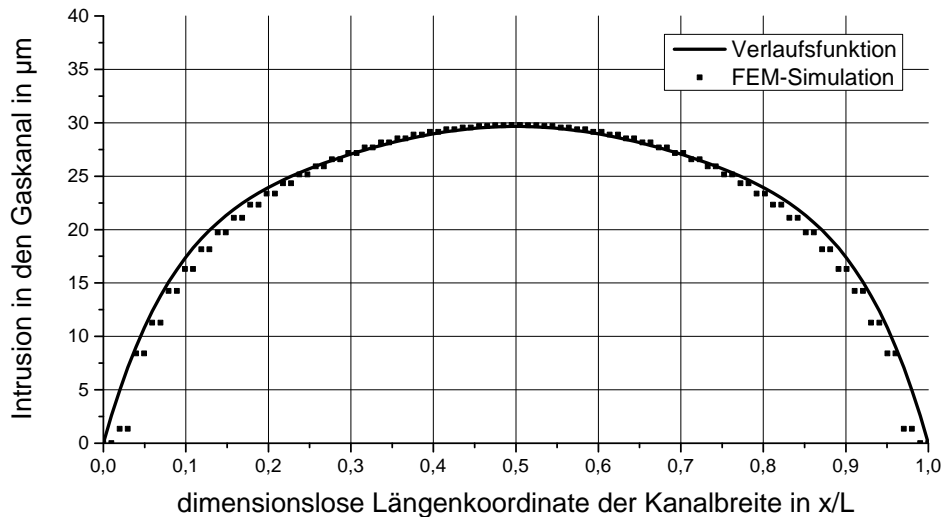
### Verlaufsfunktion der Intrusion in den Gaskanal

Die maximale Intrusion stellt nur den höchsten Intrusionspunkt in den Gaskanal dar. Zur Bestimmung des Strömungsquerschnitts muss auch der Verlauf des Intrusionsprofils entlang der Kanalbreite bekannt sein. Zur Berechnung der Intrusionsfläche der Gasdiffusionslage in den Gaskanal wird die maximale Intrusion in einen Intrusionsverlauf der GDL im Gaskanal überführt. Mit einem Polynom 6. Ordnung werden die Intrusionsverläufe der FEM-Simulationsergebnisse nachgebildet. Berechnet wird der Intrusionsverlauf für die auf eins normierten Kanalbreite. Die Eingabe der maximalen Intrusion erfolgt in Millimetern<sup>5</sup>.

$$\begin{aligned}
 f_1(x) = & (-61,864 \cdot \frac{I}{1000} + 0,0628) \cdot x^6 + (1,855 \cdot \frac{I}{1000} - 0,1883) \cdot x^5 \\
 & + (-223,95 \cdot \frac{I}{1000} + 0,2595) \cdot x^4 + (138,69 \cdot \frac{I}{1000} - 0,2052) \cdot x^3 \\
 & + (-48,169 \cdot \frac{I}{1000} + 0,0855) \cdot x^2 + (9,7423 \cdot \frac{I}{1000} - 0,0143) \cdot x
 \end{aligned} \quad (3.6)$$

<sup>5</sup> Das empirische Rechenmodell gibt die Intrusion  $I$  in Mikrometern aus.

Die Abweichung zwischen Fitfunktion und FEM-Simulationsergebnis beträgt für die Fläche der Intrusion bis zu 20 % und für die Kurvenlänge bis zu 5 %. In Abbildung 3.7 ist ein beispielhafter Verlauf der Intrusion des FEM-Simulationsergebnisses und der Verlaufsfunktion dargestellt. Das Beispiel zeigt die Intrusion für einen 1 mm breiten Gaskanal mit 0,25 mm Umformradien bei 1,5 MPa Kontaktdruck zwischen Steg und GDL.



**Abbildung 3.7:** Berechneter und simulierter Verlauf der GDL-Intrusion in den Gaskanal

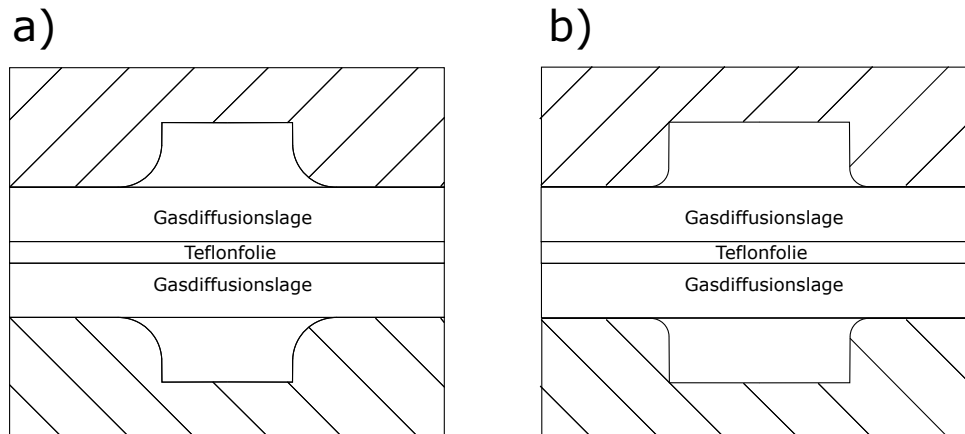
Die großen Abweichungen der Verlaufsfunktion gegenüber den FEM-Simulationsergebnissen entstehen bei großen Radien der Kanalstruktur, weil das Polynom die Wendepunkte nicht abbilden kann, und bei großen maximalen Intrusionen. Bei Kanalstrukturen in typischen automobilen Bipolarplatten mit Kanalbreiten  $< 1$  mm und Kanaltiefen zwischen 0,3 mm und 0,5 mm beträgt die Abweichung des hydraulischen Durchmessers des Kanals mit GDL-Intrusion zwischen Verlaufsfunktion und FEM-Simulationsergebnis weniger als 2 %. Daraus ergibt sich eine Unsicherheit im Druckverlust von ca. 8 %.

Die Verlaufsfunktion der Intrusion ist damit nicht geeignet, die Druckverluste im Flussfeld der Bipolarplatte exakt vorherzusagen. Wie bei der Intrusionsberechnung dient die Verlaufsfunktion einer genaueren, schnellen Abschätzung des Einflusses des Zusammenspiels der Kanalbreite und der mechanischen GDL-Eigenschaften für die iterative Vorauslegung der Bipolarplatte.

### Validierung des Intrusionsmodells

Zur Validierung der berechneten Intrusion der Gasdiffusionslage in den Gaskanal wurden im Auftrag der Volkswagen AG Mikro-Computer-Tomographie ( $\mu$ CT) -Aufnahmen von Gasdiffusionslagen zwischen Flussfeldstrukturen bei NextEnergy gemacht. Dazu werden zwei Papier-Gasdiffusionslagen mit der MPL-Seite auf eine 100  $\mu$ m dicke Teflonfolie aufgelegt und zwischen zwei verschiedenen Flussfeldstrukturen auf einen mittleren Kontaktdruck in der Gesamtfläche von 0,75 MPa verpresst. Abbildung 3.8 zeigt den schematischen Aufbau der Messungen.

Die Steg- und Kanalbreite betragen für beide Flussfeldstrukturen je 1,0 mm. Der Unterschied zwischen den Strukturen besteht in den Umformradien, die bei 0,1 mm und 0,25 mm liegen.



**Abbildung 3.8:** Schematische Darstellung eines Ausschnitts des  $\mu$ CT-Messaufbaus a) mit 0,25 mm Umformradius, b) mit 0,10 mm Umformradius jeweils mit 1 mm Kanal- und Stegbreite

Als Gasdiffusionslage werden Handmuster einer Papier-GDL verwendet, deren mechanische Eigenschaften in Anhang A.2 dargestellt sind.

Aus der  $\mu$ CT-Aufnahme werden für die zwei Fälle die Dicken der Gasdiffusionslage unter dem Steg und im Zentrum des Kanals bestimmt. Tabelle 3.7 zeigt die Mittelwerte und die Standardabweichungen der gemessenen Dicken.

**Tabelle 3.7:** Gemessene Dicken der Gasdiffusionslage in der  $\mu$ CT-Aufnahme

	<b>Stegmitte</b>	<b>Kanalmitte</b>
R 0,10 mm	$207,3 \pm 10,9 \mu\text{m}$	$228,4 \pm 3,2 \mu\text{m}$
R 0,25,mm	$203,4 \pm 5,4 \mu\text{m}$	$220,9 \pm 7,5 \mu\text{m}$

Auffällig ist, dass die verpresste GDL-Dicke unter dem Steg für den Umformradius von 0,25 mm geringer ist als für den 0,10 mm Radius, da die Auflagefläche des Stegs durch den größeren Radius minimal größer ist und damit der Druck zwischen GDL und Steg sinkt.

Die wahrscheinliche Erklärung sind Unterschiede in der unverpressten Dicke der Gasdiffusionslage, die vor den  $\mu$ CT-Messungen nicht bestimmt wurde. In den FEM-Simulationen zur Validierung des Modells werden die gemessenen mechanischen Eigenschaften als konstant angenommen, da der Einfluss durch eine Änderung der GDL-Dicke nicht bekannt ist. Die unverpresste Dicke der Gasdiffusionslage wurde so angepasst, dass in der Stegmitte eine möglichst gute Übereinstimmung besteht. Die Genauigkeit des Modells wird anhand der Dicke im Kanal gezeigt. Durch die Anpassung der unverpressten Dicken der Gasdiffusionslage in der FEM-Simulation ist die Übereinstimmung zwischen Simulation und  $\mu$ CT-Messung im Bereich der Stegmitte sehr gut. Tabelle 3.8 zeigt die Ergebnisse der verpressten Gasdiffusionslage zwischen den Flussfeldstrukturen für die Simulation und die Messung. Im Bereich der Kanalmitte beträgt die Abweichung zwischen Messung und Simulation der GDL-Dicke für den kleinen Umformradius ca.  $7 \mu\text{m}$  und für den

größeren Umformradius ca.  $10\ \mu\text{m}$ .

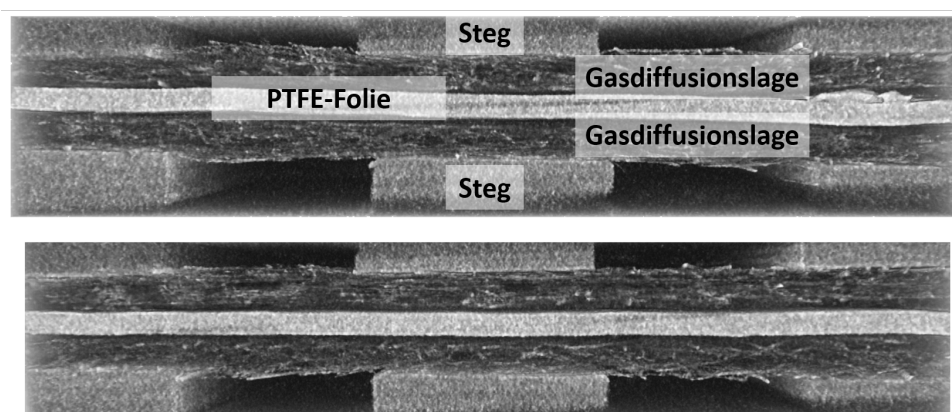
**Tabelle 3.8:** Vergleich der Dicken der Gasdiffusionslage zwischen Simulation und  $\mu\text{CT}$ -Aufnahme

		Stegmitte	Kanalmitte
R 0,10 mm	$\mu\text{CT}$	$207,3 \pm 10,9\ \mu\text{m}$	$228,4 \pm 3,2\ \mu\text{m}$
R 0,10 mm	FEM	$206\ \mu\text{m}$	$235\ \mu\text{m}$
R 0,25,mm	$\mu\text{CT}$	$203,4 \pm 5,4\ \mu\text{m}$	$220,9 \pm 7,5\ \mu\text{m}$
R 0,25,mm	FEM	$203\ \mu\text{m}$	$231\ \mu\text{m}$

Die Abweichungen zwischen der Simulation und der gemessenen GDL-Dicke entstehen wahrscheinlich durch geänderte mechanische Eigenschaften aufgrund der geänderten unverpressten GDL-Dicke. Mit bis zu  $10\ \mu\text{m}$  Abweichung hat die FEM-Simulation aber gegenüber der  $\mu\text{CT}$ -Messung eine ausreichende Genauigkeit, da die typische Faserdicke der Gasdiffusionslagen in PEM-Brennstoffzellen bei  $7\ \mu\text{m} - 11\ \mu\text{m}$  liegt [68],[69].

Für eine exakte Validierung des FEM-Modells müssten die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage in Abhängigkeit der unverpressten Dicke bestimmt werden, um so das reale Verhalten in den  $\mu\text{CT}$ -Messungen nachbilden zu können.

Die Aufnahmen der  $\mu\text{CT}$ -Messungen ermöglichen auch die Darstellung der Intrusion der Gasdiffusionslage in den Gaskanal. In Abbildung 3.9 sind zwei  $\mu\text{CT}$ -Aufnahmen für das Flussfeld mit  $0,1\ \text{mm}$  Umformradius dargestellt. Zu erkennen ist, dass es keinen glatten Verlauf der Intrusion in den Gaskanal gibt. Statt dessen unterbrechen immer wieder einzelne Fasern den Verlauf und stehen „heraus“.



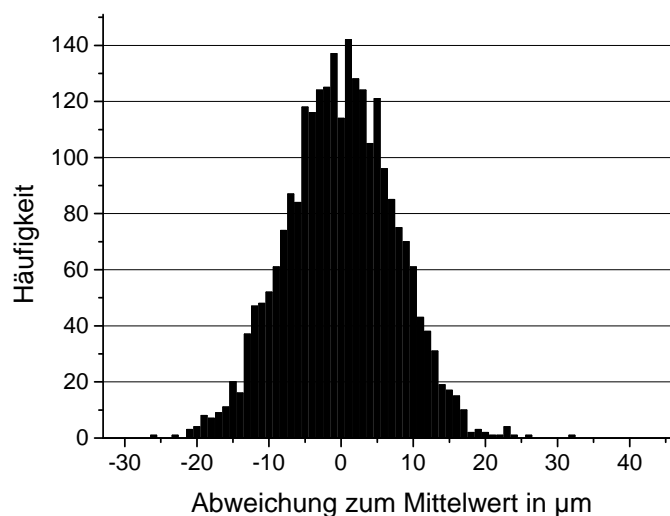
**Abbildung 3.9:**  $\mu\text{CT}$ -Aufnahmen der verpressten Gasdiffusionslage

Die Berechnung der Intrusion mittels FEM-Simulation kann diesen Detaillierungsgrad nur darstellen, wenn die Struktur des Substrats auf Fasern und Binder mechanisch aufgelöst wird. Der Rechenaufwand zur Lösung dieser Modelle steigt exponentiell an, so dass die Ungenauigkeit durch das Abbilden der Gasdiffusionslage als homogener Körper in Kauf genommen wird.

Die Genauigkeit der FEM-Simulation und auch des empirischen Rechenmodells mit innerhalb 1-2 Faserdicken der Gasdiffusionslage ist damit ausreichend und auch die Verlaufsfunktion, die die Intrusion in den Gaskanal beschreibt, kann nur einem idealen, mittleren Verlauf entsprechen.

Die in den  $\mu$ CT-Messungen erkennbaren Unterschiede in der verpressten Dicke der Gasdiffusionslage bewirken eine unterschiedlich starke Intrusion in den Gaskanal. Um die Qualität der Ergebnisse beurteilen zu können, wird die Dicke der Gasdiffusionslage des Typs A<sup>6</sup> mit 2500 Messpunkten auf ca. 37000 cm<sup>2</sup> Fläche bei einem Kontaktdruck von 0,01 MPa bestimmt. Die Gasdiffusionslage des Typ A ist der Vorgänger der zur Validierung genutzten Handmuster des selben Herstellers. Die Schwankungen im Produktionsprozess des Herstellers sollten daher übertragbar sein.

Die Standardabweichung der Analyse liegt bei 7,45  $\mu$ m, so dass sich für einen Null-Fehler-Prozess bzw. 6 Sigma Genauigkeit<sup>7</sup> eine Abweichung zum Mittelwert der unverpressten Dicke der Gasdiffusionslage von ca. 24  $\mu$ m ergibt. Abbildung 3.10 zeigt die Häufigkeiten der gemessenen unverpressten Dicken der MEA mit Gasdiffusionslagen über deren Abweichung zum Mittelwert aller Messwerte.



**Abbildung 3.10:** Verteilung gemessenen MEA und GDL Typ A Dicken bei 0,01 MPa Kompressionsdruck

Die Schwankungen der verpressten Dicke der Gasdiffusionslage in den  $\mu$ CT-Ergebnissen liegen innerhalb des in Abbildung 3.10 gezeigten Erwartungsbereichs einer ähnlichen Gasdiffusionslage.

### Minimaler Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht

Der minimale Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht beschreibt den Punkt des minimalen Kontaktdrucks im Zentrum des Gaskanals (vgl. Abbildung 3.1). Im

6 Vergleiche Kapitel 4.1.

7 3,4 Ausfälle bei einer Million Möglichkeiten.



Bereich des Gaskanals wird keine direkte Verpresskraft auf die Gasdiffusionslage und die darunter liegenden Schichten aufgebracht. Die Kontaktierung der Schichten erfolgt hier indirekt über das mechanische Verhalten der Gasdiffusionslage und über der Kanalbreite. Die Bestimmung der empirischen Gleichung für den minimalen Kontaktdruck erfolgt analog zu der der maximalen Intrusion. Der minimale Kontaktdruck in Megapascal wird aus dem minimalen Kontaktdruck des Basisfalls und Korrekturfaktoren für Stegbreite  $K_{K,S}$ , unverpresste GDL-Dicke  $K_{K,D}$  und Kompressionshärte  $K_{K,C}$  berechnet. Die Korrekturfaktoren  $K_{K,S}$ ,  $K_{K,D}$  und  $K_{K,C}$  nehmen jeweils für die Parameter des Basisfalls den Wert 1 an.

$$\text{min. Kontaktdruck} = \text{Basis min. Kontaktdruck} \cdot K_{K,S} \cdot K_{K,D} \cdot K_{K,C} \quad (3.7)$$

Mit Hilfe des Basisfalls (vgl. Tabelle 3.2) wird der Einfluss von Kanalbreite, mittlerem Kontaktdruck, E- und G-Modul bestimmt und eine Basisformel entwickelt. Analog zur Berechnung der maximalen Intrusion werden die Variablen  $K$ ,  $E$ ,  $G$ ,  $P$ ,  $S$ ,  $D$  und  $C$  für die Basis- und die Korrekturformeln des minimalen Kontaktdrucks Abhängigkeit des zu lösenden Modells gewählt und sollten innerhalb der in Tabelle 3.1 dargestellten minimalen und maximalen Werte des Rechenmodells liegen.

$$\begin{aligned} \text{Basis min. Kontaktdruck} = & [(K_{B1} \cdot G^2 + K_{B2} \cdot G + K_{B3}) \cdot \ln(P) \\ & + (K_{B4} \cdot G^2 + K_{B5} \cdot G + K_{B6})] \\ & \cdot E^{(K_{B7} \cdot G^2 + K_{B8} \cdot G + K_{B9}) \cdot P + (K_{B10} \cdot G^2 + K_{B11} \cdot G + K_{B12})} \end{aligned} \quad (3.8)$$

Die Basisformel des minimalen Kontaktdrucks hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9966 mit einer maximalen Abweichung von +26,04 % und einer minimalen Abweichung von -12,27 %.

Analog zur Berechnung der maximalen Intrusion wird auch die Basisformel des minimalen Kontaktdrucks für die variable Stegbreite, der Kompressionshärte und die unverpresste GDL-Dicke korrigiert. Die Korrektur für die Stegbreite  $K_{K,S}$  hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9635 bei einer maximalen Abweichung von +3,67 % und einer minimalen Abweichung von -5,97 %.

$$\begin{aligned} K_{K,S} = & (K_{S1} \cdot P^2 + K_{S2} \cdot P + K_{S3}) \cdot S^2 \\ & + (K_{S4} \cdot P^2 + K_{S5} \cdot P + K_{S6}) \cdot S \\ & + (K_{S7} \cdot P^2 + K_{S8} \cdot P + K_{S9}) \end{aligned} \quad (3.9)$$

**Tabelle 3.9:** Min. Kontaktdruck: Basisfall Parameter

Parameter	Formel
$K_{B1}$	$-0,0097 \cdot K^2 + 0,0144 \cdot K - 0,0048$
$K_{B2}$	$0,1719 \cdot K^2 - 0,2782 \cdot K + 0,1078$
$K_{B3}$	$-0,2194 \cdot K^2 + 0,3054 \cdot K - 0,0857$
$K_{B4}$	$0,0479 \cdot K^3 - 0,1100 \cdot K^2 + 0,0831 \cdot K - 0,0209$
$K_{B5}$	$-0,4458 \cdot K^3 + 1,0600 \cdot K^2 - 0,8572 \cdot K + 0,2465$
$K_{B6}$	$0,1538 \cdot K^2 - 0,2781 \cdot K + 0,11982$
$K_{B7}$	$0,0937 \cdot K^3 - 0,1800 \cdot K^2 + 0,1042 \cdot K - 0,0188$
$K_{B8}$	$-0,9646 \cdot K^3 + 1,8275 \cdot K^2 - 1,0254 \cdot K + 0,1755$
$K_{B9}$	$2,1979 \cdot K^3 - 4,0900 \cdot K^2 + 2,2366 \cdot K - 0,3359$
$K_{B10}$	$-0,1688 \cdot K^3 + 0,3413 \cdot K^2 - 0,2100 \cdot K + 0,0416$
$K_{B11}$	$1,5479 \cdot K^3 - 3,1125 \cdot K^2 + 1,8556 \cdot K - 0,3623$
$K_{B12}$	$-2,7271 \cdot K^3 + 5,5812 \cdot K^2 - 3,0527 \cdot K + 0,5683$

Die Korrektur der unverpressten GDL-Dicke  $K_{K,D}$  hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9981, eine maximale positive Abweichung von +0,45 % und eine maximale negative Abweichung von -7,14 %.

$$\begin{aligned}
K_{K,D} = & (K_{D1} \cdot P + K_{D2}) \cdot D^2 \\
& + (K_{D3} \cdot P + K_{D4}) \cdot D \\
& + (K_{D5} \cdot P + K_{D6})
\end{aligned} \tag{3.10}$$

Die Korrektur der Kompressionshärte  $K_{K,C}$  hat ein Bestimmtheitsmaß von 0,9979, eine maximale positive Abweichung von +2,17 % und eine maximale negative Abweichung von -5,31 %.

$$\begin{aligned}
K_{K,C} = & (K_{C1} \cdot P^2 + K_{C2} \cdot P + K_{C3}) \cdot C^2 \\
& + (K_{C4} \cdot P^2 + K_{C5} \cdot P + K_{C6}) \cdot C \\
& + (K_{C7} \cdot P^2 + K_{C8} \cdot P + K_{C9})
\end{aligned} \tag{3.11}$$

Der minimale Kontaktdruck zwischen MPL und CL berechnet sich aus dem Produkt der Basisformel und der Korrekturfaktoren (vgl. Gleichung 3.7). Die empirische Formel des minimalen Kontaktdruck hat gegenüber den FEM-Simulationsergebnissen ein Bestimmtheitsmaß von 0,9957 bei einer maximalen relativen Abweichung von +19,71 % und einer minimalen relativen Abweichung von -22,66 %. Die maximale absolute Abweichung liegt bei +0,011 MPa und die minimale absolute Abweichung bei -0,027 MPa. Generell unterschätzt die empirische Formel den minimalen Kontaktdruck leicht bei einem relativen Mittelwert von 0,9378. Die minima-

**Tabelle 3.10:** Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor Stegbreite Parameter

Parameter	Formel
$K_{S1}$	$-0,4990 \cdot K + 0,0600$
$K_{S2}$	$1,5090 \cdot K + 0,0718$
$K_{S3}$	$-0,9118 \cdot K - 1,2890$
$K_{S4}$	$0,6633 \cdot K - 0,0125$
$K_{S5}$	$-2,0195 \cdot K - 0,4025$
$K_{S6}$	$1,0138 \cdot K - 2,2334$
$K_{S7}$	$-0,1099 \cdot K - 0,0007$
$K_{S8}$	$0,3344 \cdot K + 0,0795$
$K_{S9}$	$-0,2530 \cdot K + 0,6430$

**Tabelle 3.11:** Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor GDL-Dicke Parameter

Parameter	Formel
$K_{D1}$	$-63,314 \cdot K^2 + 93,145 \cdot K - 25,086$
$K_{D2}$	$130,64 \cdot K^2 - 181,32 \cdot K + 33,361$
$K_{D3}$	$23,340 \cdot K^2 - 36,135 \cdot K + 11,147$
$K_{D4}$	$-43,808 \cdot K^2 + 74,411 \cdot K - 13,377$
$K_{D5}$	$-2,1769 \cdot K^2 + 3,5552 \cdot K - 1,2397$
$K_{D6}$	$3,6331 \cdot K^2 - 7,7544 \cdot K + 2,3726$

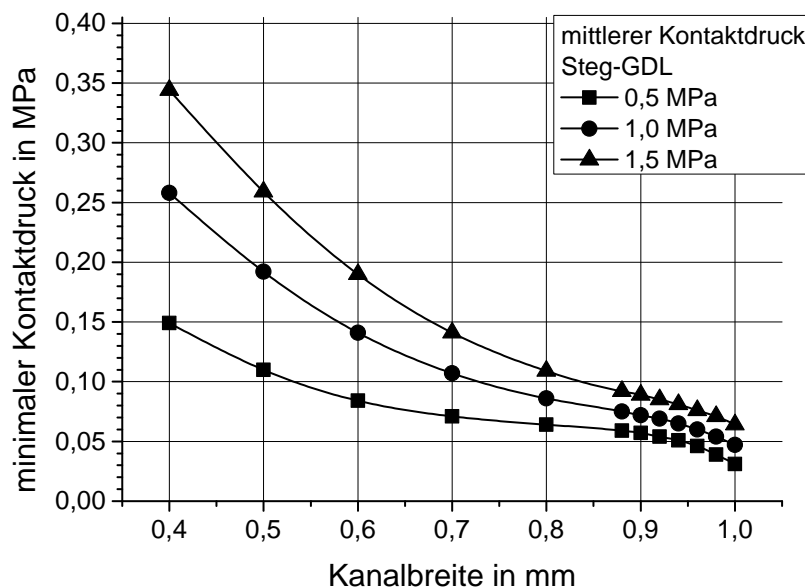
len absoluten Abweichungen treten bei großen Stegbreiten ab 0,6 mm und ein unverpressten GDL-Dicken ab 0,225 mm auf.

In Abbildung 3.11 ist der minimale Kontaktdruck zwischen MPL und CL für die Basisfallparameter (vgl. Tabelle 3.2) bei einem mittleren Kontaktdruck zwischen Steg und GDL von 0,5 MPa, 1,0 MPa und 1,5 MPa dargestellt. Je größer der mittlere Kontaktdruck zwischen Steg und GDL ist, desto größer ist auch der minimale Kontaktdruck zwischen MPL und CL. Mit steigender Kanalbreite nimmt der minimale Kontaktdruck exponentiell ab. Ab einer Kanalbreite von 0,9 mm fällt der minimale Kontaktdruck mit zunehmender Kanalbreite wieder stärker ab. Der Kurvenverlauf wird durch das Zusammenspiel aus Schub-, Biege- und Kompressionsbeanspruchung definiert und ist charakteristisch für die jeweiligen mechanischen Eigenschaften.

Im gezeigten Beispiel mit den Basisparametern bedeutet die Änderung der Kanalbreite von 0,4 mm auf 1,0 mm eine Reduzierung des minimalen Kontaktdrucks um mindestens 80 %.

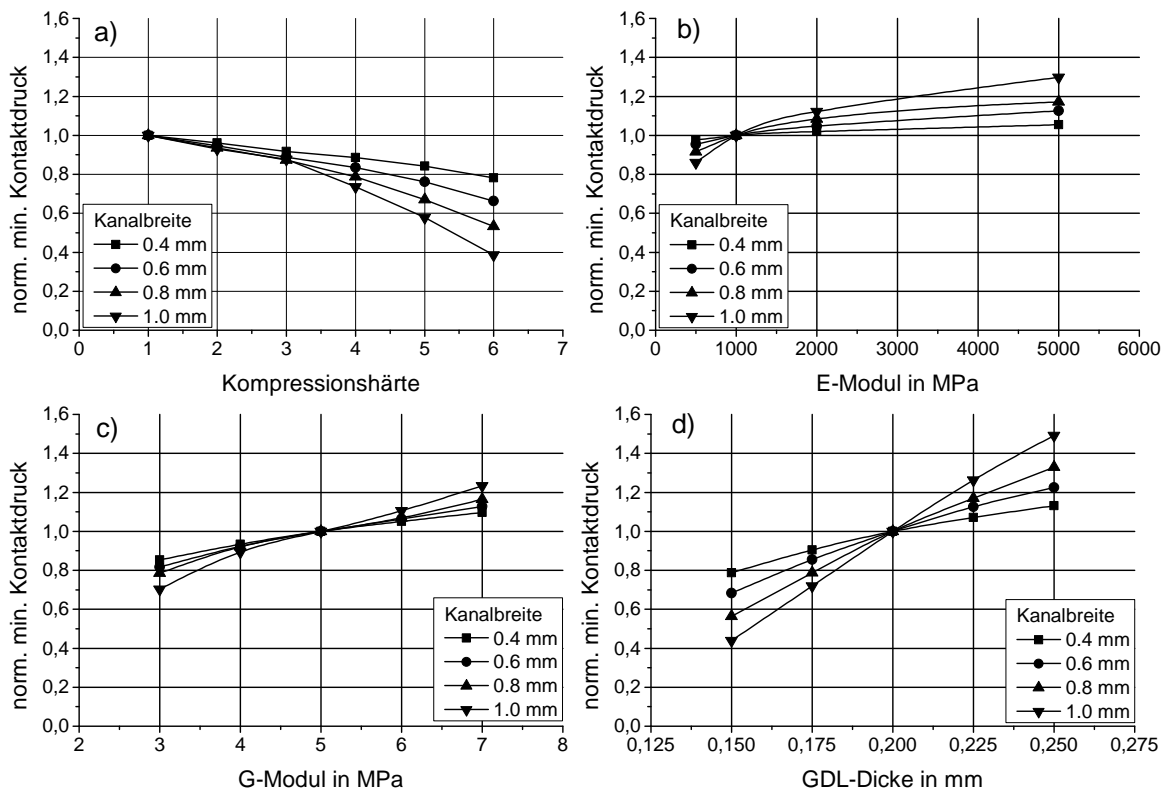
**Tabelle 3.12:** Min. Kontaktdruck: Korrekturfaktor Kompressionshärte Parameter

Parameter	Formel
$K_{C1}$	$-0,1188 \cdot K^3 + 0,2488 \cdot K^2 - 0,1730 \cdot K + 0,0347$
$K_{C2}$	$0,3146 \cdot K^3 - 0,6613 \cdot K^2 + 0,4757 \cdot K - 0,0955$
$K_{C3}$	$-0,2042 \cdot K^3 + 0,3988 \cdot K^2 - 0,2991 \cdot K + 0,0602$
$K_{C4}$	$0,9604 \cdot K^3 - 1,9625 \cdot K^2 + 1,3216 \cdot K - 0,2550$
$K_{C5}$	$-2,6917 \cdot K^3 + 5,5150 \cdot K^2 - 3,7968 \cdot K + 0,7232$
$K_{C6}$	$1,7354 \cdot K^3 - 3,3775 \cdot K^2 + 2,2926 \cdot K - 0,4524$
$K_{C7}$	$-0,8896 \cdot K^3 + 1,8263 \cdot K^2 - 1,2197 \cdot K + 0,2347$
$K_{C8}$	$2,4792 \cdot K^3 - 5,1038 \cdot K^2 + 3,4736 \cdot K - 0,6568$
$K_{C9}$	$-1,5604 \cdot K^3 + 3,0687 \cdot K^2 - 2,0493 \cdot K + 1,4001$

**Abbildung 3.11:** Einfluss der Kanalbreite auf den minimalen Kontaktdruck bei Basisfallparametern

Der Einfluss der mechanischen GDL-Eigenschaften auf den minimalen Kontaktdruck zwischen MPL und CL ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Eine höhere Kompressionshärte der GDL (vgl. Abb. 3.12 a) bewirkt eine Abnahme des minimalen Kontaktdrucks. Die Abnahme ist umso größer, je größer die Kanalbreite ist. Bei einer Änderung der Kompressionshärte von 1 auf 6 und einer Kanalbreite von 1,0 mm sinkt der minimale Kontaktdruck um über 60 %. Der minimale Kontaktdruck steigt mit zunehmendem E-Modul der GDL (vgl. Abb. 3.12 b). Besonders bei großen Kanalbreiten bewirkt eine Erhöhung des E-Moduls einen Anstieg des minimalen Kontaktdrucks. Eine Erhöhung des E-Moduls von 500 MPa auf 5000 MPa bewirkt bei einer Kanalbreite von 0,4 mm nur eine Änderung des minimalen Kontaktdrucks von +8 % und bei

1,0 mm Kanalbreite von +51 %. Der G-Modul der GDL hat einen fast linearen Einfluss auf die Änderung des minimalen Kontaktdrucks (vgl. Abb. 3.12 c). Je größer der G-Modul und je größer die Kanalbreite, desto höher der minimale Kontaktdruck. Der Einfluss des G-Moduls beträgt bei einer Kanalbreite von 1,0 mm und einer Änderung von 3 auf 7 MPa +76 %. Den größten Einfluss auf den minimalen Kontaktdruck hat die unverpresste GDL-Dicke bei großen Kanalbreiten (vgl. Abb. 3.12 d). Bei einer Erhöhung der unverpressten GDL-Dicke von 0,150 mm auf 250 mm und einer Kanalbreite von 1,0 mm steigt der minimale Kontaktdruck um +340 %. Der Einfluss der unverpressten GDL-Dicke ist dabei linear und steigt mit zunehmender Kanalbreite.



**Abbildung 3.12:** Einfluss der mechanischen GDL-Eigenschaften auf den minimalen Kontaktdruck bei einem theoretischen Kontaktdruck von 1,0 MPa

### Designrichtlinie mechanischen GDL-Eigenschaften

Die mechanischen Eigenschaften der GDL und die Breite der Gaskanäle haben einen sehr großen Einfluss auf die Intrusion der GDL in den Gaskanal und den minimalen Kontaktdruck zwischen MPL und CL. Je geringer die Kanalbreite ist, desto geringer ist die Intrusion und desto größer ist der minimale Kontaktdruck. Bei den mechanischen Eigenschaften hat nur die Erhöhung der E- und G-Module der GDL einen positiven Effekt auf sowohl die maximale Intrusion als auch auf den minimalen Kontaktdruck. Bei einer Erhöhung der E- und G-Module sinkt die Intrusion und steigt der minimale Kontaktdruck. Eine höhere Kompressionshärte und eine dünnere unverpresste GDL-Dicke senken sowohl die Intrusion als auch den minimalen Kontaktdruck. Für die Optimierung der mechanischen GDL-Eigenschaften können damit der E- und G-Modul bedenkenlos erhöht werden. Eine Reduzierung der unverpressten GDL-Dicke für kürzere Gas-

diffusionswege und geringeren Bauraum sowie eine Änderung der Kompressionshärte muss bezüglich der Auswirkungen auf Intrusion und Kontaktdruck zwischen MPL und CL betrachtet werden und durch eventuelle Designänderungen ausgeglichen werden.

### 3.1.2 Kontaktwiderstand zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht

Der Kontaktwiderstand zwischen mikroporöser Schicht (MPL) und Katalysatorschicht (CL) wird durch den Kontaktdruck zwischen diesen Schichten bestimmt. Je größer und homogener der Kontaktdruck zwischen den MPL und CL, desto geringer ist der elektrische Kontaktwiderstand [61]. Aus Kapitel 3.1.1 geht hervor, dass der Kontaktdruck zwischen MPL und CL maßgeblich durch die Kanalbreite in der Bipolarplatte und die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage (GDL) bestimmt wird. Der elektrische Kontaktwiderstand zwischen MPL und CL ist damit direkt abhängig vom Kanaldesign und entscheidet über die Leistungsfähigkeit der Kombination aus Bipolarplatte und Membrane-Elektroden-Einheit (MEA).

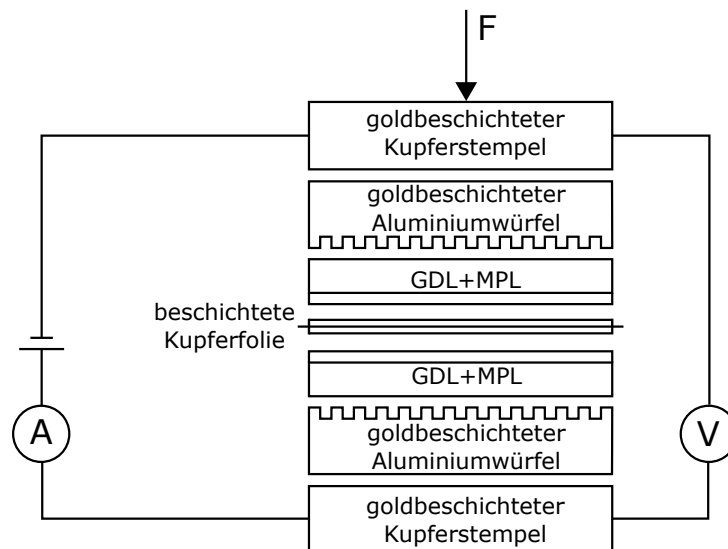
In der Literatur haben verschiedene Gruppen Modelle und Messergebnisse zur Bestimmung des Kontaktwiderstands zwischen MPL und CL vorgestellt. So haben Makharia et al. [70] 2005 ein Modell entwickelt, um mit elektrochemischer Impedanzspektroskopie den Gesamtwiderstand der Katalysatorschicht in Abhängigkeit derer Zusammensetzung zu bestimmen. Nitta et al. [71] haben 2008 den Kontaktwiderstand zwischen der GDL ohne MPL und der Katalysatorschicht in Abhängigkeit der Kompression berechnet. Dazu wurde mit AC Impedanzspektroskopie der Gesamtwiderstand bestimmt und die Materialwiderstände und andere Kontaktwiderstände rechnerisch abgezogen. Im selben Jahr haben Desouza et al. [61] den Kontaktwiderstand zwischen MPL und CL experimentell bestimmt und das darauf aufbauende Modell anhand von Strom-Spannungs-Kennlinien von Brennstoffzellen validiert. Kleemann [64] hat 2012 den elektrischen Widerstand von Gasdiffusionslagen und katalysatorbeschichteter Membran gemessen, aber nicht zwischen den Material- und Kontaktwiderständen unterschieden. Butsch et al. [72] haben den Kontaktwiderstand zwischen GDL (ohne MPL) und goldbeschichteten Leitern gemessen. Die von Desouza [61], Kleemann [64] und Butsch [72] gefundenen Zusammenhänge zwischen Kontaktdruck und elektrischem Kontaktwiderstand erfordern eine orts aufgelöste Verteilung des Kontaktdrucks auf die Katalysatorschicht. Diese ist nur mittels FEM-Simulation bestimmbar und nicht für den iterativen Auslegungsprozess der Kanalstruktur in der Bipolarplatte geeignet.

Für den iterativen Auslegungsprozess der Bipolarplatte auf Leistungs- und Bauraumanforderungen ist es nötig, den Einfluss des minimalen Kontaktdrucks zwischen MPL und CL aufgrund der Kanalbreite und der mechanischen Eigenschaften der GDL auf den zu erwartenden elektrischen Kontaktwiderstand vorhersagen zu können. In dieser Arbeit wird der relative Kontaktwiderstand zwischen MPL und CL in Abhängigkeit des minimalen Kontaktdrucks bestimmt. Der relative Kontaktwiderstand beschreibt dabei die Änderung des Kontaktwiderstands der Brennstoffzelle bei einer Änderung des minimalen Kontaktdrucks. Damit ist es möglich die Auswirkungen einer Änderung des minimalen Kontaktdrucks durch eine Änderung der Kanalbreite und/oder der mechanischen GDL-Eigenschaften auf die zu erwartenden Spannungsverluste quantifizieren zu können, ohne die genaue Kontaktdruckverteilung durch aufwändige Simulationen bestimmen zu müssen.

## Messaufbau

Die elektrisch schlecht leitende Membran wird durch eine Kupferfolie ersetzt, die mit einem Katalysatorschichtersatz aus Kohlenstoff und Ionomer beschichtet ist. Als Flussfeldersatz werden Kanäle in Aluminiumwürfel gefräst, auf deren Kontaktflächen anschließend die Oxidschicht entfernt und eine ca. 10 nm dicke Goldschicht aufgebracht wird, um den elektrischen Kontaktwiderstand zu minimieren. Der schematische Messaufbau ist in Abbildung 3.13 dargestellt. Der Verbund aus Aluminiumwürfel, GDLs und beschichteter Kupferfolie wird zwischen zwei goldbeschichteten Kupferstempeln verpresst. Gemessen wird der Gesamtwiderstand des Verbundes für verschiedene Kanalbreiten. Alle Aluminiumwürfel haben ein konstantes Kanal-Steg-Verhältnis von 1:1, so dass sich durch den identischen Messaufbau für die verschiedenen Kanalbreiten zwischen den Messungen nur der Kontaktdruck der MPL auf die beschichtete Kupferfolie aufgrund der unterschiedlichen Kanalbreiten ändert. Mit Hilfe von FEM-Simulationen kann der minimale Kontaktwiderstand berechnet und damit dessen Einfluss auf die Änderung des elektrischen Kontaktwiderstand quantifiziert werden.

Auf die beschichtete Kupferfolie werden beidseitig die GDLs mit der MPL zur Kupferfolie platziert und auf die GDLs die Flussfeldauschnitte. Der Verbund wird zwischen den Stempeln mit 0,4 MPa bis 1,3 MPa verpresst. Ein Strom von 8000 mA wird mit einem Toellner Netzgerät TOE 8951-40 mit einer Genauigkeit von 0,2 % + 20 mA aufgeprägt und der Spannungsabfall mit einem Keithley 2700 Multimeter mit einer Genauigkeit von 0,0003 % mV gemessen. Der Spannungsabfall wird 30 Sekunden nach dem Aufbringen der Kraft gemessen. Es werden die beschichtete Folien jeweils mit den Kanalbreiten 1,5 mm, 1,0 mm, und 0,4 mm gemessen. Jede Messung wird mit frischen GDLs durchgeführt, um den Einfluss der plastischen Verformung der GDLs auszuschließen.



**Abbildung 3.13:** Schematischer Messaufbau der elektrischen Widerstandsmessung

Die Flussfeldauschnitte mit 3 Kanalbreiten von 1,5 mm, 1,0 mm und 0,4 mm werden aus Aluminium (EN AW 2007 (AlCuMgPb)) gefräst. Das Kanal-Steg-Verhältnis beträgt 1:1 bei einer Kanaltiefe von 0,5 mm. Die Würfel haben eine Kantenlänge von 40 mm und eine Höhe von

9 mm bzw. 11 mm.

Bei der verwendeten Gasdiffusionslage handelt es sich um ein kommerziell erhältliches Kohlenstoffpapier mit MPL-Beschichtung. Die gemessene mittlere Dicke bei 0,01 MPa beträgt  $245 \pm 8,79 \mu\text{m}$  mit einem in-plane E-Modul von 880 MPa und einem Schubmodul von 5,05 MPa. Die Gasdiffusionslage wird hiernach als Typ A bezeichnet. Das Spannungs-Dehnungs-Verhalten für die GDL Typ A ist in Anhang A.3 dargestellt.

Die Kupferfolie wurde am Lehrstuhl für Technische Elektrochemie der Technischen Universität München beschichtet. Die gemessene mittlere Dicke der unbeschichteten Kupferfolie beträgt  $10,8 \mu\text{m} \pm 0,4 \mu\text{m}$ . Diese wird beidseitig mit der Kohlenstoff-Ionomer-Lösung beschichtet. Als Kohlenstoff wird V-Typ Kohlenstoffruß (UN# 3173 / CA# 1333-86-4) von Tanaka Kikinoku International verwendet. Die Ionomerlösung besteht aus DuPont D2021 Nafion Lösung (PO# 1156 / LOT# SGE-10-01CS) der Ion Power GmbH mit destilliertem Wasser als Lösungsmittel. In Tabelle 3.13 ist die Zusammensetzung der Beschichtung aufgeführt. Die Dicken der Kohlenstoff-Ionomer-Beschichtung betragen  $9,5 \mu\text{m} \pm 4,4 \mu\text{m}$  und  $10,3 \mu\text{m} \pm 2,4 \mu\text{m}$  bei einer konstanten, ausgestanzten Fläche von  $16 \text{ cm}^2$ .

**Tabelle 3.13:** Zusammensetzung der Kohlenstoff-Ionomer-Beschichtung

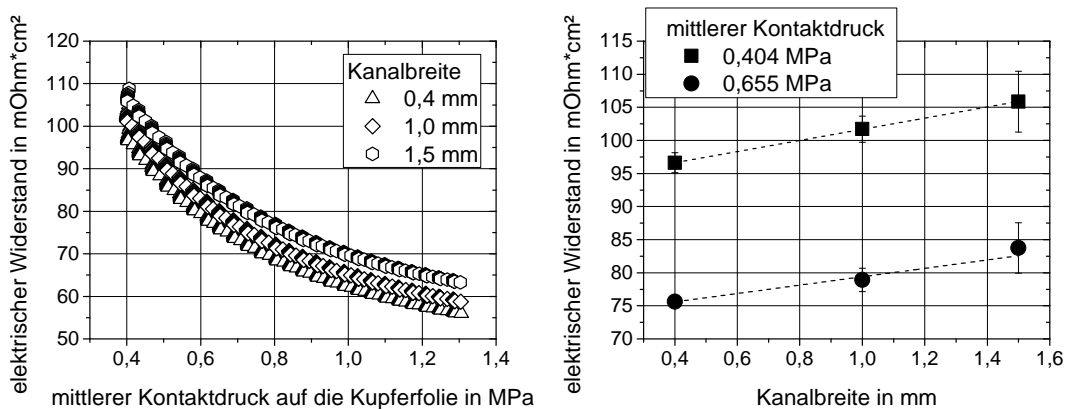
<b>Kohlenstoff</b>	<b>Lösungsmittel</b>	<b>Ionomer</b>	<b>Lösung</b>	<b>Feststoffe</b>	<b>Wasser</b>
g	g	g	ml	$w_i$ in %	$w_i$ in %
1,004	14,650	0,9999	19,847	7,207	2,22

Mit jeder beschichteten Kupferfolie wird der Gesamtwiderstand mit allen Kanalbreiten bestimmt und diese Messreihe drei bis fünf Mal wiederholt. Zwischen den Messreihen einer beschichteten Kupferfolie ist kein konstanter Trend in der Änderung des gemessenen Gesamtwiderstand erkennbar, so dass ein Alterungsprozess der beschichteten Kupferfolie zwischen den Messreihen ausgeschlossen werden kann. Der Unterschied in den gemessenen elektrischen Gesamtwiderständen beträgt zwischen den Folien ca. 20 % und ist unabhängig von der Dicke der Kohlenstoff-Ionomer-Beschichtung. Die Standardabweichung zwischen den Messwiederholungen innerhalb einer Folie beträgt weniger als 5 %.

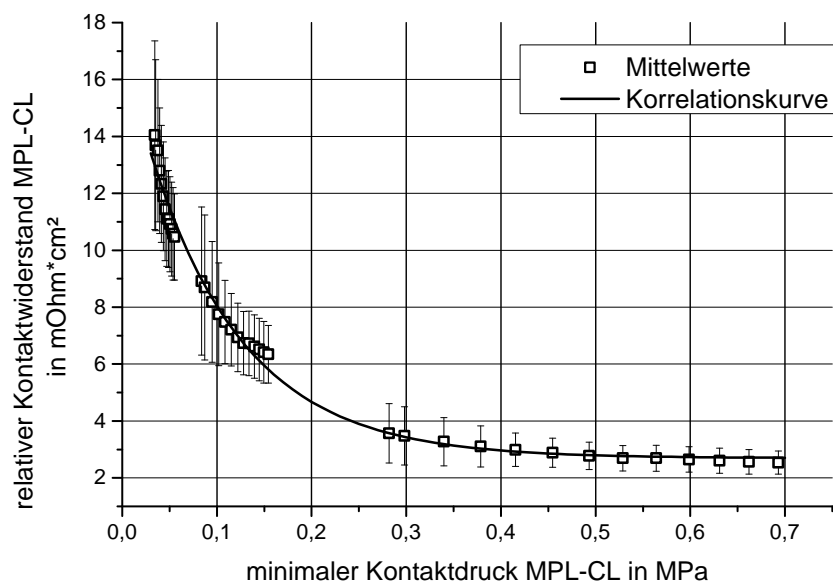
Dadurch dass sich die Messaufbauten nur in den Kanalbreiten unterscheiden, wird davon ausgegangen, dass alle Kontakt- und Materialwiderstände bis auf den Kontaktwiderstand zwischen MPL und beschichteter Kupferfolie konstant sind. Mit der Annahme entspricht die Differenz des gemessenen Gesamtwiderstands aufgrund unterschiedlicher Kanalbreiten der Änderung des elektrischen Kontaktwiderstands zwischen MPL und Beschichtung. Zur Bestimmung des relativen Kontaktwiderstands wird der gemessene Gesamtwiderstand über die Kanalbreite für die mittleren Kontaktdrücke<sup>8</sup> auf die Kupferfolie aufgetragen. Die Steigung der Korrelationsfunktion durch die Messwerte entspricht der Änderung des elektrischen Kontaktwiderstands mit der Änderung der Kanalbreite. In Abbildung 3.14 ist der gemessene Gesamtwiderstand und die Bestimmung der relativen Änderung des elektrischen Widerstands beispielhaft dargestellt. Der mittlere Kontaktdruck auf die Kupferfolie wird während der Messung durch die Anpresskraft aufgebracht.

<sup>8</sup> Der mittlere Kontaktdruck entspricht der Anpresskraft auf der gesamten Probenfläche.





**Abbildung 3.14:** Elektrischer Gesamtwiderstand und Bestimmung der relativen Änderung



**Abbildung 3.15:** Relativer Kontaktwiderstand in Abhängigkeit des minimalen Kontaktdrucks

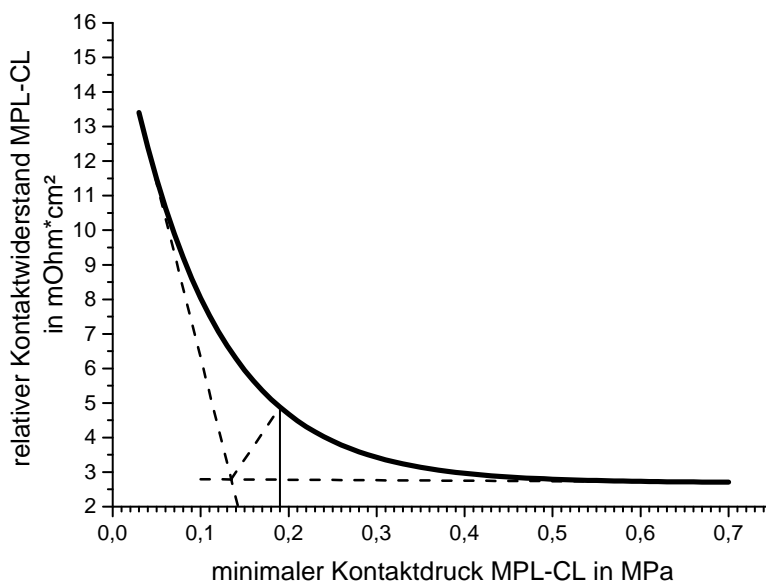
Zur Bestimmung des relativen Kontaktwiderstands unabhängig von der Kanalbreite und den mechanischen Eigenschaften der GDL A wird der minimale Kontaktdruck, der Punkt des geringsten Kontaktdrucks zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht (vgl. Abbildung 3.1), mittels FEM-Simulation berechnet. Für jede Kombination aus Kanalbreite und mittlerem Kontaktdruck auf die Kupferfolien kann so der minimale Kontaktdruck bestimmt werden und der relative Kontaktwiderstand über den minimalen Kontaktdruck dargestellt werden.

In Abbildung 3.15 ist der relative Kontaktwiderstand als Mittelwerte der 7 beschichteten Kupferfolien sowie deren Standardabweichung aller Messpunkte dargestellt. Der relative Kontaktwiderstand, also die Änderung des Kontaktwiderstands durch eine Änderung des minimalen Kontaktdrucks, sinkt mit einer Erhöhung des minimalen Kontaktdrucks zwischen MPL und

CL. Je geringer der minimale Kontaktdruck ist, desto größer ist die Änderung des relativen Kontaktwiderstands mit einer Änderung des Kontaktdrucks. Eine Erhöhung des minimalen Kontaktdrucks von 0,04 MPa auf 0,20 MPa reduziert den elektrischen Widerstand der Brennstoffzelle um ca.  $7,7 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ . Ab einem minimalen Kontaktdruck von ca. 0,4 MPa bewirkt eine Steigerung des minimalen Kontaktdrucks nur noch eine minimale Reduzierung des Widerstands. Mit dem relativen Kontaktwiderstand zwischen MPL und CL in Abhängigkeit des minimalen Kontaktdrucks lassen sich die Auswirkungen einer Änderung im Kanaldesign und/oder der mechanischen GDL-Eigenschaften direkt quantifizieren.

$$f(p_{\min}) = 14,44 \cdot e^{-\frac{p_{\min}}{0,101}} + 2,695 \quad (3.12)$$

Die Korrelationsfunktion des relativen Kontaktwiderstands ist in Gleichung 3.12 dargestellt. Der Schnittpunkt der geometrischen Winkelhalbierenden der Tangenten der Korrelationsfunktion mit der Korrelationsfunktion ergibt die Designempfehlung für den minimalen Kontaktdruck von 0,19 MPa zwischen MPL und CL und ist in Abbildung 3.16 dargestellt. Dieser Wert bildet einen Kompromiss aus den zu erwartenden elektrischen Verlustspannungen und den maximal möglichen Kanalbreiten, um den Kontaktdruck zu erzeugen. Je höher der minimale Kontaktdruck ist, desto geringer muss die Kanalbreite bei konstanten mechanischen GDL-Eigenschaften sein. Die minimal mögliche Kanalbreite ist limitiert durch die Umformbarkeit des Bipolarplattenmaterials sowie durch den Zieldruckverlust des Reaktionsgases entlang des Gaskanals im vorgegebenen Bauraum der Bipolarplatte. Für die Auslegung neuer Kombinationen aus Kanalbreite und GDL sollte der minimale Kontaktdruck von 0,19 MPa im Zusammenspiel mit den mechanischen GDL-Eigenschaften die Kanalbreite erreicht werden, um die elektrischen Verlustspannungen im Betrieb so gering wie möglich zu halten.



**Abbildung 3.16:** Empfehlungswert des minimalen Kontaktdrucks

### Designrichtlinie minimaler Kontaktdruck

Die relative Änderung des Kontaktwiderstands zwischen MPL und CL schafft zusammen mit dem empirischen Berechnungsmodell des minimalen Kontaktdrucks die Grundlage, um bereits in der Vorauslegungsphase das Kanaldesign bestmöglich auf die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage abzustimmen und auftretende elektrische Kontaktwiderstände zu vermeiden. Gleichzeitig kann bei einer Änderung des Kanaldesigns oder der Gasdiffusionslage schnell abgeschätzt werden, welche Auswirkungen auf die elektrische Leistung der Brennstoffzelle entstehen.

Der minimale Kontaktdruck zwischen MPL und CL sollte über 0,19 MPa liegen, um die elektrischen Spannungsverluste aus Kanalbreite und mechanischen GDL-Eigenschaften möglichst gering zu halten.

### Validierung des relativen Kontaktwiderstands

Zur in situ Validierung des relativen Kontaktwiderstands werden in 50 cm<sup>2</sup> Laborzellen die gemessenen Zellspannungen für unterschiedliche Kanalbreiten und Gasdiffusionslagen verglichen. Dazu werden die in Kapitel 4 ausführlicher vorgestellten Flussfelder mit Kanalbreiten von 0,4 mm und 0,6 mm mit jeweils 0,2 mm Stegbreite mit der Papier-GDL A und der Vlies-GDL B vermessen.

Tabelle 3.14 zeigt für die Kombinationen aus Kanalbreite und GDL berechneten minimalen Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht.

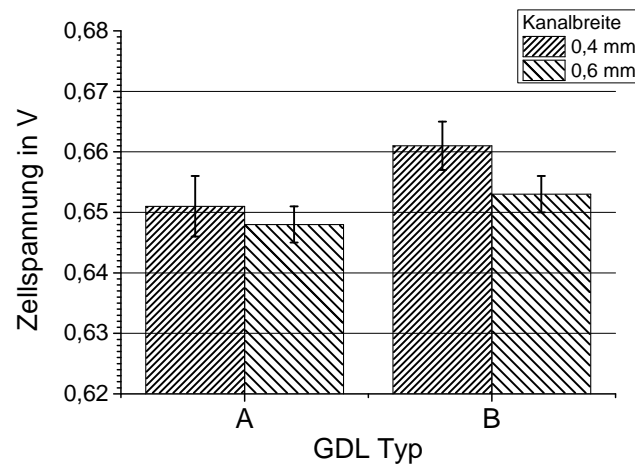
**Tabelle 3.14:** Minimaler Kontaktdruck in den 50 cm<sup>2</sup> Laborzellen

Kanalbreite	GDL A	GDL B
0,4	0,3796 MPa	0,2032 MPa
0,6	0,2367 MPa	0,1147 MPa

Mit den minimalen Kontaktdrücken kann die Änderung des Kontaktwiderstands durch die Änderung der Kanalbreite berechnet werden. Für die GDL A beträgt der zusätzliche Widerstand im 0,6 mm Flussfeld 1,05 mOhm·cm<sup>2</sup> und für den GDL B 2,7 mOhm·cm<sup>2</sup>. Bei einer Stromdichte von 2 A/cm<sup>2</sup> müsste für die GDL A das 0,4 mm Flussfeld 2,1 mV mehr Zellspannung erreichen als das 0,6 mm Flussfeld und für die GDL B 5,4 mV.

Vermessen werden die Laborzellen bei einer Stromdichte von 2 A/cm<sup>2</sup>. Die Betriebsbedingungen entsprechen denen aus Abschnitt 2 (vgl. Tabelle A.4) mit 100 % relativer Gaseintrittsfeuchte, um einen Einfluss der Membranleitfähigkeit auszuschließen. In Abbildung 3.17 sind die gemessenen Zellspannungen und die Standardabweichungen der Messwiederholungen dargestellt. Tabelle 3.15 zeigt die berechneten und gemessenen Spannungsdifferenzen.

Die experimentell bestimmte Spannungsdifferenz zwischen den Flussfeldbreiten von 0,4 mm und 0,6 mm passt für die GDL A, mit der auch der relative Kontaktwiderstand bestimmt wurde, sehr gut. Der Standardfehler der Spannungsdifferenz ist mit 5,8 mV fast doppelt so groß wie die



**Abbildung 3.17:** Gemessene Zellspannungen der Laborzellen bei 2 A/cm<sup>2</sup>

**Tabelle 3.15:** Berechnete und gemessene Spannungsdifferenzen aufgrund der Kanalbreite

GDL Typ	berechnet	gemessen
A	2,1 mV	3 ± 5,8 mV
B	5,4 mV	8 ± 5,0 mV

gemessene Spannungsdifferenz. Für die Vlies-GDL B ist die prognostizierte Spannungsdifferenz 2,6 mV geringer als die gemessene Spannungsdifferenz. Die Abweichung zwischen Berechnung und Messung liegt innerhalb des Standardfehlers der gemessenen Spannungsdifferenz.

Die Standardabweichungen der ex situ Bestimmung des relativen Kontaktwiderstands mit der beschichteten Kupferfolie (vgl. Abbildung 3.15) und die Standardabweichung der experimentellen Messungen der Zellspannung liegen in etwa der gleichen Größenordnung wie die zu erwartende Änderung des Kontaktwiderstands. Damit ist eine Vorhersage des Verhaltens der Kombination aus Kanalbreite und mechanischem GDL-Eigenschaften nur mit begrenzter Genauigkeit möglich.

Für die iterative Vorauslegung von Kanalstrukturen auf die Anforderungen an u.a. Leistungsdichte, Bauraum und Betriebsbedingungen liefert die vorgestellte Korrelationsfunktion zur Abschätzung der zu erwartenden Spannungsverluste eine einfache Möglichkeit die Auswirkungen des minimalen Kontaktdrucks aufgrund der mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage und der Kanalbreite zu beurteilen.

## 3.2 Auslegung der Stegbreite im aktiven Bereich

Die Stegbreite definiert zusammen mit der Kanalstruktur die Flussfeldstruktur im aktiven Bereich. Über die Stege der Bipolarplatte wird die Verpresskraft in die Funktionsschichten der Brennstoffzelle eingeleitet und der elektrische und thermische Kontakt gewährleistet.

In diesem Kapitel wird gezeigt, welchen Einfluss die Stegbreite auf die Zellspannung der Brennstoffzelle hat und welche Anforderungen an die Stegbreite für einen stabilen Betrieb der Brennstoffzelle gestellt werden. Aus den gewonnen Erkenntnissen werden Designrichtlinien für die Auslegung der Stegbreite abgeleitet.

### 3.2.1 Elektrische Spannungsverluste aufgrund der Stegbreite

Die ausgeformten Kanäle in der Bipolarplatte erzeugen eine Struktur aus Kanälen und Stegen. Die Stege bilden den Kontakt zwischen Bipolarplatte und Gasdiffusionslage und dienen der Abfuhr des elektrischen Stroms.

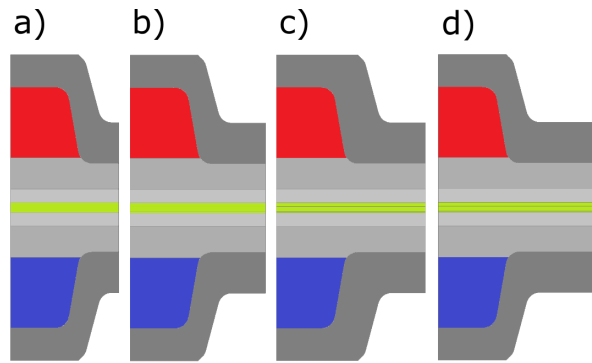
Die Reaktionsgase der Brennstoffzelle müssen durch die Gasdiffusionslage auch in den Bereich der Katalysatorschicht unter den Stegen diffundieren. Die Stege der Flussfeldstruktur verlängern den Diffusionsweg der Gase und senken damit deren Konzentration am Katalysator. Es kommt zu zusätzlichen Spannungsverlusten (vgl. Kapitel 2.1).

#### Diffusion des Reaktionsgases

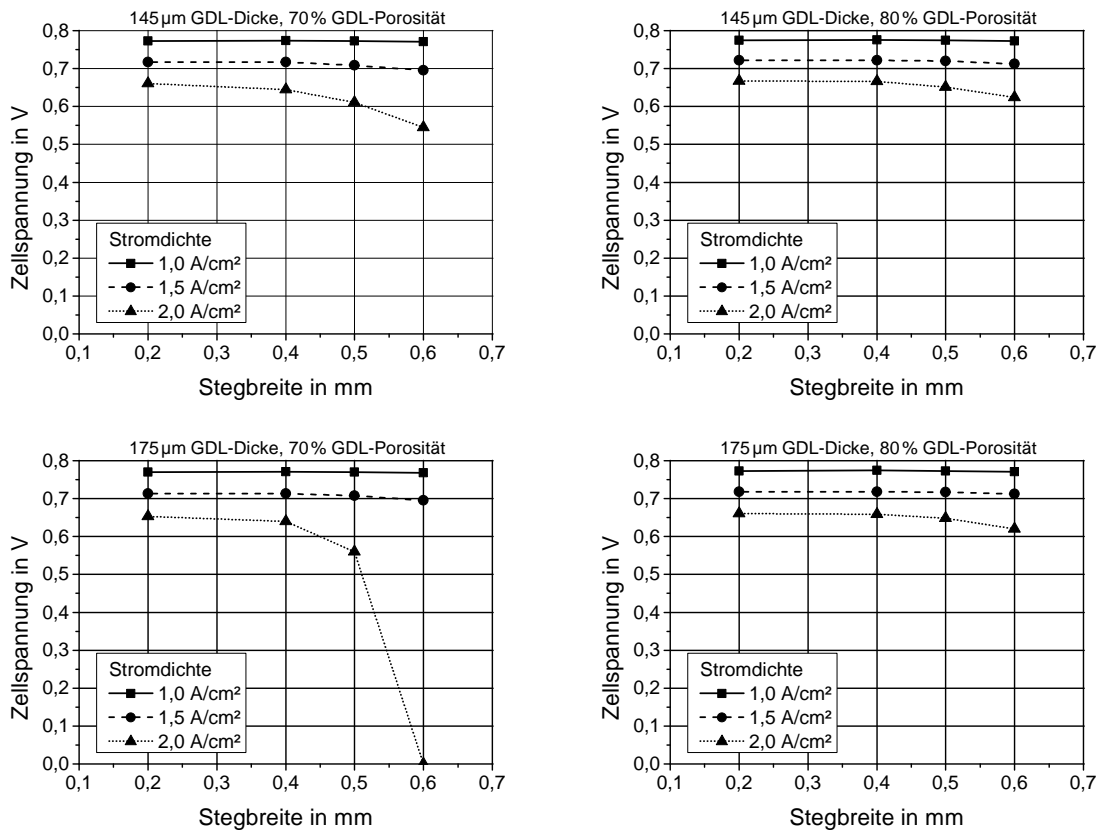
Die Stege der Bipolarplatte auf die Gasdiffusionslage verlängern den Diffusionsweg der Reaktionsgase zur Katalysatorschicht. Mit zunehmender Breite der Stege und Dicke der Gasdiffusionslage kommt es damit zu zusätzlichen Spannungsverlusten und die Zellspannung der Brennstoffzelle sinkt. Mit Hilfe des 2D, stationären CFD-Modells nach Scholz [73] in Ansys Fluent wird der Einfluss der Stegbreite, verpressten GDL-Dicke und GDL-Porosität auf die Zellspannung untersucht. Simuliert wird ein halber Kanal mit Symmetrierandbedingungen. Abbildung 3.18 zeigt die Simulationsmodelle. Bei einer konstanten Kanalbreite von 0,6 mm wird die Stegbreite zwischen 0,2 mm und 0,6 mm variiert.

Die Modellparameter für die Materialien der Brennstoffzelle und die Reaktionskinetik werden von Scholz [73] übernommen. Die Kontaktwiderstände zwischen Bipolarplatte und Gasdiffusionslage und zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht werden als konstant angenommen, um deren Einfluss auf die Zellspannung durch die geänderte Stegbreite ausschließen zu können. Um Effekte der Membranleitfähigkeit auf die Zellspannung durch die Stromdichte auszuschließen, wird mit einer relativen Gasfeuchte von 100 % gerechnet. Der Gasdruck beträgt 2,5 bar absolut auf der Anode und Kathode und die Zelltemperatur 76 °C.

Abbildung 3.19 zeigt die Ergebnisse der Zellspannungssimulation für die Stromdichten von 1,0 A/cm<sup>2</sup>, 1,5 A/cm<sup>2</sup> und 2,0 A/cm<sup>2</sup> für verpresste Dicken der Gasdiffusionslage von 0,145 mm und 0,175 mm mit jeweils der Porosität des GDL-Substrats von 70 % und 80 %.



**Abbildung 3.18:** Simulationsmodelle für die 2D Simulation des Einflusses der Stegbreite. a) 0,2 mm Steg, b) 0,4 mm Steg, c) 0,5 mm Steg, d) 0,6 mm Steg



**Abbildung 3.19:** Simulierte Zellspannung in Abhängigkeit der Stegbreite, GDL-Dicke und -Porosität

Bei einer Stromdichte von  $1,0 \text{ A/cm}^2$  sind die Spannungsverluste aufgrund der Stegbreite sehr klein und betragen bei einer Erhöhung der Stegbreite von  $0,2 \text{ mm}$  auf  $0,6 \text{ mm}$  ca.  $2 \text{ mV}$ . Auch der Einfluss der Dicke der Gasdiffusionslage und deren Porosität sind bei der Stromstärke gering. Die simulierte Zellspannung liegt für die  $0,145 \text{ mm}$  dicke Gasdiffusionslage ca.  $3 \text{ mV}$  höher als für die  $0,175 \text{ mm}$  dicke Gasdiffusionslage und eine Erhöhung der Porosität von  $70 \%$  auf  $80 \%$  bringt für beide Gasdiffusionslagen auch ca.  $3 \text{ mV}$  zusätzliche Zellspannung.

Mit steigender Stromdichte wird der Einfluss der Stegbreite und Porosität der Gasdiffusionslage auf die Zellspannung größer. Bei  $1,5 \text{ A/cm}^2$  senkt eine Erhöhung der Stegbreite von  $0,2 \text{ mm}$  auf  $0,6 \text{ mm}$  die Zellspannung bei  $70 \%$  Porosität um ca.  $20 \text{ mV}$  und bei  $80 \%$  Porosität um ca.  $7 \text{ mV}$ . Der Einfluss der Dicke der Gasdiffusionslage liegt weiterhin bei ca.  $3 \text{ mV}$ .

Eine weitere Steigerung der Stromdichte verstärkt den Effekt der zunehmenden Stegbreite auf die Spannungsverluste. Bei einer Stromdichte von  $2,0 \text{ A/cm}^2$  und  $80 \%$  GDL-Porosität erzeugt eine Verbreiterung des Stegs eine Senkung der Zellspannung um ca.  $42 \text{ mV}$ . Der Unterschied in der Zellspannung aufgrund der GDL-Dicke von ca.  $4 \text{ mV}$ . Bei einer Porosität von  $70 \%$  steigt der Einfluss der Stegbreite stark an. Bei der  $0,145 \text{ mm}$  dicken GDL nimmt die Zellspannung durch die zunehmende Stegbreite von  $0,2 \text{ mm}$  auf  $0,6 \text{ mm}$  um ca.  $116 \text{ mV}$  ab. Mit der  $0,175 \text{ mm}$  dicken Gasdiffusionslage und einer Stegbreite von  $0,6 \text{ mm}$  kann keine Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  erreicht werden. Die Zellspannung fällt um ca.  $93 \text{ mV}$  durch eine Verbreiterung des Stegs von  $0,2 \text{ mm}$  auf  $0,5 \text{ mm}$ .

Bei hohen Stromdichte von  $2,0 \text{ A/cm}^2$  und mehr hat die Stegbreite einen sehr großen Einfluss auf die Zellspannung der Brennstoffzelle. Die Spannungsverluste entstehen dabei nahezu ausschließlich auf der Kathode aufgrund der langsameren Diffusion des Sauerstoffs im Vergleich zum Wasserstoff [74] und der deutlich schlechteren Reaktionskinetik des Sauerstoffs [75] im Vergleich zu der des Wasserstoffs [76].

Bei hohen Porositäten der Gasdiffusionslage von  $80 \%$  fällt die Zellspannung erst bei Stegbreite von  $>0,4 \text{ mm}$  stark ab. Zwischen  $0,2 \text{ mm}$  und  $0,4 \text{ mm}$  Stegbreite beträgt die Spannungsdifferenz in dem gezeigten Beispiel nur ca.  $2 \text{ mV}$ . Mit sinkender Porosität wird der Einfluss der Stegbreite größer, so dass bei  $70 \%$  Porosität die Spannungsdifferenz zwischen  $0,2 \text{ mm}$  und  $0,4 \text{ mm}$  Stegbreite bei ca.  $15 \text{ mV}$  liegt.

Für eine Steigerung der Leistungsdichte der Brennstoffzelle bei großen Stromdichten muss die Stegbreite so gering wie möglich sein, um die Verluste aufgrund der Diffusion der Reaktionsgase so gering wie möglich halten.

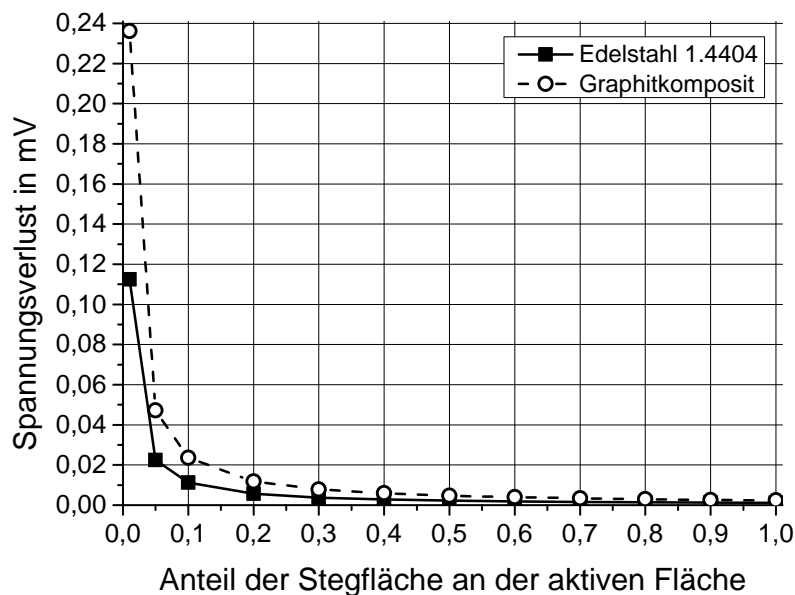
Die Ergebnisse des gezeigten Beispiels decken sich qualitativ mit veröffentlichten Ergebnissen aus der Literatur. Chui et al. [77] haben mit abnehmender Kanalbreite bei konstantem Kanal-Steg-Verhältnis in einem parallelen Flussfeld höhere Leistungsdichten simuliert. Auch Wang et al. [78] haben simulativ mit der schmalsten Stegbreite die höchsten Leistungsdichten erzielt. Benzinger et al. [79] zeigten, dass die Zellspannung mit zunehmender Stegbreite sinkt und dass es eine kritische Stegbreite gibt, ab der der Katalysator nicht mehr mit Sauerstoff versorgt wird.

### **Leitungsverluste in der Bipolarplatte**

Aufgrund der alternierenden Struktur aus Kanälen und Stegen im aktiven Bereich verändert sich, je nach Größe der Kanal- und Stegbreite, der Anteil der Kontaktfläche zur aktiven Fläche im Übergang von der Gasdiffusionslage zur Bipolarplatte und damit der Leitungsquerschnitt für

Elektronen und Wärme. Je schmaler der Anteil der Stegbreite an der Gesamtbreite aus Kanal und Steg ist, desto geringer ist der Leitungsquerschnitt und desto größer werden die Leistungsverluste durch die Bipolarplatte.

In diesem Kapitel wird der Einfluss der Stegbreite auf die Leitungsverluste durch die Bipolarplatte berechnet, um daraus eine Mindestanforderung an die Stegbreite abzuleiten. Für eine Bipolarplatte aus  $75\ \mu\text{m}$  dickem Edelstahlblech WNr. 1.4404 (X2CrNiMo17-12-2) mit einem elektrischen Widerstand von  $0,7500\ \Omega \cdot \text{mm}^2 \cdot \text{m}^{-1}$  [80] und für eine Bipolarplatte aus  $150\ \mu\text{m}$  dickem Graphitkomposit mit einem elektrischen Widerstand von  $0,7878\ \Omega \cdot \text{mm}^2 \cdot \text{m}^{-1}$  sind bei einer Stromdichte von  $2\ \text{A}/\text{cm}^2$  in Abbildung 3.20 der Spannungsverlust durch die Elektronenleitung in Abhängigkeit des Anteils der Stegfläche an der aktiven Fläche dargestellt.



**Abbildung 3.20:** Elektrische Leitungsverluste in der Bipolarplatte aufgrund der Stegbreite

Die Spannungsverluste steigen mit abnehmendem Leitungsquerschnitt an. Aufgrund des geringen elektrischen Widerstands beträgt der Spannungsabfall bei 10 % Bedeckung der aktiven Fläche mit Stegfläche für das Graphitkomposit weniger als  $0,024\ \text{mV}$  und für den Edelstahl weniger als  $0,012\ \text{mV}$ .

Stegbreiten, die zu unter 10 % Bedeckung der aktiven Fläche führen, sind zwar theoretisch möglich, aber erzeugen praktisch entweder so breite Kanäle, dass der minimale Kontaktdruck zu gering wird, oder so feine Stege, dass es zu sehr hohen Drücken zwischen Steg und GDL kommt und die Fasern der GDL beschädigt werden, um die Verpressung der aktiven Fläche zu gewährleisten.

Bei einem Anteil der Stegfläche von mehr als 10 % an der aktiven Fläche ist der elektrische Spannungsgewinn durch den größeren Leitungsquerschnitt in dem gezeigten Beispiel sehr gering. Den größten Einfluss auf die Leitungsverluste hat die Materialdicke der Bipolarplatte. Die in Abbildung 3.20 gezeigten Spannungsverluste beziehen sich auf die aktuell bekannten minimalen



Wandstärken für umgeformtes Edelstahlblech und Graphitkomposit. Eine Verdoppelung der Wandstärken bedeutet eine Verdoppelung der elektrischen Leitungsverluste in der Bipolarplatte. Aber auch mit 10-facher Wandstärke im Vergleich zum gezeigten Beispiel und mit nur 10 % Anteil der Stegfläche liegen die Spannungsverluste bei unter 0,24 mV.

### **Designrichtlinie Stegbreite für minimale elektrische Spannungsverluste**

Die Stegbreite der Bipolarplatte sollte für Anwendungen bei hohen Stromdichten so gering wie möglich sein, um die elektrischen Spannungsverluste aufgrund der Sauerstoffdiffusion zur Katalysatorschicht zu minimieren. Mit sinkender Anforderung an die Stromdichte der Brennstoffzelle wird der Einfluss der Stegbreite auf die Spannungsverluste geringer.

Die minimale notwendige Stegbreite wird nicht durch die Leitungsverluste in der Bipolarplatte definiert. Diese sind mit deutlich unter einem Millivolt bei einer Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  vernachlässigbar klein.

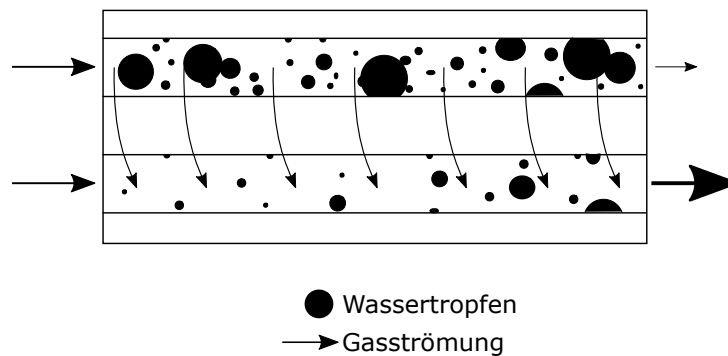
Die minimale Stegbreite ergibt sich statt dessen aus dem maximal erlaubten Kontaktdruck zwischen Steg und GDL und dem gewünschten mittleren Kontaktdruck in der aktiven Fläche. Zusätzlich können je nach Design der Kühlmittelkanäle der Bipolarplatte zusätzliche Anforderungen durch den Kühlmitteldruckverlust entstehen.

### **3.2.2 Querpermeation zwischen benachbarten Kanälen**

Zwischen zwei benachbarten Kanälen kann es aufgrund von lokalen Druckdifferenzen zu einer Querpermeation des Reaktionsgases kommen. Dabei strömt das Gas unter dem Steg durch die Gasdiffusionslage von einem in den anderen Kanal. In einem parallelen Flussfeld können die Druckdifferenzen durch lokal unterschiedliche Intrusionen der GDL in den Gaskanal, durch das Auftreten von flüssigem Wasser, durch Variation der Kanaldurchmesser aufgrund von Fertigungstoleranzen oder durch eine Ungleichverteilung durch die Verteilstruktur entstehen. Der Gasmassenstrom, der aufgrund der Druckdifferenz ausgetauscht wird, hängt dabei von der Permeabilität der GDL und der Breite des Stegs ab.

Der Einfluss der Querpermeation auf die Leistung und den Wasseraustrag in Bipolarplatten mit Serpentinflussfeld wurde in mehreren Veröffentlichungen untersucht, u.a. [81], [82], die zeigen, dass die Permeation von Luft zwischen benachbarten Kanälen in einem Serpentinflussfeld zu einer Steigerung der Leistung führt. Der Einfluss der Permeation von Reaktionsgas zwischen benachbarten Kanälen in einem parallelen Flussfeld und dessen Auswirkungen auf die Betriebsstabilität der Brennstoffzellen wurden nach aktuellem Kenntnisstand noch nicht publiziert.

In diesem Kapitel wird der Einfluss der Permeabilität und der Stegbreite auf den Permeationsmassenstrom bei parallelen, geraden Kanälen im Flussfeld simulativ untersucht und anhand eines Stabilitätskriteriums eine Anforderung für die in Kapitel 4.2 vorgestellte Bipolarplatte entwickelt.



**Abbildung 3.21:** Prinzipdarstellung der Querpermeation zwischen benachbarten Kanälen durch die GDL aufgrund lokaler Druckdifferenzen durch Flüssigwasser

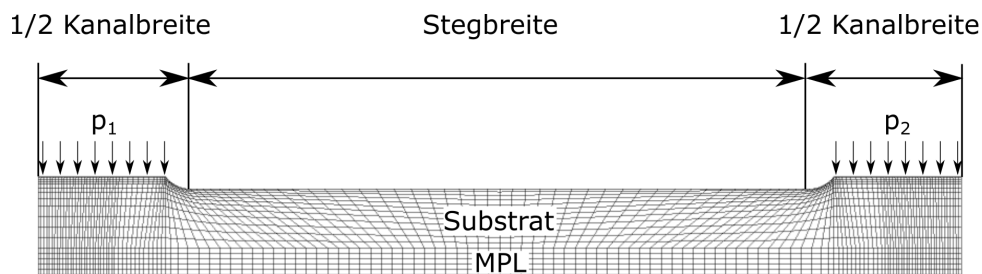
### Simulationsmodell

Mittels CFD-Simulation wird in einem 3D-Modell mit einer Schichtdicke von einer Zelle der Einfluss der Permeabilität der GDL und der Stegbreite auf die Querpermeation der Reaktionsgase in Abhängigkeit der Druckdifferenzen untersucht. Mit dem Simulationsprogramm Ansys Fluent 16.2 wird das in Abbildung 3.22 dargestellte Modell umgesetzt und die Querpermeation aufgrund von Druckdifferenzen zwischen den Kanälen bestimmt. Die Kontaktflächen zwischen GDL und Gaskanal werden als Druckein- bzw. auslass modelliert, die Modellflächen von der GDL zum Steg und von der MPL zur Katalysatorschicht werden als Wände angenommen und alle anderen Flächen als Symmetrierandbedingung.

Die Permeation durch das poröse Medium wird in ANSYS Fluent durch einen zusätzlichen Quellterm der Momentengleichung gelöst. In einem homogenen porösen Medium mit laminarer Strömung berechnet sich der Druckverlust nach dem Darcy-Gesetz aus kinematischer Viskosität  $\mu$ , Permeabilität  $\alpha$  und Geschwindigkeit  $\vec{v}$  [83].

$$\nabla p = -\frac{\mu}{\alpha} \vec{v} \quad (3.13)$$

In der Simulation wird über die Vorgabe der Druckdifferenz zwischen Druckeinlass und -auslass die Permeationsgeschwindigkeit und daraus der Massenstrom berechnet.



**Abbildung 3.22:** Simulationsmodell zur Querpermeation

Die Gasdiffusionslage hat eine verpresste Dicke von  $145 \mu\text{m}$  inklusive einer MPL-Dicke von  $50 \mu\text{m}$ . Für die mikroporöse Schicht wird eine konstante Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$  und eine

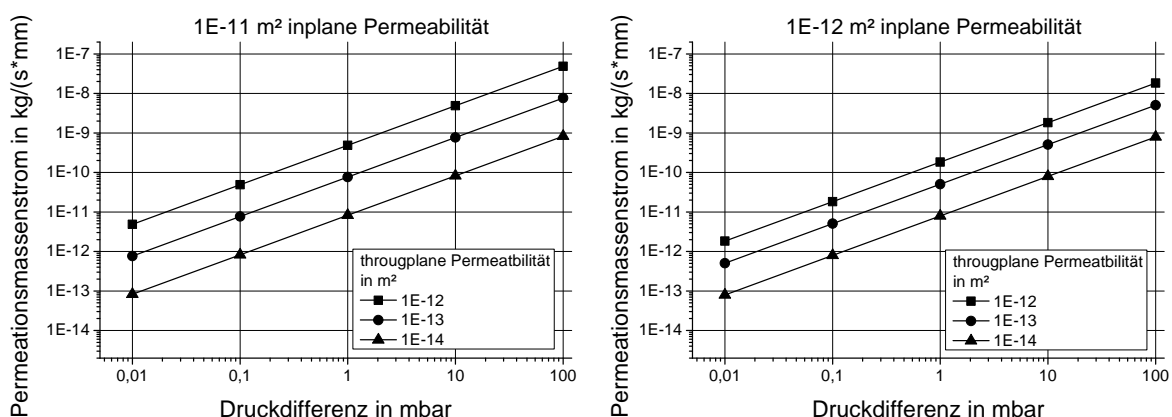
Porosität von 0,7 angenommen. Für das Substrat der GDL wird die in-plane Permeabilität mit  $1 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ,  $5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  und  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  in typischen Bereichen von Papier- und Vlies-GDLs variiert. Der Einfluss der through-plane Permeabilität wird mit  $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$ ,  $1 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$  und  $1 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  bei einer Porosität von 0,7 abgebildet. Für die möglichen Kombinationen aus in-plane und through-plane Permeabilität des Substrats wird der Permeationsmassenstrom aufgrund von Druckdifferenzen bestimmt.

### Anode

Bei einer lokalen Unterversorgung des Anodenkatalysators mit Wasserstoff kommt es zur Korrosion des Kohlenstoffträgermaterials der Kathodenkatalysatorschicht. Durch die Membran diffundiert Sauerstoff auf die Anode und reichert sich im Bereich der Unterversorgung an. In dem lokal unterversorgten Bereich kehren sich die Redoxreaktionen um. Der Kohlenstoff der Kathodenelektrode wird zu Kohlenstoffdioxid oxidiert und liefert die Protonen für die Reduktion des Sauerstoffs auf der Anode zu Wasser [84], [85]. Der lokale Zusammenfall der Elektrode aufgrund der Kohlenstoffkorrosion reduziert dauerhaft die elektrochemisch aktive Oberfläche der Katalysatorschicht.

In Abbildung 3.23 ist beispielhaft der Permeationsmassenstrom für reinen Wasserstoff in Abhängigkeit der Druckdifferenz und der Permeabilität der GDL bei einer Stegbreite von 0,5 mm für einen Millimeter Kanallänge dargestellt. Der Permeationsmassenstrom zwischen den Kanälen steigt linear mit der Druckdifferenz zwischen den Kanälen und sinkt mit Abnahme der in- und throughplane Permeabilität. Der Einfluss der inplane Permeabilität sinkt mit geringerer throughplane Permeabilität. So hat bei einer throughplane Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$  die inplane Permeabilität keinen Einfluss auf der Permeationsmassenstrom.

Bei einer Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  und einer Breite der aktiven Fläche pro Kanal von 1 mm sind pro Millimeter Kanallänge  $2,07 \cdot 10^{-10} \text{ kg/s}$  Wasserstoff für eine stöchiometrische Reaktion erforderlich.



**Abbildung 3.23:** Wasserstoff-Permeationsmassenstrom in Abhängigkeit der GDL-Permeabilität und der Druckdifferenz bei 0,5 mm Stegbreite pro Millimeter Kanallänge

Die Lebensdauer der PEM-Brennstoffzelle ist eng mit einem stabilen Betrieb derselben verbunden. Ein stabiler Betrieb bedeutet, dass sowohl die Versorgung mit ausreichend Reaktionsgas für

die elektrochemische Reaktion sichergestellt ist, als auch dass auftretendes flüssiges Wasser zuverlässig aus den Gaskanälen ausgetragen wird. Jenssen et al. [86] haben ein Stabilitätskriterium entwickelt, bei dem im Anodengas auftretendes Flüssigwasser keinen negativen Effekt auf die gemessene Zellspannung hat. Ab einer Mindestreynoldszahl von 7,5 im Anodengaskanal wurden durch auftretendes Flüssigwasser keine Schwankungen der Zellspannung mehr gemessen, so dass von keiner Schädigung der Brennstoffzelle ausgegangen wird.

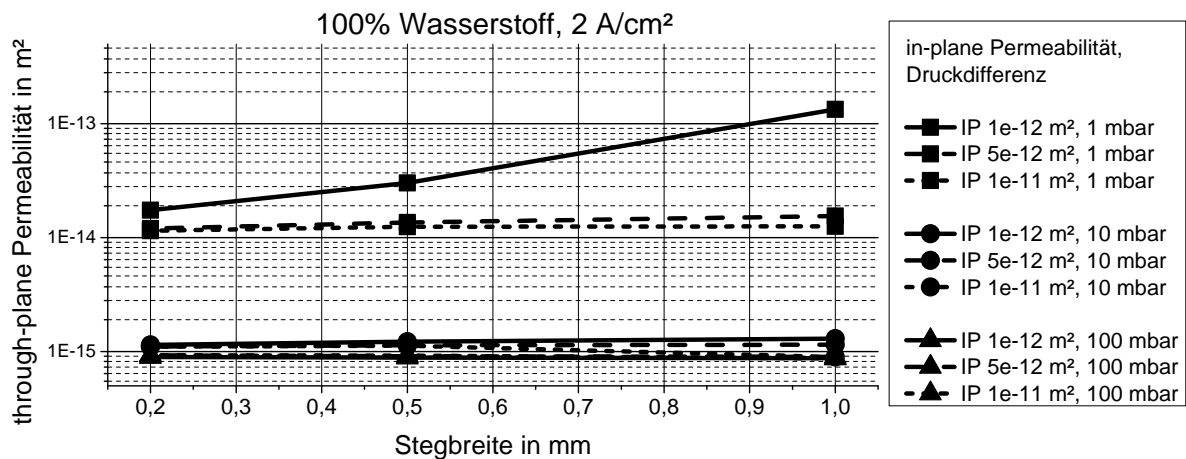
Die Einhaltung des stabilen Betriebs limitiert den maximal zulässigen Permeationsmassenstrom zwischen zwei benachbarten Kanälen auf der Anode. Trotz Querpermeation darf das Stabilitätskriterium ( $Re > 7,5$ ) nicht unterschritten werden und gleichzeitig keine Unterversorgung an Wasserstoff ( $\lambda_{H_2} > 1$ ) entstehen.

Am Beispiel der in Kapitel 4.2 entwickelten Kanalstruktur und den durch die Betriebsbedingungen entstehenden Reynoldszahlen wird im folgenden gezeigt, welche Kombinationen aus in-plane und through-plane Permeabilität und Stegbreite bei verschiedenen Druckdifferenzen einen stabilen Betrieb ermöglichen. Als mittlere lokale Druckdifferenzen zwischen zwei benachbarten Kanälen werden 1,0 mbar (als Folge aus Ungleichverteilung durch Verteilstruktur, unterschiedlicher Intrusion in den Gaskanal durch Schwankungen der GDL-Eigenschaften und Durchmesservariation der Gaskanäle durch Fertigungstoleranzen) und 10 mbar und 100 mbar (durch auftretendes Flüssigwasser) untersucht. Für beispielhafte Stromdichten von 2,0 A/cm<sup>2</sup>, 1,0 A/cm<sup>2</sup> und 0,3 A/cm<sup>2</sup> wird bestimmt, ob eine Unterversorgung mit Reaktionsgas oder das Stabilitätskriterium den Permeationsmassenstrom limitiert und welchen Einfluss eine Zumischung von Stickstoff in das Anodengas hat.

Beim Betrieb mit reinem Wasserstoffgas und einer Stöchiometrie von 2,0 entsteht bei einer Stromdichte von 2,0 A/cm<sup>2</sup> am Kanalende die niedrigste Reynoldszahl von 17,3. Bereits ab einer Stromdichte von weniger als 1,45 A/cm<sup>2</sup> und einer Stöchiometrie von 2,0 wird am Kanalauslass die kritische Reynoldszahl von 7,5 des Stabilitätskriteriums unterschritten. Der Permeationsmassenstrom zwischen zwei Kanälen wird in diesem Fall durch das Stabilitätskriterium limitiert. Aus Abbildung 3.24 lassen sich Stabilitätspunkte ablesen, die aus einer Kombination von GDL-Permeabilität, Stegbreite und Druckdifferenz bestehen und den Permeationsmassenstrom soweit limitieren, dass trotz Querpermeation der stabile Betrieb gewährleistet ist.

Bei einer geringen Druckdifferenz von 1 mbar und einer niedrigen in-plane Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  hat die Stegbreite zwischen den Kanälen einen großen Einfluss auf die nötigen through-plane Permeabilität der GDL. Bei einer Verbreiterung des Stegs von 0,2 mm auf 1,0 mm sinkt die erforderliche through-plane Permeabilität in dem Beispiel um den Faktor 10. Mit steigender in-plane Permeabilität der GDL sinkt der Einfluss der Stegbreite stark ab. Bei einer in-plane Permeabilität  $5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  bewirkt die Verbreiterung des Stegs nur noch eine Reduzierung der through-plane Permeabilität um den Faktor 1,5 und bei  $1 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$  ist der Einfluss der Stegbreite nahezu nicht vorhanden.

Mit steigender Druckdifferenz sinkt der Einfluss der Stegbreite. Vor allem bei der in-plane Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  ist auch nahezu kein Effekt der Stegbreite auf die erforderliche through-plane Permeabilität vorhanden. Die Steigerung der Druckdifferenz von 1 mbar auf 10 mbar senkt die erforderliche through-plane Permeabilität der GDL um den Faktor 10 auf ca.  $1,05 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ . Eine weitere Steigerung von 10 mbar auf 100 mbar senkt hingegen die nötige through-plane Permeabilität nur leicht weiter auf ca.  $9 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$ .



**Abbildung 3.24:** Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm<sup>2</sup> und 100 % Wasserstoff

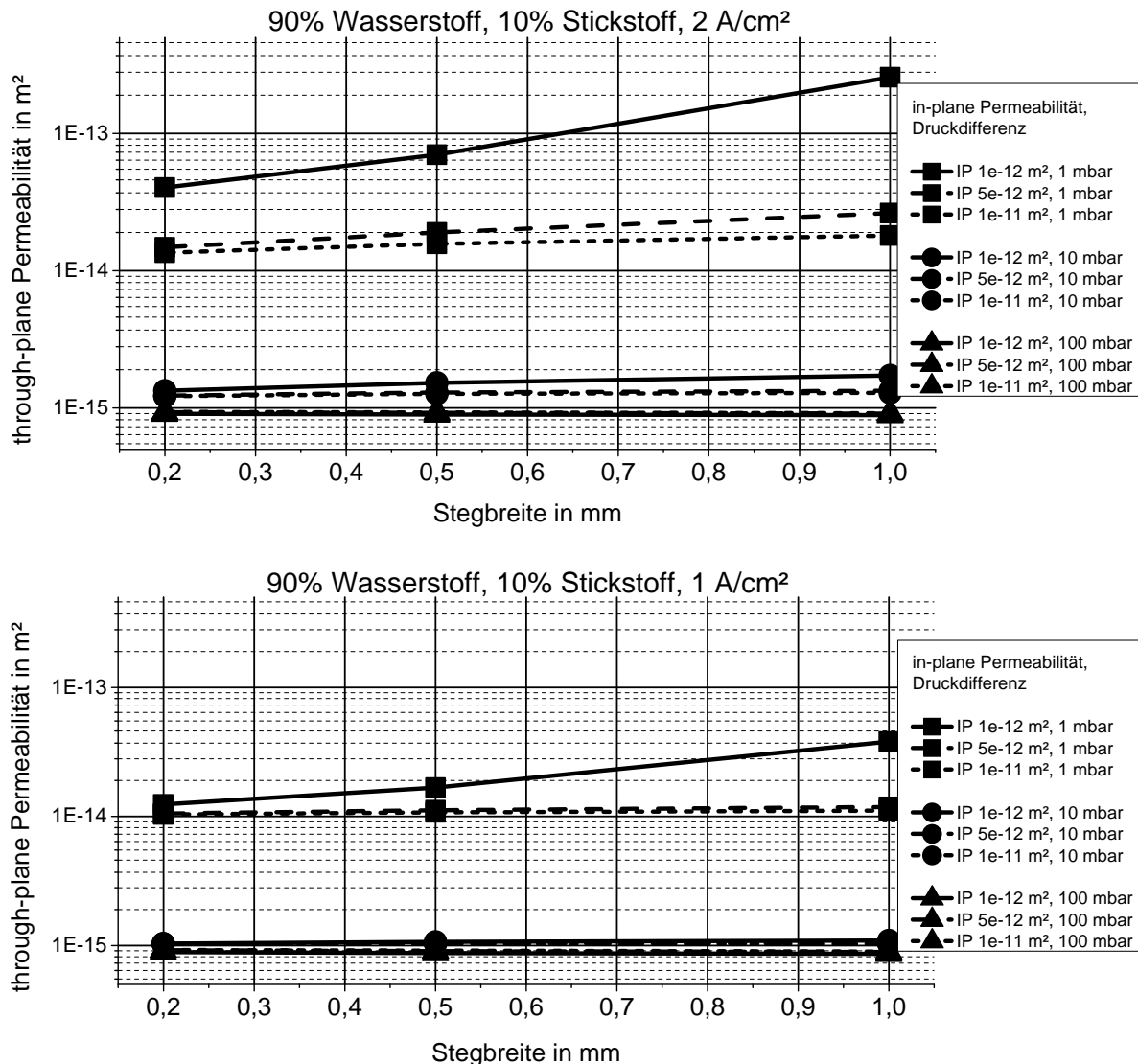
Bei einem Betrieb mit reinem Wasserstoff kann das Stabilitätskriterium von Jenssen nur bis zu einer Stromdichte von 1,45 A/cm<sup>2</sup> bei einer Stöchiometrie von 2,0 eingehalten werden. Um bei kleineren Stromdichten einen stabilen Betrieb gewährleisten zu können, muss entweder die Stöchiometrie angehoben werden oder das Wasserstoffgas mit Stickstoff verdünnt werden.

Die Erhöhung des Stickstoffanteils im Anodengas erhöht die Reynoldszahlen im Gaskanal. Die Gasmenge, die zur Einhaltung des Stabilitätskriteriums zwischen den Kanälen permieren darf, ist größer. In Abbildung 3.25 sind die Stabilitätspunkte für Kombinationen aus in-plane und through-plane Permeabilitäten, Stegbreiten und Druckdifferenzen dargestellt, die bei Stromdichten 2,0 A/cm<sup>2</sup> und 1,0 A/cm<sup>2</sup> eine Einhaltung des Stabilitätskriteriums für einen Betrieb mit einem Mengenanteil von 0,9 Wasserstoff und 0,1 Stickstoff ermöglichen. Bei der Stromdichte 2,0 A/cm<sup>2</sup> und einer Stöchiometrie von 2,0 wird am Kanalauslass eine Reynoldszahl von 44,4 erzielt. Die Limitierung der Querpermeation erfolgt bei dieser Stromdichte durch Einhaltung der Mindeststöchiometrie von 1,0 (Re = 13,3). Bei der Stromdichte von 1,0 A/cm<sup>2</sup> beträgt die Reynoldszahl 22,2 und die Querpermeation wird durch das Stabilitätskriterium bei einer Stöchiometrie von 1,1 begrenzt.

Der Einfluss der in-plane Permeabilität, Stegbreite und Druckdifferenz auf die through-plane Permeabilität zur Einhaltung des stabilen Betriebs sind ähnlich zum Betrieb mit reinem Wasserstoff (vgl. Abb. 3.24). Bei niedriger in-plane Permeabilität und geringer Druckdifferenz hat die Stegbreite einen großen Einfluss auf die erforderliche through-plane Permeabilität, der aber mit steigender in-plane Permeabilität und Druckdifferenz stark abnimmt.

Die Zumischung von 10 % Stickstoff in das Anodengas erhöht die niedrigste Reynoldszahl ohne Querpermeation von 35 auf 44. Die Gasmenge, die zwischen den Kanälen permieren darf, ist größer und senkt besonders bei geringen Druckdifferenzen von 1 mbar die Anforderungen an die through-plane Permeabilität der GDL. Mit steigender Druckdifferenz nimmt der Einfluss ab, bis bei einer Druckdifferenz kein Einfluss der erhöhten Reynoldszahl auf die through-plane Permeabilität vorhanden ist.

Bei der Stromdichte von 1,0 A/cm<sup>2</sup> und der Stöchiometrie 2,0 beträgt die niedrigste Reynolds-



**Abbildung 3.25:** Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm<sup>2</sup> und 1,0 A/cm<sup>2</sup> und 90 % Wasserstoff

zahl 22,2. Durch Querpermeation darf diese bis auf 7,5 sinken, das einer Stöchiometrie von 1,1 entspricht. Der geringere Permeationsmassenstrom zwischen den Kanälen erhöht die Anforderungen an die GDL-Permeabilität. Besonders stark ist der Effekt wieder bei der in-plane Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  und nimmt steigender in-plane Permeabilität und Druckdifferenz stark ab. Auch der Einfluss der Stegbreite sinkt. Auffällig ist, dass trotz deutlich geringerem Permeationsmassenstrom die Anforderungen für die through-plane Permeabilität bei 100 mbar Druckdifferenz erneut bei  $9 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$  liegt.

Durch eine Erhöhung des Stickstoffmengenanteils auf 20 % im Betriebsgas des Anodenkanals steigen die Reynoldszahlen in den Betriebspunkten weiter, so dass auch bei kleineren Stromdichten ein stabiler Betrieb erreicht werden kann. In Abbildung 3.26 sind die Stabili-

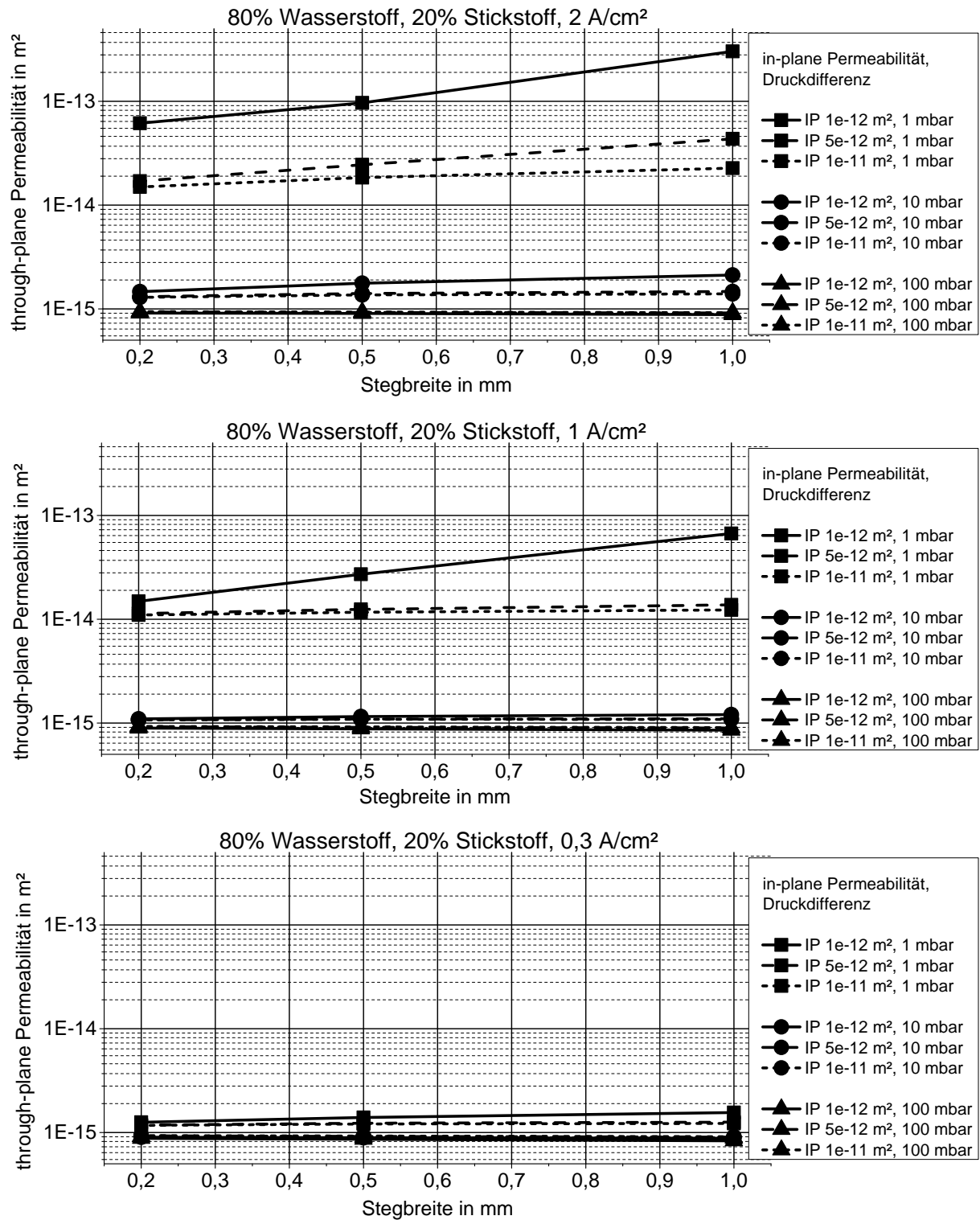
tätspunkte für Kombinationen aus in-plane und through-plane Permeabilitäten, Stegbreiten und Druckdifferenzen dargestellt, bei einem Betrieb mit 20 % Stickstoff, Stöchiometrie von 2,0 und den Stromdichten von 2,0 A/cm<sup>2</sup>, 1,0 A/cm<sup>2</sup> und 0,3 A/cm<sup>2</sup>. Bei den Stromdichten 2,0 (Re<sub>min</sub> = 78) und 1,0 A/cm<sup>2</sup> (Re<sub>min</sub> = 39) limitiert die minimale Wasserstoffstöchiometrie von 1,0 den Querpermeationsstrom. Bei der Stromdichte von 0,3 A/cm<sup>2</sup> ist es die Einhaltung des Stabilitätskriteriums mit einer Mindestreynoldszahl von 7,5 bei einer Stöchiometrie von 1,5. Durch die größeren Reynoldszahlen aufgrund des größeren Stickstoffanteils sind die through-plane Permeabilitäten zur Einhaltung des stabilen Betriebs größer als bei 90 % und 100 % Wasserstoff (vgl. Abb. 3.25 und 3.24). Dieser Effekt sinkt mit zunehmender Druckdifferenz zwischen den Kanälen, so dass auch bei 20 % Stickstoffanteil eine through-plane Permeabilität von ca.  $9 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$  unabhängig der minimalen Reynoldszahl ohne Querpermeation erforderlich ist.

### Design Richtlinie Querpermeation Anode

Bei dem Design neuer Anodenflussfeldstrukturen müssen für die optimale Auslegung der Stegbreite hinsichtlich stabilem Betrieb die zu erwartenden lokalen Druckdifferenzen zwischen benachbarten Kanälen, die Reynoldszahlen im Gaskanal sowie die Betriebsbedingungen bekannt sein. Je größer die Stöchiometrie des Reaktionsgases ist und je größer die Reynoldszahlen in den Gaskanälen sind, desto mehr Gas darf zwischen den Kanälen permieren.

Größere Reynoldszahlen in den Gaskanälen werden durch einen kleineren hydraulische Durchmesser der Gaskanäle erreicht. Die Stegbreite der Flussfeldstruktur hat bei kleinen lokalen Druckdifferenzen zwischen den Kanälen und der Kombination mit einer Gasdiffusionslage mit geringer in-plane Permeabilität auf die erforderliche through-plane Permeabilität. Mit steigender lokaler Druckdifferenz und steigender in-plane Permeabilität ist der Einfluss der Stegbreite auf die through-plane Permeabilität nahezu nicht mehr vorhanden.

Bei sehr großen lokalen Druckdifferenzen von 100 mbar ist sowohl die Stegbreite der Flussfeldstruktur, die in-plane Permeabilität der GDL als auch die Reynoldszahl im Gaskanal ohne Einfluss und eine konstante through-plane Permeabilität von  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  für den stabilen Betrieb erforderlich.



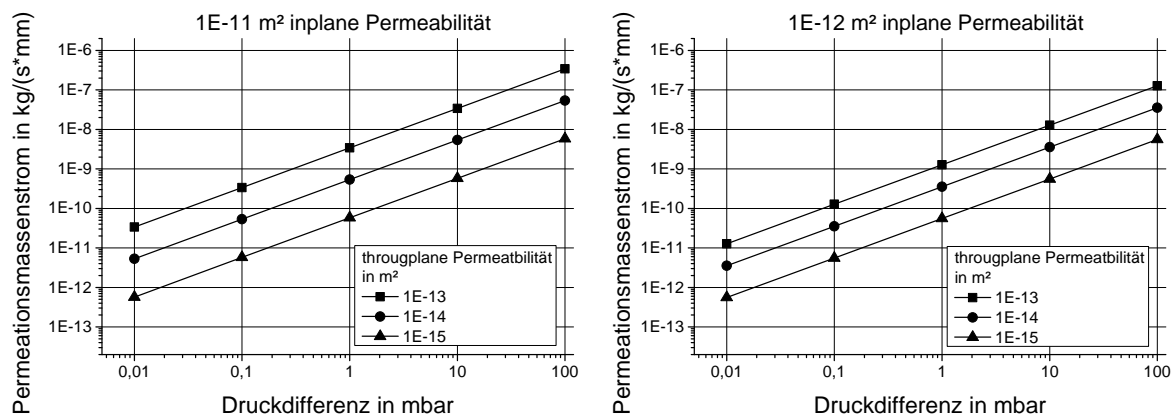
**Abbildung 3.26:** Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm², 1,0 A/cm² und 0,3 A/cm² und 80 % Wasserstoff



## Kathode

Auf der Kathode von automotiven PEM-Brennstoffzellen wird verdichtete Luft als Reaktionsgas verwendet. Zu dem für die elektrochemische Reaktion benötigten Sauerstoff kommen zusätzlich noch 3,76 weitere Anteile Stickstoff, die die Änderung der Reynoldszahl entlang des Kathodengaskanals aufgrund der elektrochemischen Reaktion minimieren. Unter der vereinfachenden Annahme, dass das gesamte Produktwasser auf der Kathode entsteht und es keinen Austausch zwischen Anode und Kathode gibt, bleibt die Reynoldszahl entlang des Kathodengaskanals nahezu konstant.

Der Permeationsmassenstrom von Luft zwischen zwei Kanälen pro Millimeter Kanallänge in Abhängigkeit der Druckdifferenz und GDL-Permeabilitäten für 0,5 mm Stegbreite ist in Abbildung 3.27 dargestellt. Der Permeationsmassenstrom steigt mit steigender Druckdifferenz und zunehmender GDL-Permeabilität. Mit sinkender through-plane Permeabilität sinkt der Einfluss der in-plane Permeabilität des GDL-Substrats. Bei einer through-plane Permeabilität von  $1 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  hat die in-plane Permeabilität keinen Einfluss auf den Permeationsmassenstrom.



**Abbildung 3.27:** Luft-Permeationsmassenstrom in Abhängigkeit der GDL-Permeabilität und der Druckdifferenz bei 0,5 mm Stegbreite pro Millimeter Kanallänge

Im folgenden Beispiel wird das Stabilitätskriterium für sicheren Wasseraustrag von Jenssen et al. [86] auf die Kathode übertragen und am Beispiel der Kathodenkanäle aus Kapitel 4.2 mögliche Kombinationen aus GDL-Permeabilitäten, Stegbreite und Druckdifferenz bestimmt, die für die beispielhaften Stromdichte von  $2,0 \text{ A/cm}^2$ ,  $1,0 \text{ A/cm}^2$  und  $0,3 \text{ A/cm}^2$  einen stabilen Betrieb gewährleisten. Der Querpermeationsmassenstrom, der aufgrund von lokalen Druckdifferenzen zwischen benachbarten Kanälen auftritt, darf den stabilen Betrieb der Brennstoffzelle nicht gefährden. Dazu muss sowohl das Stabilitätskriterium von Jenssen et al. einhalten werden als auch die Versorgung mit einer Mindestmenge an Reaktionsgas sichergestellt sein. In den Kathodenkanälen aus Kapitel 4.2 erfolgt die Limitierung der Querpermeation durch die Erhaltung der Mindestmenge an Reaktionsgas. Bei den Beispielstromdichten von  $2,0 \text{ A/cm}^2$ ,  $1,0 \text{ A/cm}^2$  und  $0,3 \text{ A/cm}^2$  werden bei der Mindeststöchiometrie von 1,0 minimale Reynoldszahlen im Gaskanal von 204, 102 und 31 erzeugt. In Abbildung 3.28 sind die Kombinationen aus GDL-Permeabilitäten und Stegbreiten dargestellt, die für die Druckdifferenzen von 1, 10 und 100 mbar einen stabilen Betrieb ermöglichen.

Bei der Druckdifferenz von 1,0 mbar steigt mit zunehmender Stegbreite und sinkender in-plane Permeabilität die nötige through-plane Permeabilität der GDL. Mit steigender Druckdifferenz

wird der Einfluss der Stegbreite und in-plane Permeabilität immer geringer. Bei der Druckdifferenz von 100 mbar zwischen den Kanälen hat sowohl die Stegbreite, die in-plane Permeabilität als auch der Permeationsmassenstrom durch die Stromdichte keinen Einfluss mehr und es ist eine through-plane Permeabilität von ca.  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  erforderlich.

### **Design Richtline Querpermeation Kathode**

Für die Auslegung der Stegbreite der Kathodenflussfeldstruktur müssen wie auf der Anode die die zu erwartenden lokalen Druckdifferenzen zwischen benachbarten Kanälen, die Reynoldszahlen im Gaskanal sowie die Betriebsbedingungen bekannt sein. Aufgrund der größeren Reynoldszahlen in den Kathodengaskanälen erfolgt auch bei geringen Stromdichten die Limitierung des stabilen Betriebs durch die Einhaltung der Mindeststöchiometrie von 1,0. Eine Erhöhung der Stöchiometrie senkt die Anforderungen an Stegbreite und Permeabilität zur Einhaltung des stabilen Betriebs.

Entscheidend für die Auslegung sind aber die zu erwartenden Druckdifferenzen. Bei geringen Druckdifferenzen zwischen den Gaskanälen erfordert eine Verbreiterung des Stegs die Verwendung von größeren in- und through-plane Permeabilitäten der GDL. Mit dem Auftreten von flüssigem Wasser und den dadurch steigenden lokalen Druckdifferenzen zwischen den Kanälen sinkt der Einfluss der Stegbreite und der in-plane Permeabilität der GDL. Für einen stabilen Betrieb der Brennstoffzelle auch bei lokalen großen Druckdifferenzen von 100 mbar durch Flüssigwasser erfordert der stabile Betrieb der Brennstoffzelle eine through-plane Permeabilität der GDL von ca.  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ .

Dieser Grenzwert von  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  für die through-plane Permeabilität der GDL ist unter den betrachteten Randbedingungen ausreichend, um einen stabilen Betrieb zu gewährleisten.

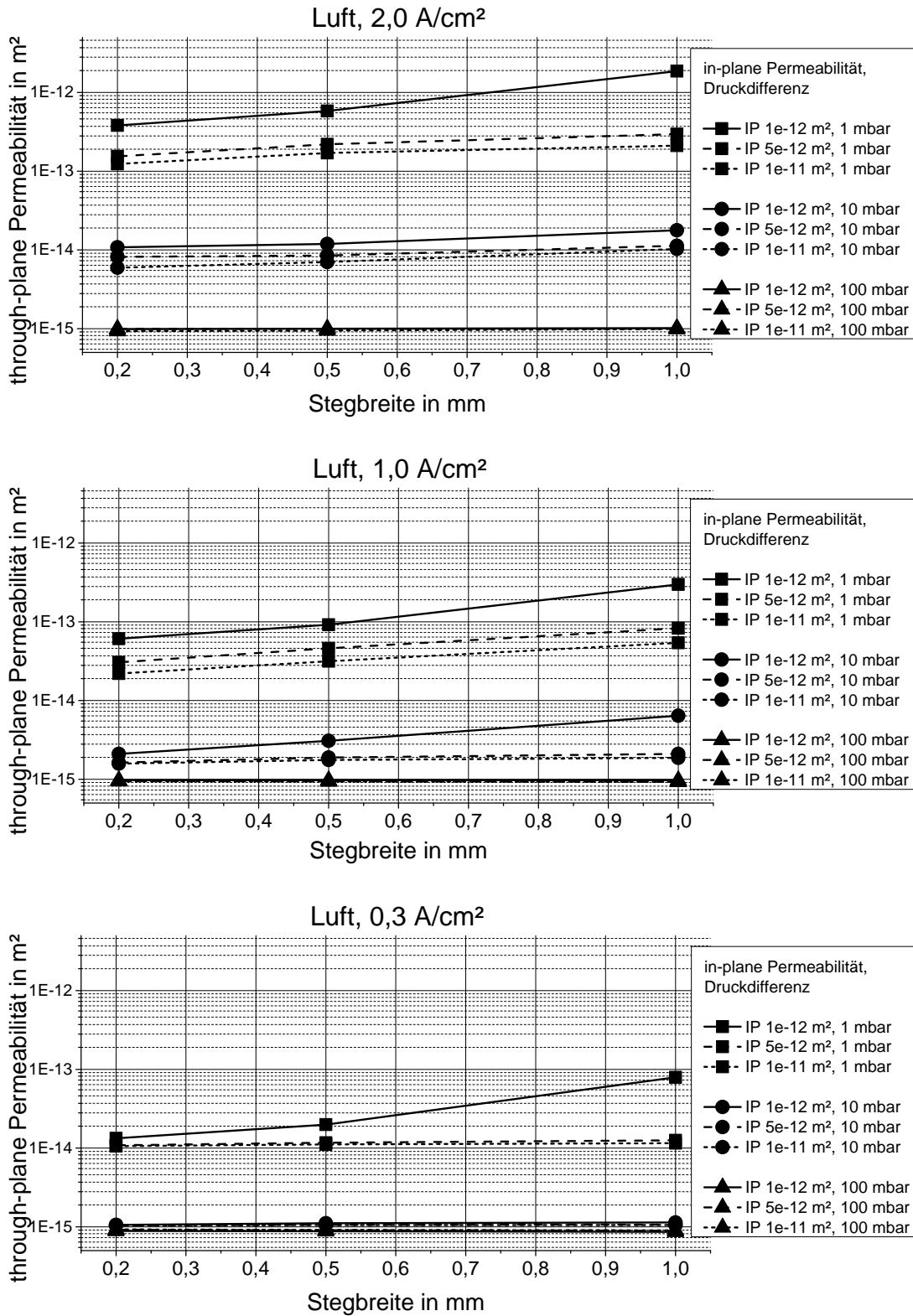


Abbildung 3.28: Einfluss der Stegbreite, GDL-Permeabilität und Druckdifferenz auf stabilen Betrieb bei 2,0 A/cm², 1,0 A/cm² und 0,3 A/cm² und Luft

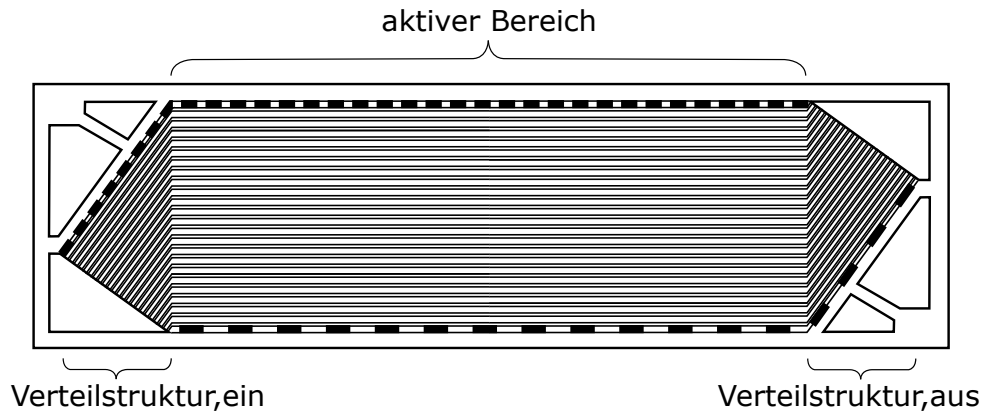
### 3.3 Auslegung der Medienverteilstuktur

Die Reaktionsgase und das Kühlmedium werden über die Verteilstuktur der Bipolarplatte von den Hauptkanälen in den aktiven Bereich geführt. Dabei muss in den parallelen Kanälen des aktiven Bereichs eine möglichst homogene Verteilung des jeweiligen Mediums herrschen, um die geforderten Strömungsbedingungen einzuhalten und Schädigungen der Brennstoffzelle zu vermeiden [86],[87],[88],[89],[90]. Neben der homogenen Verteilung der Medien ist auch der entstehende Druckverlust in den Verteilstrukturkanälen von Bedeutung. Der Druckverlust durch die Verteilstrukturkanäle sollte möglichst gering sein, um den Systemwirkungsgrad durch zusätzliche Verdichter- oder Gebläseleistung nicht zu reduzieren und um die Gleichverteilung über die parallelen Kanäle im aktiven Bereich zu verbessern. Durch das Design von Verteilstrukturkanälen mit großen hydraulischen Durchmessern lässt sich der Druckverlust gering halten und die Gleichverteilung verbessern. Gleichzeitig ist aber der Platz für die Verteilstruktur auf der Bipolarplatte begrenzt, um die Anforderungen an den Fahrzeugbaureaum und die Leistungsdichte zu erfüllen, so dass ein jeweiliges Optimum aus Platzbedarf und Gleichverteilung bzw. Druckverlust gefunden werden muss.

#### 3.3.1 Minimalverteilung

Bei der gerichteten Verteilstuktur erfolgt die Versorgung des aktiven Bereichs über gerichtete Kanäle von und zu den Hauptkanälen der Bipolarplatte. Dabei können ein oder mehrere Kanäle des aktiven Bereichs durch einen Kanal der Verteilstuktur versorgt werden. Die Kanäle der Verteilstruktur für die Reaktionsgase werden, wie im aktiven Bereich, durch die Ausprägungen in der Bipolarplatte und die MEA gebildet. Durch die Anordnung der Hauptkanäle in der Bipolarplatte (vergleiche Abbildung 3.29) haben mindestens zwei der drei Medienverteilstrukturen eine Dreiecksform. Durch die dreieckige Form der Verteilstruktur sind die Verteilstrukturkanäle innerhalb einer Seite (Zu- oder Abführung) unterschiedlich lang. Durch die punktsymmetrische Anordnung der Ein- und Auslasshauptkanäle und damit der Verteilstrukturen wird erreicht, dass die Gesamtkanallängen, die Summe aus Ein- und Auslassverteilstukturkanallänge und Länge des Kanals im aktiven Bereich, für alle Kanäle der Bipolarplatte gleich ist.

Bei einer Durchströmung dieser Kanalstrukturen ohne Änderung der Gaseigenschaften und Volumenströme kommt es zur homogenen Verteilung über alle parallelen Kanäle. Durch die elektrochemischen Reaktionen kommt es jedoch zu einer Volumenstromänderung im aktiven Bereich bei gleichzeitiger Änderung der Gemischeigenschaften durch eine Temperatur- und Druckänderung. Damit sind zwar die Gesamtlängen für alle Kanäle der Bipolarplatte gleich, aber die unterschiedlichen Gaseigenschaften zwischen Einlass- und Auslassverteilstuktur bewirken eine Ungleichverteilung. In Abbildung 3.29 ist der Gesamtkanal mit dem längsten Verteilstruktureinlasskanal als kurzunterbrochene Linie dargestellt und der Gesamtkanal mit dem längsten Verteilstruktureauslasskanal als langunterbrochene Linie dargestellt.



**Abbildung 3.29:** Gesamtkanallängen der Bipolarplatte

Die Minimalverteilung  $H_{\min}$  der Medien in den Kanälen des aktiven Bereichs wird definiert als das Verhältnis des niedrigsten Volumenstroms  $\dot{Q}_{\min}$  in einem Kanal und des mittleren Volumenstroms  $\dot{Q}_{\text{mittel}}$  aller Kanäle

$$H_{\min} = \frac{\dot{Q}_{\min}}{\dot{Q}_{\text{mittel}}}, \quad (3.14)$$

wobei der mittlere Volumenstrom  $\dot{Q}_{\text{mittel}}$  aus dem Gesamtvolumenstrom des aktiven Bereichs  $\dot{Q}_{\text{gesamt}}$  und der Anzahl der Kanäle  $n$  im aktiven Bereich berechnet wird.

$$\dot{Q}_{\text{mittel}} = \frac{\dot{Q}_{\text{gesamt}}}{n_{\text{Kanäle}}} \quad (3.15)$$

Die Minimalverteilung  $H_{\min}$  wird als Bewertungskriterium gewählt, weil die Unterversorgung des aktiven Bereichs mit Reaktionsgasen oder Kühlmittel einen negativen Einfluss auf Leistungsfähigkeit, Lebensdauer und Betriebsstabilität der Brennstoffzelle hat [86],[89],[90].

Der Druckverlust in den Kanälen der Bipolarplatte kann mit der empirischen Darcy-Weisbach-Gleichung

$$p_2 - p_1 = \Delta p = \lambda \cdot \frac{l}{d_h} \cdot \frac{\rho}{2} \cdot \left( \frac{\dot{Q}}{A} \right)^2 \quad (3.16)$$

berechnet werden [91]. Dabei beschreibt  $\Delta p$  den Druckverlust des Kanals zwischen Punkt 1 und Punkt 2 mit der Länge  $l$  zwischen diesen Punkten, dem hydraulischen Durchmesser  $d_h$  des Kanals, der Rohrreibungszahl  $\lambda$ , der Dichte  $\rho$  sowie des Volumenstrom  $\dot{Q}$  des Mediums und der Querschnittsfläche  $A$  des Kanals.

In einem laminar durchströmten Rohr ergibt sich nach dem Gesetz von Hagen-Poiseuille  $\lambda = \frac{64}{Re}$  [91]. Der Volumenstrom in dem durchströmten Rohr ist damit proportional zum entstehenden Druckverlust.

$$\Delta p_g = \frac{64}{Re} \cdot \frac{l}{d_h} \cdot \frac{\rho}{2} \cdot \left( \frac{\dot{Q}}{A} \right)^2 = \frac{64 \cdot \eta}{\rho \cdot \frac{\dot{Q}}{A} \cdot d_h} \cdot \frac{l}{d_h} \cdot \frac{\rho}{2} \cdot \left( \frac{\dot{Q}}{A} \right)^2 \quad (3.17)$$

$$\Delta p_g \propto \frac{\eta \cdot l}{d_h^2} \cdot \frac{\dot{Q}}{A} \propto \frac{\eta \cdot l}{d_h^2} \cdot \frac{\dot{m}}{\rho \cdot A} \quad (3.18)$$

Der Gesamtkanaldruckverlust jedes Kanals innerhalb der Bipolarplatte setzt sich aus den Druckverlusten des Einlassverteilstukturkanals, des Kanals im aktiven Bereich und des Auslassverteilstukturkanals zusammen.

$$\Delta p_{\text{gesamt}} = \Delta p_{\text{Verteilstruktur,ein}} + \Delta p_{\text{aktiverBereich}} + \Delta p_{\text{Verteilstruktur,aus}} \quad (3.19)$$

Die Minimalverteilung und der damit unterschiedliche Volumenstrom zwischen den Kanälen der Bipolarplatte erzeugen in jedem Gesamtkanal den gleichen Druckverlust. Dies ist durch die Anbindung aller Kanäle an die Ein- und AuslassHauptkanäle und den dort jeweils gleichen Absolutdruck vorgegeben.

Unter der Annahme, dass jeder Kanal mit dem Sollmassenstrom oder mittlerem Massenstrom durchströmt wird, ergeben sich für die verschiedenen Gesamtkanäle unterschiedliche Druckverluste. Das Verhältnis des maximalen Druckverlusts zum mittleren Druckverlust entspricht dabei dem Verhältnis des minimalen Volumenstroms zum mittleren Volumenstrom aller Gesamtkanäle (vgl. Gleichung 3.18). Je höher der Druckverlust in der idealisierten Annahme ist, desto geringer wird der Volumenstrom des Kanals in der realen Durchströmung, wenn sich ein konstanter Druckverlust aller Gesamtkanäle einstellt. Analog zu Gleichung 3.14 bezeichnet  $\Delta p_{\text{min}}$  den Gesamtkanal mit dem maximalen Druckverlust bei idealisierter Durchströmung und  $\Delta p_{\text{mittel}}$  den mittleren Druckverlust. Durch die punktsymmetrische Anordnung der Verteilstrukturen kann der Wert der Minimalverteilung auch durch den minimalen Druckverlust bestimmt werden.

$$H_{\text{min}} = \frac{\dot{Q}_{\text{min}}}{\dot{Q}_{\text{mittel}}} = \frac{\Delta p_{\text{min}}}{\Delta p_{\text{mittel}}} \quad (3.20)$$

Die Gesamtkanäle mit dem maximalen und minimalen Druckverlust bzw. Volumenstrom sind die mit den längsten Ein- bzw. Auslasskanälen, da bei diesem Paar der Unterschied durch die Änderungen der Fluideigenschaften am größten ist (vgl. Abb. 3.29). Als Vereinfachung wird angenommen, dass der kürzeste Ein- bzw. Auslasskanal so kurz ist, dass der dort entstehende Druckverlust vernachlässigbar klein ist. Gleichung 3.19 vereinfacht sich mit der Annahme für den minimalen und maximalen Gesamtdruckverlust zu

$$\begin{aligned} \Delta p_{\text{max}} &= \Delta p_{\text{Verteilstruktur,ein}} + \Delta p_{\text{aktiverBereich}} + 0 \\ \Delta p_{\text{min}} &= 0 + \Delta p_{\text{aktiverBereich}} + \Delta p_{\text{Verteilstruktur,aus}} \end{aligned} \quad (3.21)$$

Das Druckverlustverhältnis zwischen längstem Einlass- und Auslassverteilsturkanal lässt sich aufgrund der punktsymmetrischen Anordnung und damit gleichen Kanallänge durch eine Modifikation der Darcy-Weißbach-Gleichung beschreiben (vgl. Gleichung 3.16).

$$\Delta p_{\text{Verteilstruktur,ein}} = \Delta p_{\text{Verteilstruktur,aus}} \cdot \frac{\rho_{\text{ein}}}{\rho_{\text{aus}}} \cdot \frac{\eta_{\text{aus}}}{\eta_{\text{ein}}} \cdot \frac{\dot{m}_{\text{aus}}}{\dot{m}_{\text{ein}}} \quad (3.22)$$

Die Änderung der Dichte  $\rho$ , der dynamischen Viskosität  $\eta$  und des Massenstroms  $\dot{m}$  aufgrund von Temperatur und Druckänderungen zwischen Ein- und Auslass beschreiben das Verhältnis der Druckverluste in den Verteilstrukturen.

Das in der PEM-Brennstoffzelle durch die elektrochemische Reaktion entstehende Produktwasser wird im Idealfall vom Reaktionsgasstrom aufgenommen und als Wasserdampf aus der Zelle ausgetragen. In Abhängigkeit der elektrischen Stromdichte und den Betriebsbedingungen kann die Sättigung des Gasmassenstroms erreicht werden und weiteres Produktwasser kondensiert in den Kanälen der Brennstoffzelle. Die Zweiphasenströmung aus Reaktionsgas und Flüssigwasser erzeugt einen zusätzlichen Druckverlust in den Gaskanälen [92]. Zur Berechnung des Zweiphasendruckverlusts beim Auftreten von flüssigem Wasser wird das von E. J. See et al. [93] vorgestellte Modell in vereinfachter Form verwendet. Das Modell basiert auf der Lockhart-Martinelli Korrektur des Einphasendruckverlusts [94] und dem Chisholm Parameter [95]. Der Zweiphasendruckverlust  $\Delta p_{2P}$  wird durch eine Korrektur  $\Phi_g$  des einphasigen, gasförmigen Druckverlusts  $\Delta p_g$  (vgl. Gleichung 3.17) bestimmt.

$$\Delta p_{2P} = \Delta p_g \cdot \Phi_g \quad (3.23)$$

$$\Delta \Phi_g^2 = 1 + 5 \cdot X + X^2 \quad (3.24)$$

$$X = \left( \frac{\mu_l}{\mu_g} \right)^{0,1} \cdot \left( \frac{\rho_g}{\rho_l} \right)^{0,5} \cdot \left( \frac{1-x}{x} \right)^{0,9} \quad (3.25)$$

$$x = \frac{m_{\text{Gas,tr}} + m_{\text{Wasser,g}}}{m_{\text{Gas,tr}} + m_{\text{Wasser}}} \quad (3.26)$$

### 3.3.2 Kathodenverteilstuktur

In der Kathodenhalbzelle wird befeuchtete Luft als Medium verwendet. Diese wird in einem bestimmten Stöchiometrieverhältnis  $\lambda$  zugeführt. Im aktiven Bereich reagiert ( $\lambda = 1$ ) Sauerstoff mit Wasserstoff zu Wasser. In den Auslassverteilsturkanälen hat sich somit der Sauerstoff-

und Wasserdampfmassenstrom verändert. Der Stickstoffmassenstrom bleibt konstant. Damit ergibt sich Gleichung 3.22 für die Kathodenverteilstrukturen zu

$$\begin{aligned} \Delta p_{VS,ein} &= \Delta p_{VS,aus} \cdot \frac{\rho_{ein}}{\rho_{aus}} \cdot \frac{\eta_{aus}}{\eta_{ein}} \cdot \frac{\dot{m}_{N_2,aus} + \dot{m}_{O_2,aus} + \dot{m}_{H_2O,aus}}{\dot{m}_{N_2,ein} + \dot{m}_{O_2,ein} + \dot{m}_{H_2O,ein}} \\ &= \Delta p_{VS,aus} \cdot \frac{\rho_{ein}}{\rho_{aus}} \cdot \frac{\eta_{aus}}{\eta_{ein}} \cdot \frac{\frac{I \cdot M_{N_2} \cdot \lambda \cdot \frac{21}{79}}{4 \cdot F} + \frac{I \cdot M_{O_2} \cdot \lambda - 1}{4 \cdot F} + \frac{I \cdot M_{O_2} \cdot \lambda}{4 \cdot F \cdot 0,21} \cdot \frac{\varphi_{ein} \cdot p_{sat,ein}}{p_{ein} - \varphi_{ein} \cdot p_{sat,ein}}}{\frac{I \cdot M_{N_2} \cdot \lambda \cdot \frac{21}{79}}{4 \cdot F} + \frac{I \cdot M_{O_2} \cdot \lambda - 1}{4 \cdot F} + \frac{I \cdot M_{O_2} \cdot \lambda}{4 \cdot F \cdot 0,21} \cdot \frac{\varphi_{aus} \cdot p_{sat,aus}}{p_{aus} - \varphi_{aus} \cdot p_{sat,aus}}} \end{aligned} \quad (3.27)$$

$$H_{min} = \frac{\Delta p_{VS,ein} + \Delta p_{aktiverBereich}}{(\Delta p_{VS,ein} + \Delta p_{aktiverBereich}) + (\Delta p_{aktiverBereich} + \Delta p_{VS,aus})} \quad (3.28)$$

In den folgenden theoretischen Betrachtungen wird davon ausgegangen, dass das gesamte Produktwasser auf der Kathode entsteht und es keinen Austausch von Wasser zwischen Anode und Kathode gibt.

Die Minimalverteilung durch die Verteilstuktur wird nach Gleichung 3.27 aus den Änderungen der Verhältnisse von Dichte, Viskosität und Massenstrom verursacht. Für die ideale Gleichverteilung muss das Produkt dieser Verhältnisse 1 ergeben. In Abbildung 3.30 ist die Minimalverteilung  $H_{min}$  über dem Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur zum aktiven Bereich für verschiedene Betriebszustände dargestellt. Betrachtet wird eine vergleichbare Bipolarplatte aus Kapitel 4.2 mit einer Stromstärke von 752 A (2,0 A/cm<sup>2</sup>) bei einer Kanallänge von 0,23 m im aktiven Bereich. Die Einlasstemperatur der Luft beträgt 70°C bei 60 % relativer Feuchte und es entsteht ein Temperaturanstieg von 12 K im aktiven Bereich.

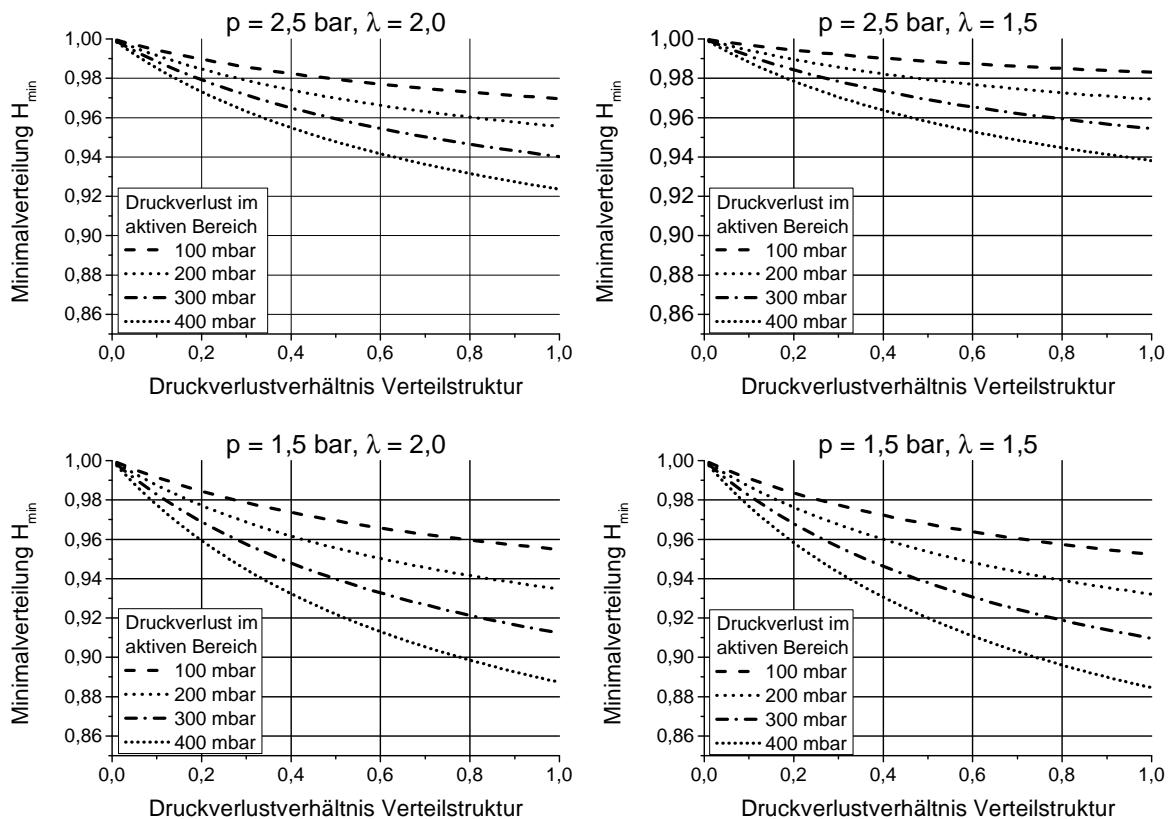
Das Druckverlustverhältnis Verteilstuktur  $DV_{VS}$  beschreibt das Verhältnis des Druckverlusts der Einlassverteilstuktur zum Druckverlust im aktiven Bereich.

$$\text{Druckverlustverhältnis Verteilstuktur (DV}_{VS}) = \frac{\Delta p_{Verteilstruktur,ein}}{\Delta p_{aktiverBereich}} = \frac{\Delta p_{VS}}{\Delta p_{AB}}$$

In den folgenden Fällen wird sowohl das Druckverlustverhältnis der Verteilstuktur zwischen 0 und 1 variiert, als auch der Einfluss der Betriebsbedingungen und des Druckverlusts im aktiven Bereich auf die Minimalverteilung untersucht.

Für alle vier betrachteten Fälle in Abbildung 3.30 wirkt sich ein erhöhter Druckverlust im aktiven Bereich negativ auf die Gleichverteilung aus. Je höher der Druckverlust im aktiven Bereich ist, desto größer sind die daraus resultierenden Dichteunterschiede zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur und damit die Ungleichverteilung. Auch ein steigendes Druckverlustsverhältnis

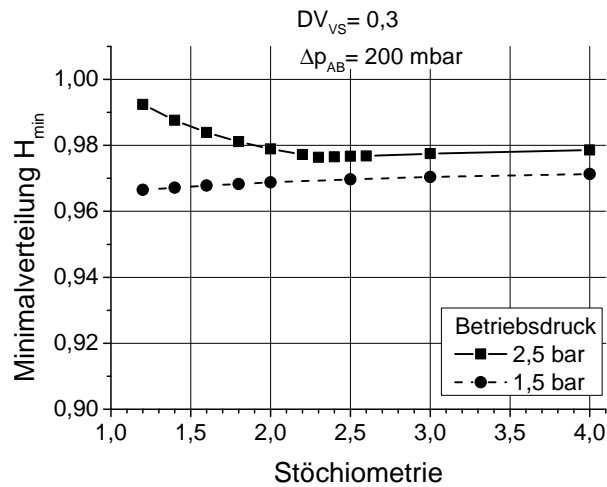




**Abbildung 3.30:** Minimalverteilung der Luft in Abhängigkeit des Verteilstrukturdruckverlusts und der Betriebsbedingungen

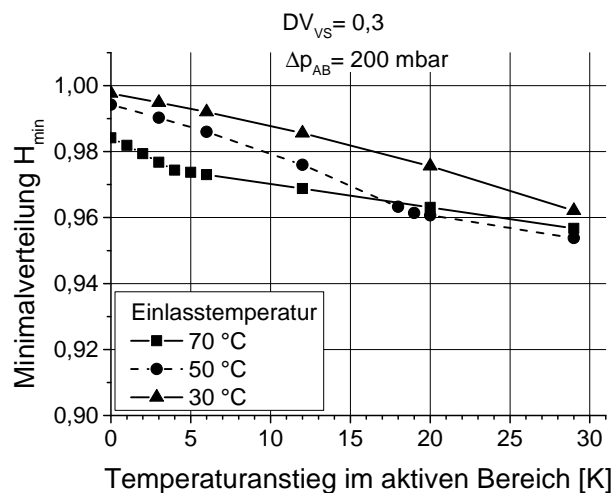
der Einlassverteilstuktur wirkt sich negativ auf die Minimalverteilung aus, weil der Anteil des Druckunterschieds am Gesamtdruckverlust steigt. Einen weiteren großen Einfluss auf die Gleichverteilung hat das Auftreten von flüssigem Wasser. Je früher das Gas entlang des aktiven Bereichs den Sattampfunkt erreicht, desto geringer sind die Dichteunterschiede der Gasphase zwischen Ein- und Auslass des aktiven Bereichs, respektive der Ein- und Auslassverteilstrukturen. Der Druckverlustunterschied zwischen den Verteilstrukturen wird geringer. Die Korrektur des 2-phasigen Druckverlusts wiegt diesen Effekt nicht auf. Aus diesem Grund wirkt sich in den in Abbildung 3.30 gezeigten Beispielen eine Anhebung des Betriebsdruck positiv auf die Minimalverteilung aus. Eine Erhöhung der Stöchiometrie wirkt sich bei einem Betriebsdruck von 1,5 bar wie zu erwarten positiv auf die Gleichverteilung aus, da mit steigender Stöchiometrie die Unterschiede zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur aufgrund der elektrochemischen Reaktion geringer werden. Bei einem Betriebsdruck von 2,5 bar entsteht im Kanal Flüssigwasser und eine Erhöhung der Stöchiometrie verschiebt den Punkt der Sättigung zum Kanalauslass im aktiven Bereich. Die Minimalverteilung wird schlechter.

In Abbildung 3.31 ist der Einfluss der Stöchiometrie auf die Gleichverteilung für die Betriebsdrücke 1,5 und 2,5 bar dargestellt. Bei 1,5 bar entsteht kein flüssiges Wasser und die Gleichverteilung steigt wie zu erwarten mit der Erhöhung der Stöchiometrie. Bei einem Betriebsdruck von 2,5 bar und einer Stöchiometrie der Luft kleiner 2,2 entsteht Flüssigwasser im aktiven Bereich. Je geringer die Stöchiometrie ist, desto früher kommt es zum Erreichen der Gassättigung. Der Dichteunterschied des Reaktionsgases zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur wird



**Abbildung 3.31:** Minimalverteilung in Abhängigkeit der Stöchiometrie

geringer und die Gleichverteilung besser. Der Korrekturfaktor für den Druckverlust durch das entstehende Flüssigwasser wiegt diesen Effekt nicht auf. Ab einer Luftstöchiometrie größer 2,2 liegt kein Flüssigwasser mehr vor und eine weitere Erhöhung der Stöchiometrie verbessert die Minimalverteilung.

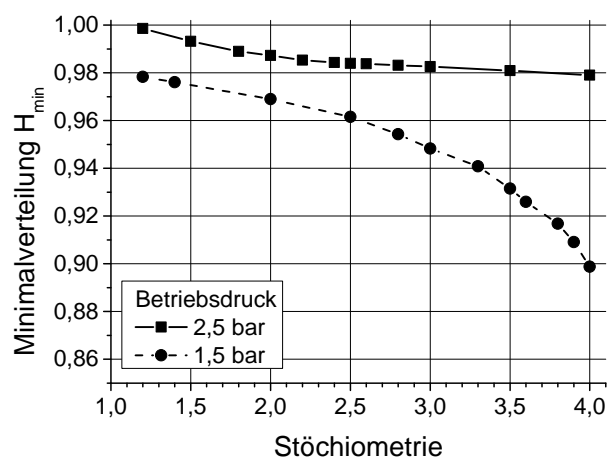


**Abbildung 3.32:** Minimalverteilung in Abhängigkeit der Betriebstemperatur und des Temperaturanstiegs im aktiven Bereich bei 1,5 bar Betriebsdruck und Stöchiometrie 2

Der Einfluss der Temperatur auf die Gleichverteilung ist gering. Wie in Abbildung 3.32 für einen Betriebsdruck von 1,5 bar und eine Luftstöchiometrie von 2 dargestellt, hat die absolute Temperatur einen geringen Einfluss. Ein Temperaturanstieg im aktiven Bereich wirkt sich negativ auf die Gleichverteilung durch die Änderung der Viskosität zwischen Ein- und Auslassverteilstruktur aus. Überlagert werden die in Abbildung 3.32 gezeigten Einflüsse der Temperatur und des Temperaturanstiegs teilweise durch den Flüssigwassereffekt.

Die Gleichverteilung der Luft in den aktiven Bereich der Kathode wird maßgeblich durch den Anteil des Druckverlusts der Verteilstuktur am Gesamtdruckverlust und durch den Druckverlust im aktiven Bereich bestimmt. Je größer die Druckverluste sind, desto schlechter ist die Gleichverteilung. Das Auftreten von Flüssigwasser hat, unter Verwendung des vorgestellten Lockhart-Martinelli Ansatzes, einen positiven Effekt auf die Minimalverteilung. Der Einfluss von Stöchiometrie, Betriebsdruck und Temperaturänderungen auf die Gleichverteilung sind deutlich geringer.

Für die optimale Auslegung der Verteilstuktur müssen neben dem möglichen Platzbedarf auf der Bipolarplatte (Druckverlust der Kanäle) auch die Betriebsbedingungen bekannt sein, um die Einflüsse auf die Ungleichverteilung so gering wie möglich zu halten.



**Abbildung 3.33:** Minimalverteilung bei einer Stöchiometrievariation für konstante Kanalstrukturen im aktiven Bereich

In Abbildung 3.33 ist der Einfluss der Stöchiometrieänderung auf eine Bipolarplatte dargestellt, deren Kanalgeometrien auf einen Druckverlust von 200 mbar im aktiven Bereich bei einer Luftstöchiometrie von 2 für einen Betriebsdruck von 2,5 bar ausgelegt wurde. Das Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur beträgt in diesem Fall 0,165. In der theoretischen Betrachtung wird für die fixe Kanalstruktur die Stöchiometrie und der Betriebsdruck variiert. Die in Abbildung 3.31 gezeigte Verbesserung der Minimalverteilung mit einem Anstieg der Stöchiometrie wird durch den zusätzlichen Druckverlust im aktiven Bereich aufgrund der Stöchiometrieerhöhung negiert, so dass es zu einer Abnahme der Gleichverteilung mit der Stöchiometrieerhöhung kommt. Dieser Effekt wird durch eine Absenkung des Betriebsdrucks noch verstärkt, so dass bei 1,5 bar Betriebsdruck und einer Stöchiometrie von 4 ein Druckverlust im aktiven Bereich von fast 1000 mbar erzeugt wird. Für ein Kanaldesign einer bestehenden Bipolarplatte kann die Minimalverteilung also nur durch eine Druckerhöhung oder Stöchiometrieabsenkung auf der Kathode verbessert werden.

### Designrichtlinie Kathodenverteilstuktur

Die Minimalverteilung des Kathodengases wird hauptsächlich durch entstehenden Druckverlust im aktiven Bereich und dem Anteil des Druckverlusts der Einlassverteilstuktur am Gesamtdruckverlust bestimmt. Je größer der Druckverlust im aktiven Bereich und je größer der Druckverlustanteil sind, desto geringer ist die Minimalverteilung. Die Verwendung der 2-Phasen

Druckverlustkorrektur von See et al. [93] hat das Auftreten von flüssigem Wasser einen starken positiven Effekt auf die Minimalverteilung. Eine Erhöhung der Stöchiometrie sowie eine Absenkung der Temperaturdifferenz im aktiven Bereich haben einen geringen positiven Effekt, wenn kein Flüssigwasser vorliegt. Ein höherer Betriebsdruck verbessert die Minimalverteilung.

Bei einer vorhandenen Verteilstruktur, deren Minimalverteilung verbessert werden soll, kann nur eine Absenkung der Stöchiometrie, eine Betriebsdruckerhöhung oder Temperaturdifferenzabsenkung einen positiven Effekt erzielen.

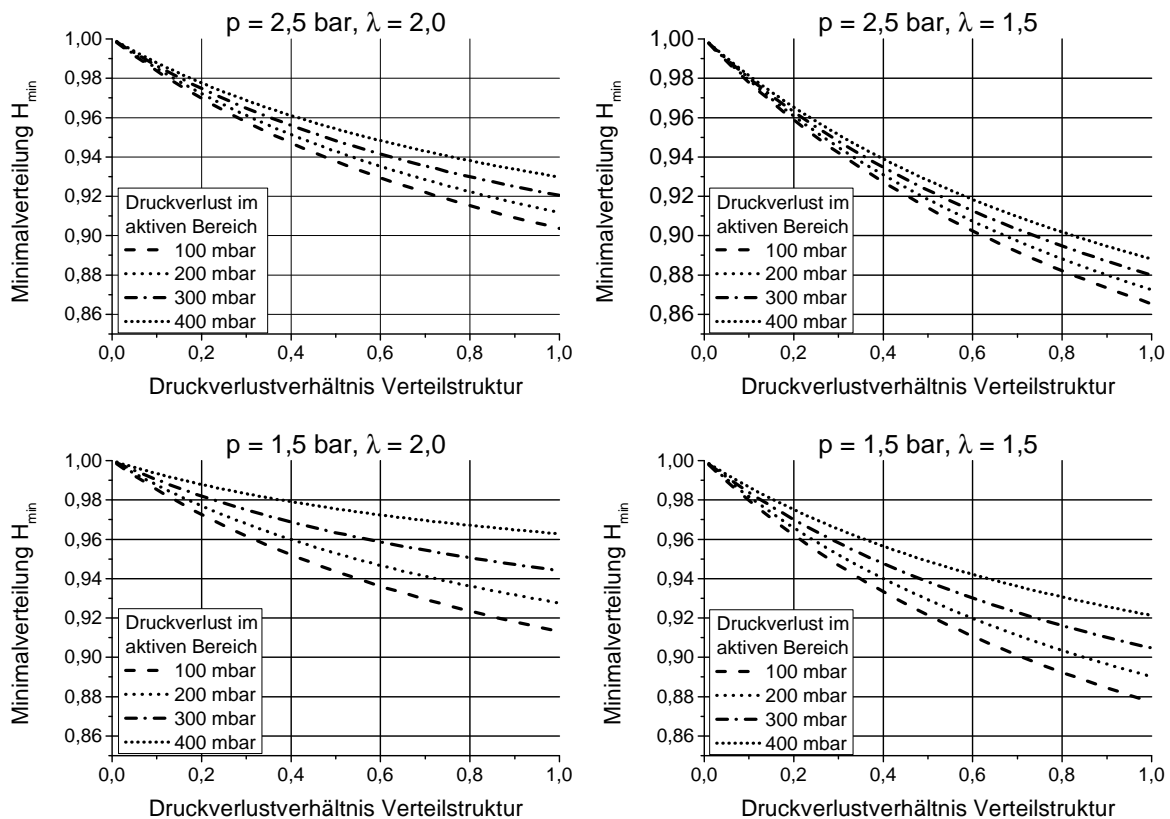
### 3.3.3 Anodenverteilstuktur

Die Anodenverteilstuktur wird von befeuchtetem Wasserstoffgas und Stickstoff im Gegenstrom zum Kühlmittel durchströmt. Wasserstoff wird am Katalysator mit dem Anteil  $\lambda = 1$  in Protonen und Elektronen gespalten. Stickstoff diffundiert durch die Membran von der Kathoden- auf die Anodenhalbzelle und reichert sich aufgrund der Rezirkulation des Gasgemisches an. Der Stickstoffanteil im Anodengas muss über eine geeignete Betriebsstrategie reguliert und auf die Anforderungen hinsichtlich Strömungsbedingungen angepasst werden. Die allgemeine Druckverlustberechnung mit Gleichung 3.22 ergibt sich für die Anodenverteilstuktur zu

$$\begin{aligned} \Delta p_{VS,ein} &= \Delta p_{VS,aus} \cdot \frac{\rho_{ein}}{\rho_{aus}} \cdot \frac{\eta_{aus}}{\eta_{ein}} \cdot \frac{\dot{m}_{N_2,aus} + \dot{m}_{H_2,aus} + \dot{m}_{H_2O,aus}}{\dot{m}_{N_2,ein} + \dot{m}_{H_2,ein} + \dot{m}_{H_2O,ein}} \\ &= \Delta p_{VS,aus} \cdot \frac{\rho_{ein}}{\rho_{aus}} \cdot \frac{\eta_{aus}}{\eta_{ein}} \\ &\quad \cdot \frac{\dot{m}_{N_2,aus} + \frac{I \cdot M_{H_2} \cdot \lambda - 1}{2 \cdot F} + \left( \dot{m}_{N_2,aus} + \frac{I \cdot M_{H_2} \cdot \lambda - 1}{2 \cdot F} \right) \cdot \frac{\varphi_{ein} \cdot p_{sat,ein}}{p_{ein} - \varphi_{ein} \cdot p_{sat,ein}}}{\dot{m}_{N_2,ein} + \frac{I \cdot M_{H_2} \cdot \lambda}{2 \cdot F} + \left( \dot{m}_{N_2,ein} + \frac{I \cdot M_{H_2} \cdot \lambda}{2 \cdot F} \right) \cdot \frac{\varphi_{aus} \cdot p_{sat,aus}}{p_{aus} - \varphi_{aus} \cdot p_{sat,aus}}} \end{aligned} \quad (3.29)$$

Wie in der Kathodenhalbzelle wird auch in der Anodenverteilstuktur die Gleichverteilung durch die Änderungen von Dichte, Viskosität und Massenstrom bestimmt. In Abbildung 3.34 ist der Einfluss des Druckverlustverhältnisses der Einlassverteilstuktur zum Druckverlust im aktiven Bereich auf die Gleichverteilung für verschiedene Betriebsparameter dargestellt. Das Wasserstoffgasgemischt strömt in den folgenden theoretischen Beispielen im Gegenstrom zum Kühlmittel und dem Kathodengas. Es entsteht ein Temperaturabstieg entlang des aktiven Bereichs in Strömungsrichtung der Anode. In den folgenden Beispielen, wenn nicht anders gekennzeichnet, hat das Anodengas eine Einlasstemperatur von 82 °C und eine Auslasstemperatur von 70 °C, der Anteil an Stickstoff im trockenen Anodengas beträgt 10 % und die relative Feuchte 60 % bei einer Luftstöchiometrie von 2.

Der Betrieb mit nahezu reinem Wasserstoffgas erzeugt hohe Massenstromunterschiede zwischen Ein- und Auslass des aktiven Bereichs. Anders als in den Kathodenkanälen wirkt der durch den Druckverlust entstehende Dichteunterschied zwischen Einlass- und Auslassverteilstuktur dem Massenstromunterschied entgegen. Die Minimalverteilung verbessert sich mit steigenden Druckverlust im aktiven Bereich. Ein Anstieg im Betriebsdruck von 1,5 bar auf 2,5 bar verringert

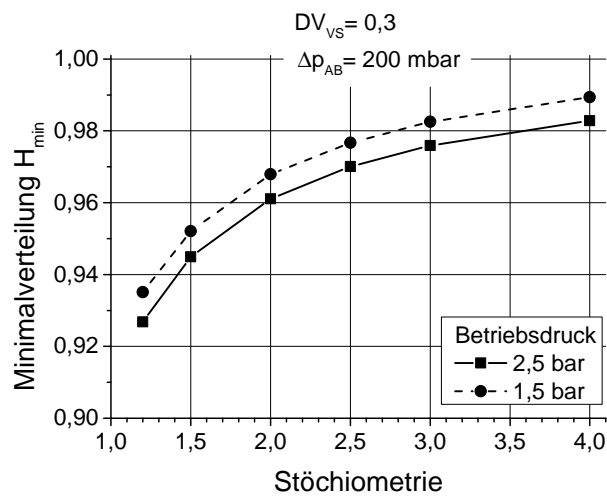


**Abbildung 3.34:** Einfluss des Druckverlustverhältnisses der Einlassverteilstuktur zum Druckverlust im aktiven Bereich auf die Gleichverteilung

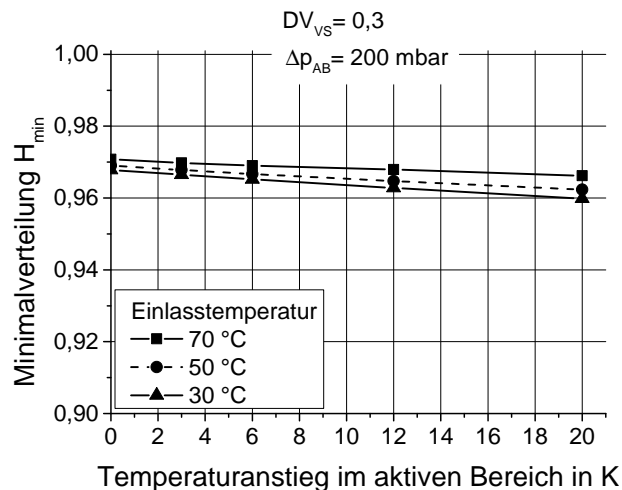
die Dichteunterschiede zwischen Ein- und Auslass und damit auch die Unterschiede in der Minimalverteilung bei erhöhtem Druckverlust. Durch den geringeren Dichteunterschied bei erhöhtem Betriebsdruck sinkt die Minimalverteilung, weil der Massenunterschied nicht mehr kompensiert wird. Eine Erhöhung der Stöchiometrie von 1,5 auf 2,0 verbessert die Minimalverteilung sowohl bei dem Betriebsdruck von 1,5 bar als auch 2,5 bar.

In Abbildung 3.35 ist die Minimalverteilung für die Betriebsdrücke von 1,5 bar und 2,5 bar bei einem Druckverlust von 200 mbar im aktiven Bereich und einem Druckverlustverhältnis der Verteilstuktur von 0,3 dargestellt. Mit steigender Stöchiometrie reduzieren sich die Unterschiede in Massenstrom, Dichte und Viskosität des Gases zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur, die Gleichverteilung verbessert sich. Dieser Effekt ist bei niedrigen Stöchiometrien  $\lambda < 2$  besonders stark ausgeprägt.

Die Auswirkungen der Betriebstemperatur und der Temperaturdifferenz im aktiven Bereich sind in Abbildung 3.36 für einen Betriebsdruck von 1,5 bar und eine Stöchiometrie von 2 dargestellt. Ein größerer Temperaturunterschied zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur senkt das Dichteverhältnis und verringert die Minimalverteilung. Je geringer die Betriebstemperatur ist, desto größer sind die Auswirkungen auf den Dichteunterschied. Generell sind die Temperatureinflüsse auf die Minimalverteilung aber gering.



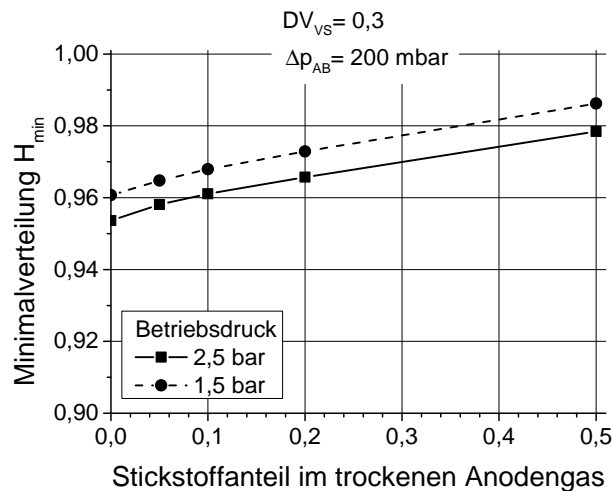
**Abbildung 3.35:** Minimalverteilung des Anodengases in Abhängigkeit der Stöchiometrie



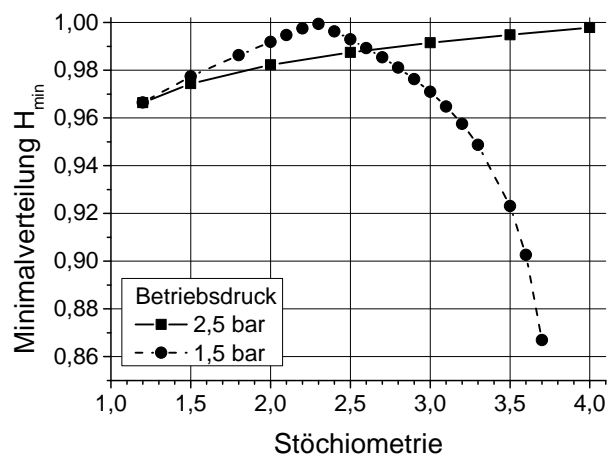
**Abbildung 3.36:** Einfluss der Temperatur auf die Minimalverteilung bei 1,5 bar Betriebsdruck und einer Stöchiometrie von 2

Eine Erhöhung des Stickstoffanteils im Anodengas verbessert die Minimalverteilung. Der Stickstoff wird im aktiven Bereich nicht umgewandelt und verringert so die Unterschiede zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur. In Abbildung 3.37 ist die Minimalverteilung für verschiedene Stickstoffanteile im trockenen Anodengas bei 200 mbar Druckverlust im aktiven Bereich und einem Verteilstukturdruckverlustverhältnis ( $DV_{VS}$ ) von 0,3 dargestellt.

In Abbildung 3.38 ist der Einfluss einer Stöchiometrie- und Betriebsdruckvariation auf die Minimalverteilung dargestellt. Die Kanalstrukturen der Bipolarplatte wurden auf einen Druckverlust von 200 mbar im aktiven Bereich bei 2,5 bar Betriebsdruck, einer Stöchiometrie von 2 und einer relativen Einlassfeuchte von 60 % und einem Stickstoffanteil im trockenen Anodengas von 10 % ausgelegt. In diesem Betriebspunkt beträgt das Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur 0,142.



**Abbildung 3.37:** Einfluss des Stickstoffanteils auf die Minimalverteilung

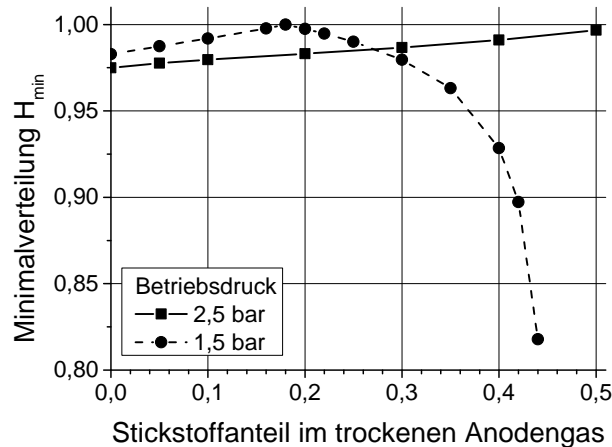


**Abbildung 3.38:** Minimalverteilung des Anodengases bei konstanter Kanalstruktur

Bei dem Betriebsdruck von 2,5 bar bewirkt eine Stöchiometrieerhöhung eine Verbesserung der Minimalverteilung. Die erhöhte Stöchiometrie verringert den Massenstromunterschied zwischen Ein- und Auslassverteilstruktur. Zusätzlich gleicht der Dichteunterschied aufgrund des Druckverlusts im aktiven Bereich den jeweils vorhandenen Massenstromunterschied aus. Die Minimalverteilung verbessert sich. Durch die Absenkung des Betriebsdrucks auf 1,5 bar ist die Gasdichte geringer und der entstehende Druckverlust höher. Die Minimalverteilung verbessert sich stärker als bei 2,5 bar bis zu einem Maximum von 1 bei einer Stöchiometrie von 2,3. Bei einer höheren Stöchiometrie verringert sich der Masseunterschied weiter und der Dichteunterschied steigt an. Das Optimum, bei dem sich Massen-, Viskositäts- und Dichteunterschied faktoriell (vgl. Gleichung 3.29) aufheben, ist überschritten und die Minimalverteilung fällt stark ab. Der Dichteunterschied überwiegt ab diesem Punkt alle anderen Faktoren.

In Abbildung 3.39 ist der Einfluss des Stickstoffanteils im Anodengas auf die Minimalverteilung bei konstanter Kanalstruktur der Bipolarplatte dargestellt. Die Kanalstrukturen der Bipolarplatte wurden auf einen Druckverlust von 200 mbar im aktiven Bereich bei 2,5 bar Be-

triebsdruck, einer Stöchiometrie von 2 und einer relativen Einlassfeuchte von 60 % und einem Stickstoffanteil im trockenen Anodengas von 10 % ausgelegt. In diesem Betriebspunkt beträgt das Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur 0,142.



**Abbildung 3.39:** Minimalverteilung des Anodengases bei konstanter Kanalstruktur und Variation des Stickstoffanteils

Bei dem Betriebsdruck von 2,5 bar steigt die Gleichverteilung leicht mit der Erhöhung des Stickstoffanteils im trockenen Anodengas. Der Masseunterschied wird mit steigendem Stickstoffanteil geringer und der Druckverlust im aktiven Bereich steigt. Der Unterschied zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur wird geringer. Bei einem Betriebsdruck von 1,5 bar ist aufgrund der geringeren Dichte der Druckverlustanstieg mit dem Anstieg des Stickstoffanteils deutlich größer. Die optimale Gleichverteilung wird bei einem Stickstoffanteil von 0,18 erreicht. Bei einer weiteren Erhöhung des Stickstoffanteils steigt der Dichteunterschied und der Massenunterschied nimmt ab. Die Minimalverteilung wird schlechter.

### Designrichtlinie Anodenverteilstuktur

Bei der Auslegung der Anodenverteilstuktur in einem begrenzten Bauraum auf der Bipolarplatte bewirken ein höherer Druckverlust, eine höhere Stöchiometrie sowie ein hoher Stickstoffanteil bewirken eine bessere Minimalverteilung. Einen geringeren, positiven Effekt haben die Absenkung des Betriebsdrucks sowie eine Reduzierung des Temperaturgradienten im aktiven Bereich. Um bei einer auf einen Betriebspunkt ausgelegten Verteilstuktur die Minimalverteilung zu erhöhen, muss für jeden Fall individuell geprüft werden, ob eine Erhöhung der Stöchiometrie und des Stickstoffanteils eine Verbesserung oder Verschlechterung bewirkt.

### 3.3.4 Kühlmittelverteilstuktur

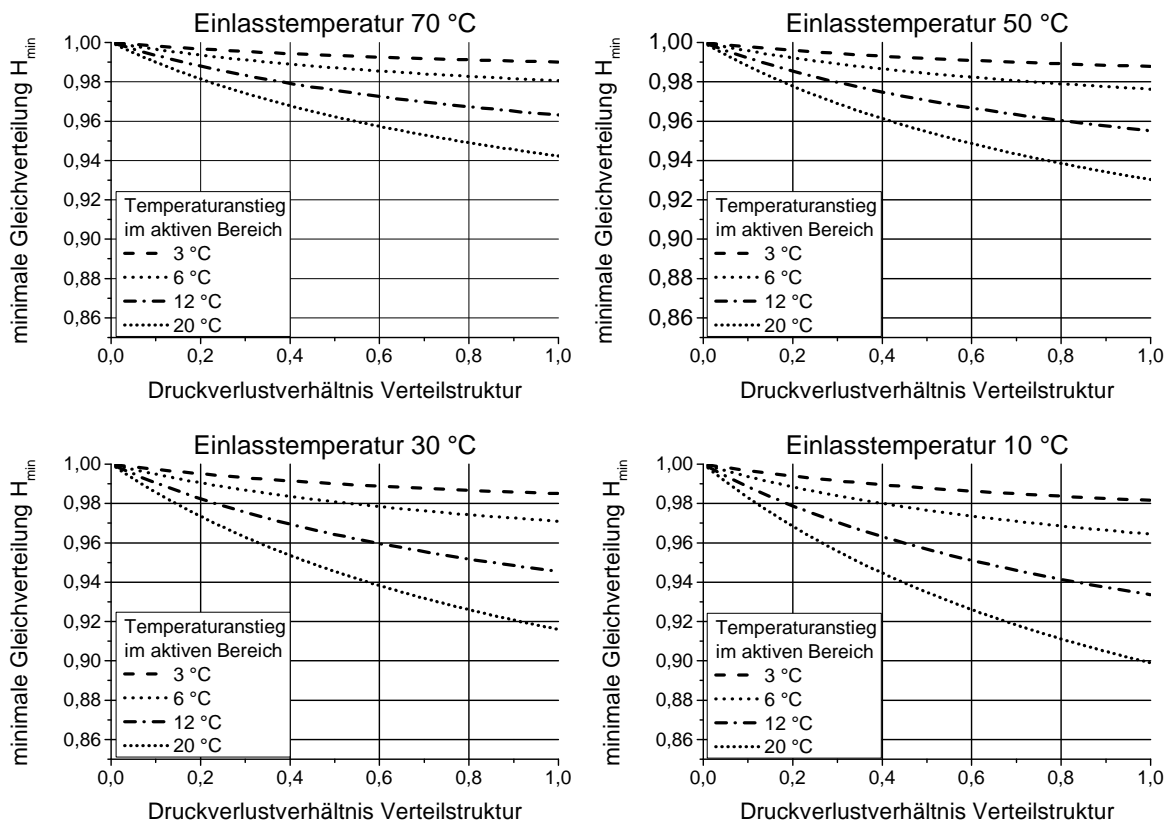
Zur Kühlung der Brennstoffzelle wird Wasser oder ein Wasser-Frostschutz-Gemisch verwendet, um auch bei Minusgraden die Brennstoffzelle starten und kühlen zu können. Entlang der Kanäle im aktiven Bereich entsteht in Abhängigkeit des Strom-Spannung-Punkts und des Kühlmittel-



massenstroms ein Temperaturanstieg im Kühlmedium. Zwischen Ein- und Auslassverteilstuktur besteht damit ein Unterschied in Dichte und Viskosität aber nicht im Massenstrom. Das Druckverlustverhältnis der Verteilstrukturen ergibt sich damit zu

$$\Delta p_{VS,ein} = \Delta p_{VS,aus} \cdot \frac{\rho_{ein}}{\rho_{aus}} \cdot \frac{\eta_{aus}}{\eta_{ein}}. \quad (3.30)$$

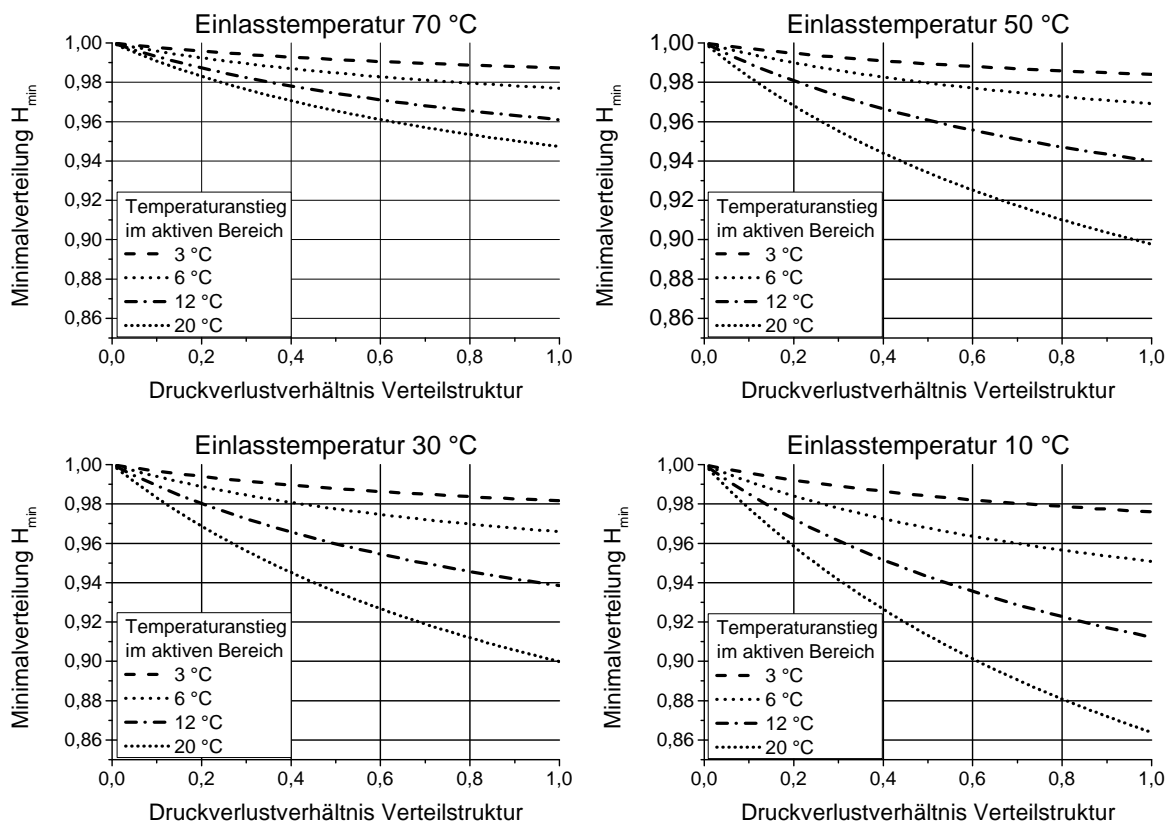
In Abbildung 3.40 ist der Einfluss der Einlasstemperatur des Kühlmittels sowie des Temperaturanstiegs im aktiven Bereich und des Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur auf die Minimalverteilung für Wasser als Kühlmedium dargestellt.



**Abbildung 3.40:** Einfluss der Temperatur auf die Minimalverteilung mit Wasser

Je größer die Einlasstemperatur und je geringer der Temperaturanstieg im aktiven Bereich und Druckverlustverhältnis der Einlassverteilstuktur sind, desto besser ist die Minimalverteilung des Wassers. Der Betriebsdruck und damit auch der Druckverlust des flüssigen Kühlmediums, in diesem Fall des Wassers, haben keinen Einfluss auf die Berechnung der Dichte und dynamischen Viskosität [96].

Um auch bei Temperaturen um den Gefrierpunkt von Wasser einen Kühlmittelstrom durch die Bipolarplatte pumpen zu können, wird dem Wasser ein Frostschutzmittel hinzugefügt. In den folgenden Abbildungen wird der Einfluss von Glysantin<sup>®</sup> FC G20-00/50 der Firma BASF auf die Minimalverteilung untersucht.



**Abbildung 3.41:** Einfluss der Temperatur und des Temperaturanstiegs für Glysantin®

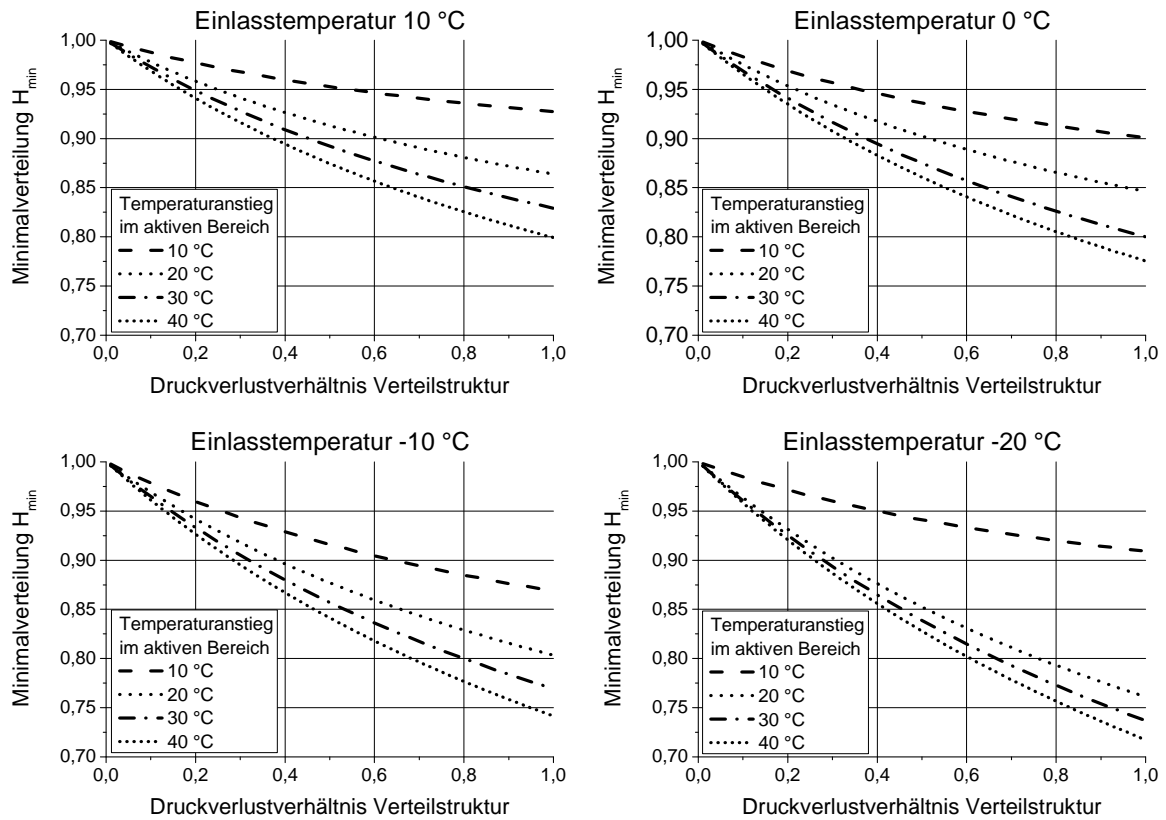
In Abbildung 3.41 ist der Einfluss der Einlasstemperatur und des Temperaturanstiegs auf die Minimalverteilung dargestellt. Mit zunehmender Temperaturdifferenz und zunehmendem Druckverlustanteil der Verteilstuktur sowie abnehmender Einlasstemperatur verschlechtert sich die Minimalverteilung. Der Unterschied zum Betrieb mit reinem Wasser als Kühlmittel (vgl. Abbildung 3.40) ist bei höheren Temperaturen gering. Bei 10 °C ist die Minimalverteilung von Glysantin® bis zu vier Prozentpunkte schlechter als mit reinem Wasser. Dieser Effekt entsteht durch die höhere Viskosität des Glysantins® bei niedrigen Temperaturen.

Bei Starts der Brennstoffzelle aus Minusgraden kommt es entlang des aktiven Bereichs zu sehr großen Temperaturdifferenzen. In Abbildung 3.42 ist die Minimalverteilung des Kühlmittels durch diesen Effekt dargestellt. Die niedrigen Einlasstemperaturen und die großen Temperaturdifferenzen im aktiven Bereich bewirken eine starke Ungleichverteilung. Bei einer Temperatur  $\leq -10$  °C steigt die Viskosität des Glysantins® verhältnismäßig nicht mehr so stark. Damit verbessert sich auch die Ungleichverteilung bei  $-20$  °C und 10 K Temperaturanstieg im Vergleich zu  $-10$  °C und 10 K Temperaturanstieg.

### Designrichtlinie Kühlmittelverteilstuktur

Die Minimalverteilung des Kühlmittels wird nur durch den Temperatureinfluss auf die dynamische Viskosität und Dichte bestimmt. Je geringer die Temperatur und je größer die Temperaturdifferenz zwischen Einlass- und Auslassverteilstuktur, desto schlechter wird die Minimalverteilung. Dieser Effekt tritt sowohl bei reinem Wasser als auch bei Glysantin® als Kühlmittel auf. Durch

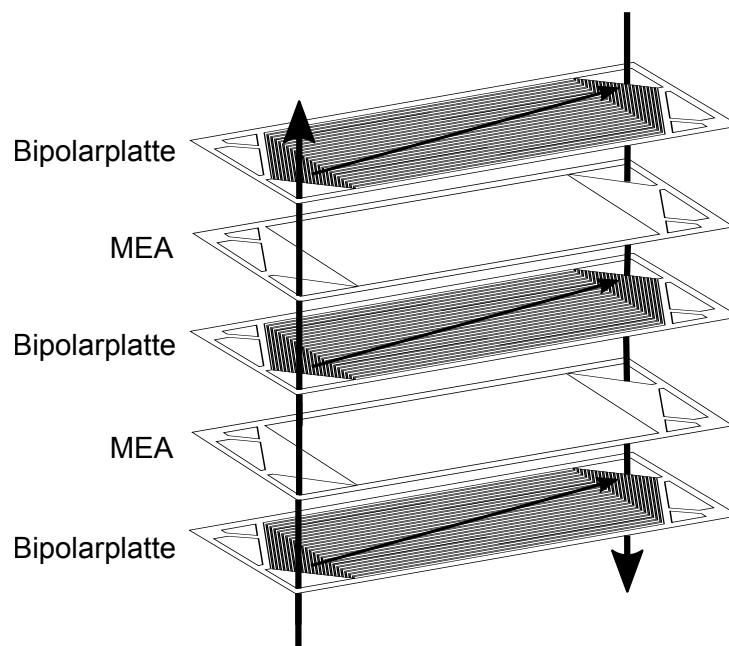
die höhere Viskosität von Glysantin<sup>®</sup> im Vergleich zu reinem Wasser ist die Minimalverteilung des Glysantins schlechter.



**Abbildung 3.42:** Einfluss von Froststartbedingungen auf die Minimalverteilung mit Glysantin<sup>®</sup>

### 3.4 Auslegung der Hauptkanäle

Die Hauptkanäle des Brennstoffzellenstapels bilden sich durch das Aufstapeln mehrerer Einzelzellen zu einem Brennstoffzellenstapel. Dazu sind in jeder Einzelzelle (MEA und Bipolarplatte) Aussparungen vorhanden, die beim Aufstapeln die Hauptkanäle bilden. Innerhalb jeder Bipolarplatte wird das Medium aus dem Einlasshauptkanal in die jeweilige Brennstoffzelle gelenkt, durchströmt diese und wird in den Auslasshauptkanal geführt. Die Aufgabe der Hauptkanäle ist die Verteilung der Medien auf jede einzelne Brennstoffzelle des Brennstoffzellenstapels.



**Abbildung 3.43:** Prinzipdarstellung der Hauptkanäle im Brennstoffzellenstapel mit U - Durchströmung

Für eine verbesserte Verteilung der Luft in einen Solix Oxid Fuel Cell (SOFC) Stapel haben Bi et al. [97] simulativ gezeigt, dass ein größerer Auslasshauptkanaldurchmesser im Vergleich zum Einlasshauptkanal vorteilhaft ist. Sie haben in Abhängigkeit der Zellanzahl (24-40 Brennstoffzellen) des SOFC-Stapels ein optimales Verhältnis zwischen 1,49 und 1,56 bestimmt.

In diesem Kapitel wird das Ergebnis von Bi auf die Anwendung in PEM-Brennstoffzellenstapeln übertragen und das optimale Verhältnis der hydraulischen Durchmesser der Hauptkanäle in Abhängigkeit des Mediums, sowie der Zellanzahl, Stromstärke und Stöchiometrie für eine U-Durchströmung des Stapels bestimmt.

#### Simulationsmodell

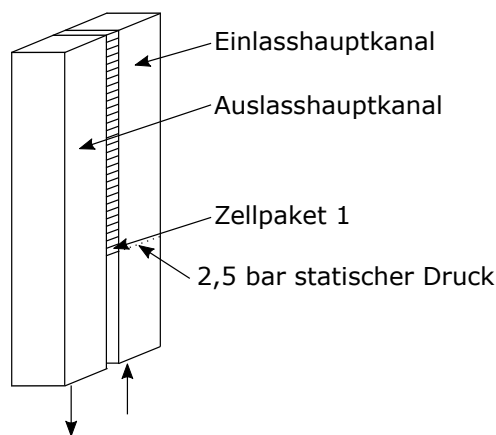
Die Verteilung des jeweiligen Mediums (Luft, Wasserstoff, Kühlmittel) wird in einem vereinfachten Stapelmodell in dem CFD-Programm ANSYS FLUENT 16.2 simuliert. Der Einlasshauptkanal wird mit quadratischer Grundfläche modelliert. Jeweils 10 einzelne Brennstoffzellen des Stapels werden in einem sogenannten Zellpaket zusammengefasst. Das Zellpaket wird als poröser Körper modelliert und der Druckverlust der Zellpakete wird als viskoser Widerstand über die Permeabilität eingestellt. Im porösen Medium wird ein zusätzlicher Quellterm zu den Strömungsgleichungen der Fluidströmung gelöst. Für ein einfaches homogenes poröses Medium

besteht der Quellterm aus der Summe des viskosen Verlusts aufgrund von kinematischer Viskosität  $\mu$  und Permeabilität  $\alpha$  und dem Trägheitsverlust aus Trägheitsfaktor  $C_2$ , Dichte  $\rho$  und Gasgeschwindigkeit  $v$  [83].

$$S_i = - \left( \frac{\mu}{\alpha} + C_2 \frac{1}{2} \rho |v| v_i \right) \quad (3.31)$$

Die turbulente Strömung in den Hauptkanälen wird dem  $k - \omega$  Modell + shear stress transport (SST) gelöst. Bei dem SST  $k - \omega$  Modell wird in Wandnähe das  $k - \omega$  Modell verwendet und in wandfernen Bereichen das  $k - \varepsilon$  Modell, so dass die Vorteile beider Turbulenzmodelle verwendet werden [98].

In Abbildung 3.44 ist der schematische Aufbau des Simulationsmodells dargestellt. Das Medium strömt über den Einlasshauptkanal in die Zellpakete und über den Auslasshauptkanal aus dem Modell.



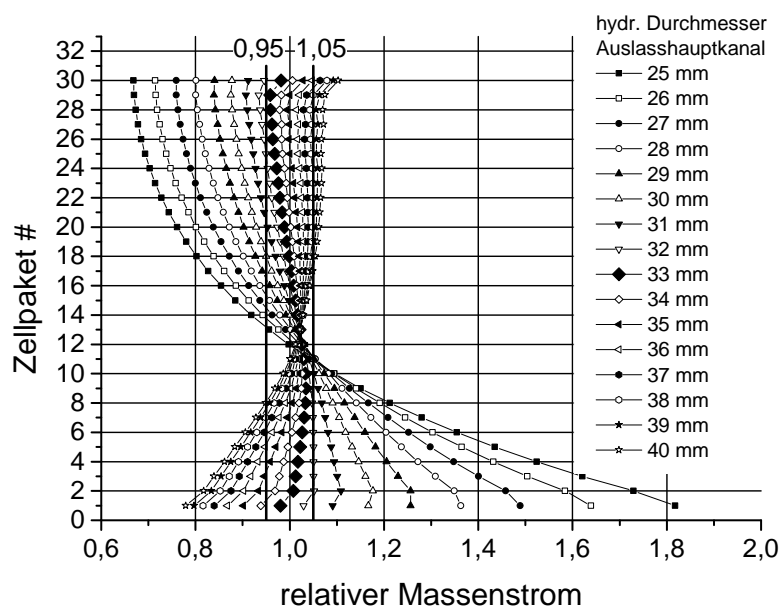
**Abbildung 3.44:** Schematische Darstellung des Stapelsimulationsmodells

In den Zellpaketen werden über Stoff- und Wärmequellen und -senken die Umwandlung des Reaktionsgases bzw. die Änderung der Temperatur abgebildet. Mit der Annahme, dass das gesamte Produktwasser auf der Kathode entsteht und es keinen Austausch zwischen Kathode und Anode gibt, wird im Kathodenmodell in den Zellpaketen in Abhängigkeit der Stromstärke Sauerstoff entzogen und Wasserdampf hinzugefügt. Zusätzlich wird aufgrund der elektrochemischen Reaktion ein Temperaturanstieg von 12 K simuliert. Im Anodenmodell wird mit gleicher Annahme nur Wasserstoff in Abhängigkeit der Stromstärke entzogen. Der Gegenstrombetrieb von Anode und Kathode sorgt zusätzlich für einen Temperaturabfall von 12 K in den Zellpaketen. Das Kühlmittelmodell wird in den Zellpaketen nur mit dem Temperaturanstieg von 12 K simuliert. Der Betriebsdruck in den Simulationen wird so eingestellt, dass am Einlass direkt vor dem ersten Zellpaket ein statischer Druck von 2,5 bar herrscht. Zur Auswertung wird der Massenstrom in der Mitte jedes Zellpakets ausgewertet und mit dem mittleren Massenstrom in den relativen Massenstrom umgerechnet. Der Druckverlust des Zellpakets im Stapel wird angegeben als Druckverlust bei idealer Gleichverteilung.

### 3.4.1 Gleichverteilung über den Brennstoffzellenstapel

Die Hauptkanäle des Brennstoffzellenstapels, die durch das Aufstapeln der einzelnen Brennstoffzellen zu einem Brennstoffzellenstapel entstehen (vgl. Abbildung 3.43), dienen der Gleichverteilung der Medien über alle Zellen des Stapels. Eine Unterversorgung einer Brennstoffzelle mit Reaktionsgas und Kühlmittel hat einen negativen Effekt auf die Leistung und Lebensdauer der Zelle. Die Hauptkanäle des Brennstoffzellenstapels müssen so ausgelegt werden, dass alle einzelnen Brennstoffzellen vom gleichen Medienstrom durchströmt werden. Die Verteilung der Medien über den Stapel wird dabei umso besser, je geringer der statische Druckunterschied über die jeweilige Einzelzelle des Stapels ist und je geringer der Anteil des Druckunterschieds am Gesamtdruckverlust der Brennstoffzelle ist [46],[47],[99].

In Abbildung 3.45 ist beispielhaft die Verteilung der Luft über einen Stapel mit 30 Zellpaketen bei einer Stromstärke von 800 A, einer Stöchiometrie von 2,0, einem Temperaturanstieg von 12 K und einem hydraulischen Durchmesser des Einlasshauptkanals von 25 mm dargestellt. Bei gleichem hydraulischen Durchmesser des Einlass- und Auslasshauptkanals entsteht eine starke Ungleichverteilung. Das erste Zellpaket des Stapels bekommt ca. 170 % der mittleren Gasmenge während das letzte Zellpaket mit nur ca. 70 % durchströmt wird. Mit steigendem Auslasshauptkanaldurchmesser verbessert sich die Verteilung über den Stapel bis ab einem hydraulischen Auslasshauptkanaldurchmesser von ca. 33 mm das erste Zellpaket unterversorgt wird und das letzte überversorgt. Bei einem hydraulischen Auslasshauptkanaldurchmesser von 40 mm wird das unterste Zellpaket mit nur ca. 80 % durchströmt und das oberste Zellpaket mit ca. 104 %.

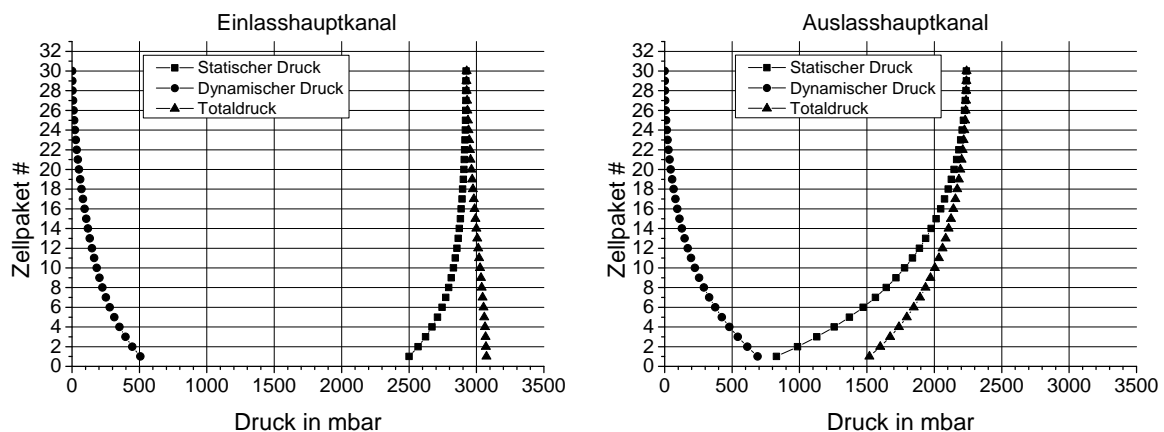


**Abbildung 3.45:** Verteilung der Luft über einen 300 Zellen Stapel und 25 mm hydr. Einlasskanaldurchmesser bei 800 A, Stöchiometrie 2,0

Entscheidend für die Gleichverteilung des Mediums ist die statische Druckdifferenz über die jeweilige Brennstoffzelle entlang des Stapels. Der lokale statische Druck im Hauptkanal wird

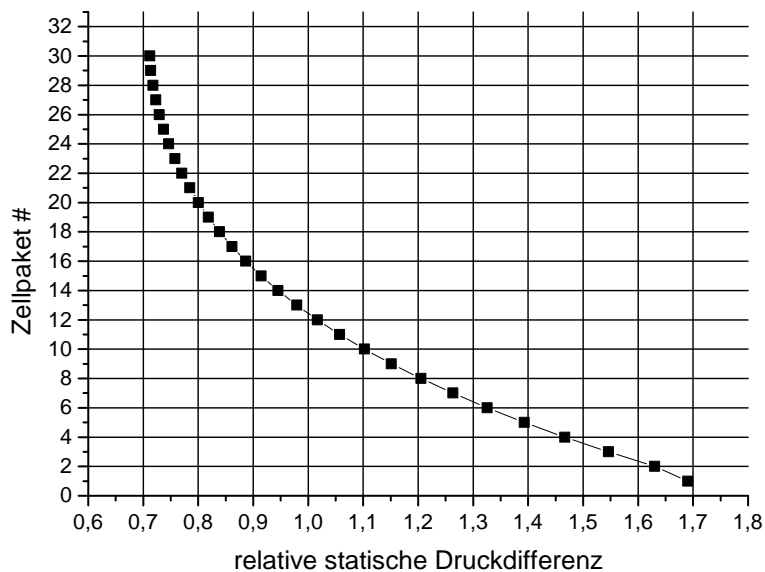
durch den dynamischen Druckanteil und die Reibungsverluste entlang des Hauptkanals bestimmt. Bei einer optimalen Verteilung liegt über jede Zelle die gleiche statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal an. Der Auslasshauptkanal muss für die homogene Verteilung so ausgelegt werden, dass aufgrund des lokalen dynamischen Drucks und der bis zu der Zelle entstehenden Reibungsverluste eine konstante statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entlang des Brennstoffzellenstapels entsteht.

In Abbildung 3.46 ist der Druckverlauf entlang der Hauptkanäle für das Beispiel 25 mm hydraulischer Durchmesser des Auslasskanals aus Abbildung 3.45 dargestellt. Im Einlasshauptkanal sinkt der Totaldruck entlang der Brennstoffzellen im Stapel aufgrund von Reibungsverlusten. Der dynamische Druck sinkt entlang der Zellen aufgrund der Abnahme der Gasgeschwindigkeit im Hauptkanal durch die Abnahme der Luftmenge. Durch den abnehmenden dynamischen Druckanteil am Totaldruck steigt der statische Druck entlang der Zellen im Einlasshauptkanal. Der Auslasshauptkanal wird aufgrund der U-Durchströmung von Zellpaket 30 nach Zellpaket 1 durchströmt. Der Totaldruck sinkt entlang der Durchströmung aufgrund der Reibungsverluste. Der dynamische Druck steigt durch den zunehmenden Massenstrom entlang der Zellen und die damit erhöhte Gasgeschwindigkeit. Aufgrund der Druckerhaltung muss damit der statische Druck entlang der Durchströmung des Auslasshauptkanals sinken. Es entsteht eine statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal die in Abbildung 3.47 als relative statische Druckdifferenz zum Mittelwert der statischen Druckdifferenz dargestellt ist. Die relative statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entspricht dem relativen Massenstrom aus Abbildung 3.45 für die Auslasshauptkanaldurchmesser von 25 mm.

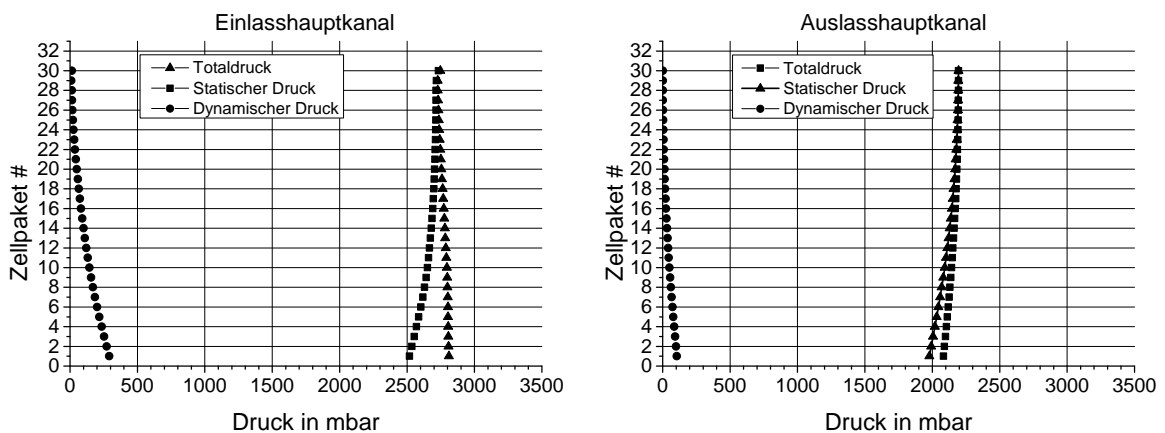


**Abbildung 3.46:** Druckverläufe entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 25 mm

Durch eine Vergrößerung des hydraulischen Durchmessers des Auslasshauptkanals sinken der dynamische Druckverlustanteil und der Reibungsverlust im Auslasshauptkanal. Die daraus entstehende statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal wird geringer. In Abbildung 3.48 sind die statischen und dynamischen Druckverläufe und der Totaldruckverlauf für das Paar 25 mm Einlass- und 33 mm Auslasshauptkanaldurchmesser dargestellt. Die relative statische Druckdifferenz, die sich über die Zellen ergibt, ist in Abbildung 3.49 dargestellt.



**Abbildung 3.47:** Relative statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 25 mm

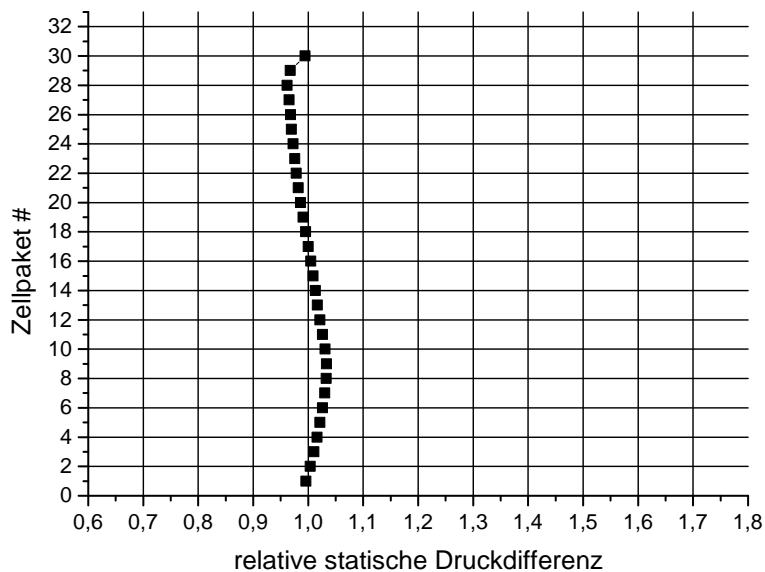


**Abbildung 3.48:** Druckverläufe entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 33 mm

Zur Bewertung der Gleichverteilung der Medien über den Brennstoffzellenstapel wird die Minimalverteilung verwendet. Die Minimalverteilung beschreibt die geringste Durchströmung eines Zellpakets des Stapels im Verhältnis zur mittleren Durchströmung aller Zellpakete. Dieser Wert repräsentiert den Grad der größten Schädigung aufgrund der Unterversorgung mit Reaktionsgas oder Kühlmittel.

Das optimale Hauptkanalverhältnis, das in diesem Kapitel als Designrichtlinie entwickelt wird, beschreibt das Verhältnis der hydraulischen Durchmesser des Einlass- und Auslasshauptkanals für den Fall der besten Minimalverteilung.





**Abbildung 3.49:** Relative statische Druckdifferenz zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal entlang der Hauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 25 mm und Auslass 33 mm

Zusätzlich wird an die Verteilung der Medien auf die Einzelzellen des Stapels die Anforderung gestellt, dass in keiner Zelle der Massenstrom mehr als 5 % vom Sollwert abweichen darf. Damit wird sichergestellt, dass die Einzelzellen alle bei einem sehr ähnlichen Potential betrieben werden und Überhitzung durch Kühlmittelunterversorgung oder Degradation durch Reaktionsgasunterversorgung vermieden werden.

### 3.4.2 Kathodenhauptkanal

Die Kathode des Brennstoffzellenstapels wird mit verdichteter und befeuchteter Luft durchströmt. Im aktiven Bereich der Brennstoffzellen kommt es in Abhängigkeit der Stromstärke zur elektrochemischen Umwandlung des Sauerstoffs in Wasser. Aufgrund der parallelen Durchströmung der Kathode und des Kühlmittels kommt es im aktiven Bereich zusätzlich zu einem Temperaturanstieg.

Für die hydraulischen Einlasshauptkanaldurchmesser von 25, 30 und 35 mm werden jeweils die hydraulischen Auslasshauptkanaldurchmesser variiert und das optimale Verhältnis für die beste Verteilung in Abhängigkeit von Zellanzahl, Stromstärke und Stöchiometrie bestimmt.

Im folgenden wird anhand des 25 mm Einlasshauptkanals die Verteilung der Luft über den Stapel für die verschiedenen Fälle beispielhaft graphisch dargestellt. Für den 30 und 35 mm Lufteinlasshauptkanal werden nur die Ergebnisse der besten Verteilung beschrieben.

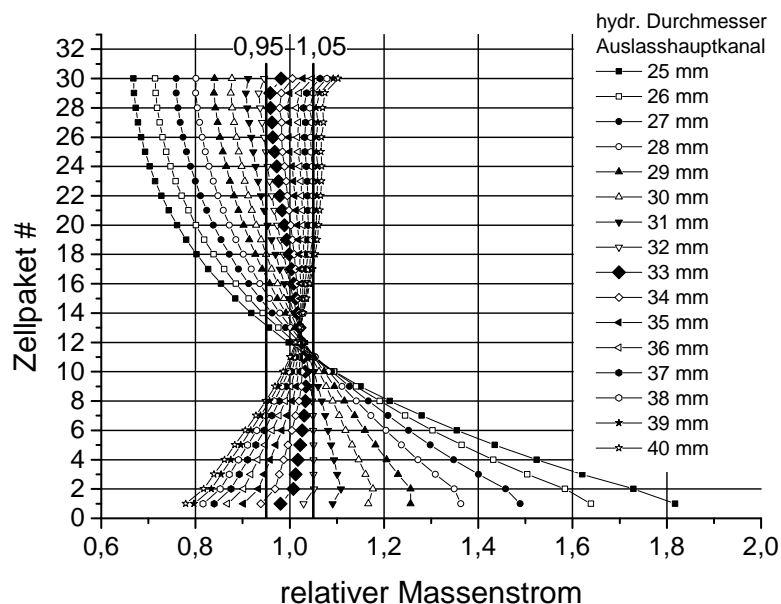
#### 25 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

Im Ausgangsfall wird die Verteilung der Luft über einen Stapel mit 30 Zellpaketen (entspricht

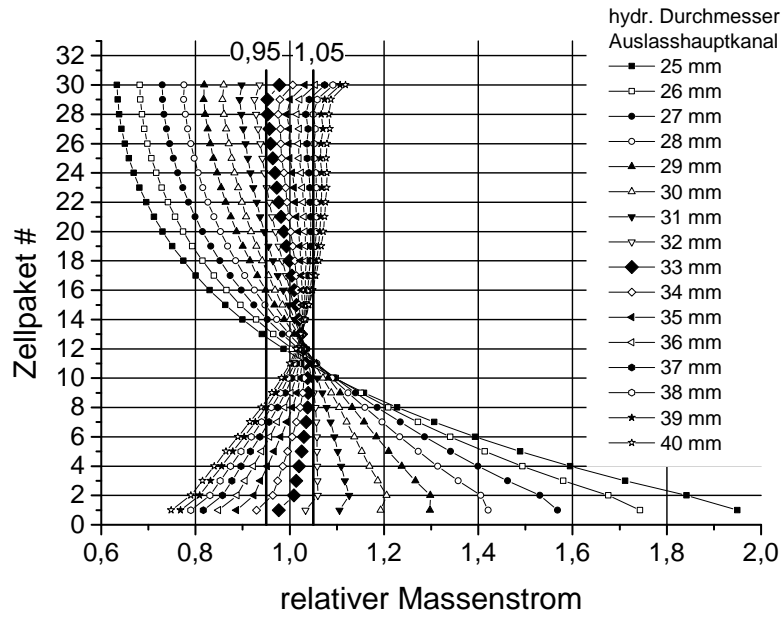
300 Brennstoffzellen) mit einer Sauerstoffslenke und Wasserquelle äquivalent zu 800 A bei einer Luftstöchiometrie von 2,0 und verschiedenen Zelldruckverlusten ermittelt.

In den Abbildungen 3.50, 3.51, 3.52 sind die Verteilungen für die Druckverluste in den Zellpakten, die bei einer 100 %igen Durchströmung entstehen, von 507 mbar, 415 mbar und 216 mbar dargestellt. Mit steigendem Druckverlust der Zellpakete verbessert sich die Verteilung der Medien über den Stapel vor allem bei kleinen Auslasshauptkanälen in den ersten Zellen des Stapels deutlich. Für das Hauptkanalverhältnis von 1:1 (25 mm Einlass und 25 mm Auslass) verringert sich die Überversorgung der ersten Zelle mit einem Druckverlustanstieg von 216 mbar auf 507 mbar von 270 % auf 181 %. Gleichzeitig verbessert sich die geringste Versorgung für diesen Fall in der obersten Zelle des Stapels nur von 0,53 auf 0,67. Der Einfluss des Zelldruckverlusts wirkt sich besonders in den ersten Zellen des Stapels aus. Mit steigendem Hauptkanalverhältnis verbessert sich die Verteilung bis zu einem Optimum und nimmt dann wieder ab. Bei dem Hauptkanalverhältnis von 1:1,6 (25:40) verbessert sich die Überversorgung der obersten Zelle des Stapels von 121 % auf 110 % und die geringste Versorgung der untersten Zelle von 0,60 auf 0,78.

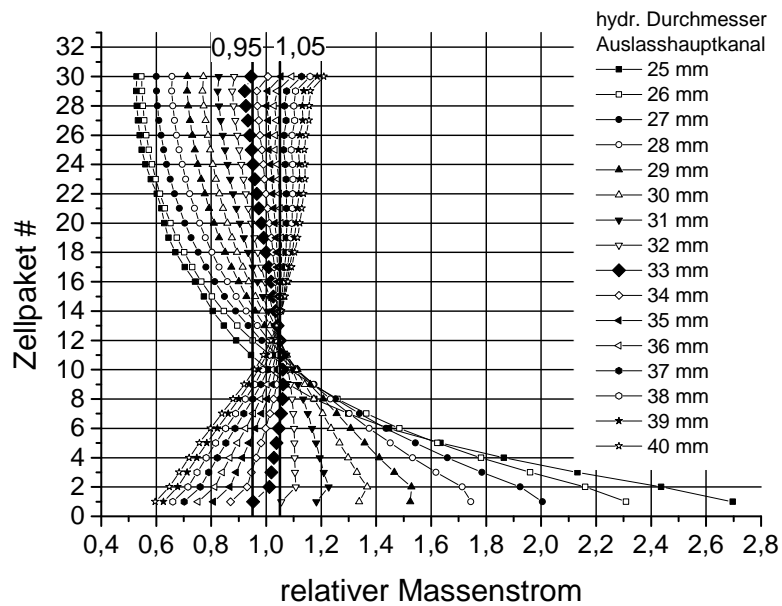
Die Gasmenge und -zusammensetzung sowie die Änderung aufgrund der elektrochemischen Reaktion sind in allen drei Fällen gleich. Die Reibungsverluste entlang der Hauptkanäle sowie der dynamische Druckanteil sind somit bei gleicher Größe der Einlass- und Auslasshauptkanäle für die verschiedenen Druckverluste gleich. Das Verteilungsprofil der Luft entlang der Zellpakete des Stapels ist identisch (vgl. Abb. 3.50, 3.51 und 3.52). Der höhere Druckverlust der Zellpakete vergrößert die lokale Druckdifferenz der Zellen und reduziert den Anteil des Einflusses von dynamischem Druck und Reibungsverlust. Die Verteilung wird mit zunehmendem Druckverlust des Zellpakets besser.



**Abbildung 3.50:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 507 mbar Druckverlust der Einzelzelle



**Abbildung 3.51:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 415 mbar Druckverlust des Zellpakets

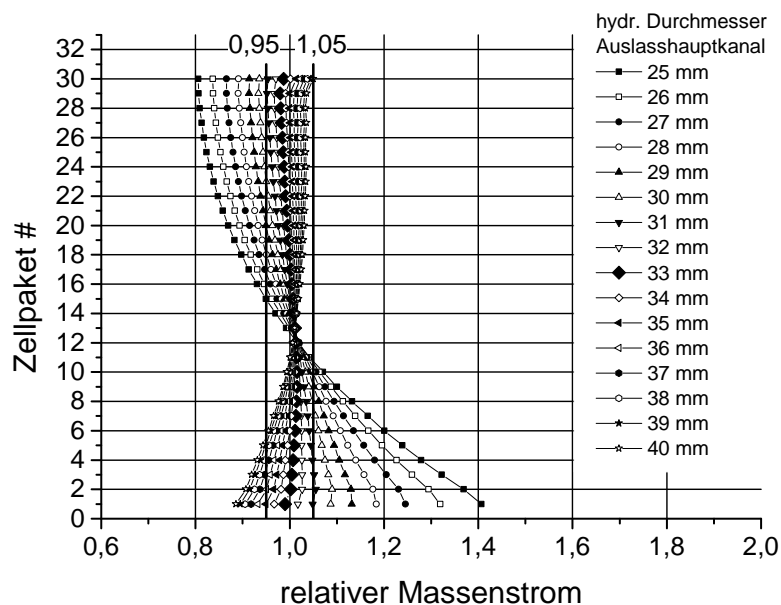


**Abbildung 3.52:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 216 mbar Druckverlust des Zellpakets

Das optimale Verhältnis des hydraulischen Durchmessers von Einlass- und Auslasshauptkanal beträgt unabhängig vom Zellpaketdruckverlust 25 mm :33 mm (1:1,32). Die geringste Versorgung bei 517 mbar Druckverlust liegt bei 0,959. Der Druckverlust des Zellpakets hat auf das optimale Hauptkanalverhältnis keinen Einfluss, allerdings sinkt die geringste Versorgung mit sinkendem Druckverlust, so dass bei 216 mbar Druckverlust das  $\pm 5\%$ -Kriterium nicht mehr einhalten werden kann. Bei einem Druckverlust von 415 mbar beträgt die geringste Versorgung für das optimale Hauptkanalverhältnis 0,952 und bei 216 mbar Druckverlust 0,922.

Eine Reduzierung der Stromstärke von 800 A auf 400 A bei 30 Zellpaketen und einer Stöchiometrie von 2,0 und damit eine Halbierung der Gasmenge bewirkt eine deutliche Verbesserung der Verteilung der Luft über den Stapel. Die geringere Gasmenge in gleichem hydraulischen Durchmesser der Hauptkanäle bewirkt einen geringeren Anteil des dynamischen Drucks am Totdruck. Die Auswirkungen auf den statischen Druck und damit auf die statische Druckdifferenz sind geringer und die Verteilung verbessert sich.

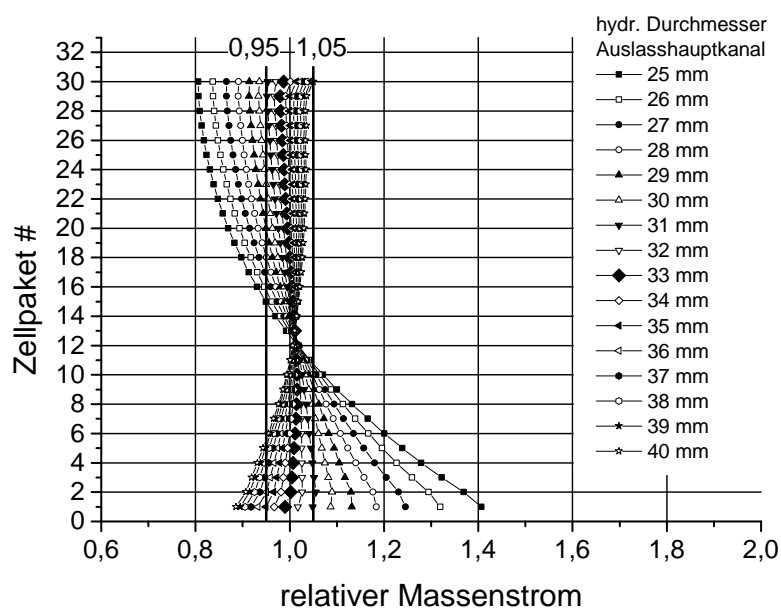
In Abbildung 3.53 ist Verteilung der Luft für 30 Zellpakete bei 400 A, Stöchiometrie 2,0 und einem Druckverlust der Zelle bei 100 %iger Durchströmung von 223 mbar dargestellt. Im Vergleich zu Abbildung 3.52 bei 216 mbar Druckverlust und 800 A Stromstärke ist die Verteilung deutlich verbessert. Das  $\pm 5\%$ -Kriterium wird mit einem hydraulischen Durchmesser des Auslasshauptkanals von 31 mm bis 35 mm eingehalten. Die geringste Versorgung beträgt für die Fälle 0,952 (31 mm), 0,967 (32 mm), 0,980 (33 mm), 0,967 (34 mm) und 0,950 (35 mm). Durch die Reduzierung der Gasmenge kommt es zu einer Änderung der Anteile des dynamischen Drucks und der Reibungsverluste in den Hauptkanälen. Die Änderung gegenüber dem 800 A Fall ist aber so gering, dass das optimale Verhältnis weiterhin bei 25:33 und damit 1:1,32 liegt.



**Abbildung 3.53:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 400 A, Stöchiometrie 2,0 und 223 mbar Druckverlust des Zellpakets

Die Änderung der Stöchiometrie von 2,0 auf 1,5 reduziert die Gasmenge in den Hauptkanälen und ändert das Verhältnis der Gasmengen im Einlass- und Auslasshauptkanal. Die Verteilung für einen 30 Zellpaketestapel mit 800 A und einer Stöchiometrie von 1,5 bei 370 mbar Zelldruckverlust ist in Abbildung 3.54 dargestellt. Die Verteilung hat sich durch die Reduzierung der Stöchiometrie verbessert (vgl. Abbildung 3.51). Die geringere Gasmenge verringert den Anteil des dynamischen Drucks und dessen Auswirkungen auf das statische Druckverhältnis. Die geringere Stöchiometrie ändert die Gaszusammensetzung im Auslasshauptkanal. Der Sauerstoffanteil in der Luft sinkt durch die elektrochemische Reaktion, der Wasserdampfanteil steigt. Durch die Annahme, dass das gesamte Produktwasser auf der Kathode verbleibt, hat die elektrochemische Umwandlung des Sauerstoffs und damit der Stöchiometrie nur einen geringen Einfluss auf die Änderungen der Fluideigenschaft.

Besonders in den nicht optimalen Hauptkanalverhältnissen ist der Effekt deutlich erkennbar. Das  $\pm 5\%$ -Kriterium wird mit einem hydraulischen Durchmesser des Auslasshauptkanals von 33 mm und 34 mm mit einer Minimalverteilung von 0,967 (33 mm) und 0,956 (34 mm) eingehalten. Aufgrund der geringeren Gasmenge durch die niedrigere Stöchiometrie verändern sich die Anteile von dynamischem Druck und Reibungsverlusten. Wie im Fall der Reduzierten Stromstärke ist die Änderung so gering, dass das optimale Hauptkanalverhältnis von 25:33 bzw. 1:1,32 bleibt.

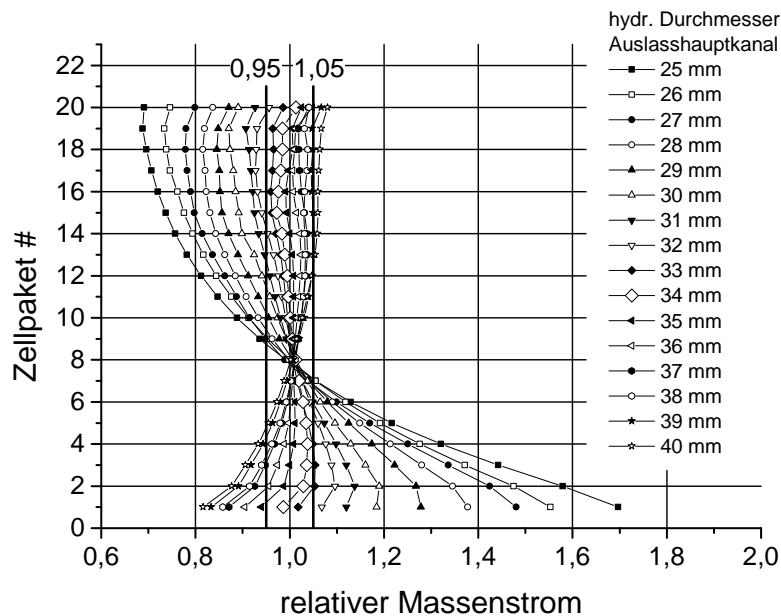


**Abbildung 3.54:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 370 mbar Druckverlust des Zellpakets

Die Reduzierung der Anzahl der Zellpakete von 30 auf 20 bewirkt eine verbesserte Minimalverteilung. In Abbildung 3.55 ist die Verteilung der Luft über einen Stapel aus 20 Zellpaketen bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 und einem Druckverlust des Zellpakets von 241 mbar dargestellt.

Die geringere Gasmenge in den Hauptkanälen aufgrund der geringeren Zellanzahl reduziert den dynamischen Druckanteil. Gleichzeitig wird aufgrund der geringeren Gasmenge und kürzeren Länge der Hauptkanäle der Reibungsverlust im Vergleich zum 30 Zellpaketefall reduziert. Für

die optimale Verteilung über den Stapel verschiebt sich das optimale Verhältnis der Hauptkanäle zu größeren Auslasshauptkanälen, um auch dort den Anteil des dynamischen Drucks und der Reibungsverluste zu reduzieren. Die geringste Versorgung für das optimale Verhältnis der hydraulischen Hauptkanaldurchmesser von 25 mm Einlass und 34 mm Auslass (1:1,36) beträgt 0,960. Bei einem Hauptkanalverhältnis von 25:33<sup>9</sup> ist die geringste Verteilung nur 0,01 Prozentpunkte schlechter.



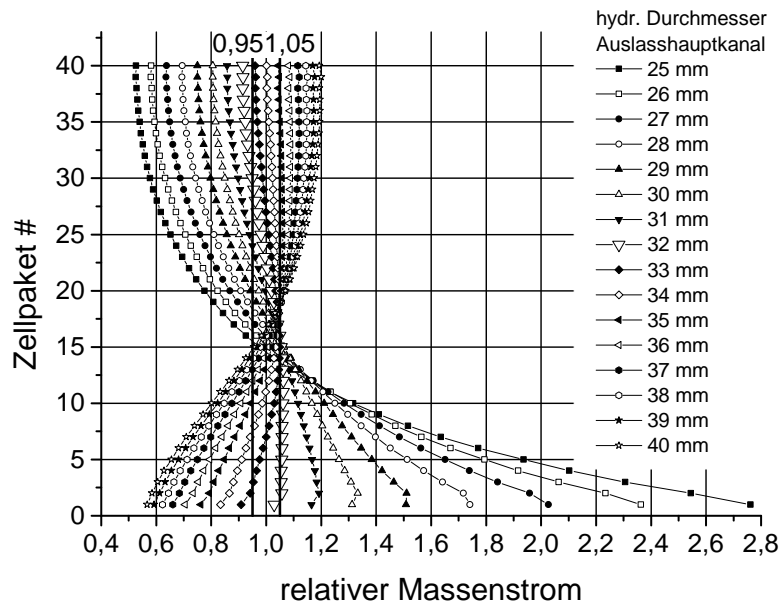
**Abbildung 3.55:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 20 Zellpaketen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 241 mbar Druckverlust des Zellpakets

Eine Erhöhung der Anzahl der Zellpakete auf 40 bewirkt den gegenteiligen Effekt der Reduzierung der Zellpakete. Der erhöhte Massenstrom verschlechtert die geringste Versorgung. Der Druckverlauf des dynamischen Drucks wird flacher. In Abbildung 3.56 ist die Verteilung der Luft über einen 40 Zellpaketestapel, bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 417 mbar Druckverlust dargestellt.

Das optimale Verhältnis der Hauptkanäle beträgt 25:32 bzw. 1:1,28 bei einer geringsten Versorgung von 0,918.

Bei einem Brennstoffzellenstapel mit einem hydraulischen Einlasshauptkanaldurchmesser von 25 mm gibt es einen optimalen Auslasshauptkanaldurchmesser bei dem die beste geringste Versorgung herrscht. Dieses optimale Hauptkanalverhältnis ist nur von der Anzahl der Zellen im Stapel abhängig und liegt für die betrachteten Fälle zwischen 1:1,28 und 1:1,36. Die Betriebsparameter wie Stromstärke, Stöchiometrie und der Druckverlust der Brennstoffzellen haben keinen Einfluss auf das optimale Verhältnis aber auf die Minimalverteilung.

<sup>9</sup> Das optimale Hauptkanalverhältnis bei Luft und 30 Zellpaketen



**Abbildung 3.56:** Verteilung der Luft bei 25 mm Einlass, 40 Zellpaketen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 417 mbar Druckverlust des Zellpakets

### 30 mm hydraulischer Einlasshaupteinlasskanaldurchmesser

Ein größerer hydraulischer Einlasshaupteinlasskanaldurchmesser von 30 mm verbessert bei gleichem Zellpaketdruckverlust die geringste Versorgung. Mit steigendem hydraulischen Durchmesser der Haupteinlasskanäle verringert sich der dynamische Anteil des Drucks und die Auswirkungen auf die statische Druckdifferenz über den Stapel werden geringer.

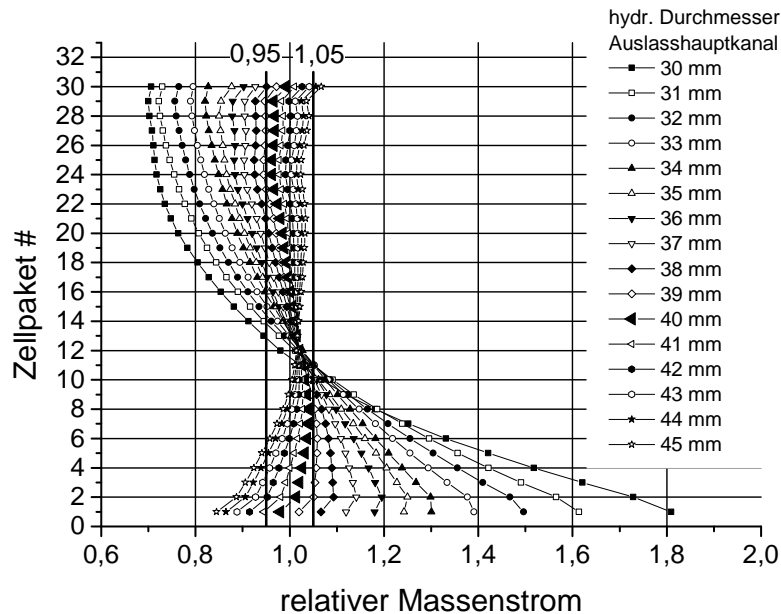
Als Beispiel ist in Abbildung 3.57 die Verteilung über einen 30 Zellpaketestapel bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 238 mbar Druckverlust für verschiedene hydraulische Auslasshaupteinlasskanaldurchmesser dargestellt. Die beste geringste Versorgung von 0,962 wird bei einem hydraulischen Auslassdurchmesser von 40 mm erreicht, so dass sich ein optimales Verhältnis von 1:1,33 ergibt. Bei einem ähnlichen Druckverlust des Zellpakets verbessert sich im Vergleich zu 25 mm hydraulischen Einlasshaupteinlasskanaldurchmesser die Verteilung um ca. 4 Prozentpunkte (vgl. Abbildung 3.52).

Der Einfluss von Druckverlust, Stromstärke, Stöchiometrie und Zellanzahl sind identisch dem Verhalten bei 25 mm Einlasshaupteinlasskanaldurchmesser.

Eine höherer Druckverlust der Zellpakete verbessert die geringste Versorgung über den Stapel. Das optimale Verhältnis der hydraulischen Ein- und Auslasshaupteinlasskanaldurchmesser von 1:1,33 bleibt konstant. Auch eine Änderung der Stromstärke und Stöchiometrie ändert das optimale Verhältnis von 1:1,33 nicht. Im Vergleich zu 25 mm hydraulischen Einlasshaupteinlasskanaldurchmesser ist die geringste Versorgung ca. 1,5-4 Prozentpunkte besser.

Die Reduzierung der Anzahl der Zellpakete von 30 auf 20 vergrößert das optimale Verhältnis auf 30:41 (1:1,37). Eine Erhöhung der Zellanzahl auf 40 Zellpakete verschiebt das optimale

Verhältnis zu 30:39 (1:1,3).



**Abbildung 3.57:** Verteilung der Luft bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 238 mbar Druckverlust des Zellpakets

Ein größerer hydraulischer Durchmesser von 30 mm verbessert im Vergleich zu 25 mm Einlasshauptkanal die geringste Versorgung. Für alle betrachteten Fälle gibt es ein optimales Verhältnis der Hauptkanäle, das abhängig von der Anzahl der Brennstoffzellen im Stapel ist und unabhängig von Stromstärke, Stöchiometrie und Druckverlust. Dieses optimale Verhältnis liegt bei einem hydraulischen Einlasshauptkanaldurchmesser von 30 mm zwischen 1:1,3 und 1:1,37.

### 35 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

Mit einem hydraulischen Einlasshauptkanaldurchmesser von 35 mm verbessert sich die Minimalverteilung weiter gegenüber kleineren Einlasshauptkanälen. In einem Stapel mit 30 Zellpaketen bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 211 mbar Druckverlust liegt das optimale Verhältnis der Hauptkanaldurchmesser bei 1:1,34 (35:47) mit einer Minimalverteilung von 0,987.

Wie bei den Beispielen mit 25 bzw. 30 mm hydraulischem Einlasshauptkanaldurchmesser verbessert sich die geringste Versorgung mit steigendem Druckverlust des Zellpakets. Das optimale Verhältnis bleibt bei 1:1,34 auch bei einer Änderung der Stromstärke und Stöchiometrie. Die geringste Versorgung ist ca. 1-2 Prozentpunkte besser als bei 30 mm Einlasshauptkanal.

Die Änderung der Anzahl der Zellpakete wirkt sich wie in den vorherigen Beispielen auf das optimale Verhältnis aus. Bei einer Reduzierung auf 20 Zellpakete verschiebt sich das Verhältnis zu 35:48 (1:1,37) und bei einer Erhöhung auf 40 Zellpakete zu 35:47 (1:1,31).

Für einen hydraulischen Einlasshauptkanaldurchmesser von 35 mm gibt es ein Verhältnis des Auslasskanaldurchmesser bei dem die geringste Versorgung am besten ist. Dieses optimale



Hauptkanalverhältnis ist abhängig von der Zellanzahl und liegt zwischen 1:1,31 und 1:1,37.

### **Designrichtlinie Lufthauptkanal**

Die Hauptkanäle eines Brennstoffzellenstapels müssen eine Verteilung der Medien sicherstellen. Auf der Kathode werden die einzelnen Brennstoffzellen mit Luft versorgt und die Größe des Einlasshauptkanals richtet sich nach dem Druckverlust der Einzelzelle und der Zellanzahl des Stapels. Für einen 300 Zeller sind ab einem Druckverlust von ca. 400 mbar der Einzelzelle mit 25 mm hydraulischer Durchmesser eine Einhaltung des  $\pm 5\%$  Kriteriums möglich. Mit sinkendem Druckverlust der Einzelzelle sind zur Einhaltung des  $\pm 5\%$  Kriteriums größere Einlasshauptkanaldurchmesser nötig. Bei 30 mm hydraulischem Durchmesser ist bereits bei 200 mbar eine Einhaltung des  $\pm 5\%$  Kriterium möglich.

Für die drei Einlasshauptkanaldurchmesser gibt es in Abhängigkeit der Zellanzahl des Stapels jeweils optimale Hauptkanalverhältnisse für die beste geringste Versorgung. Bei 25 mm Einlasshauptkanaldurchmesser liegt dies zwischen 1:1,28 und 1:1,36, bei 30 mm zwischen 1:1,30 und 1:1,37 und bei 35 mm zwischen 1:1,31 und 1:1,37.

Mit diesen Designrichtlinien für das Größenverhältnis der hydraulischen Durchmesser der Hauptkanäle lässt sich in der Vorauslegung der Bipolarplatte der Platzbedarf der Hauptkanäle der Luft abschätzen. Die finale Auslegung der hydraulischen Durchmesser kann aber erst in einer eigenen CFD-Simulation erfolgen, wenn die Druckverluste der Bipolarplatte und die Betriebsbedingungen bekannt sind und die Anforderungen an die geringste Versorgung definiert sind.

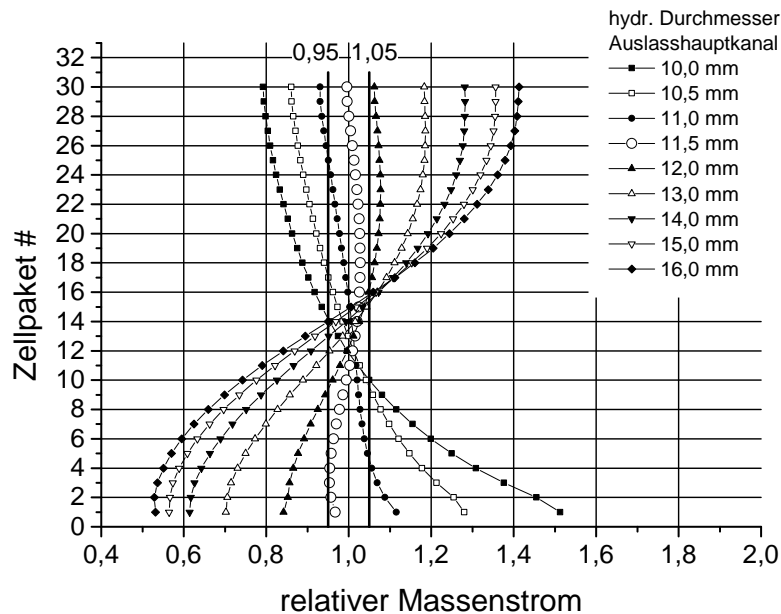
### **3.4.3 Anodenhauptkanal**

Die Anode der Brennstoffzelle wird von einem befeuchteten Wasserstoff-Stickstoff-Gemisch durchströmt. Der Stickstoff diffundiert von der Kathode durch die Membran und reichert sich auf der Anode aufgrund der Rezirkulation an. Über die Betriebsstrategie kann der Stickstoffgehalt im Anodengas reguliert werden. In den folgenden Betrachtungen wird dem Wasserstoff 10 Mol-% Stickstoff zugemischt und das Gas mit 60 % Eintrittsfeuchte in den Stapel geleitet.

Der hohe Mengenanteil an Reaktionsgas im Gasgemisch sorgt im Betrieb mit geringen Stöchiometrien für eine große Änderung des Massenstroms zwischen Einlass- und Auslasshauptkanal. Das Anodengas strömt im Gegenstrom zum Kühlmittel durch den Brennstoffzellenstapel, so dass es zu einer Temperaturabnahme im aktiven Bereich kommt. Analog der Betrachtung für den Lufthauptkanal wird für den Wasserstoffhauptkanal das optimale Verhältnis der hydraulischen Durchmesser in Abhängigkeit von Stromstärke, Stöchiometrie und Zellanzahl bestimmt.

### **10 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser**

Aufgrund der geringeren Gasmenge der Anode im Vergleich zur Kathode kann der Hauptkanal deutlich kleiner sein. Abbildung 3.58 zeigt die Verteilung des Anodengases über die 30 Zellpakete des Stapels bei einem hydraulischen Durchmesser des Einlasshauptkanals von 10 mm und einem Druckverlust der Zellpakete von 166 mbar.



**Abbildung 3.58:** Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 166 mbar Druckverlust des Zellpakets

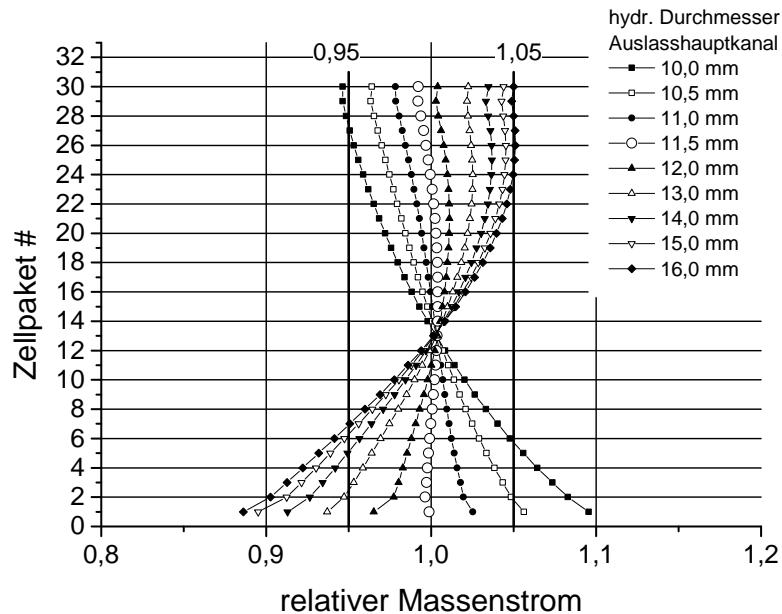
Ein zu kleiner Auslasshauptidekanal erzeugt eine starke Ungleichverteilung über den Stapel mit einer Überversorgung der ersten Zellen und einer Unterversorgung der letzten Zellen. Mit steigendem Auslasshauptidekanaldurchmesser verbessert sich die Verteilung bis zu einem Optimum bei dem hydraulischen Auslasshauptidekanaldurchmesser von 11,5 mm mit einer Minimalverteilung von 0,9534. Mit weiter steigendem Auslasshauptidekanaldurchmesser verschlechtert sich die Verteilung. Die unteren Zellen werden unterversorgt, die oberen Zellen des Stapels Überversorgt.

Eine Reduzierung der Stromstärke verbessert die Minimalverteilung. Der geringere Massenstrom in den Hauptkanälen erzeugt weniger Reibungsverluste und einen geringeren dynamischen Druckanteil. Dieser Effekt reicht aber nicht aus, um in der abgebildeten Auflösung von 0,5 mm das optimale Verhältnis zu verschieben. Für einen Stapel mit 30 Zellpaketen bei der Stromstärke von 400 A, Stöchiometrie 2,0 und 261 mbar Druckverlust der Zellpakete liegt die Minimalverteilung bei 0,9920 bei dem optimalen Verhältnis von 10 mm:11,5 mm. In Abbildung 3.59 ist die Verteilung über den Stapel bei 400 A, 261 mbar Druckverlust und Stöchiometrie 2,0 dargestellt.

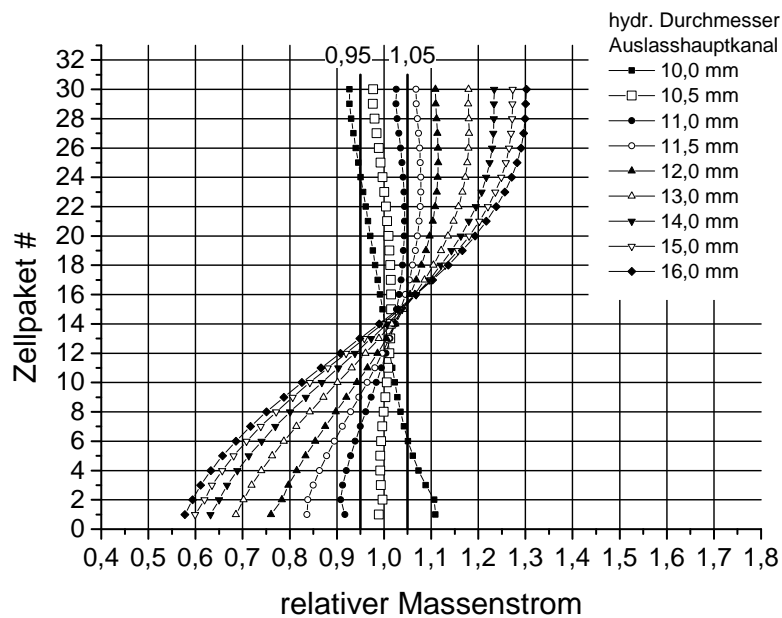
Mit geringerer Stöchiometrie des Anodengases wird der Unterschied in den Gasmengen zwischen Ein- und Austritt der Brennstoffzelle größer. Aufgrund des geringen Stickstoffanteils ist der Effekt deutlich größer als auf der Kathode. Eine Reduzierung der Stöchiometrie von 2,0 auf 1,5 verbessert die Minimalverteilung, weil der Reibungsverlust und der dynamische Druckanteil sinken. Die Abnahme der Gasmenge im aktiven Bereich und die damit verbundenen, geringeren Reibungsverluste und geringerer dynamischer Druckanteil verschieben den optimalen Auslasshauptidekanal zu kleineren hydraulischen Durchmessern.

Abbildung 3.60 zeigt die Verteilung über einen 300Zeller bei 800A, Stöchiometrie 1,5 und 118 mbar Druckverlust. Das optimale Verhältnis der Hauptkanäle liegt bei 1:1,05 (10 mm :

10,5 mm) bei einer Minimalverteilung von 0,9762.

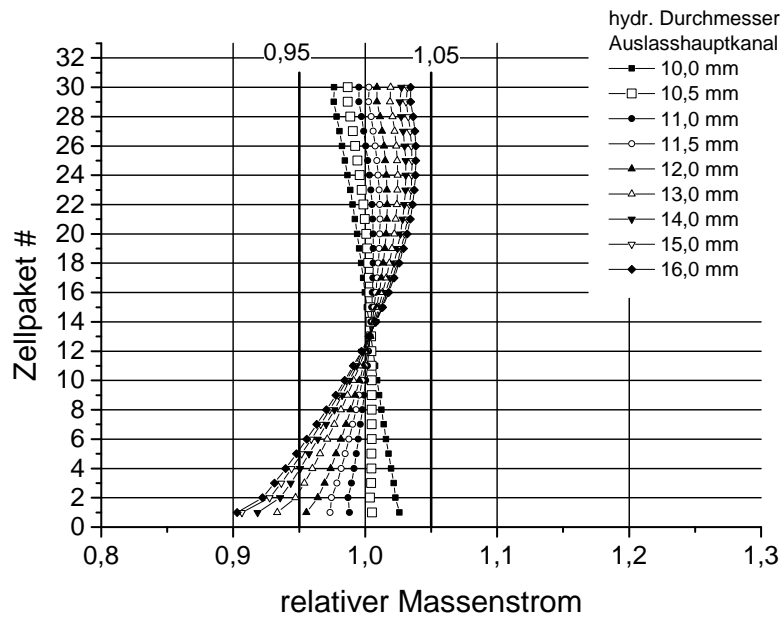


**Abbildung 3.59:** Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 400 A, Stöchiometrie 2,0 und 261 mbar Druckverlust des Zellpakets



**Abbildung 3.60:** Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 118 mbar Druckverlust des Zellpakets

Das optimale Verhältnis von 1:1,05 bei einer Stöchiometrie von 1,5 bleibt auch bei 400 A Stromstärke bestehen. In Abbildung 3.61 ist die Verteilung über den Stapel bei 175 mbar Druckverlust der Zellpakete dargestellt. Die Minimalverteilung hat sich aufgrund der geringeren Gasmenge weiter verbessert, aber liegt durch den geringeren Zelldruckverlust bei 0,9870.



**Abbildung 3.61:** Verteilung des Anodengases bei 10 mm Einlass, 300 Zellen, 800 A, Stöchiometrie 1,5 und 175 mbar Druckverlust des Zellpakets

Eine Änderung der Zellanzahl und die damit verbundene Änderung des Reibverlusts und des dynamischen Druckanteils haben innerhalb der abgebildeten Auflösung von 0,5 mm Änderung der Hauptkanaldurchmesser keinen Einfluss auf das optimale Verhältnis der Hauptkanäle. Die Minimalverteilung wird jedoch durch eine geringere Zellanzahl und den damit reduzierten Volumenstrom positiv beeinflusst und durch eine erhöhte Zellanzahl negativ. Das optimale Hauptkanalverhältnis bleibt bei 1:1,15. Die Absenkung der Stöchiometrie auf 1,5 bewirkt sowohl bei einem 400 Zellen- als auch bei einem 200 Zellenstapel die Verschiebung des optimalen Verhältnisses zu 1:1,05.

### 15 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

Mit geringem Druckverlust der Brennstoffzellen im Stapel sind größere hydraulische Durchmesser der Wasserstoffhauptkanäle für eine optimale Verteilung notwendig. Ein 15 mm großer Einlasshauptkanal ermöglicht bei einem 300 Zellenstapel mit 800 A Stromstärke und einer Stöchiometrie von 2,0 bei einem Druckverlust von nur 113 mbar eine Minimalverteilung von 0,9797 bei einem Auslasshauptkanaldurchmesser von 17 mm. Dieses optimale Verhältnis von 1:1,13 für den 15 mm Einlasshauptkanal ist, wie für den 10 mm Hauptkanal gezeigt, im Bereich der Auflösung der Hauptkanaldurchmesser unabhängig von der Zellanzahl und Stromstärke. Eine Reduzierung der Stromstärke auf 400 A verbessert die Minimalverteilung aufgrund der

geringeren Gasmenge auf 0,9914 bei 105 mbar Druckverlust. Bei einem Stapel mit 200 Zellen verbessert sich die Verteilung bei 800 A, Stöchiometrie 2,0 und 76 mbar auf 0,9839. Eine Erhöhung der Zellanzahl reduziert die Minimalverteilung bei 120 mbar auf 0,9678.

Einen Einfluss auf das optimale Hauptkanalverhältnis hat die Stöchiometrie des Anodengases. Mit sinkender Stöchiometrie sinkt der Massenstrom im Auslasshauptkanal. Um eine konstante statische Druckdifferenz über die Zellen des Stapels zu erzielen, muss der hydraulische Durchmesser des Auslasshauptkanals reduziert werden, um die Anteile an Reibverlusten und dynamischem Druck zu erhöhen und an den Einlasshauptkanal anzupassen.

Das optimale Verhältnis bei einer Stöchiometrie von 1,5 und dem 15 mm Einlasshauptkanaldurchmesser liegt bei 1:1,07 (16 mm Auslasshauptkanaldurchmesser). Die Minimalverteilung verbessert sich durch den geringen Massenstrom und liegt bei einem 300 Zellstapel mit 800 A und 105 mbar Druckverlust bei 0,9885.

### **Designrichtlinie Anodenhauptkanal**

Der Anodenhauptkanal muss eine gleichmäßige Verteilung des Reaktionsgases über den Brennstoffzellenstapel sicherstellen. Die Größe des Hauptkanals richtet sich nach der Gasmenge und Zellanzahl des Stapels sowie des Druckverlusts der Brennstoffzellen im Stapel. Dabei gibt es für die Hauptkanäle ein optimales Verhältnis der hydraulischen Durchmesser von Ein- und Auslass. Dieses optimale Verhältnis ist dabei abhängig von der Größe des Einlasshauptkanals und der Änderung der Gasmenge zwischen Ein- und Auslass aufgrund der Stöchiometrie und des Stickstoffanteils. Bei geringen Druckverlusten unter 200 mbar und mehr als 200 Zellenstapeln und hohen Stromstärken empfiehlt sich ein hydraulischer Durchmesser des Einlasshauptkanals von 15 mm. Je nach Stöchiometrie des Reaktionsgases sollte der Auslasshauptkanal um den Faktor 1,07 bis 1,13 größer sein.

Mit größerem Druckverlust der Brennstoffzellen im Stapel kann der Einlasshauptkanal verkleinert werden. Bei einem 10 mm Einlasshauptkanaldurchmesser liegt das optimale Hauptkanalverhältnis bei 1:1,05 bis 1:1,15.

Die vorgestellte Designrichtlinie für den Anodenhauptkanal ermöglicht eine genauere Abschätzung des Platzbedarfs der Hauptkanäle auf der Bipolarplatte für eine optimale Verteilung. Je nach Betriebsbedingungen und exakter Zellanzahl des Brennstoffzellenstapels kann das Verhältnis leicht von dem vorgestellten Bereich abweichen und bedarf daher in jedem Fall einer Überprüfung mittels CFD-Simulation.

#### **3.4.4 Kühlmittelhauptkanal**

Die Kühlmittelkanäle des Brennstoffzellenstapels werden typischer Weise von einem Gemisch aus Wasser und Frostschutzmittel durchströmt. Das Frostschutzmittel verhindert das Gefrieren des Kühlmittels bei Temperaturen unter 0 °C und damit das eventuelle Platzen oder Brechen der Bipolarplatten durch die Volumenzunahme beim Verfestigen des Kühlmittels.

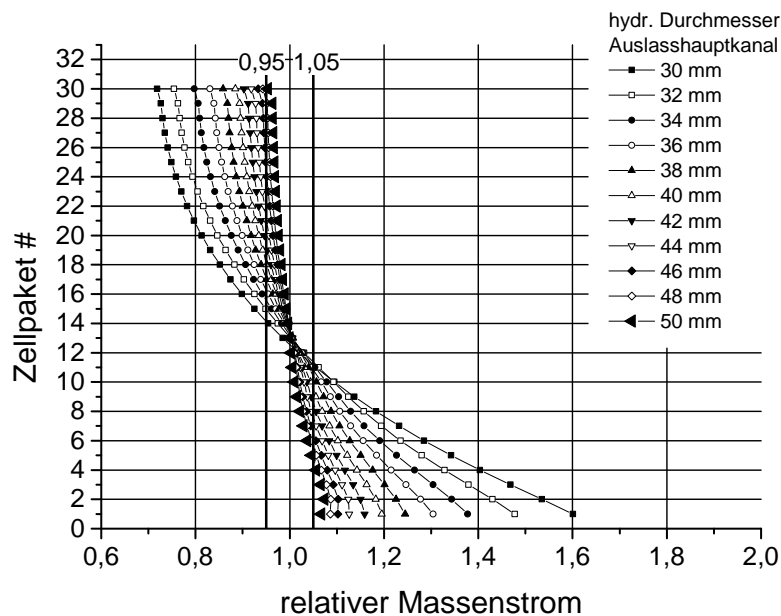
In diesem Kapitel wird die Durchströmung des Brennstoffzellenstapels mit Glysantin® FC G20-00/50 der Firma BASF simuliert. Die Verwendung des Glysantins® ermöglicht in der Pra-

xis Froststarts des Brennstoffzellensystems aus unter  $-25\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Aufgrund der hohen Dichte des Glysantins<sup>®</sup> von  $1034\text{ kg/m}^3$  und den geringen Strömungsgeschwindigkeiten im Hauptkanal von unter  $10\text{ m/s}$  strömt das Kühlmittel laminar in den Hauptkanälen.

Untersucht wird die Verteilung für das Kühlmittel über den Brennstoffzellenstapel aufgrund der hydraulischen Hauptkanaldurchmesser und des Druckverlusts in der Brennstoffzelle für eine Einlasstemperatur des Glysantins<sup>®</sup> von  $70\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Innerhalb der Zellpakete des Stapelmodells wird die Temperaturzunahme durch die elektrochemische Reaktion nachgebildet. Um eine Überhitzung in den Brennstoffzellen zu ausschließen, darf eine Brennstoffzelle mit nicht weniger als 95 % der Sollkühlmittelstroms durchströmt werden. Diese Anforderung wird im folgenden als 5 %-Kriterium bezeichnet und beschreibt die Kombinationen, in denen der mittlere Massenstrom um nicht mehr als 5 % unterschritten wird.

### 30 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

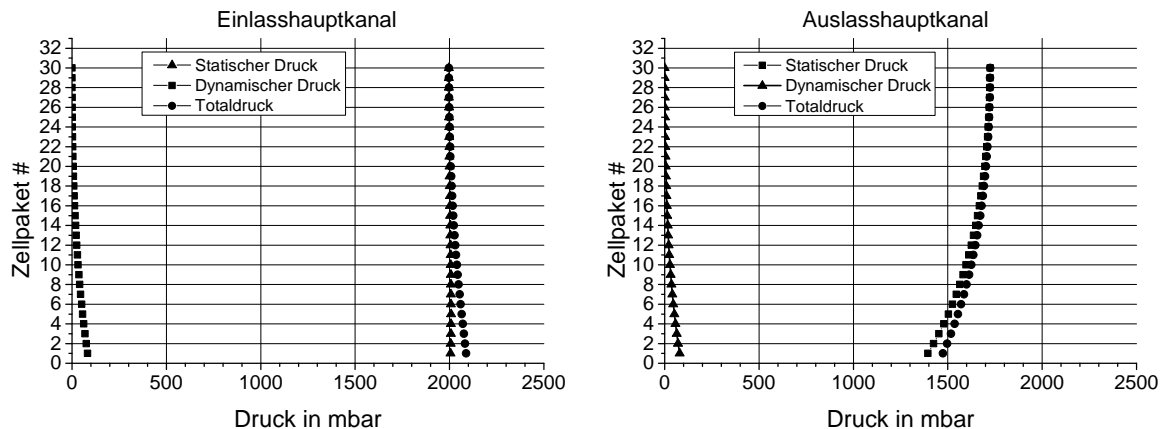
In einen Brennstoffzellenstapel mit 300 Einzelzellen, die durch 30 Zellpakete abgebildet werden, wird die Verteilung des Kühlmittels für einen hydraulischen Durchmesser des Einlasshauptkanals von 30 mm untersucht, um das optimale Verhältnis der Hauptkanäle zu bestimmen. Abbildung 3.62 zeigt die Verteilung des Kühlmittels über den Stapel mit 300 Zellen bei einem Druckverlust der Einzelzelle von 375 mbar und einem Temperaturanstieg von 12 K.



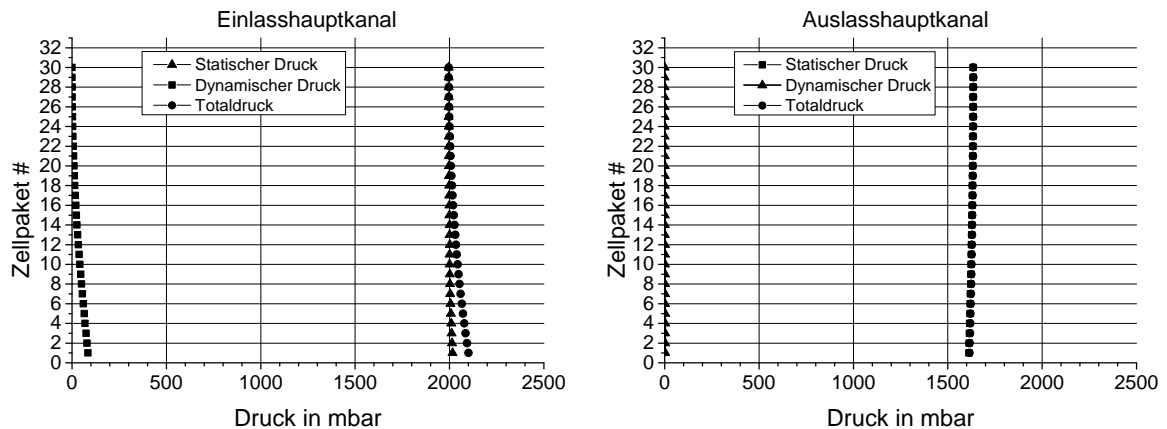
**Abbildung 3.62:** Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 375 mbar Druckverlust des Zellpakets

Bei gleich großen hydraulischen Einlass- und Auslasshauptkanaldurchmesser entsteht über den Stapel eine sehr große Ungleichverteilung. Das erste Zellpaket wird mit ca. 160 % des mittleren Massenstroms durchströmt, während das letzte Zellpaket nur mit ca. 70 % durchströmt wird.

Mit steigendem hydraulischen Durchmesser verbessert sich die Verteilung des Kühlmittels über den Brennstoffzellenstapel aufgrund der geringeren Reibungsverluste im Auslasshauptkanal und der damit verbundenen homogeneren statischen Druckdifferenz über die Zellpakete. Die Abbildungen 3.63 und 3.64 zeigen die Druckverläufe entlang des Stapels für die Kombinationen aus 30 mm Einlasshauptkanal und 30 mm Auslasshauptkanal und 30 mm Einlasshauptkanal und 50 mm Auslasshauptkanal.



**Abbildung 3.63:** Druckverläufe entlang des Kühlmittelhauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 30 mm und Auslass 30 mm



**Abbildung 3.64:** Druckverläufe entlang des Kühlmittelhauptkanäle bei 300 Zellen und hydr. Hauptkanaldurchmessern von Einlass 30 mm und Auslass 50 mm

Im Einlasshauptkanal heben sich unabhängig von der Größe des Auslasshauptkanals die Änderungen des dynamischen Drucks und die Reibungsverluste annähernd auf, so dass es zu einem sehr konstanten Verlauf des statischen Druck entlang des Einlasshauptkanals kommt. Die Größe des hydraulischen Auslasshauptkanaldurchmesser entscheidet damit über die Qualität der Verteilung des Kühlmittels über den Brennstoffzellenstapel. Nur wenn auch im Auslasshauptkanal ein nahezu konstanter statischer Druckverlauf erzielt wird, kommt es zu einer homogenen Gleichverteilung.

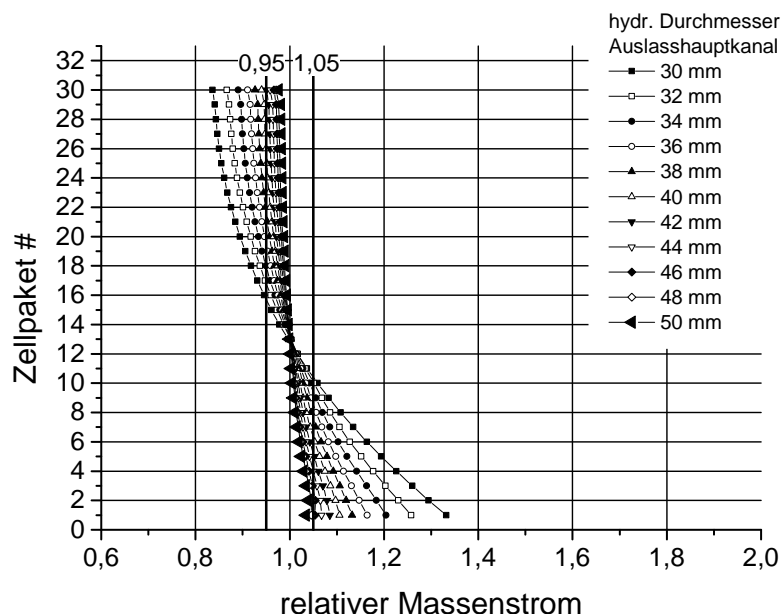
Im Gegensatz zum Einlasshauptkanal können sich die Änderungen des dynamischen Drucks und die Reibungsverluste nicht gegenseitig aufheben. Durch die Zunahme des Massenstroms

entlang des Hauptkanals von Zellpaket 30 zu Zellpaket 1 steigen sowohl die Reibungsverluste als auch der dynamische Druckanteil. Für das optimale Verhältnis bedeutet das bei dem 30 mm Einlasshauptkanaldurchmesser einen unendlich großen Auslasshauptkanaldurchmesser, um die Reibungsverluste und den dynamischen Druckanteil zu minimieren und somit einen konstanten statischen Druckverlauf zu erzielen.

Für das in Abbildung 3.62 gezeigte Beispiel ist der Druckverlust in den Zellpaketen mit 375 mbar sehr gering. Nur die Kombination aus 30 mm Einlass- und 50 mm Auslasshauptkanal erfüllt die Anforderung an die Minimalverteilung von  $>95\%$ .

Der Einfluss der Eigenschaftsänderung des Kühlmittels durch den Temperaturanstieg der elektrochemischen Reaktion auf die Verteilung über den Brennstoffzellenstapel ist negativ. Das Ergebnis aus Abbildung 3.62 verschlechtert sich für die beste Minimalverteilung für den 50 mm Auslasshauptkanal von 0,9539 für 12 K Temperaturanstieg und 375 mbar Druckverlust der Zellpakete auf 0,9355 bei 369 mbar und 24 K Temperaturanstieg. Die geringere Dichte bei höheren Temperaturen lässt die Strömungsgeschwindigkeit ansteigen, so dass dynamischer Druckanteil und Reibungsverluste steigen.

Eine Erhöhung des Druckverlusts der Zellpakete verbessert die Verteilung des Kühlmittels über den Stapel. In Abbildung 3.65 ist die Verteilung über einen 300 Zellenstapel bei einem Druckverlust der Einzelzelle von 709 mbar und einem Temperaturanstieg von 12 K dargestellt. Die Minimalverteilung für den 50 mm Auslasshauptkanal liegt bei 0,9764. Das 5 %-Kriterium wird bereits ab einem hydraulischen Auslasshauptkanaldurchmesser von 43 mm eingehalten.

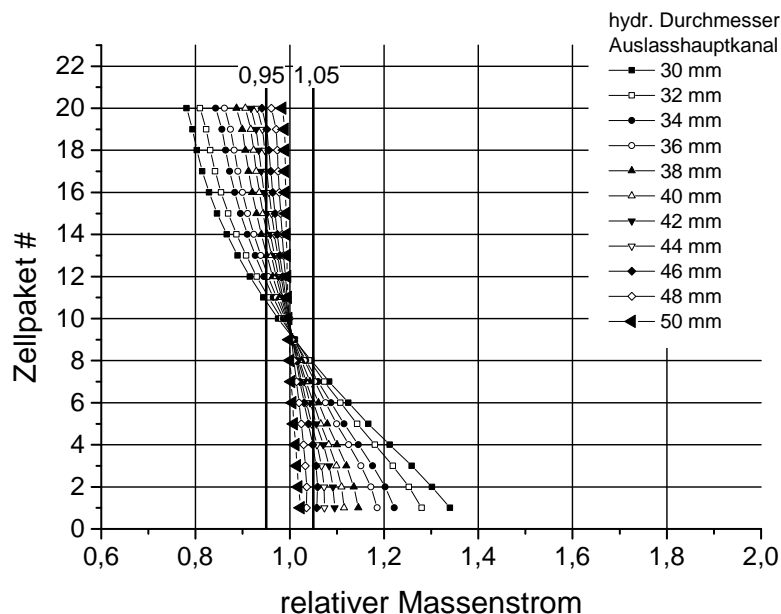


**Abbildung 3.65:** Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 709 mbar Druckverlust des Zellpakets



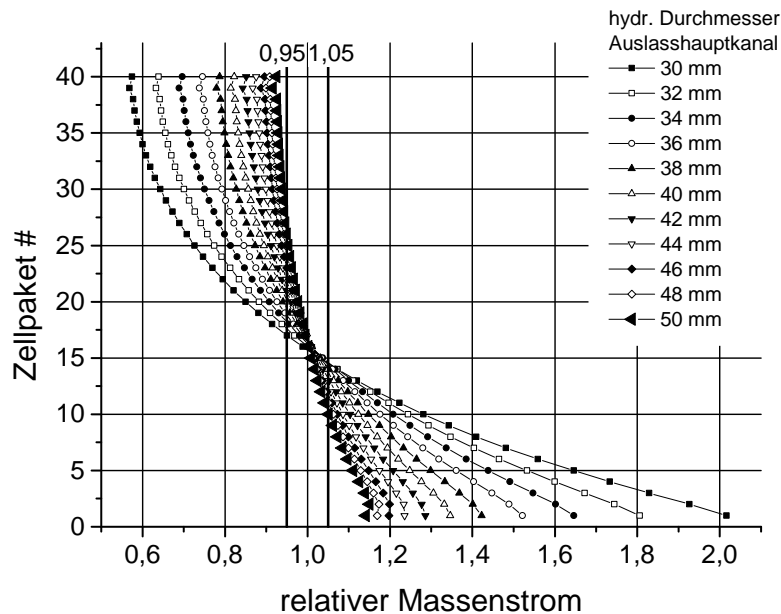
Eine weitere Steigerung des Zellpaketedruckverlusts auf 1040 mbar verbessert die Minimalverteilung weiter, für der 50 mm Auslasshauptkanal auf 0,9841. Das 5 %-Kriterium wird bereits ab 39 mm Auslasshauptkanaldurchmesser eingehalten.

Eine Reduzierung der Zellanzahl ändert die qualitativen Verläufe der Drücke in den Hauptkanälen nicht. Die geringere Strömungsgeschwindigkeit aufgrund des geringeren Massenstroms durch die geringere Zellanzahl erzeugt einen geringeren Reibungsverlust und einen geringeren dynamischen Druckanteil am Gesamtdruck. Die Unterschiede in der statischen Druckdifferenz über die Zellpakete sind geringer. Abbildung 3.66 zeigt die Verteilung über einen Stapel mit 200 Zellen bei einem Druckverlust der Einzelzelle von 372 mbar und einem Temperaturanstieg von 12 K. Die beste Minimalverteilung von 0,9713 wird weiterhin bei 50 mm Auslasshauptkanaldurchmesser erzielt. Ab einem hydraulischen Hauptkanaldurchmesser von 42 mm wird das 5 %-Kriterium eingehalten.



**Abbildung 3.66:** Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 200 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 372 mbar Druckverlust des Zellpakets

Die Erhöhung der Zellanzahl bewirkt den gegenteiligen Effekt. Die Strömungsgeschwindigkeit in den Gaskanälen steigt, die Anteile für dynamischen Druck und Reibungsverluste steigen und die Änderungen in der statischen Druckdifferenz über die Zellpakete werden größer. In Abbildung 3.67 ist der Verlauf über einen 400 Zellenstapel bei einem Druckverlust der Einzelzelle von 404 mbar und einem Temperaturanstieg von 12 K dargestellt. Der größte Auslasshauptkanal von 50 mm erzeugt die beste Minimalverteilung von nur noch 0,9202. Ein erhöhter Druckverlust von 741 mbar über die Einzelzelle verbessert die Minimalverteilung für 50 mm Auslasshauptkanaldurchmesser auf 0,9573. Das 5 %-Kriterium wird dabei schon ab 48 mm Auslasshauptkanal eingehalten.



**Abbildung 3.67:** Verteilung des Kühlmittels bei 30 mm Einlass, 400 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 404 mbar Druckverlust des Zellpakets

Durch die Besonderheit, dass es kein optimales Verhältnis der hydraulischen Durchmesser der Einlass- und Auslasshauptkanäle gibt und der größte Einflussfaktor der Druckverlust der Bipolarplatte ist, muss die Gleichverteilung des Kühlmittels über den Druckverlust des Kühlmittels in den Bipolarplatten erzeugt werden.

Ein 30 mm großer Einlasshauptkanal ist nur für Brennstoffzellenstapel mit hohem Druckverlust und/oder geringer Zellanzahl des Stapels geeignet.

### 35 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

Mit einem größeren hydraulischen Durchmesser der Hauptkanäle sinkt die Strömungsgeschwindigkeit des Kühlmittels und die Anteile für dynamischen Druck und Reibungsverluste sinken. Die Änderung des statischen Drucks entlang der Hauptkanäle wird im Vergleich zur statischen Druckdifferenz über die Zellpakete kleiner und die Minimalverteilung verbessert sich.

Im folgenden wird der Einfluss eines 35 mm großen Einlasshauptkanals auf die Verteilung des Kühlmittels auf einen Brennstoffzellenstapel untersucht. Analog zur Verteilung mit dem 30 mm Einlasshauptkanal gibt es auch bei 35 mm Einlasshauptkanal kein optimales Verhältnis der hydraulischen Hauptkanaldurchmesser. In Abbildung 3.68 ist die Verteilung des Kühlmittels über einen 300 Zellenstapel bei einem Druckverlust der Einzelzelle von 490 mbar und einem Temperaturanstieg von 12 K dargestellt. Die höchste Minimalverteilung wird für den größten betrachteten Auslasshauptkanal von 65 mm mit 0,9860 erzielt. Ab einem Durchmesser von 45 mm wird das 5 %-Kriterium eingehalten.

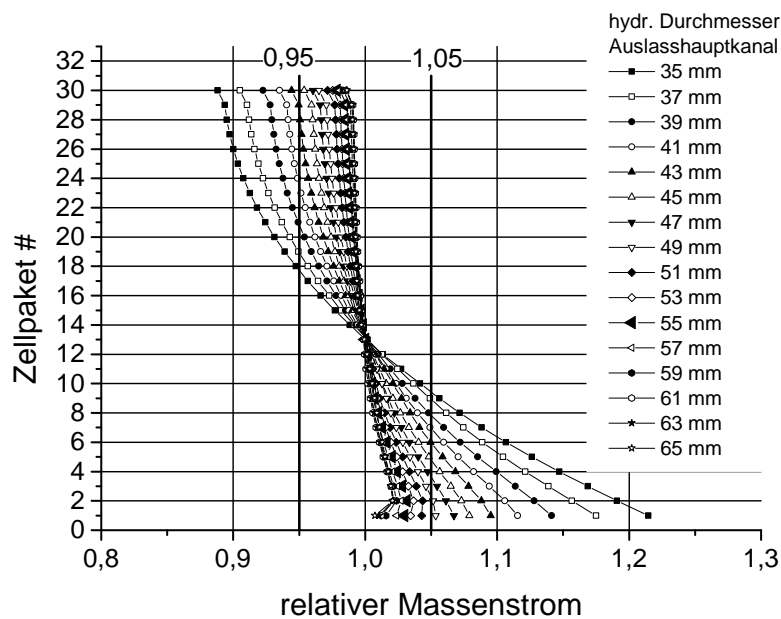
Eine Erhöhung des Kühlmitteldruckverlusts in den Bipolarplatten auf 709 mbar verbessert die Minimalverteilung für den 65 mm Auslasshauptkanal auf 0,9905 und bereits ab 40 mm wird

das 5 % Kriterium eingehalten.

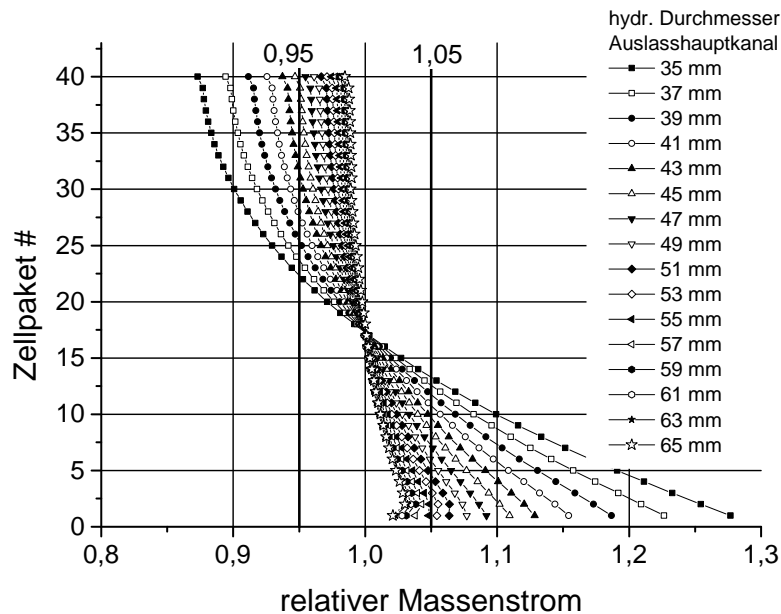
Die Reduzierung der Zellanzahl im Brennstoffzellenstapel bewirkt auch bei 35 mm Kühlmiteleinlasshauptkanal eine Verbesserung der Minimalverteilung. Durch die geringe Strömungsgeschwindigkeit sinken der Anteil des dynamischen Drucks und der Reibungsverluste am Gesamtdruck im Hauptkanal. Bei einem 200 Zeller mit 590 mbar Druckverlust der Zellpakete liegt die Minimalverteilung mit 65 mm Auslasshauptkanal bei 0,9812 und ab 40 mm wird das 5 % Kriterium eingehalten.

Die Erhöhung der Zellanzahl hat den gegenteiligen Effekt. Für einen 400 Zellenstapel mit 499 mbar liegt die Minimalverteilung für 65 mm bei 0,9763 und erst ab 51 mm wird das 5 %-Kriterium eingehalten.

Um mit einem 35 mm Einlasshauptkanal und 400 Zellen im Stapel eine gute Gleichverteilung zu erzielen, muss der Druckverlust in den Bipolarplatten erhöht werden. Abbildung 3.69 zeigt die Verteilung für einen 400 Zellenstapel mit 737 mbar. Das 5 %-Kriterium kann dabei ab einem Auslasshauptkanaldurchmesser von ca. 48 mm eingehalten werden.



**Abbildung 3.68:** Verteilung des Kühlmittels bei 35 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 490 mbar Druckverlust des Zellpakets



**Abbildung 3.69:** Verteilung des Kühlmittels bei 35 mm Einlass, 400 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 737 mbar Druckverlust des Zellpakets

Der 35 mm Kühlmiteleinlasshauptkanal ist geeignet, um bei einem mittelhohen Druckverlust des Kühlmittels in der Bipolarplatte um ca. 500 mbar eine gute Verteilung über den Stapel zu ermöglichen, ohne dass der Auslasshauptkanal mehr als den Faktor 1,5 größer sein muss. Mit hohen Druckverlusten der Bipolarplatte kann auch bei Zellanzahlen von 400 das 5 %-Kriterium eingehalten werden.

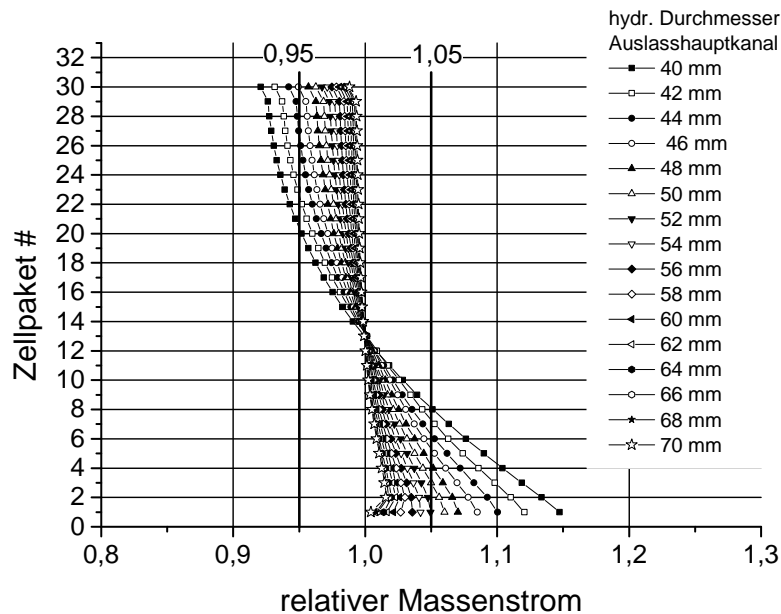
#### 40 mm hydraulischer Einlasshauptkanaldurchmesser

Um auch bei mittleren und geringen Druckverlusten des Kühlmittels in der Bipolarplatte und bei hohen Zellanzahlen im Stapel eine gute Verteilung bei möglichst kleinem Auslasshauptkanal zu erzielen, wird der 40 mm Einlasshauptkanal betrachtet.

Bei einem 300 Zellenstapel mit 491 mbar Druckverlust liegt die höchste Minimalverteilung beim größten betrachteten Auslasshauptkanal von 70 mm von 0,9881. Ab 46 mm Auslasshauptkanaldurchmesser wird das 5 %-Kriterium eingehalten. Abbildung 3.70 zeigt die Verteilung des Kühlmittels über die Zellpakete des Stapels.

Im Vergleich zu dem 35 mm Einlasshauptkanal-Beispiel mit 490 mbar ist der Gewinn an Gleichverteilung minimal. Zusätzlich benötigt der 40 mm Einlasshauptkanal mehr Platz sowohl im Einlass- als auch im Auslass als der 35 mm Einlasshauptkanal, bei dem ab 45 mm das 5 %-Kriterium eingehalten wird (vgl. Abb. 3.68).

Eine geringere Zellanzahl verbessert die Gleichverteilung auch beim 40 mm Einlasshauptkanaldurchmesser. Für einen 200 Zeller mit 550 mbar Druckverlust in den Zellpaketen bei



**Abbildung 3.70:** Verteilung des Kühlmittels bei 40 mm Einlass, 300 Zellen, 12 K Temperaturanstieg und 491 mbar Druckverlust des Zellpakets

12 K Temperaturdifferenz kann bereits ab einem Auslasskanaldurchmesser von 41 mm das 5 %-Kriterium eingehalten werden.

Für einen 400 Zellenstapel mit 500 mbar Druckverlust in den Zellpaketen und 12 K Temperaturanstieg kann erst ab einem Auslasshauptkanaldurchmesser von 58 mm das 5 %-Kriterium eingehalten werden. Damit ist bei einer erhöhten Zellanzahl keine Verbesserung gegenüber dem 35 mm Einlasshauptkanal hinsichtlich des Platzbedarfs auf der Bipolarplatte vorhanden.

### Designrichtlinie Kühlmittelhauptkanal

Für den Kühlmittelhauptkanal gibt es aufgrund der Besonderheit, dass sich im Einlasshauptkanal die dynamische Druckänderung und die Reibungsverluste gerade gegenseitig aufheben und somit ein nahezu konstanter statischer Druckverlauf im Einlasshauptkanal herrscht, kein optimales Verhältnis zwischen Einlass- und Auslasshauptkanaldurchmesser.

Je größer der Auslasshauptkanal im Vergleich zum Einlasshauptkanal ist, desto besser wird die Gleichverteilung des Kühlmittels. Über die Größe des Einlasshauptkanals und den Druckverlust des Kühlmittels in der Bipolarplatte kann die Qualität der Verteilung beeinflusst werden.

Bei einem kleinen Einlasshauptkanal von 30 mm sind entweder sehr große Auslasshauptkanäle, hohe Druckverluste (ca. 700 mbar) in den Bipolarplatten oder eine geringere Zellanzahl (um 200) im Stapel nötig, um das 5 %-Kriterium einzuhalten.

Mit einem 35 mm Einlasshauptkanal kann bereits ab 500 mbar und einem Auslasshauptkanal von 45 mm für einen 300 Zellenstapel das 5 %-Kriterium eingehalten werden. Für einen Stapel mit 400 Zellen sind Druckverluste um 700 mbar nötig, um mit einem Auslasshauptkanaldurchmesser ab 48 mm die Gleichverteilung zu gewährleisten.

Eine weitere Vergrößerung des Einlasshauptkanals auf 40 mm hat keinen Vorteil gegenüber dem

---

35 mm Einlasshauptkanal bezüglich des benötigten Platzes auf der Bipolarplatte und des nötigen Druckverlusts des Kühlmittels in den Bipolarplatten.

## 4 Simulation und Versuch

In diesem Kapitel wird das Verhalten von PEM-Brennstoffzellen simulativ und experimentell untersucht. Zur Reduzierung der Kosten bei der Validierung von Flussfelddesigns mittels Prototypen wird gezeigt, dass das Strom-Spannungs-Verhalten einer automobilen Brennstoffzelle auch in Abschnitten mittels Laborzellen und CFD-Simulation nachgebildet werden kann.

Im zweiten Teil werden die gasführenden Bereich eines vorhandenen Brennstoffzellenkonzepts auf eine Stromdichte von  $2,0 \text{ A/cm}^2$  unter Berücksichtigung der Designrichtlinien ausgelegt und simulativ und experimentell untersucht.

### 4.1 Laborzellen

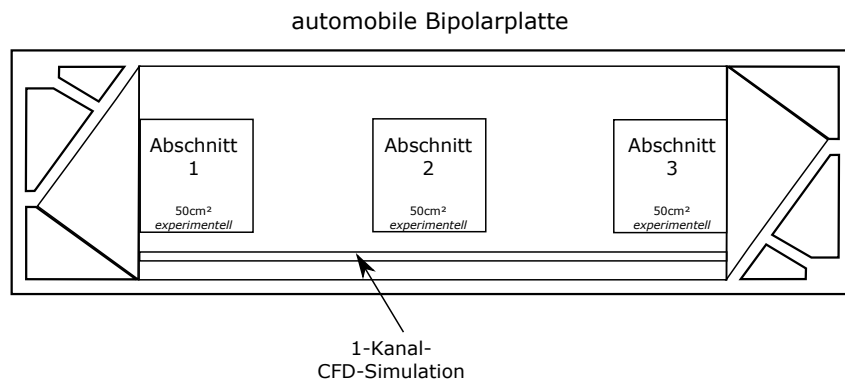
Zur Validierung der Auslegung der Bipolarplatte werden die Unipolarplatten der Anode und Kathode häufig als Einzelstücke aus Graphitkomposit gefräst. Je nach Größe der Bipolarplatte und deren Detaillierungsgrad bezüglich der Umformradien und -winkel kosten die Platten mehrere tausend Euro pro Stück. In diesem Kapitel wird evaluiert, ob das mittels CFD-Simulationen vorhergesagte Verhalten der automobilen Brennstoffzelle mittels  $50 \text{ cm}^2$  Laborzellen bestätigt werden kann, um die hohen Kosten der Prototypen zu senken.

Die Laborzellen haben eine quadratische aktive Fläche von  $50 \text{ cm}^2$  und bilden mit ihrer Kanal- und Stegstruktur die der automobilen Brennstoffzelle nach. Der Vorteil der Laborzellen ist die Verwendung eines definierten Konzepts für Verspannung, Dichtung, MEA- und GDL- Größe. In diesem Konzept kann über verschiedene gefräste Unipolarplatten mit individueller Kanal-Steg-Struktur der aktive Bereich jedes Bipolarplattendesigns unabhängig von der Größe der automobilen Bipolarplatte getestet werden. Ein weiterer Vorteil ist, dass die Laborzellen zwischen einigen hundert bis tausend Euro kosten und die Auslegung so kostengünstiger evaluiert werden kann.

#### Methodik

Das Verhalten der automobilen Brennstoffzelle wird mit einer CFD-Simulation bestimmt. Dazu wird ein Kanalpaar aus Wasserstoff- und Luftkanal des aktiven Bereichs simuliert. Aus dem Ergebnis der 1-Kanal-CFD-Simulation werden die Eingangsgrößen für die experimentelle Validierung in den  $50 \text{ cm}^2$  Abschnitten bestimmt. Verglichen wird der Strom-Spannungs-Punkt des Experiments mit dem Mittelwert der CFD-Simulation in dem Abschnitt.

Es werden zwei Paare der  $50 \text{ cm}^2$  Laborzellen aus Graphitkomposit hergestellt. Typ 1 hat eine Kanalbreite von  $0,4 \text{ mm}$  und eine Stegbreite von  $0,2 \text{ mm}$  und Typ 2 eine Kanalbreite von  $0,6 \text{ mm}$  mit einer Stegbreite von  $0,2 \text{ mm}$ . Beide Kanalstrukturen haben eine Kanaltiefe von  $0,3 \text{ mm}$ .



**Abbildung 4.1:** Methodik der Abschnittsvalidierung von automobilen Brennstoffzellen

Als Membran-Elektroden-Einheit wird eine nicht kommerziell erhältliche 18  $\mu\text{m}$  PFSA<sup>10</sup>-Membran mit einem Hochoberflächenkohlenstoff mit ca. 60  $\text{m}^2_{\text{Pt}}/\text{g}_{\text{Kat}}$  und einer Platinbeladung von 0,1  $\text{mg}/\text{cm}^2_{\text{MEA}}$  auf der Anode und 0,4  $\text{mg}/\text{cm}^2_{\text{MEA}}$  auf der Kathode verwendet. Die Elektroden haben eine Dicke von ca. 4  $\mu\text{m}$  auf der Anode und ca. 14  $\mu\text{m}$  auf der Kathode.

Als Gasdiffusionslagen werden ein Papier (GDL A) und ein Vlies (GDL B) verwendet. Die Materialeigenschaften der Gasdiffusionslagen sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Beide Gasdiffusionslagen sind/waren kommerziell erhältlich.

**Tabelle 4.1:** Materialeigenschaften der GDL A und B

Eigenschaft	GDL A	GDL B	Einheit
Substrat	Papier	Vlies	-
Dicke bei 1 MPa	175	145	$\mu\text{m}$
Porosität Substrat bei 1 MPa	0,76	0,74	-
Porosität MPL bei 1 MPa	0,69	0,71	-
elektr. Widerstand bei 1 MPa	13,04	15,65	$\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$
Permeabilität in-plane bei 1 MPa	2,90	1,05	$10^{-12} \text{ m}^2$
E-Modul	880	1705	MPa
G-Modul	5,05	4,01	MPa

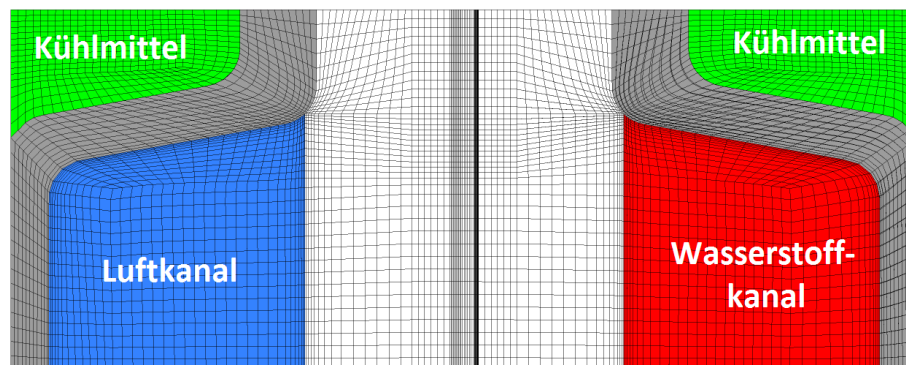
### CFD-Simulation

Das Verhalten der Kombinationen aus den Kanalstrukturen Typ 1 und Typ 2 sowie den Gasdiffusionslagen A und B wird mittels CFD-Simulation untersucht. Als CFD-Programm wird das Brennstoffzellenmodul von ANSYS Fluent mit der Erweiterung von Scholz [73] verwendet. Abweichend zu den Kinetikparametern von Scholz wird für die Kathodenkatalysatorschicht eine Referenz-Austauschstromdichte von  $6,66 \cdot 10^{-4} \text{ A}/\text{m}^2_{\text{PT}}$  verwendet.

<sup>10</sup> Chemically stabilized perfluorosulfonic acid.



Simuliert wird jeweils ein halber Kanal mit halber Stegbreite und Symmetrierandbedingungen mit einer Länge von 23,5 cm. In Abbildung 4.2 ist der Querschnitt durch das Rechennetz für den 0,6 mm Kanal mit der GDL A dargestellt. Bei der galvanostatischen Simulation im Kanal eine mittlere Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  vorgegeben und die Zellspannung bestimmt. Die Betriebsbedingungen der Simulation sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Diese sind an die Betriebsbedingungen für die automobilen Zelle aus Kapitel 4.2 angepasst. Aufgrund der Luftkühlung der Laborzellen und der hohen Stromdichte mussten die Eintrittstemperaturen der Reaktionsgase angehoben werden, um einen stationären Betriebspunkt am Prüfstand einstellen zu können.



**Abbildung 4.2:** Querschnitt durch das Rechennetz der CFD Einkanalsimulation mit 0,6 mm Kanal und GDL A

**Tabelle 4.2:** Betriebsbedingungen CFD-Einkanalsimulation bei  $2 \text{ A/cm}^2$

Parameter	Anode	Kathode	Einheit
Druck	2,5	2,5	bar absolut
Stöchiometrie	2	2	-
relative Feuchte	60	60	%
Molanteil $\text{H}_{2,\text{trocken}}$	90	-	%
Eintrittstemperatur	85	80	$^{\circ}\text{C}$

Aus dem Ergebnis der Einkanalsimulation können unter anderem die Verläufe der Stromdichte, Temperatur und Konzentration der Reaktionsgase bestimmt werden, um daraus die Betriebsbedingungen für die experimentelle Abschnittsuntersuchen abzuleiten. Abschnitt 1 bildet den Einlassbereich des Kathodengases nach, Abschnitt 2 die Mitte des simulierten Kanals und Abschnitt 3 den Anodeneinlassbereich. Die Betriebsbedingungen für die drei Abschnitte sind in den Tabellen A.2, A.3 und A.4 in Anhang A.4 dargestellt.

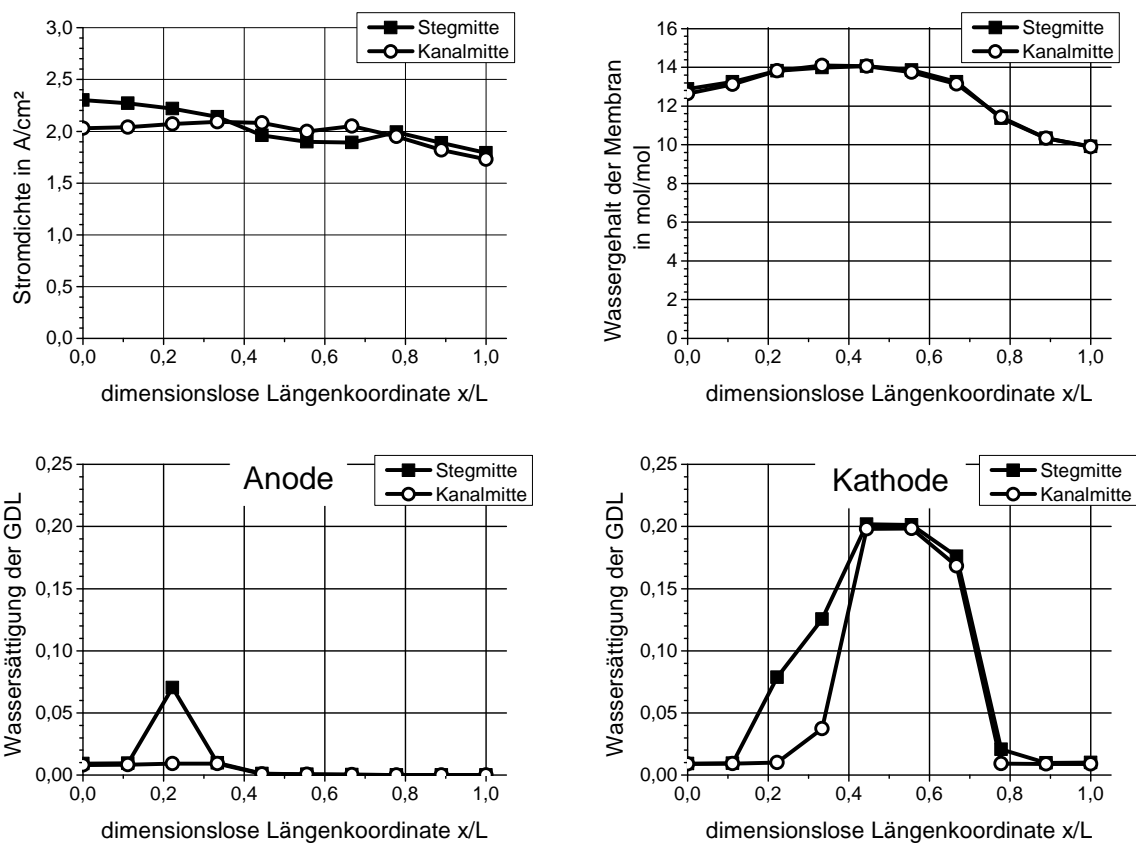
Die Stromdichte und die Temperatur werden in dem jeweiligen Abschnitt gemittelt. Der Mittelwert der Stromdichte wird als Vorgabe für die galvanostatische Messung verwendet. Die Temperatur wird als Mittelwert verwendet, da in den Laborzellen kein Temperaturgradient eingestellt werden kann.

Die Ergebnisse der CFD-Simulationen der vier Kombinationen aus Kanalbreiten und GDLs sind sehr ähnlich. Die Unterschiede entstehen nur durch die Materialeigenschaften der Gasdiffusionslage und den daraus entstehenden Kontaktldrücken. Für die verwendeten Gasdiffusionslagen sind nicht alle Eigenschaftsverhalten bekannt und messbar. Besonders für das Flüssigwassermanagement der MEAs sind keine Messdaten vorhanden, so dass hier auf die Parameter von Scholz [73] zurückgegriffen wird.

Durch die sehr große Ähnlichkeit der Ergebnisse sind in Abbildung 4.3 für den 0,6 mm Kanal mit GDL A beispielhaft die Verläufe entlang des Kanals der Stromdichte, des Membranwassergehalts und der Wassersättigung der GDL-Poren dargestellt. Stegmitte und Kanalmitte bezeichnen den Bereich der Mitte des Kanals und des Steps, die äußersten Bereiche des Rechenmodells.

Die Stromdichte entlang des Kanals im Bereich der Kanalmitte steigt vom Kathodeneinlass (dimensionslose Länge 0) bis ca. 70 % Kanallänge leicht von 2,03 auf 2,1 A/cm<sup>2</sup> an. Ab 70 % Kanallänge bis zum Anodeneinlass (dimensionslose Länge 1) sinkt die Stromdichte auf 1,73 A/cm<sup>2</sup>. Im Bereich der Stegmitte liegt die Stromdichte am Kanalbeginn über der in der Kanalmitte aufgrund des kürzeren elektrischen Leitungswegs und einem leicht höheren Wassergehalt der Membran in dem Bereich. Der Wassergehalt der Membran steigt bis ca. 40 % der Kanallänge von 13 auf 14 mol<sub>H<sub>2</sub>O</sub>/mol<sub>HSO<sub>3</sub><sup>-</sup></sub>. Mit weiterer Kanallänge sinkt der Wassergehalt auf 10 mol<sub>H<sub>2</sub>O</sub>/mol<sub>HSO<sub>3</sub><sup>-</sup></sub>.

Das Einknicken der Stromdichte in der Mitte der Kanallänge erklärt sich durch die Sättigung der hydrophilen Poren der Gasdiffusionslage. Diese fluten beim Erreichen des Sättigungsdampfdrucks und blockieren den Diffusionsweg des Sauerstoffs. Die Stromdichte geht in dem Bereich zurück.



**Abbildung 4.3:** Verlauf der Stromdichte, des Membranwassergehalts und der GDL-Sättigung mit Flüssigwasser entlang des Kanals (0,6 mm, GDL A)

### Experimentelle Abschnittsuntersuchung

Mit den 50 cm<sup>2</sup> Laborzellen wird am Einzelzellenprüfstand das Verhalten der Kombination aus Kanalbreite und GDL der CFD-Simulation nachgemessen. Dazu wird die Zelle mit den Betriebsbedingungen des jeweiligen Abschnitts 20 min konditioniert. Das Platinoxid auf dem Katalysator wird über fünf Potentialsprünge zwischen 0,2 V und 0,6 V entfernt und anschließend die Stromstärke des Abschnitts eingestellt und 5 min gehalten. Die Messwerte der letzten Minute werden als Ergebnis gemittelt.

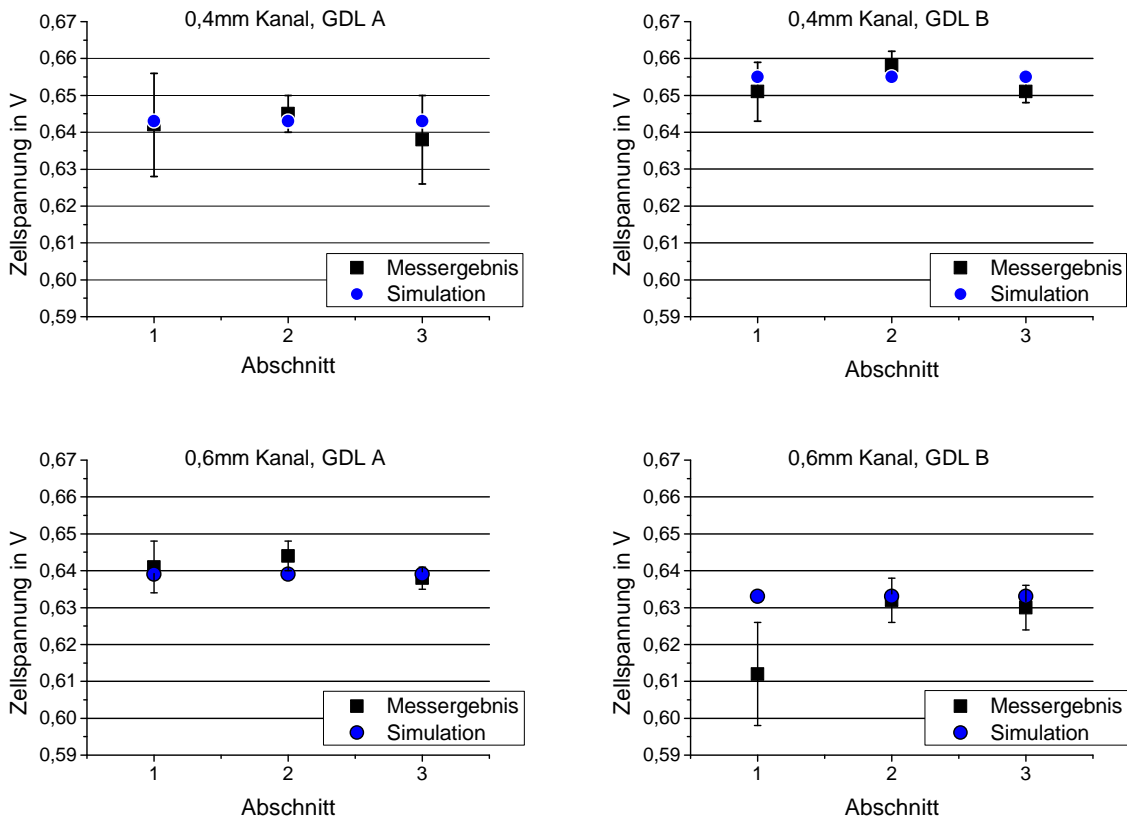
Das Entfernen des Platinoxids und das anschließende Halten sorgen dafür, dass das Platin nur mit der Menge an Platinoxid für das sich einstellende Potential des Abschnitts bedeckt ist. Der Grad der Bedeckung und die Art des Oxids sind dabei vom Potential und den Betriebsbedingungen abhängig [100],[101].

Abbildung 4.4 zeigt die Ergebnisse der Simulationen und Experimente mit den vier Kombinationen aus Kanalbreiten und GDLs. Für die 0,4 mm Kanalbreiten mit den GDLs A und B und die 0,6 mm Kanalbreite mit der GDL A bestehen sehr gute Übereinstimmungen zwischen simulierter und experimentell gemessener Zellspannung. Die experimentell gemessenen Zellspannungen für die gemittelten Stromdichten aus der CFD-Simulation liegen im ersten und dritten Abschnitt unter den Simulationsergebnissen und im zweiten Abschnitt über der simulierten Zellspannung. Grund dafür kann das Wassermanagement der Membran-Elektroden-Einheit und der GDLs, sowie die getroffenen Annahmen für die CFD-Simulation sein. Die Ergebnisse von Simulation und Experiment haben für diese Messungen eine Differenz von maximal 4 mV in den Abschnitten ergeben und liegen innerhalb der Standardabweichung der Messergebnisse. Die Standardabweichung der Messergebnisse ist in den Abschnitten 1 und 3 deutlich größer als in Abschnitt 2. Dieser Effekt wird auf die Befeuchtung der Gase durch den Prüfstand zurückgeführt. In Abschnitt 1 und 3 wird jeweils ein Reaktionsgas mit 60 % Gasfeuchte in die Zelle eingebracht. In Abschnitt 2 haben beide Reaktionsgase relative Gaseintrittsfeuchten von über 85 %.

Der Vergleich der Kanalbreite von 0,6 mm mit der GDL B zeigt in Abschnitt 1 eine Abweichung von 22 mV zwischen Simulation und Experiment. Die geringe Zellspannung wurde durch die Wiederholungsmessungen bestätigt. Als Ursache wird die Flutung des Zwischenraums zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht vermutet. Durch unzureichende Verpressung können zwischen den Schichten Hohlräume entstehen, die sich aufgrund ihrer Größe leichter mit Flüssigwasser füllen [102] und somit die Gasdiffusion behindern. Aufgrund der hohen Stromdichte in diesem Abschnitt von 2,1 A/cm<sup>2</sup> und den Gaseintrittsfeuchten von 100 % Anode und 60 % Kathode ist mit dem Auftreten von Flüssigwasser zu rechnen. Gestützt wird die Annahme durch den gemessenen Hochfrequenzwiderstand, der sich im Vergleich zu Abschnitt 2 nicht ändert, so dass der Effekt nicht auf die Membranleitfähigkeit zurückzuführen ist. Zusätzlich scheint die Flutung nur bei der breiteren Kanalbreite von 0,6 mm aufzutreten.

Generell ist die experimentelle Validierung des Verhaltens des aktiven Bereichs einer großen, automobilen Brennstoffzelle mittels Laborzellen möglich. In den gezeigten Beispielen besteht bis auf eine Ausnahme eine sehr gute Übereinstimmung zwischen CFD-Simulation und Experiment. Neben der Validierung des Designs bietet diese Methode auch die Möglichkeit den Einfluss von Betriebsbedingungen auf das Verhalten der Brennstoffzelle zu untersuchen und einen orts aufgelösten (in der Größe der Abschnitte) Einblick zu erhalten. Entscheidendes Kriterium für die Qualität der Ergebnisse ist dabei die CFD-Simulation. Vor allem die Abbildung der elektrochemischen Reaktionen und des Wassermanagements haben einen großen Einfluss auf die

Genauigkeit der Simulationsergebnisse und damit auf die Eingangsgrößen für die Experimente.



**Abbildung 4.4:** Vergleich der Ergebnisse der Abschnittsuntersuchungen aus Simulation und Experiment

## 4.2 Automobile Brennstoffzelle

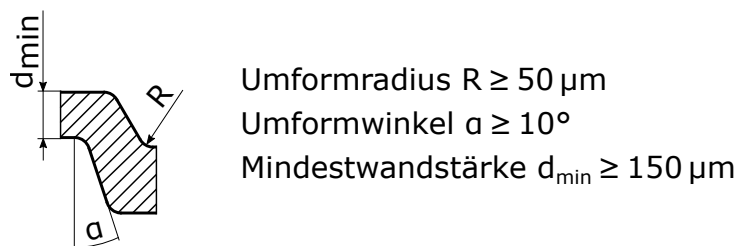
Für die Anwendung der Brennstoffzelle im Kraftfahrzeug werden hohe Stromstärken bevorzugt, um die Anzahl der Einzelzellen im Brennstoffzellenstapel bei gleicher Leistung so gering wie möglich zu halten und damit die Kosten zu senken. Eine weitere Möglichkeit zur Kostenreduktion ist die Erhöhung der Stromdichte der Brennstoffzellen, um die aktive Fläche und damit die Menge an Katalysator zu reduzieren.

In diesem Kapitel werden die gewonnenen Erkenntnisse der Designrichtlinien in einer Bipolarplatte mit  $376 \text{ cm}^2$  aktiver Fläche umgesetzt. Die Kanäle im aktiven Bereich und der Verteilstrukturen werden auf eine Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  ausgelegt und simulativ und experimentell validiert.

### 4.2.1 Design der Bipolarplatte

Die in diesem Kapitel entwickelte Bipolarplatte baut auf einem vorhandenen Design einer Bipolarplatte der Volkswagen AG auf. Die Übernahme des sogenannten footprint<sup>11</sup>, also den äußeren Abmessungen der Brennstoffzelle, der aktiven Fläche und der Größe und Form der Hauptkanäle, ermöglicht die Verwendung der vorhandenen Endplatten, des Spannsystems sowie des Dichtungskonzepts inklusive Membran-Elektroden-Einheit und Gasdiffusionslage. Gleichzeitig entstehen durch die Übernahme Limitierungen im Design der Bipolarplatte (Kanallänge im aktiven Bereich, Kanallängen in den Verteilstrukturen, Position und Größe der Hauptkanäle) durch die vorgegebenen Größen des aktiven Bereichs, der Verteilstruktur und der Hauptkanäle.

Das Design der Kanäle der automobilen Bipolarplatte ist auf eine Herstellung aus gepresstem Graphitkomposit für eine seriennahe Produktion ausgelegt. Die Ausformung der Kanalstruktur durch das Pressen des Graphitkomposits limitiert das Design der Bipolarplatte und stellt Mindestanforderungen an die Umformradien, -schrägen und Wandstärke. In Abbildung 4.5 sind die Umformgrenzen durch das Pressen des Graphitkomposits dargestellt.



**Abbildung 4.5:** Materialumformgrenzen in gepresstem Graphitkomposit

Im Folgenden wird die Auslegung der Kanalstrukturen im aktiven Bereich und der Verteilstruktur erläutert.

#### Kanalstruktur im aktiven Bereich

Der aktive Bereich der Bipolarplatte hat eine Länge von 235 mm und eine Breite von 160 mm, so dass sich eine aktive Fläche von 376 cm<sup>2</sup> ergibt. Mit den in Tabelle 4.3 aufgeführten Betriebsbedingungen und den Umformgrenzen aus Abbildung 4.5 werden die Kanalstrukturen für Anode, Kathode und Kühlmittel auf eine Stromdichte von 2 A/cm<sup>2</sup> ausgelegt.

Die Bipolarplatte entsteht durch das Zusammenfügen der Anoden- und Kathodenhalbplatte. Durch das Zusammenfügen entstehen in den gasabgewandten Seiten der Halbplatten die Kühlmittelkanäle. Die Kühlmittelkanäle sind im Bereich der Stege der Gasseite ausgeformt, um keinen zusätzlichen Raumbedarf für das Kühlmittel zu erzeugen.

Die Auslegung der Kanalstrukturen der Bipolarplatte erfordert die gleichzeitige Berücksichtigung aller drei Medien, um die Anforderungen an Bauraum, Leistungsdichte und Strömungseigenschaften einzuhalten.

<sup>11</sup> Engl. für Fußabdruck.

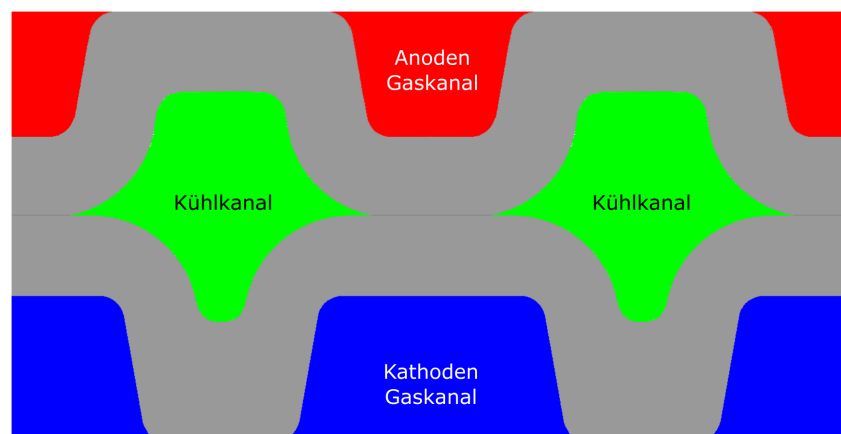
Die Zielgröße der Auslegung sind die Druckverluste im aktiven Bereich der Medien. Für die Anode und Kathode liegt der Zieldruckverlust bei 170 mbar, einem Erfahrungswert bei dem auch bei niedrigen Stromstärken ein stabiler Betrieb ohne eine Erhöhung der Stöchiometrien möglich ist. Der Druckverlust für das Kühlmittel soll unter 350 mbar liegen, um die Leistungsaufnahme der Kühlmittelpumpe zu reduzieren und den Wirkungsgrad des Brennstoffzellensystems zu verbessern.

Das Design der Gaskanäle wird durch den Zielkonflikt möglichst schmaler Kanäle für einen möglichst hohen minimalen Kontaktdruck und möglichst breiten und tiefen Kanälen für einen geringen Druckverlust bestimmt. Gleichzeitig wird der Teillastwirkungsgrad verbessert, wenn auch bei möglichst geringen Stromdichten das Stabilitätskriterium von Jenssen [86] ohne eine Erhöhung der Stöchiometrie eingehalten wird.

**Tabelle 4.3:** Betriebsbedingungen automotiv Bipolarplatte bei 752 A

Parameter	Anode	Kathode	Einheit
Druck	2,5	2,5	bar absolut
Stöchiometrie	2	2	-
relative Feuchte	60	60	%
Molanteil $H_{2, trocken}$	90	-	%
Eintrittstemperatur	82	70	°C

In Abbildung 4.6 ist der Querschnitt eines Ausschnitts der Bipolarplatte im aktiven Bereich dargestellt. Der Anodengaskanalquerschnitt ist rot, der Kathodengaskanalquerschnitt blau und der Kühlmittelkanalquerschnitt grün eingefärbt. Die Wandstärken der Halbplatten betragen  $0,150 \text{ mm}^{12}$ . In Tabelle 4.4 sind die Parameter der Kanalquerschnitte aufgeführt.



**Abbildung 4.6:** Querschnitt durch einen Ausschnitt der Bipolarplatte im aktiven Bereich

<sup>12</sup> Im Bereich der Kathodenhalbplatte erhöht sich die Wandstärke der Halbplatten auf bis zu  $0,230 \text{ mm}$ .

**Tabelle 4.4:** Parameter der Kanalquerschnitte im aktiven Bereich der Bipolarplatte

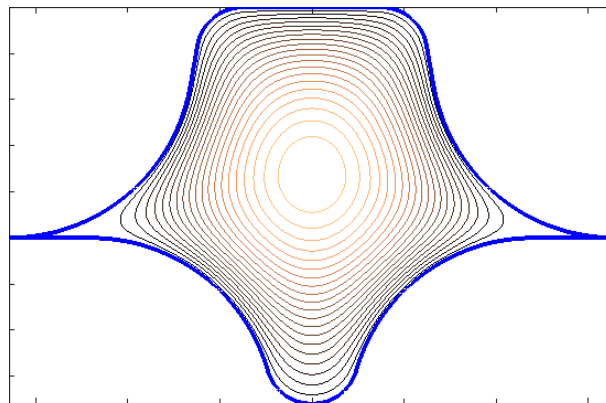
Parameter	Anodengaskanal	Kathodengaskanal
Kanalanzahl	200	200
Stegbreite [mm]	0,410	0,200
Kanalbreite [mm]	0,390	0,600
Kanaltiefe [mm]	0,240	0,280
Umformradius [mm]	0,050	0,050
Umformwinkel [°]	10	10
effekt. hydr. Durchmesser [mm]	0,2471	0,3208

Der Kathodengaskanal hat eine Kanalbreite von 0,600 mm bei einer Kanaltiefe von 0,280 mm. Mit der vorgegebenen Kanallänge von 235 mm, den Betriebsbedingungen aus Tabelle 4.3 und der GDL-Intrusion aus Tabelle 4.5 entsteht ein Druckverlust der Luft im aktiven Bereich von 171 mbar. Die minimalen Reynoldszahl der Luft im Gaskanal liegt bei 397 (vgl. Kapitel 3.2.2). Die Stegbreite von 0,200 mm ist ein Kompromiss aus möglichst geringen Stofftransportverlusten (vgl. Kapitel 3.2.1) und dem Druckverlust des Kühlkanals.

Der Anodengaskanal ist aufgrund der geringeren Gasmenge kleiner als der Kathodengaskanal und hat eine Kanalbreite von 0,390 mm und eine Kanaltiefe von 0,240 mm. Der Gaskanal erzeugt im aktiven Bereich einen Druckverlust von 169 mbar bei einer minimalen Reynoldszahl von 74.

Die Einhaltung der minimalen Wandstärke von  $150\ \mu\text{m}$  definiert die Kühlmittelkanäle in der Anoden- und Kathodenhalbplatte. Die Umformradien im Kühlkanal betragen  $50\ \mu\text{m}$  bzw.  $200\ \mu\text{m}$ . Der effektive hydraulische Durchmesser des kombinierten Kühlmittelkanals der beiden Halbplatten beträgt  $0,3354\ \text{mm}$ , so dass sich ein Druckverlust bei der Durchströmung mit Glysantin von 313 mbar ergibt. In Abbildung 4.7 ist das Geschwindigkeitsprofil der laminaren Fluidströmung im Kühlmittelkanalquerschnitt dargestellt. In dem Bereich, in dem die beiden Plattenhälften aufeinandertreffen, beträgt die Strömungsgeschwindigkeit des Kühlmittels null. Dieser Bereich trägt somit nicht zum effektiven hydraulischen Durchmesser des Kühlmittelkanals bei. Der relativ schmale Kühlmittelhalbkanal in der Kathodenhalbplatte trägt vollständig zur Ausbildung des Strömungsprofils des Kühlmittels bei.

Als Gasdiffusionslage wird die GDL A verwendet, um auf das vorhandene Dichtungskonzept zurückgreifen zu können. Die Wechselwirkungen zwischen Flussfeldstruktur und Gasdiffusionslage sind in Tabelle 4.5 aufgelistet. Der minimale Kontaktdruck zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht liegt mit  $0,325\ \text{MPa}$  auf der Anode und  $0,260\ \text{MPa}$  auf der Kathode deutlich über der Minimalanforderung von  $0,190\ \text{MPa}$ . Bei der Verwendung der dünneren und mechanisch festeren GDL B sinken die minimalen Kontaktdrücke zwischen MPL und CL auf  $0,215\ \text{MPa}$  Anode und  $0,139\ \text{MPa}$  Kathode bei einem mittleren Kontaktdruck zwischen GDL und Kathodensteg von  $1,50\ \text{MPa}$ . Trotz der schmalen Kanalstruktur und dem erhöhten Kontaktdruck zwischen GDL und Steg kann die Anforderung an den minimalen Kontaktdruck zwischen MPL



**Abbildung 4.7:** Geschwindigkeitsprofil der laminaren Fluidströmung im Kühlmittelkanalquerschnitt

und CL auf der Kathode mit der GDL B nicht erreicht werden.

**Tabelle 4.5:** Maximale Intrusion in den Gaskanal und minimaler Kontaktdruck MPL-CL bei 1,0 MPa Kontaktdruck zwischen GDL und Kathodensteg und Verwendung der GDL A

Parameter	Anode	Kathode	Einheit
Intrusion in den Gaskanal	19,9	32,8	$\mu\text{m}$
min. Kontaktdruck MPL-CCM	0,325	0,260	MPa

### Kanalstruktur in den Verteilstrukturen

Die Abmessungen und Positionen der Anoden- und Kathodenverteilstrukturen sind durch die Übernahme des vorhandenen Brennstoffzellenkonzepts vorgegeben. Die Verteilstrukturen haben eine Dreiecksform und versorgen über Kanäle den aktiven Bereich mit Reaktionsgas aus den Hauptkanälen. Die Kanallänge innerhalb jeder Verteilstruktur ist nicht konstant, so dass durch die punktsymmetrische Anordnung der Hauptkanäle die Gesamtlänge der Kanäle in der Bipolarplatte gleich ist. Die Verwendung der MEA mit Subgasket und der GDL A erfordert einen Absatz in der Plattenstruktur von  $150\ \mu\text{m}$  zwischen Verteilstruktur und aktivem Bereich, so dass die Kanäle in den Verteilstrukturen bis zu  $150\ \mu\text{m}$  tiefer sein können als im aktiven Bereich.

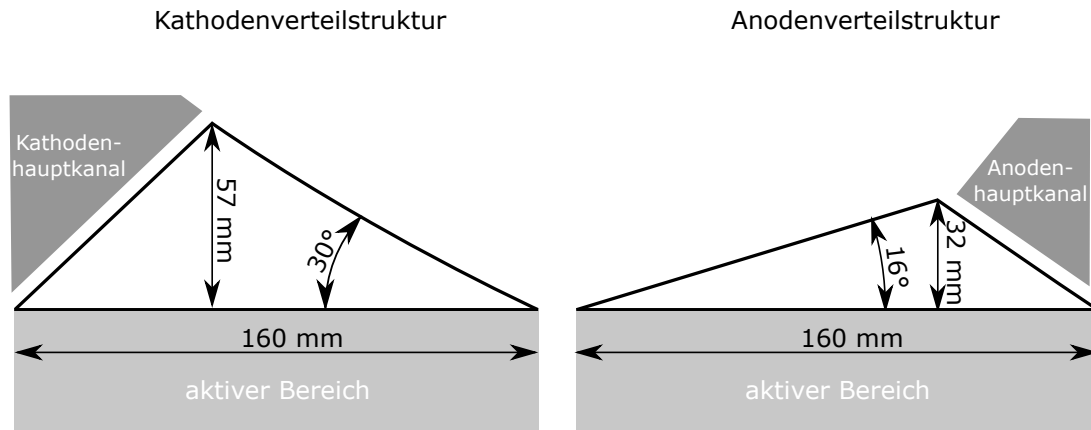
Die Kühlmittelverteilstuktur für dieses Design der Bipolarplatte entsteht durch das Negativ der Anoden- und Kathodenverteilstrukturen. Das Kühlmittel strömt nicht in ebenen Kanälen sondern wellenförmig, abwechselnd in der Anoden- und Kathodenhalbplatte.

Die Herausforderung der homogenen Verteilung der Medien in den aktiven Bereich liegt in der hohen Kanalanzahl im aktiven Bereich und des geringen Platzangebots für die Verteilstrukturen. Wie in Kapitel 3.3 gezeigt wird, ist hauptsächlich das Druckverlustverhältnis der Verteilstruktur zum aktiven Bereich für die Qualität der Gleichverteilung entscheidend. Um den Druckverlust der Verteilstrukturkanäle zu reduzieren, werden mehrere Kanäle des aktiven Bereichs aus einem Verteilstrukturkanal versorgt. Die Kanäle in der Verteilstruktur können breiter werden und deren



hydraulischer Durchmesser steigt.<sup>13</sup>

Gleichzeitig können durch die geringere Kanalanzahl der Anoden- und Kathodenverteilstrukturen auch die dortigen Stegbreiten größer werden, so dass dem Kühlmittel mehr Raum zur Verfügung steht und dessen Druckverlust sinkt.



**Abbildung 4.8:** Größe der Verteilstrukturdreiecke Kathode und Anode der 376 cm<sup>2</sup> Bipolarplatte

Die Kathodenverteilstuktur hat eine Breite von 160 mm zum aktiven Bereich bei einem 30° Winkel vom aktiven Bereich zum Lufthauptkanal. Die maximale Höhe des Kathodenverteilstrukturdreiecks beträgt 57 mm. Versorgt werden die 200 Kanäle des aktiven Bereichs von 50 Kathodenverteilstrukturkanälen mit einer Kanalbreite von 0,874 mm und einer Kanaltiefe von 0,430 mm. Mit den in Tabelle 4.3 dargestellten Betriebsbedingungen erzeugt die Kathodenverteilstuktur eine Minimalverteilung von 98,97 %.

Die Anodenverteilstuktur öffnet sich mit einem Winkel von 16° vom aktiven Bereich zum Wasserstoffhauptkanal bei einer Breite von 160 mm und einer maximalen Höhe von 32 mm. 40 Kanäle mit einer Breite von 0,651 mm und einer Tiefe von 0,390 mm erzeugen eine Minimalverteilung von 98,94 %.

Die Kühlmittelverteilstuktur mit der wellenförmigen Durchströmung wird in dieser Arbeit nicht ausgelegt, da im zeitlichen Rahmen der Arbeit kein komplettes 3D-CAD Modell der Bipolarplatte erstellt werden konnte und somit keine CFD-Rechnung möglich ist. Die Stegbreiten im Anoden- und Kathodenverteilstukturbereich wurden mit 0,8 mm so ausgelegt, dass in den Bereichen Kühlmittelverteilstukturkanäle umgesetzt werden können, mit denen nach Erfahrungswerten eine Gleichverteilung > 95 % erzielt werden kann.

Mit der Auslegung der Kanäle im aktiven Bereich und der Verteilstrukturen kann der mittlere Druckverlust der Gesamtkanäle berechnet werden. Auf der Anode beträgt dieser 209 mbar und auf der Kathode 220 mbar. Aus dem Druckverlust, der Anzahl der Brennstoffzellen im Stapel aufgrund der Leistungsanforderungen und den Betriebsbedingungen kann anschließend die erforderliche Größe der Hauptkanäle bestimmt werden.

<sup>13</sup> Der Druckverlust in den Verteilstrukturkanälen ist proportional zum Volumenstrom und invers proportional zur 4. Potenz des hydraulischen Durchmessers der Kanäle.

**Tabelle 4.6:** Parameter der Kanalquerschnitte in den Verteilstrukturen der Bipolarplatte

Parameter	Anodenverteilstuktur	Kathodenverteilstuktur
Kanalanzahl	40	50
Stegbreite [mm]	0,800	0,800
Kanalbreite [mm]	0,651	0,874
Kanaltiefe [mm]	0,390	0,430
Umformradius [mm]	0,050	0,050
Umformwinkel [°]	10	10
hydr. Durchmesser [mm]	0,4090	0,5090

### Hauptkanäle

Die Form und Lage der Hauptkanäle in der Bipolarplatte wird durch die Übernahme des vorhandenen Konzepts vorgegeben. Die Hauptkanäle haben einen hydraulischen Durchmesser von 22 mm für die Anode, 36 mm für die Kathode und 32 mm das Kühlmittel bei jeweils gleicher Ein- und Auslassgröße. Die großen Hauptkanäle ermöglichen auch bei sehr geringen Druckverlusten der Medien in der Brennstoffzelle eine optimale Gleichverteilung über den Stapel.

Für eine vollständig neu ausgelegte Bipolarplatte ließe sich der Platzbedarf für die Hauptkanäle deutlich reduzieren. Mit den Ergebnissen aus Kapitel 3.4 können für die Vorauslegung beispielhaft die erforderlichen hydraulischen Durchmesser für einen 300 Zellenstapel abgeschätzt werden. Der Druckverlust von 209 mbar der Anodenhälfte ermöglicht die Verwendung eines 10 mm Einlasshauptkanals, der im Zusammenspiel mit einem 11,5 mm Auslasshauptkanal eine Minimalverteilung von 96,32 % erzeugt. Der Druckverlust von 220 mbar auf der Kathode erfordert einen Einlasshauptkanal von 30 mm und entsprechend der Designrichtlinien einen Auslasshauptkanal von 40 mm hydraulischen Durchmessers. Damit ergibt sich für die Luft eine Minimalverteilung von 97,60 % über den Brennstoffzellenstapel. Die Verteilstruktur des Kühlmittels wurde nicht mit ausgelegt, so dass der Kühlmitteldruckverlust nur abgeschätzt werden kann. Erwartet wird ein Druckverlust des Kühlmittels der Bipolarplatte von ca. 490 mbar. Damit sollte der Einlasshauptkanal einen hydraulischen Durchmesser von 35 mm haben, so dass mit einem Auslasshauptkanaldurchmesser von 45 mm die Gleichverteilung für einen 300 Zellenstapel gewährleistet ist.

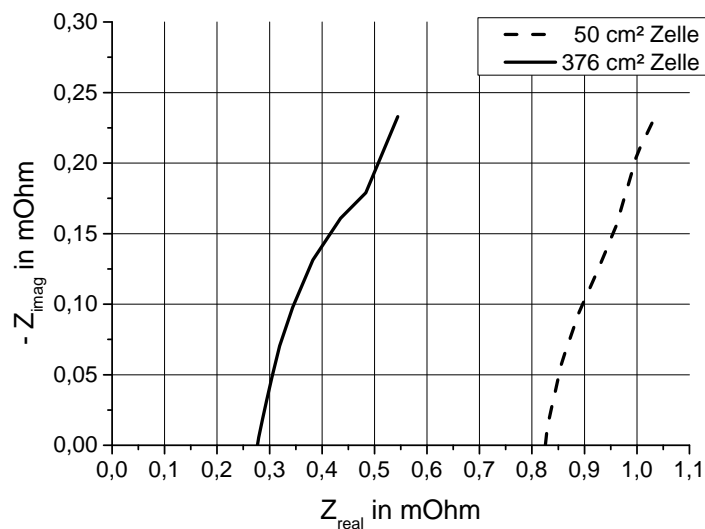
Durch die kleineren Hauptkanäle der Gase wird der Platz für den größeren Kühlmittelhauptkanal gewonnen. Mit dem zusätzlichen Platzgewinn können die Abmessungen der Bipolarplatte bei gleicher Leistung reduziert und damit die Leistungsdichte erhöht werden. Wie in Kapitel 3.4 beschrieben, dient die Designrichtlinie nur für die Vorauslegung der Bipolarplatte und einer ersten genaueren Abschätzung der Größe. Für eine exakte Auslegung der Hauptkanäle in den kleineren Abmessungen müssen die Form der Hauptkanäle und der Dichtungsverlauf mittels CFD-Gleichverteilungssimulation weiter aufeinander optimiert werden.

### 4.2.2 Experimentelle Validierung

Die Kühlung der Einzelzelle erfolgt im Prüfstandsbetrieb über zusätzliche Kühlplatten, die zwischen die Stromabnehmer und die jeweilige Unipolarplatte eingefügt werden. Die Zellspannung wird direkt an den Unipolarplatten gemessen, so dass die Kühlplatten keinen Einfluss auf diese ausüben. Mit den Betriebsbedingungen aus Tabelle 4.3 wird die Strom-Spannungs-Kennlinie der Brennstoffzelle gemessen. Die Messung der Kennlinie wird von hoher elektrischer Stromdichte zu niedriger elektrischer Stromdichte durchgeführt, um den Einfluss des Platinoxids zu minimieren.

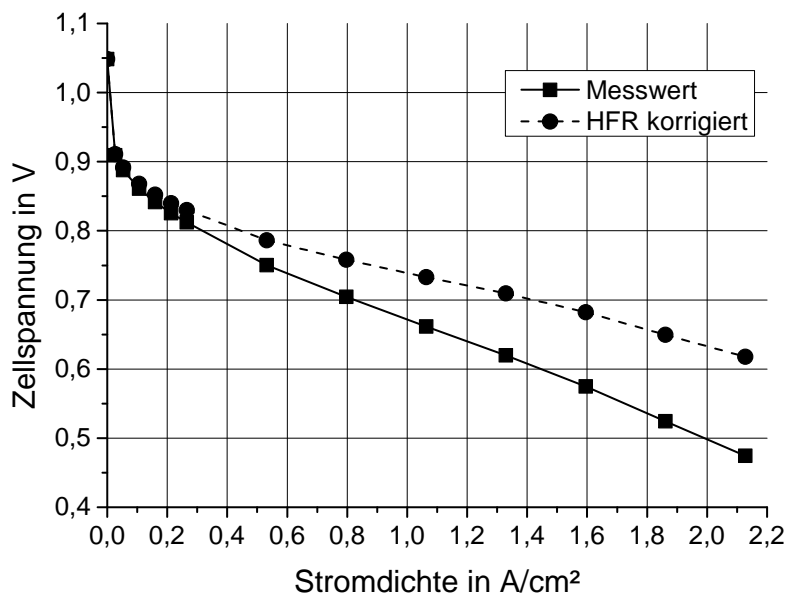
Durch die Aufnahme der Strom-Spannungs-Kennlinie und Messung des Hochfrequenzwiderstands (HFR) mittels Impedanzspektroskopie konnte ein erhöhter elektrischer Widerstand der Einzelzelle bestimmt werden. Nach Rücksprache mit dem Hersteller der Unipolarplatten konnte ein um den Faktor 3-fach erhöhter elektrischer Durchgangswiderstand des Graphitkomposits durch einen Materialwechsel als Ursache identifiziert werden.

In Abbildung 4.9 ist der Nyquistplot der elektrochemischen Impedanzmessungen der 50 cm<sup>2</sup> Zelle mit 0,6 mm breiten Kanälen und 0,2 mm breiten Stegen und der 376 cm<sup>2</sup> Zelle bei 76 °C, 100 % Gaseintrittsfeuchte, GDL A und der gleichen Membran-Elektroden-Einheit. Der Nulldurchgang der Kurven repräsentiert den ohm'schen Widerstand der Brennstoffzellen. Dieser liegt für die 50 cm<sup>2</sup> bei 41 mOhm·cm<sup>2</sup> und für die 376 cm<sup>2</sup> Zelle bei 109 mOhm·cm<sup>2</sup>. Durch die Messung mit 100 % Gaseintrittsfeuchte ist gewährleistet, dass die Membran maximal befeuchtet ist und der Protonenleitwiderstand für beide Zellen vergleichbar ist. Durch die Verwendung von ähnlichen Kanal- und Stegbreiten in der 50 cm<sup>2</sup> Zelle wie in der 376 cm<sup>2</sup> Zelle ist auch der Kontaktwiderstand zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht nahezu identisch. Auch die Anteile durch die GDL A und die Membran-Elektroden-Einheit sind gleich, so dass die gemessene Differenz im Hochfrequenzwiderstand auf das Unipolarplattenmaterial zurückzuführen ist.



**Abbildung 4.9:** Nyquistplot der elektrochemischen Impedanzmessung bei 100 % Gaseintrittsfeuchte und 349 K

Der Hochfrequenzwiderstand der  $50\text{ cm}^2$  Einzelzelle mit  $41\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$  bei  $100\%$  relativer Gasfeuchte mit gleichem MEA und GDL Typ entspricht dem Erwartungswert für automobile Brennstoffzellen. Um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse der  $376\text{ cm}^2$  Zelle mit den  $50\text{ cm}^2$  Zellen und weiteren internen Messungen zu erreichen, wird die gemessene Strom-Spannungs-Kennlinie um die Differenz des Hochfrequenzwiderstands ( $68\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ) korrigiert. Abbildung 4.10 zeigt sowohl die gemessene Strom-Spannungs-Kennlinie als auch die um die HFR-Differenz korrigierte Kennlinie der  $376\text{ cm}^2$  Einzelzelle mit den Betriebsbedingungen aus Tabelle 4.3.



**Abbildung 4.10:** Strom-Spannungs-Kennlinie der  $376\text{ cm}^2$  Einzelzelle

Aufgrund von Limitierungen des Prüfstands konnte die Brennstoffzelle nur bis  $800\text{ A}$  ( $2,13\text{ A}/\text{cm}^2$ ) betrieben werden. In diesem Bereich wird die gemessene Zellspannung hauptsächlich durch die ohm'schen und kinetischen Überspannungen bestimmt. Die maximale Stromdichte von  $2,13\text{ A}/\text{cm}^2$  werden bei der Zellspannung von  $0,618\text{ V}$  erreicht und damit eine Leistungsdichte von  $1,32\text{ W}/\text{cm}^2$ .

## 5 Zusammenfassung

PEM-Brennstoffzellen werden von den internationalen Automobilherstellern immer intensiver als emissionsfreie Alternative zu den Verbrennungsmotoren entwickelt. Trotz der steigenden Bedeutung und den ersten kommerziell erhältlichen Kleinserien mit Brennstoffzellenantrieb sind für eine Durchdringung des Massenmarkts noch weitere Schritte nötig. Vor allem die Senkung der Kosten und die Erhöhung der Lebensdauer sind aktuelle Herausforderungen.

Eine Möglichkeit zur Kostensenkung ist die Steigerung der Leistungsdichte bei konstantem Spannungspotential und somit gleichem Wirkungsgrad. Für die gleiche Leistung sind somit weniger aktive Fläche und damit Platinkatalysator und Funktionsschichten nötig. Die Bipolarplatten des Brennstoffzellenstapels dienen hauptsächlich der Verteilung der Reaktionsgase und des Kühlmedium auf die einzelnen Brennstoffzellen und haben nur einen vergleichbar geringen Einfluss auf die Spannungsverluste der Brennstoffzelle gegenüber den Kinetikverlusten der elektrochemischen Reaktion. Mit steigender Stromdichte gewinnen die Verlustspannungen durch das Bipolarplattendesign an Bedeutung und bieten eine sehr gute Möglichkeit die Leistungsdichte der Brennstoffzelle zu erhöhen.

Der Auslegungsprozess der Bipolarplatte muss in enger Abstimmung auf die Membran-Elektroden-Einheit (MEA) und die Funktionsschichten sowie die Anforderungen an Leistungsdichte und Betriebsbedingungen durchgeführt werden. Zusätzlich limitiert der begrenzte Bauraum im Fahrzeug die Größe des Brennstoffzellenstapels und damit der Bipolarplatten. Die Auslegung der Bipolarplatten erfolgt daher iterativ, um das Optimum aus den Anforderungen an Leistung, Bauraum und Betriebsstabilität zu finden.

In dieser Arbeit wurden Designrichtlinien entwickelt, um den Auslegungsprozess zu vereinfachen und zu beschleunigen und um ein Verständnis der Wechselwirkungen der Bipolarplatte mit den Funktionsschichten auf Leistung und Lebensdauer zu schaffen.

Das empirische Modell zur Berechnung der mechanischen Wechselwirkungen zwischen Bipolarplatte und Gasdiffusionslage ermöglicht die schnelle Bewertung unterschiedlicher Konzepte. Dabei kann sowohl der Einfluss verschiedener Kanalbreiten im aktiven Bereich der Bipolarplatte als auch ein Wechsel der Gasdiffusionslage und damit unterschiedlicher mechanischer Eigenschaften hinsichtlich der Intrusion der Gasdiffusionslage in den Gaskanal und des Kontaktdrucks zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht betrachtet werden. Die Genauigkeit des Modells wurde mittels  $\mu$ CT-Messungen validiert und liegt mit Abweichungen unter einer Faserdicke der GDL in einem ausreichenden Bereich für die Vorauslegung.

Einen Richtwert für den minimalen Kontaktdruck, den niedrigsten lokalen Druck, zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht wurde aus Messungen des Kontaktwiderstands zwischen diesen Funktionsschichten bestimmt. Dazu wurde ein neues Messverfahren entwickelt, in dem mit unterschiedlichen Kanalbreiten und einer mit Kohlenstoff und Ionomer beschichteten Kupferfolie der elektrische Widerstand gemessen wurde und mittels FEM-Simulation in den relativen Kontaktwiderstand, der die Änderung des Kontaktwiderstands zwischen mikroporöser Schicht und Katalysatorschicht bei einer Änderung des minimalen Kontaktdrucks zwischen diesen Funktionsschichten beschreibt, umgerechnet. Für die Auslegung der Bipolarplatte und Auswahl der Gasdiffusionslage wurde ein minimaler Kontaktdruck von mindestens 0,19 MPa definiert.

Die Stegbreite der Bipolarplatte im aktiven Bereich der Brennstoffzelle definiert sowohl elektrische Spannungsverluste als auch die Betriebsstabilität. Anhand von Simulationsergebnissen wurde gezeigt, dass bei hohen Stromdichte über  $1,5 \text{ A/cm}^2$ , die Stegbreite einen großen Einfluss auf die Versorgung der Katalysatorschicht mit Sauerstoff hat. Für die elektrische Leitung des Stroms aus der Gasdiffusionslage in die Bipolarplatte ist der Einfluss der Stegbreite vernachlässigbar klein. Zur Steigerung der Stromdichte sollten die Stege der Bipolarplatte daher so schmal wie möglich sein. Der Einfluss der Stegbreite auf die Betriebsstabilität der Brennstoffzelle ist nur bei geringen lokalen Druckdifferenzen zwischen zwei benachbarten Kanälen vorhanden. Sobald die lokalen Druckdifferenzen aufgrund von Fertigungstoleranzen oder dem Auftreten von Flüssigwasser steigen, sinkt der Einfluss der Stegbreite und der Effekt der Permeabilität der Gasdiffusionslage auf die Betriebsstabilität steigt. Als Zielgröße für die through-plane Permeabilität der GDL bei hohen lokalen Druckdifferenzen wurde ein Wert von  $0,9 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$  bestimmt.

Die homogene Verteilung der Medien ist eine Voraussetzung zur Steigerung der Lebensdauer der PEM-Brennstoffzelle. In dieser Arbeit wurde für die Bewertung der Verteilung der Medien im aktiven Bereich der Bipolarplatte die Minimalverteilung definiert. Die Minimalverteilung beschreibt die niedrigste Durchströmung eines Kanals im Verhältnis zum Mittelwert der Durchströmung aller Kanäle der Bipolarplatte für das jeweilige Medium. Für gerichtete Verteilstrukturen wurde eine Berechnungsmethode der Minimalverteilung anhand der Druckverluste im aktiven Bereich und der Verteilstruktur vorgestellt und der Einfluss verschiedener Betriebsbedingungen und Auslegungsgrößen der Bipolarplatte auf die Minimalverteilung untersucht. Dabei wurden sowohl die Einflussgrößen bei einer Neuauslegung des Kanaldesigns betrachtet, als auch die Einflussmöglichkeiten für eine Steigerung der Minimalverteilung bei einem vorhandenen Konzept aufgezeigt. Zur Verbesserung der Verteilung der Medien auf die einzelnen Brennstoffzellen des Brennstoffzellenstapels und zur Abschätzung des Platzbedarfs auf der Bipolarplatte wurden Designrichtlinien für die Hauptkanäle erarbeitet. Sowohl der hydraulische Durchmesser des Einlasshauptkanals in Abhängigkeit der Zellanzahl des Stapels und dem Druckverlust der Bipolarplatten als auch das optimale Verhältnis des Auslasshauptkanals zum Einlasshauptkanal wurden bestimmt. Die optimalen Verhältnisse der Auslass- zu Einlasshauptkanäle liegen dabei für Wasserstoff bei 1 zu 1,05 bis 1,15, für Luft bei 1 zu 1,28 bis 1,37. Aufgrund der besonderen Druckverläufe im Einlasshauptkanal gibt es für das Kühlmittel Glysantin<sup>®</sup> kein optimales Verhältnis.

Die experimentelle Validierung der Designs der automobilen Bipolarplatte ist sehr kostenintensiv aufgrund der Herstellung der Prototypen als Einzelstücke. Zur Senkung der Kosten in der Validierung der Designs wurde in dieser Arbeit ein Konzept entwickelt, dass auf die Fertigung der automobilen Prototypen verzichten kann und das Design im aktiven Bereich mittels kostengünstigeren Laborzellen betrachtet. Dazu wird der Betrieb durch die CFD-Simulation eines Kanals des aktiven Bereichs betrachtet. Das Ergebnis der Einkanalimulation wird für die experimentellen Versuche in Abschnitte von der Größe der Laborzelle aufgeteilt, um daraus die Eingangsgrößen für die Validierung dieser Abschnitte in den Laborzellen am Prüfstand zu erhalten. Die Ergebnisse für die vier betrachteten Fälle zeigen, dass sich mit dieser Methode das Verhalten nachbilden lässt. Allerdings ist für die Qualität der Ergebnisse die Genauigkeit der CFD-Simulation entscheidend und das Verständnis vor allem über den Wasserhaushalt und -austausch in der MEA.

Als Abschluss der Arbeit wurden die entwickelten Designrichtlinien genutzt, um das Kanal- und Stegdesign in den gasführenden Bereichen eines vorhandenen automobilen Bipolarplattenkonzepts neu auszulegen. Die Verwendung des vorhandenen Konzepts bot die Möglichkeit der Übernahme des Verspannsystems für den Prüfstandsbetrieb sowie vorhandener MEAs mit Gasdiffusionslagen und des passenden Dichtungskonzepts. Gleichzeitig entstanden durch die Übernahme des Konzepts Limitierungen in der Form und Position der Hauptkanäle und der Breite und Länge der Verteilstrukturen und des aktiven Bereichs.

Das Ziel der Auslegung war eine Stromdichte von  $2 \text{ A/cm}^2$  bei maximaler Zellspannung. Die schlechte elektrische Leitfähigkeit der gefertigten Prototypen aufgrund eines Materialwechsels erzeugte zusätzliche Spannungsverluste, die über eine Korrektur aus den gemessenen Strom-Spannungs-Kennlinien herausgerechnet werden musste. Mit einer Korrektur auf den Erwartungswert der elektrischen Leitfähigkeit früherer Prototypen und der Laborzellen in dieser Arbeit erzielte die neu ausgelegte automobilen Brennstoffzelle die maximale, prüfstandslimitierte Stromdichte von  $2,13 \text{ A/cm}^2$  bei einer Zellspannung von  $0,618 \text{ V}$ , das einer Leistungsdichte von  $1,32 \text{ W/cm}^2$  entspricht.

# Literatur

- [1] Gröger, O. und Gasteiger, H. et al.: „Review - Electromobility: Batteries or Fuel Cells?“ In: *Journal of the Electrochemical Society* 162 (2015), A2605–A2622 (siehe S. 1, 3).
- [2] Barbir, F.: *PEM fuel cells: theory and practice*. Elsevier Academic Press, 2005 (siehe S. 1, 4, 5).
- [3] Schwarzer, C.: *Hyundai: Brennstoffzellen-Auto geht in Serie*. <https://heise.de/-3645984>. Am 12.03.2017 um 15:37 Uhr (siehe S. 1).
- [4] Bernhart, W. und Riederle, S. et al.: *Fuel cells - A realistic alternative for zero emission?* Roland Berger Strategy Consultants. Dez. 2013 (siehe S. 1).
- [5] Kongkanand, A. und Mathias, M.: „The Priority and Challenge of High-Power Performance of Low-Platinum Proton-Exchange Membrane Fuel Cells“. In: *The Journal of Physical Chemistry Letters* 7 (2016), S. 1127–1137 (siehe S. 1).
- [6] Behling, N. H.: „Chapter 2 - Fuel Cells and the Challenges Ahead“. In: *Fuel Cells*, S. 7–36. Hrsg. von Behling, Noriko Hikosaka, Elsevier, 2013. ISBN: 978-0-444-56325-5 (siehe S. 3).
- [7] Kurzweil, P.: *Brennstoffzellentechnik*. Bd. 1. Vieweg Verlag, 2003 (siehe S. 3–5, 7, 8).
- [8] Zhang, J.: *PEM fuel cell electrocatalysts and catalyst layers: fundamentals and applications*. Springer, 2008 (siehe S. 4).
- [9] Zihrl, P.: „Untersuchungen zur Aktivität und Stabilität von Membran-Elektroden-Einheiten für PEM-Brennstoffzellen“. Dissertation. Technische Universität München, vsl. 2018 (siehe S. 4).
- [10] Hartung, I.: „Fahrzeugnahe Methoden zur Diagnose von Degradationsvorgängen an automobilen PEM-Brennstoffzellenaggregaten“. Dissertation. Technische Universität Chemnitz, vsl. 2017 (siehe S. 4).
- [11] Neyerlin, K. und Gu, W. et al.: „Cathode Catalyst Utilization for the ORR in a PEMFC“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 154 (2007) (siehe S. 5).
- [12] Yun, Y.H.: „Deposition of gold–titanium and gold–nickel coatings on electropolished 316L stainless steel bipolar plates for proton exchange membrane fuel cells“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 35 (2010), S. 1713–1718 (siehe S. 6).
- [13] Karimi, S. und Fraser, N. et al.: „A review of metallic bipolar plates for proton exchange membrane fuel cells: materials and fabrication methods“. In: *Advances in Materials Science and Engineering* 2012 (2012) (siehe S. 6, 14).
- [14] Netwall, C. und Gould, B. et al.: „Decreasing contact resistance in proton-exchange membrane fuel cells with metal bipolar plates“. In: *Journal of Power Sources* 227 (2013), S. 137–144 (siehe S. 6).
- [15] Sun, H. und Cooke, K. et al.: „Development of PVD coatings for PEMFC metallic bipolar plates“. In: *Thin* 528 (2013), S. 199–204 (siehe S. 6).
- [16] Wagner, N.: *Electrochemical impedance spectroscopy*. CRC Press, 2011 (siehe S. 6).



- [17] Baker, D. und Wieser, C. et al.: „The use of limiting current to determine transport resistance in PEM fuel cells“. In: *ECS Transactions* 3 (2006), S. 989–999 (siehe S. 7).
- [18] Göbel, M. et al.: „Transient limiting currents measurements for characterisations of gas diffusion layers“. mündliche Aussage April 2016, Arbeitsstand der Veröffentlichung (siehe S. 7).
- [19] Baker, D. und Caulk, D. et al.: „Measurement of oxygen transport resistance in PEM fuel cells by limiting current methods“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 156 (2009), B991–B1003 (siehe S. 7).
- [20] Greszler, T. und Caulk, D. et al.: „The impact of platinum loading on oxygen transport resistance“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 159 (2012), F831–F840 (siehe S. 7).
- [21] Owejan, J. P. und Owejan, J. E. et al.: „Impact of platinum loading and catalyst layer structure on PEMFC performance“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 160 (2013), F824–F833 (siehe S. 7).
- [22] Cleghorn, S. und Kolde, J. et al.: „Catalyst coated composite membranes“. In: *Handbook of Fuel Cell: Fundamentals, Technology and Applications* (2010) (siehe S. 8).
- [23] Litster, S. und McLean, G.: „PEM fuel cell electrodes“. In: *Journal of Power Sources* 130 (2004), S. 61–76 (siehe S. 8).
- [24] Sammes, N.: *Fuel cell technology reaching towards commercialization*. Springer London, 2006 (siehe S. 8).
- [25] Butsch, H.: „Entwicklung neuartiger Gasdiffusionslagen (GDL) und von Methoden zu deren Charakterisierung“. Dissertation. Technische Universität Darmstadt, 2013 (siehe S. 8).
- [26] Cindrella, L. und Kannan, A. et al.: „Gas diffusion layer for proton exchange membrane fuel cells - A review“. In: *Journal of Power Sources* 194 (2009), S. 146–160 (siehe S. 8).
- [27] Nitta, I. und Hottinen, T. et al.: „Inhomogeneous compression of PEMFC gas diffusion layer Part I. Experimental“. In: *Journal of Power Sources* 171 (2007), S. 26–36 (siehe S. 8).
- [28] Nitta, I. und Himanen, O. et al.: „Inhomogeneous compression of PEMFC gas diffusion layer Part II. Modeling the effect“. In: *Journal of Power Sources* 171 (2007), S. 113–121 (siehe S. 8).
- [29] Dhanushkodi, S.R und Capitanio, F. et al.: „Understanding flexural, mechanical and physico-chemical properties of gas diffusion layers for polymer membrane fuel cell and electrolyzer systems“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 40 (2015), S. 16846–16859 (siehe S. 9).
- [30] Li, X. und Sabir, I.: „Review of bipolar plates in PEM fuel cells: Flow-field designs“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 30 (2005), S. 359–371 (siehe S. 9–11).
- [31] Manso, A.P. und Marzo, F.F. et al.: „Influence of geometric parameters of the flow fields on the performance of a PEM fuel cell. A review“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 37 (2012), S. 15256–15287 (siehe S. 10, 11).

- [32] Feser, J.P. und Prasad, A.K. et al.: „On the relative influence of convection in serpentine flow fields of PEM fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 161 (2006), S. 404–412 (siehe S. 10).
- [33] Shimpalee, S. und Greenway, S. et al.: „The impact of channel path length on PEMFC flow-field design“. In: *Journal of Power Sources* 160 (2006), S. 398–406 (siehe S. 10).
- [34] Nakagaki, N.: „The newly developed components for the fuel cell vehicle, Mirai“. In: *SAE Technical Paper 2015-01-1174* (2015) (siehe S. 10).
- [35] Mohr, P.: „Simulation der Bewegung von Flüssigwasser in Brennstoffzellen mit der Volume of Fluid (VOF)-Methode“. Diplomarbeit. Technische Universität Braunschweig, 2012 (siehe S. 11).
- [36] Wood, D. und Yi, J. et al.: „Effect of direct liquid water injection and interdigitated flow field on the performance of proton exchange membrane fuel cells“. In: *Electrochimica Acta* 43 (1998), S. 3795–3809 (siehe S. 11).
- [37] Maharudrayya, S. und Jayanti, S. et al.: „Pressure drop and flow distribution in multiple parallel-channel configurations used in proton-exchange membrane fuel cell stacks“. In: *Journal of Power Sources* 157 (2006), S. 358–367 (siehe S. 13).
- [38] Wang, J.: „Pressure drop and flow distribution in parallel-channel configurations of fuel cells: U-type arrangement“. In: *International Journal of Hy* 33 (2008), S. 6339–6350 (siehe S. 13).
- [39] Wang, J.: „Flow Distribution and Pressure Drop in Different Layout Configurations with Z-Type Arrangement“. In: *Energy Science and Technology* 2 (2011), S. 1–12 (siehe S. 13).
- [40] Farrington, S.: „Bipolar separators with improved fluid distribution“. englisch. US-Pat. US8,221,903 B2. Juli 2012 (siehe S. 13).
- [41] Kojima, H. und Oda, M. et al.: „Fuel cell“. englisch. US-Pat. US 8,735,015 B2. Mai 2014 (siehe S. 13).
- [42] Haase, S. und Mueller, S.: „Pressure distribution method for ex-situ evaluation of flow distribution in polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 280 (2015), S. 612–620 (siehe S. 13).
- [43] Sugiura, S. und Watanabe, Y.: „Fuel cell“. englisch. US-Pat. US 9,214,682 B2. Dez. 2015 (siehe S. 13).
- [44] Nakaji, H. und Ochi, T. et al.: „Brennstoffzelle und Brennstoffzellen-Separator“. deutsch. Dt. Pat. DE 112006000674 T5. 2008 (siehe S. 13).
- [45] Mohr, P. und Zillich, C.: „Bipolarplatte und Brennstoffzelle“. deutsch. Dt. Pat. DE 102014206682 A1. 2015 (siehe S. 13).
- [46] Chen, C.-H. und Jung, S.-P. et al.: „Flow distribution in the manifold of {PEM} fuel cell stack“. In: *Journal of Power Sources* 173 (2007), S. 249–263 (siehe S. 13, 76).
- [47] Park, J. und Li, X.: „Effect of flow and temperature distribution on the performance of a {PEM} fuel cell stack“. In: *Journal of Power Sources* 162 (2006), S. 444–459 (siehe S. 13, 76).

- [48] Mustata, R. und Valino, L. et al.: „Study of the distribution of air flow in a proton exchange membrane fuel cell stack“. In: *Journal of Power Sources* 192 (2009), S. 185–189 (siehe S. 13).
- [49] Wang, J.: „Review of Flow maldistribution in channels of PEMFC stacks“. In: *2009 TRRF05 Fuel Cell Technology*. 2009 (siehe S. 13).
- [50] Dhrab, S. und Sopian, K. et al.: „Review of the membrane and bipolar plates materials for conventional and unitized regenerative fuel cells“. In: *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 13 (2009), S. 1663–1668 (siehe S. 14).
- [51] Antunes, R und de Oliveira, M. et al.: „Carbon materials in composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells: A review of the main challenges to improve electrical performance“. In: *Journal of Power* 196 (2011), S. 2945–2961 (siehe S. 14).
- [52] Taherian, R.: „A review of composite and metallic bipolar plates in proton exchange membrane fuel cell: Materials, fabrication, and material selection“. In: *Journal of Power Sources* 265 (2014), S. 370–390 (siehe S. 14).
- [53] Reum, M. und Wokaum, A. et al.: „Measuring the Current Distribution with Submillimeter Resolution in PEFCs III. Influence of the Flow Field Geometry“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 156 (2009), B1225–B1231 (siehe S. 16).
- [54] Han, K. und Hong, B.K. et al.: „Influence of anisotropic bending stiffness of gas diffusion layers on the electrochemical performances of polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 35 (2010), S. 12317–12328 (siehe S. 16).
- [55] Naing, K. und Tabe, Y. et al.: „Performance and liquid water distribution in PEFCs with different anisotropic fiber directions of the {GDL}“. In: *Journal of Power Sources* 196 (2011), S. 2584–2594 (siehe S. 17).
- [56] Baik, K. D. und Hong, B. K. et al.: „Correlation between anisotropic bending stiffness of GDL and land/channel width ratio of polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 37 (2012), S. 11921–11933 (siehe S. 17).
- [57] Scholta, J. und Escher, G. et al.: „Investigation on the influence of channel geometries on PEMFC performance“. In: *Journal of Power Sources* 155 (2006), S. 66–71 (siehe S. 17).
- [58] Radhakrishnan, V. und Haridoss, P.: „Differences in structure and property of carbon paper and carbon cloth diffusion media and their impact on proton exchange membrane fuel cell flow field design“. In: *Materials and Design* 32 (2011), S. 861–868 (siehe S. 17).
- [59] Maidhily, M. und Rajalakshmi, N. et al.: „Electrochemical impedance spectroscopy as a diagnostic tool for the evaluation of flow field geometry in polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *Renewable Energy* 51 (2013), S. 79–84 (siehe S. 17).
- [60] Lai, Y.-H. und Rapaport, P.: „Channel intrusion of gas diffusion media and the effect on fuel cell performance“. In: *Journal of Power Sources* 184 (2008), S. 120–128 (siehe S. 17).
- [61] Desouza, A. und Brandean, R. et al.: „Steady-State Fuel Cell Performance Model for Un-adhered MEAs“. In: *ECS Transactions*. Bd. 16. 2. 2008, S. 35–44 (siehe S. 18, 36).
- [62] Zhou, P. und Wu, C. et al.: „Influence of clamping force on the performance of PEMFCs“. In: *Journal of Power Sources* 163 (2007), S. 874–881 (siehe S. 18).

- [63] Kandlikar, S. und Lu, Z. et al.: „Uneven gas diffusion layer intrusion in gas channel arrays of proton exchange membrane fuel cell and its effects on flow distribution“. In: *Journal of Power Sources* 194 (2009), S. 328–337 (siehe S. 18).
- [64] Kleemann, J.: „Einflüsse der Gasdiffusionslage auf Leistungsdichte und Kosten der PEM-Brennstoffzelle“. Dissertation. Universität Ulm, 2012 (siehe S. 18, 19, 36).
- [65] Antunano, M. und Encinas, A. et al.: „Fuel pressure distribution as a criterion for the bipolar plate geometry optimization in PEM fuel cells, modeling and experiment“. In: *Fuel Cells* 15 (2015), S. 639–645 (siehe S. 18).
- [66] Kleemann, J. und et al., Finsterwalder F.: „Characterisation of mechanical behaviour and coupled electrical properties of polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers“. In: *Journal of Power Sources* 190 (2009), S. 92–102 (siehe S. 19).
- [67] Schmidt, J.: „Untersuchung der mechanischen Kontaktierung im aktiven Bereich einer Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle“. Bachelorarbeit. Beuth Hochschule fuer Technik Berlin, 2012 (siehe S. 19).
- [68] Mathias, M. und Roth, J. et al.: „Diffusion media materials and characterisation“. In: *Handbook of Fuel Cell: Fundamentals, Technology and Applications* 3 (2003) (siehe S. 24, 29).
- [69] El-kharouf, A. und Mason, J. et al.: „Ex-situ characterisation of gas diffusion layers for proton exchange membrane fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 218 (2012), S. 393–404 (siehe S. 24, 29).
- [70] Makharia, R. und Mathias, M. et al.: „MeasureMeas of catalyst layer electrolyte resistance in PEFCs using electrochemical impedance spectroscopy“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 152 (2005), A970–A977 (siehe S. 36).
- [71] Nitta, I. und Himanen, O. et al.: „Contact resistance between gas diffusion layer and catalyst layer of PEM fuel cell“. In: *Electrochemistry Communications* 10 (2008), S. 47–51 (siehe S. 36).
- [72] Butsch, H. und Roth, C. et al.: „Spatially resolved contact pressure and contact resistance measurements at the gas diffusion layer: a tool for PEM fuel cell development“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 159 (2012), B709–B713 (siehe S. 36).
- [73] Scholz, H.: „Modellierung und Untersuchung von Flutungspänomenen in Niedertemperatur - PEM-Brennstoffzellen“. Dissertation. RWTH Aachen, 2015 (siehe S. 43, 102, 104).
- [74] *VDI-Wärmeatlas*. Bd. 10. Auflage. Verein Deutscher Ingenieure VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen (GVC), 2006 (siehe S. 45).
- [75] Neyerlin, K. und Wenbin, G. et al.: „Determination of catalyst unique parameters for the oxygen reduction reaction in a PEMFC“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 153 (2006), A1955–A1963 (siehe S. 45).
- [76] Neyerlin, K. und Wenbin, G. et al.: „Study of the exchange current density for the hydrogen oxidation and evolution reactions“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 154 (2007), B631–B635 (siehe S. 45).
- [77] Chui, H.-C. und Jang, J.-H. et al.: „A three-dimensional modeling of transport phenomena of proton exchange membrane fuel cells with various flow fields“. In: *Applied Energy* 96 (2012), S. 359–370 (siehe S. 45).

- [78] Wang, Xiao-Dong, Duan, Yuan-Yuan und Yan, Wei-Mon: „Numerical study of cell performance and local transport phenomena in {PEM} fuel cells with various flow channel area ratios“. In: *Journal of Power Sources* 172 (2007). {ACS} San Francisco 2006 Fuel and Cell Symposium. American Chemical Society National Meeting. San Francisco, {CA} Sept 10-14 2006, S. 265–277 (siehe S. 45).
- [79] Benzinger, J. und Kimball, E. et al.: „Oxygen mass transport limitations at the cathode of polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *AIChE Journal* 57 (2011), S. 2505–2517 (siehe S. 45).
- [80] *Werkstoffdatenblatt X2CrNiMo17-12-2 1.4404*. 16. Aufl. Deutsche Edelstahlwerke GmbH. Auestrase 4, 58452 Witten, Aug. 2015 (siehe S. 46).
- [81] Wang, X.-D. und Duan, Y.-Y. et al.: „Channel aspect ratio effect for serpentine proton exchange membrane fuel cell: Role of sub-rib convection“. In: *Journal of Power Sources* 193 (2009), S. 684–690 (siehe S. 47).
- [82] Kanezaki, T. und Li, X. et al.: „Cross-leakage flow between adjacent flow channels in PEM fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 162 (2006), S. 415–425 (siehe S. 47).
- [83] *ANSYS FLUENT 12.0 User's Guide*. ANSYS, Inc. 2009 (siehe S. 48, 75).
- [84] Yousfi-Steiner, N. und Mocotéguy, P. et al.: „A review on polymer electrolyte membrane fuel cell catalyst degradation and starvation issues: Causes, consequences and diagnostic for mitigation“. In: *Journal of Power Sources* 194 (2009). {XIth} Polish Conference on Fast Ionic Conductors 2008, S. 130–145 (siehe S. 49).
- [85] Zhang, S. und Yuan, X.-L. et al.: „A review of platinum-based catalyst layer degradation in proton exchange membrane fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 194 (2009), S. 588–600 (siehe S. 49).
- [86] Jenssen, D. und Berger, O. et al.: „Anode flooding characteristics as design boundary for a hydrogen supply system for automotive polymer electrolyte membrane fuel cells“. In: *Journal of Power Sources* 298 (2015), S. 249–258 (siehe S. 50, 55, 58, 59, 108).
- [87] Kandlikar, S. und Lu, Z. et al.: „Measurement of flow maldistribution in parallel channels and its application to ex-situ and in-situ experiments in PEMFC water management studies“. In: *International Journal of Heat and Mass Transfer* 52 (2009), S. 1741–1752 (siehe S. 58).
- [88] Al-Baghdadi, M. und Al-Janabi, H.: „Effect of operating parameters on the hygro-thermal stresses in proton exchange membranes of fuel cells“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 32 (2007). Fuel Cells, S. 4510–4522. ISSN: 0360-3199 (siehe S. 58).
- [89] Knights, S. und Colbow, K et al.: „Aging mechanisms and lifetime of PEFC and DMFC“. In: *Journal of Power Sources* 127 (2004). Eighth Ulmer Electrochemische Tage, S. 127–134 (siehe S. 58, 59).
- [90] Meyers, J. und Darling, R.: „Model of carbon corrosion in PEM fuel cells“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 153 (2006), A1432–A1442 (siehe S. 58, 59).
- [91] Moody, L.: „Friction factors for pipe flow“. In: *Transactions of the ASME* 66 (1944), S. 617–684 (siehe S. 59).
- [92] Mortazavi, M. und Tajiri, K.: „Two-phase flow pressure drop in flow channels of proton exchange membrane fuel cells: Review of experimental approaches“. In: *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 45 (2015), S. 296–317 (siehe S. 61).

- [93] See, E. und Kandlikhar, S.: „A two-phase pressure drop model incorporating local water balance and reactant consumption in PEM fuel cell gas channels“. In: *ECS Transactions* 50 (2012), S. 99–111 (siehe S. 61, 66).
- [94] Lockhart, R.W. und Martinelli, R.C.: „Proposed correlation of data for isothermal two-phase, two-component flow in pipes“. In: *Chemical Engineering Progress* 45 (1949), S. 39–48 (siehe S. 61).
- [95] Chisholm, D.: „A theoretical basis for the Lockhart-Martinelli correlation for two-phase flow“. In: *International Journal of Heat and Mass Transfer* 10 (1967), S. 1767–1778. ISSN: 0017-9310 (siehe S. 61).
- [96] Kleiber M. und Joh, R.: *VDI-Wärmeatlas Teil D*. Hrsg. von VDI e.V. Bd. 11. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2013, 2013 (siehe S. 71).
- [97] Bi, W. und Chen, D. et al.: „A key geometric parameter for the flow uniformity in planar solid oxide fuel cell stacks“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 34 (2009), S. 3873–3884 (siehe S. 74).
- [98] *ANSYS FLUENT Theory Guide*. ANSYS, Inc. 2013 (siehe S. 75).
- [99] Baschuk, J. und Li, X.: „Modelling of polymer electrolyte membrane fuel cell stacks based a hydraulic network approach“. In: *International Journal of Energy Research* 28 (2004), S. 697–724 (siehe S. 76).
- [100] Kongkanand, A. und Ziegelbauer, J.: „Surface Platinum Electrooxidation in the Presence of Oxygen“. In: *Journal of Phy* 116 (2012), S. 3684–3693 (siehe S. 105).
- [101] Weber, A. und Borup, R. et al.: „A Critical Review of Modeling Transport Phenomena in Polymer-Electrolyte Fuel Cells“. In: *Journal of the Electrochemical Society* 161 (2014), F1254 (siehe S. 105).
- [102] Dai, W. und Wang, H. et al.: „A review on water balance in the membrane electrode assembly of proton exchange membrane fuel cells“. In: *International Journal of Hydrogen Energy* 34 (2009), S. 9461–9478 (siehe S. 105).

# A Anhang

## A.1 Kompressionshärten des empirischen Rechenmodells

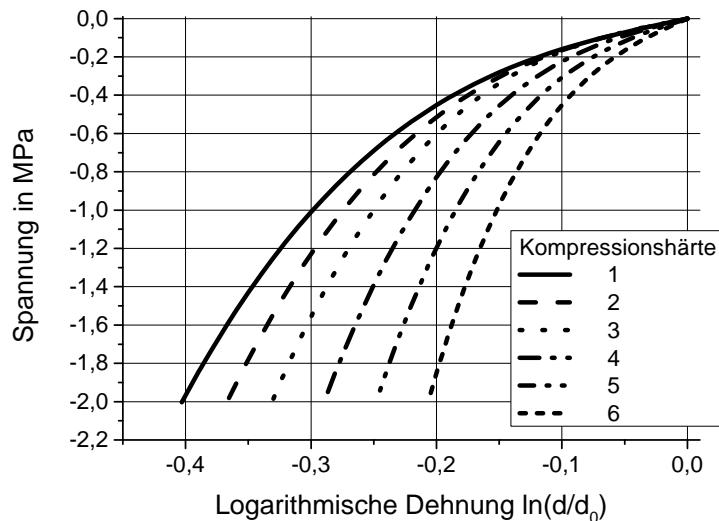


Abbildung A.1: Spannungs-Dehnungs-Kurven der 6 Kompressionshärten

### Mathematische Beschreibung der Kompressionshärten

Kompressionshärte 1

$$f(x) = 22,132 \cdot x^3 + 1,3751 \cdot x$$

Kompressionshärte 2

$$f(x) = 30,465 \cdot x^3 - 0,0165 \cdot x^2 + 1,3484 \cdot x$$

Kompressionshärte 3

$$f(x) = 40,471 \cdot x^3 + 1,2761 \cdot x$$

Kompressionshärte 4

$$f(x) = 63,113 \cdot x^3 - 0,0034 \cdot x^2 + 1,6142 \cdot x$$

Kompressionshärte 5

$$f(x) = 96,543 \cdot x^3 + 0,0052 \cdot x^2 + 2,1216 \cdot x$$

Kompressionshärte 6

$$f(x) = 158,070 \cdot x^3 + 2,9290 \cdot x$$

## A.2 Mech. Eigenschaften der GDL der Mikro-Computer-Tomographie-Messung

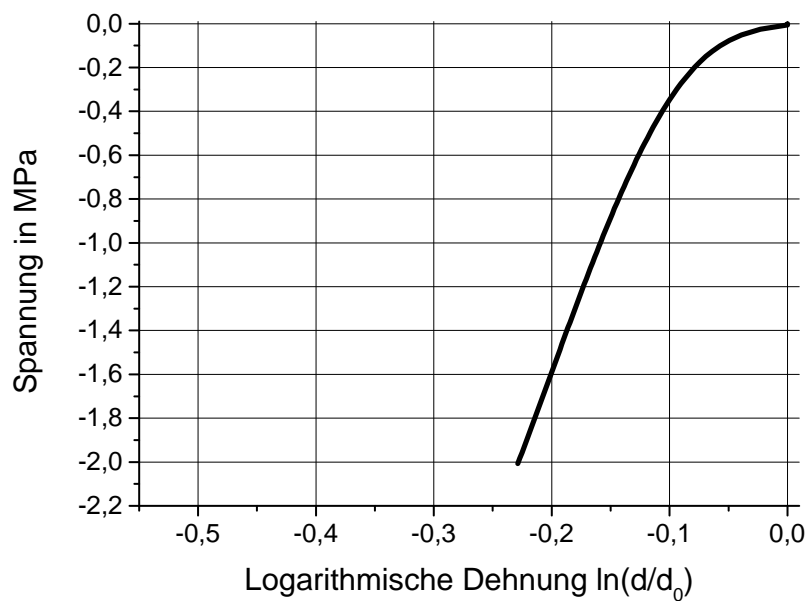
### Mathematische Beschreibung der Spannungs-Dehnungs-Kurve

$\mu$ CT-GDL

$$f(x) = 6455 \cdot x^6 + 9559 \cdot x^5 + 5138 \cdot x^4 + 1138 \cdot x^3 + 59,5 \cdot x^2 + 2,34 \cdot x$$

**Tabelle A.1:** Mechanischen Eigenschaften der Papier-GDL in der  $\mu$ CT-Messung

Eigenschaft	Wert	Einheit
E-Modul	1194	MPa
G-Modul	9,58	MPa
GDL-Dicke bei 0,01 MPa	251	$\mu\text{m}$



**Abbildung A.2:** Spannungs-Dehnungs-Kurve der Papier GDL für die  $\mu$ CT-Messung



### A.3 Spannungs-Dehnungs-Kurven der GDLs Typ A und Typ B

#### Mathematische Beschreibung der Spannungs-Dehnungskurven

##### GDL Typ A

$$x \geq -0,1855$$

$$f(x) = -0,5852 \cdot x^7 - 148 \cdot x^5 + 37,27 \cdot x^3 + 0,4046 \cdot x$$

$$x < -0,1855$$

$$f(x) = -19,31 \cdot x^4 - 23,52 \cdot x^3 - 17,57 \cdot x^2 - 1,207 \cdot x - 0,0189$$

##### GDL Typ B

$$f(x) = 154 \cdot x^5 + 20,71 \cdot x^3 + 1,943 \cdot x$$

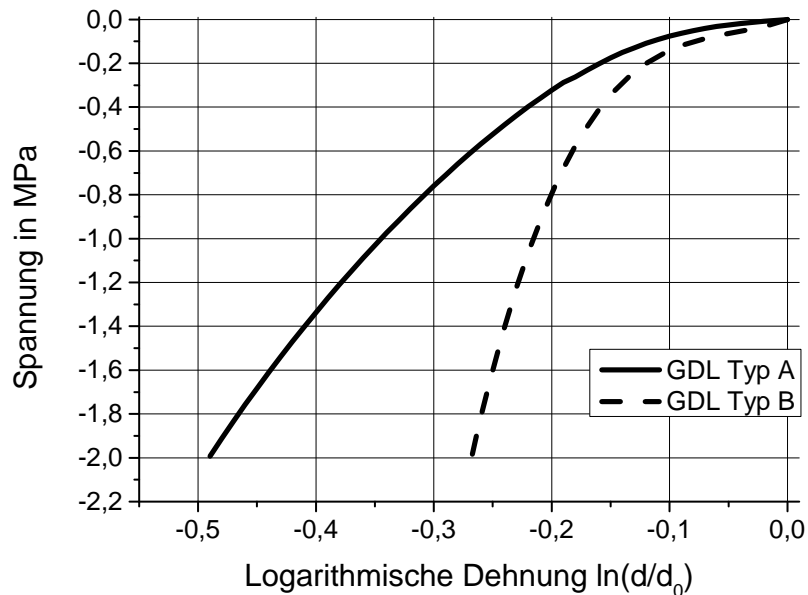


Abbildung A.3: Spannungs-Dehnungs-Kurven der GDLs Typ A und B

## A.4 Betriebsbedingungen für die experimentelle Abschnittsuntersuchung

**Tabelle A.2:** Betriebsbedingungen für Abschnitt 1

Kanalbreite	0,4	0,4	0,6	0,6	
Gasdiffusionslage	A	B	A	B	
<b>Abschnitt 1</b>					
Stromdichte	2,12	2,09	2,12	2,10	A/cm <sup>2</sup>
Temperatur	356	356	356	356	K
<u>Anode</u>					
Volumenstrom H <sub>2</sub>	2,4	2,4	2,4	2,4	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	0,5	0,5	0,5	0,5	NI/min
Gasdruck	2,48	2,48	2,49	2,49	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	83	83	84	83	° C
<u>Kathode</u>					
Volumenstrom Luft	14,3	14,3	14,3	14,3	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	0,0	0,0	0,00	0,00	NI/min
Gasdruck	2,50	2,50	2,50	2,50	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	71	71	71	71	° C

**Tabelle A.3:** Betriebsbedingungen für Abschnitt 2

Kanalbreite	0,4	0,4	0,6	0,6	
Gasdiffusionslage	A	B	A	B	
<b>Abschnitt 2</b>					
Stromdichte	2,06	2,08	2,06	2,07	A/cm <sup>2</sup>
Temperatur	358	359	358	358	K
<u>Anode</u>					
Volumenstrom H <sub>2</sub>	3,5	3,5	3,5	3,5	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	0,5	0,5	0,5	0,5	NI/min
Gasdruck	2,49	2,49	2,50	2,50	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	84	84	84	84	° C
<u>Kathode</u>					
Volumenstrom Luft	11,3	11,4	11,3	11,4	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	2,4	2,3	2,3	2,4	NI/min
Gasdruck	2,47	2,47	2,48	2,48	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	79	79	79	79	° C

**Tabelle A.4:** Betriebsbedingungen für Abschnitt 3

Kanalbreite	0,4	0,4	0,6	0,6	
Gasdiffusionslage	A	B	A	B	
<b>Abschnitt 3</b>					
Stromdichte	1,90	1,89	1,90	1,90	A/cm <sup>2</sup>
Temperatur	359	359	359	359	K
<u>Anode</u>					
Volumenstrom H <sub>2</sub>	4,5	4,5	4,5	4,5	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	0,5	0,5	0,5	0,5	NI/min
Gasdruck	2,50	2,50	2,50	2,50	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	73	73	73	73	°C
<u>Kathode</u>					
Volumenstrom Luft	8,8	8,8	8,8	8,8	NI/min
Volumenstrom N <sub>2</sub>	4,3	4,3	4,3	4,3	NI/min
Gasdruck	2,47	2,47	2,48	2,48	bar <sub>absolut</sub>
Taupunkt	83	83	83	83	°C