

# Mechanische Eigenschaften von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen

Philipp Irmischer

Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 478

ISBN 978-3-95806-435-5





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

# **Mechanische Eigenschaften von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen**

Philipp Irmischer

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 478

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-435-5

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH  
Zentralbibliothek, Verlag  
52425 Jülich  
Tel.: +49 2461 61-5368  
Fax: +49 2461 61-6103  
[zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
[www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2019

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 478

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2019)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-95806-435-5

Vollständig frei verfügbar über das Publikationsportal des Forschungszentrums Jülich (JuSER)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/openaccess](http://www.fz-juelich.de/zb/openaccess).



This is an Open Access publication distributed under the terms of the [Creative Commons Attribution License 4.0](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

## Kurzfassung

Die PEM-Brennstoffzelle wird herkömmlicherweise aus mehreren dünnen Schichtkomponenten aufgebaut, welche durch Endplatten und Spannelemente aufeinander gepresst werden, um eine elektrische Kontaktierung der Schichten und die Dichtigkeit der Zelle zu gewährleisten. Wird der Anpressdruck erhöht, verringern sich die Kontaktwiderstände der Schichten untereinander, so dass der Ohm'sche Widerstand der Zelle sinkt. Dabei wird allerdings die Porosität der Gasdiffusionslage verringert wodurch die aktive Zellfläche immer schlechter mit den Reaktionsgasen versorgt werden kann. Da diese beiden Effekte gegenläufig sind, muss sich ein optimaler Wert für den Anpressdruck bezüglich der Leistung der Brennstoffzelle ergeben. Dieses Optimum für den durchschnittlichen Anpressdruck auf der aktiven Fläche wird in der vorliegenden Arbeit für drei häufig verwendete GDL-Typen bestimmt. Für ein GDL-Papier mit MPL wird dies zu 0,4 bis 0,6 MPa (SGL 29BC), für ein GDL-Papier ohne MPL zu 0,6 bis 1,7 MPa (Toray TGP-H 060) und für ein GDL-Vlies mit MPL zu 0,6 bis 2,7 MPa (Freudenberg H2315 C2) bestimmt. Für die Kohlenstoffvlies- und Kohlenstoffpapier-Materialien mit und ohne MPL ergeben sich demnach deutlich unterschiedlich breite Leistungsoptima. Zum detaillierten Verständnis der sich ergebenden Anpressdruck-Fenster werden die Faserstrukturen der GDL-Materialien mittels mechanischer Materialprüfungen, Rasterelektronen-Mikroskopie-Aufnahmen sowie Computertomographie-Aufnahmen untersucht. Dabei kann festgestellt werden, dass die für den irreversiblen Leistungseinbruch bei höheren Anpressdrücken verantwortlichen Vorgänge beim GDL-Papier mit MPL (SGL) auf die irreversiblen Dickenänderungen und dem damit verbundenen Einbruch der Porosität und Permeabilität zurückzuführen sind. Beim GDL-Papier ohne MPL (Toray) werden Faser- und Bindermaterialbrüche bei den entsprechenden Anpressdrücken beobachtet, deren Bruchstücke die Poren verkleinern und so zum Leistungsverlust der Zelle führen. Das GDL-Vlies mit MPL (Freudenberg) erleidet keine derartigen Strukturschäden und zeigt auch bei höheren Anpressdrücken von bis zu 2,7 MPa keine Leistungseinbußen. Zur Übertragbarkeit der optimalen Anpressdruckfenster auf andere graphitische Flowfields werden die lokal tatsächlich herrschenden Drücke unter Kanal und Steg ermittelt, sowie die generelle Übertragbarkeit auf den Stack-Maßstab und stark abweichende Flowfield-Geometrien wie zum Beispiel tiefgezogene metallische Flowfields geprüft.



**Abstract**

The polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cell is conventionally constructed of a plurality of thin layer components that are pressed against each other by end plates and clamping elements in order to ensure electrical contact amongst the layers and tightness of the cell's construction. If the contact pressure is increased, the contact resistances of the layers decrease, and in turn the ohmic resistance of the cell decreases. In this case, however, the porosity of the gas diffusion layer is reduced, whereby the capacity of the active cell surface to be supplied with the reaction gases increasingly declines. As these two effects are in opposite directions, an optimum value for the contact pressure with respect to the performance of the fuel cell must result. In this work the optimum for the average contact pressure on the active surface is determined for three commonly used GDL types. For a GDL paper with MPL, this becomes 0.4 to 0.6 MPa (SGL 29BC), for a GDL paper without MPL, 0.6 to 1.7 MPa (Toray TGP H 060) and for a GDL felt with MPL, 0.6 to 2.7 MPa (Freudenberg H2315 C2). For the carbon felt and carbon paper materials with and without MPL, there are, therefore, clearly different performance optimizations. For a detailed understanding of the resulting pressure window, the fiber structures of the GDL materials are examined by means of mechanical material testing, scanning electron microscopy and computed tomography images. It can be stated that the processes responsible for the irreversible power loss at higher contact pressures in the case of GDL paper with MPL (SGL) are due to the irreversible changes in thickness and the concomitant drop in porosity and permeability. In the case of GDL paper without MPL (Toray), fiber and binder material fractures are observed at the corresponding contact pressures, the fragments of which reduce the pores and thus lead to a loss of performance of the cell. The GDL felt with MPL (Freudenberg) suffers no such structural damage and shows no performance losses, even at higher contact pressures of up to 2.7 MPa. For the transferability of the optimal contact pressure window to other graphitic flowfields, the locally actual pressures under the channel and rib are determined, as well as the general transferability to the stack scale and strongly deviating flowfield geometries such as stamped metallic flowfields are tested.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Ziel der Arbeit .....</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen und Stand der Technik .....</b>	<b>3</b>
2.1	Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle.....	3
2.2	Bedeutung der Mechanik für die PEM Brennstoffzelle .....	6
2.3	GDL Mechanik .....	7
2.3.1	GDL-Material unter einmaliger Kompression.....	8
2.3.2	GDL-Material unter zyklischer Kompression .....	13
2.3.3	GDL-Material unter Einfluss von PTFE-Gehalt, Feuchtigkeit, Temperatur, Belastungsdauer und Belastungsgeschwindigkeit .....	15
2.3.4	Zusammenspiel von Flowfield und GDL .....	17
2.3.5	Auswirkungen der Mechanik auf den elektrischen Widerstand und den Massentransportwiderstand .....	17
2.4	Einzelzellen- und Stackmechanik.....	20
2.4.1	Zelleistung in Abhängigkeit des Anpressdrucks .....	20
2.4.2	Druckverteilung und deren Einfluss auf die Leistung der Brennstoffzelle.....	25
2.4.3	Endplattendesigns zur Homogenisierung der Druckverteilung auf der aktiven Fläche .....	26
2.5	Zusammenfassung .....	29
<b>3</b>	<b>Methodenentwicklung und verwendete Materialien .....</b>	<b>31</b>
3.1	Verwendete Materialien.....	31
3.2	Mechanische Materialeigenschaften.....	33
3.2.1	Universal-Materialprüfmaschine zur Ermittlung von Materialkennwerten .....	33
3.2.2	Bildgebende Verfahren zur Untersuchung der Struktur von GDL-Materialien .....	37
3.3	Leistungsmessungen unter Anpressdruckvariation .....	38
3.3.1	Brennstoffzellen-Testsystem mit variablem Anpressdruck.....	38
3.3.2	Elektrische Widerstandsmessungen.....	44
3.3.3	Durchflusswiderstandsmessungen .....	45
3.4	Anpressdruckverteilungen unter Kanal-Steg-Strukturen.....	47
3.4.1	Druckmessfolien und Auswertung .....	47

3.4.2	Probenherstellung.....	51
3.4.3	Getestete Short-Stacks.....	55
<b>4</b>	<b>Ergebnisse .....</b>	<b>59</b>
4.1	GDL-Materialien unter Druckbeanspruchung: Spannungs-Stauchungs-Diagramme .....	59
4.1.1	Lastzyklen .....	59
4.1.2	Zeitabhängigkeit.....	64
4.1.3	Feuchtigkeitsabhängigkeit.....	66
4.1.4	Einflüsse bei der Verwendung mehrerer, aufeinandergestapelter GDL-Proben .....	67
4.2	Einfluss der Mechanik auf charakteristische Eigenschaften der GDL.....	68
4.2.1	Bruchmechanik.....	69
4.2.2	Massentransportwiderstand.....	74
4.2.3	Ohm'scher Widerstand.....	76
4.3	Leistung einer Einzelzelle unter Variation des Anpressdrucks.....	77
4.3.1	GDL-Papier mit MPL: SGL 29BC .....	78
4.3.2	GDL-Papier ohne MPL: Toray TGP-H 060.....	79
4.3.3	GDL-Vlies mit MPL: Freudenberg H2315 C .....	80
4.3.4	Vergleich der GDL-Materialien .....	81
4.4	Lokale Druckverteilung unter Kanal und Steg.....	83
4.4.1	Druckverteilungen graphitischer Flowfields in der verwendeten Anpressdruck-Testzelle .....	84
4.4.2	Druckverteilungen metallischer Flowfields mit Variation der Steggeometrie.....	86
4.5	Globale Druckverteilung auf der aktiven Fläche .....	91
4.5.1	Druckverteilungen im graphitischen Stackaufbau .....	91
4.5.2	Druckverteilungen im metallischen Stackaufbau.....	94
4.5.3	Einfluss der Endplatte auf Druckverteilung.....	96
<b>5</b>	<b>Diskussion .....</b>	<b>101</b>
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung.....</b>	<b>106</b>
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>109</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>119</b>

---

<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>125</b>
<b>Formelzeichen und Indizes .....</b>	<b>127</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis .....</b>	<b>131</b>
<b>Anhang.....</b>	<b>133</b>



## **1 Einleitung und Ziel der Arbeit**

Brennstoffzellen und Elektrolyseure sind Schlüsseltechnologien bei der Umstellung des Energieversorgungssystems auf erneuerbare Energien. Durch die hohe Fluktuation der Stromproduktion durch Wind- und Solarenergie muss das Energieversorgungssystem der Zukunft in der Lage sein große Energiemengen für eine bestimmte Zeit speichern zu können. Dies kann durch Elektrolyseure geschehen, die die Energie chemisch in Form von Wasserstoff speichern. Der Wasserstoff kann anschließend in Speichern vorgehalten werden und bei Bedarf in die Ballungsgebiete transportiert und dort mittels Brennstoffzellen zurück in elektrische Energie gewandelt werden. Eine vielversprechende Technologie für die Rückwandlung in elektrische Energie ist die Polymer-Elektrolyt-Membran Brennstoffzelle. Sie ist aus mehreren Schichtkomponenten aufgebaut, deren Flächen zur elektrischen Kontaktierung aufeinander gepresst werden müssen. Da einige dieser Schichten, insbesondere die Gasdiffusionslage porös sind, wird durch das Aufeinanderpressen die Porosität und damit die Permeabilität verringert. Dies führt dazu, dass die eigentliche Aufgabe der Gasdiffusionslage die Reaktionsgase der aktiven Fläche zuzuführen beeinträchtigt wird. Diese beiden gegenläufigen Effekte führen dazu, dass sich für den Anpressdruck ein optimaler Wert ergeben muss.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, den optimalen Anpressdruckwert zu bestimmen und vor allem zu verstehen. Dazu werden in dieser Arbeit zunächst Leistungsmessungen über fein aufgelöste Anpressdruckstufen an Testzellen mit drei häufig verwendeten GDL-Materialien durchgeführt (SGL 29BC, Toray TGP-H 060 und Freudenberg H2315 C2). Zur Erlangung eines grundlegenden Verständnisses des mechanischen Strukturverhaltens der GDL-Materialien und der Leistungsverläufe werden mechanische Materialprüfungen sowie bildgebende Struktur-Analyseverfahren den Leistungsmessungen vorangestellt. Dabei werden auch die Einflüsse der Mechanik auf betriebsrelevante Eigenschaften der GDL-Materialien wie die Permeabilität und die Ohm'schen Widerstände untersucht.

Um die ermittelten optimalen Arbeitsfenster auf andere Zelldesigns übertragbar zu machen, werden die entsprechenden Druckverteilungen ermittelt, mithilfe derer die lokalen Drücke unter Kanal und Steg erfasst werden. Ausschließlich diese Werte können als Grundlage zur Übertragung auf andere Zelldesigns genutzt werden. Darüber hinaus werden die Auswirkungen auf die Druckverteilung bei Verwendung tiefgezogener metallischer

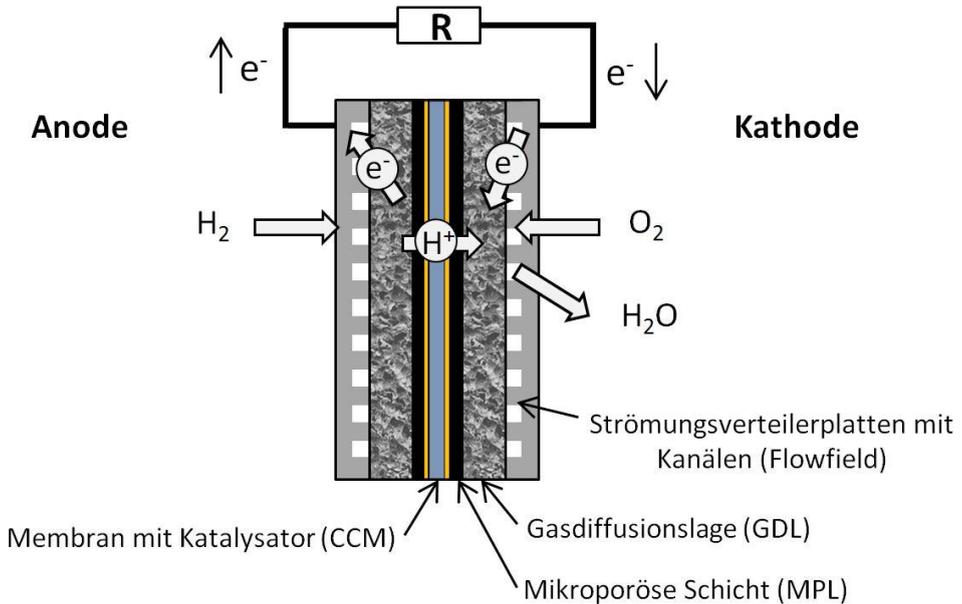
Flowfields untersucht, deren Kanal- und Steggeometrie stark von herkömmlichen gefrästen graphitischen Flowfields abweichen. Zum Abschluss wird geprüft, ob sich die Ergebnisse zum optimalen Anpressdruck hinsichtlich der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle auf den Stack-Maßstab skalieren lassen und welche zusätzlichen Herausforderungen es zu meistern gilt.

## 2 Grundlagen und Stand der Technik

In diesem Kapitel werden die Grundlagen für das detaillierte Verständnis dieser Arbeit aufbereitet und der aktuelle Stand der Forschung festgehalten. Dazu wird nach einer kurzen Darstellung des Aufbaus und der Funktion einer Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM) Brennstoffzelle der Einfluss der Mechanik deutlich gemacht, danach insbesondere die mechanischen Eigenschaften der Gasdiffusionslage (GDL) genauer beleuchtet und zum Schluss das gewonnene mechanische Bild der GDL in den Zell- bzw. Stack-Kontext eingebunden und damit die Bedeutung dieses Themas verdeutlicht.

### 2.1 Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle

Eine PEM-Brennstoffzelle ist um eine protonenleitende Polymer-Membran herum aufgebaut, deren beiden Seiten mit einer Elektrode beschichtet sind (**Abbildung 1**). Die Anode wird mit Wasserstoff und die Kathode mit Sauerstoff (bzw. Luft) versorgt. Damit die Gase auf der gesamten Membranoberfläche verteilt werden, werden diese in Strömungsverteilerplatten durch Kanäle an der Elektrodenoberfläche entlang geführt. Um die makroskopische Verteilung der Gase durch Kanalstrukturen auf mikroskopischer Ebene zu verfeinern, werden die Strömungsverteilerplatten mit Gas-Diffusions-Lagen (GDL) kombiniert. Eine noch feinere Verteilung der Gase auf der Elektrodenoberfläche kann durch eine mikroporöse Schicht (engl.: micro porous layer, MPL) auf der GDL erfolgen. Zur Verringerung der Aktivierungsenergie sind die Elektroden mit einem Katalysator versetzt, der im Wesentlichen aus Platin besteht.



**Abbildung 1:** Aufbau und Funktionsprinzip einer PEM-Brennstoffzelle

Auf der Anodenseite spaltet sich der Wasserstoff durch den Katalysator in freie Elektronen und Protonen. Die Protonen gelangen durch die protonenleitende Membran auf die Kathodenseite und die Elektronen fließen über den äußeren Stromkreis dorthin. Auf ihrem Weg kann die elektrische Energie genutzt werden. Auf der Kathodenseite findet dann zusammen mit dem Sauerstoff die Reaktion zu Wasser statt. Somit ergibt sich die Gesamtreaktion zu:



Die theoretische Spannung (Thermoneutralspannung) auf Basis des oberen Heizwertes von Wasserstoff beträgt 1,48 V ([1] S. 19). Von praktischer Bedeutung ist jedoch das Standardpotential (reversible Zellspannung) von 1,23 V ([2] S. 147), welches den Energieverlust durch die Entropie berücksichtigt. Dieses erhält man unter Standardbedingungen (25 °C, 1013 hPa) für flüssiges Produktwasser aus der Formel ([2] S. 147):

$$E^0 = \frac{\Delta_R G_m^0}{zF} = \frac{-237,13 \cdot 10^3 \frac{J}{mol}}{2 \cdot 96.485 \frac{As}{mol}} = -1,229 V \quad 2.2$$

mit:

- $E^0$ : Standardpotential
- $\Delta_R G_m^0$ : Freie Reaktionsenthalpie bei Standardzustand
- $z$ : Ladungszahl
- $F$ : Faraday-Konstante

Da aufgrund der Temperaturen der PEM-Brennstoffzelle von 60 bis 80 °C das Wasser nicht zwingend flüssig vorliegt, kann die Berechnung der Thermoneutralspannung auch mit dem unteren Heizwert durchgeführt werden und ergibt 1,25 V. Für die reversible Zellspannung ergibt sich 1,18 V für diesen Fall.

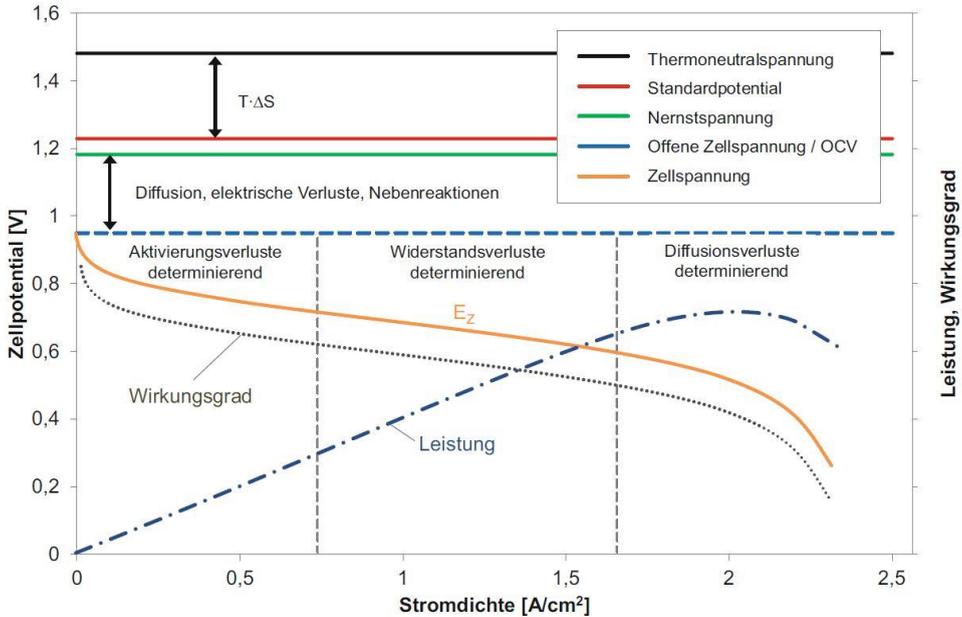
Diese Berechnungen setzen voraus, dass zum Beispiel bei der Halbzellenreaktion auf der Kathodenseite die Konzentration des Sauerstoffs 100 % beträgt und die Reaktion an einer Drei-Phasen-Grenze von Sauerstoff, Elektrolyt/Wasser und Katalysator stattfindet. Die Realität weicht jedoch meist von diesem Modell ab. Bei Verwendung von Luft zum Beispiel beträgt die Konzentration des Sauerstoffs lediglich 21 Vol.-%. Unter Berücksichtigung dessen kann nur noch maximal die Nernstspannung erreicht werden ( $E_N$ ). Diese berücksichtigt die konzentrations- bzw. partialdruckabhängige Aktivität der Reaktionspartner, sowie die von den Standardbedingungen abweichenden realen Bedingungen und lautet ([3] S. 55):

$$E_N = E^0 + \frac{RT}{zF} \ln \left( \frac{P_{H_2} P_{O_2}^{1/2}}{P_{H_2O}} \right) \quad 2.3$$

mit:

- $E_N$ : Nernstspannung
- $R$ : Ideale Gaskonstante
- $T$ : Temperatur
- $P_{H_2}$ : Normierter Partialdruck des Wasserstoffs
- $P_{O_2}$ : Normierter Partialdruck des Sauerstoffs
- $P_{H_2O}$ : Normierter Partialdruck des Wassers

Zusammen mit anderen Einflüssen wie zum Beispiel einem geringen Wasserstoff-Crossover und einem technischen Katalysator [4] ergibt sich die tatsächliche offene Zellspannung von weniger als 1 V. Die genannten Spannungsniveaus sind in **Abbildung 2** noch einmal anschaulich dargestellt.



**Abbildung 2:** Strom-Spannungs-Kennlinie einer Brennstoffzelle und die dominierenden Verluste ([2] S. 150 Abb. 6.5)

Zu sehen ist auch, dass die Spannung unter Last ausgehend von der offenen Zellspannung weiter reduziert wird. Dies liegt im unteren Stromdichtebereich hauptsächlich an den Aktivierungsverlusten. Im mittleren Stromdichtebereich dominieren die Ohm'schen Verluste, welche dann im höheren Stromdichtebereich von den Diffusionsverlusten überlagert werden. Gerade die Ohm'schen Verluste und die Diffusionsverluste sind stark vom mechanischen Verhalten der einzelnen Brennstoffzellen-Komponenten untereinander abhängig. Daher wird im Folgenden näher auf den Einfluss der Mechanik auf die Brennstoffzelleneigenschaften eingegangen.

## 2.2 Bedeutung der Mechanik für die PEM Brennstoffzelle

Werden die verschiedenen Brennstoffzellen-Konzepte betrachtet, haben all diese Zell- und Stack-Designs eines gemeinsam: Die einzelnen, meist dünnen Schicht-Komponenten werden

aufeinander gepresst, miteinander verspannt. Dies ist notwendig, da die chemische Reaktion auf der gesamten Oberfläche der Membran-Elektroden-Einheit, respektive der Katalysatoroberfläche stattfindet. Da also auf der gesamten aktiven Fläche Elektronen frei werden, muss die Oberfläche in Gänze sehr gut elektrisch kontaktiert werden, um die Elektronen abzuleiten und dem äußeren Stromkreis zuzuführen. Dies wird durch das Andrücken der Oberflächen erreicht. Im Allgemeinen gilt, je höher der Anpressdruck ist, desto geringer ist der Kontaktwiderstand [5]. Ein gegenläufiger Effekt ergibt sich daraus, dass die GDL eine poröse Struktur darstellt, welche die aktive Fläche mit den Brenngasen versorgen muss. Wird die GDL also zu stark zusammengepresst, verliert sie an Porosität und der Durchflusswiderstand steigt [6, 7]. Einem weiteren Aspekt muss auch Rechnung getragen werden. Die Dichtungen innerhalb einer Brennstoffzelle tragen nicht selten einen Teil der Verspannkraft und müssen durch diese einen Mindestdruck erfahren, um die Aufgabe des Abdichtens sicher erfüllen zu können. Sofern kein Hardstop für die Dichtungsgeometrie vorgesehen ist, darf die Kraft auf die Dichtung auch nicht zu groß werden, da sonst ein Versagen des Dichtungsmaterials und damit eine Leckage der Zelle auftreten kann. Es gilt also einen Kompromiss für den Anpressdruck zu finden, der einen niedrigen Kontaktwiderstand bei gleichzeitig ausreichender Gasversorgung der aktiven Fläche ermöglicht, während die Dichtungsflächen mit dem ihrem Arbeitsfenster entsprechenden Druck beaufschlagt werden [8].

Um zunächst besser zu verstehen, wie sich die GDL mechanisch verhält, wird im folgenden Kapitel das dazu bereits vorhandene Wissen der Forschung zusammengestellt und erörtert.

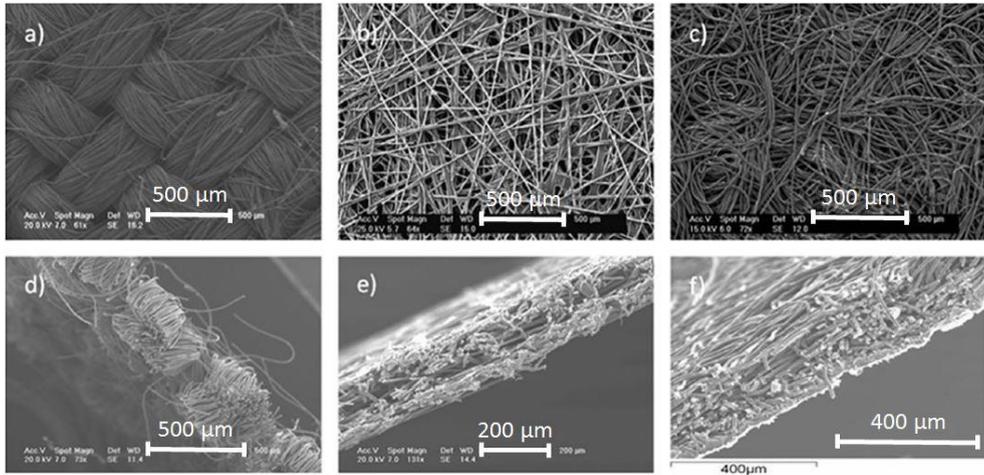
### 2.3 GDL Mechanik

Die Gasdiffusionslage der PEM Brennstoffzellen besteht typischerweise aus einem Faserverbund von 6 bis 8  $\mu\text{m}$  dicken Kohlenstofffasern ([9], Kap. 46 S. 3 f.). Die Struktur dieser Verbunde variiert von Hersteller zu Hersteller von zufällig übereinander geschichteten geraden Fasern (Faserpapiere) [10-12], über ineinander verschlungene gebogene Fasern (Faserfliese) [13] bis hin zu textilartigen Geweben [5]. Spröde Kohlenstofffasern können jedoch nicht so verarbeitet werden, wie es die Strukturen der GDL-Materialien verlangen. Daher werden bei der Herstellung zunächst Polymerfasern zum entsprechenden Papier, Vlies oder Gewebe verarbeitet, die dann unter Ausschluss von Sauerstoff carbonisiert werden. Dabei bleibt einzig der Kohlenstoff der Fasern zurück ([9], Kap. 4 S. 3 f.). Die Fasern müssen, sofern sie nicht vor der Carbonisierung gewebt oder durch formschlüssige

Verschlingung mit einander verbunden wurden, mithilfe eines Polymer-Klebers, im Folgenden Binder genannt, zusammengehalten werden. Die sich ergebenden GDL-Strukturen sind üblicherweise 150 bis 250  $\mu\text{m}$  dick und besitzen mittlere Porenradienverteilungen von 10  $\mu\text{m}$  [9, 14, 15]. Zusätzlich werden manche GDL-Materialien zur Einstellung der gewünschten hydrophoben/hydrophilen Eigenschaften mit Polytetrafluorethylen (PTFE) oder Polytetrafluorethylen-Hexafluorpropylen (FEP) Lösungen versetzt. Deren nach der Trocknung zurückbleibende Anlagerungen können die mechanischen Eigenschaften beeinflussen [16]. Durch diese inhomogene Struktur ergibt sich ein komplexes mechanisches Verhalten, dessen bereits bekannte Teilbereiche in den folgenden Kapiteln detailliert dargelegt werden.

### 2.3.1 GDL-Material unter einmaliger Kompression

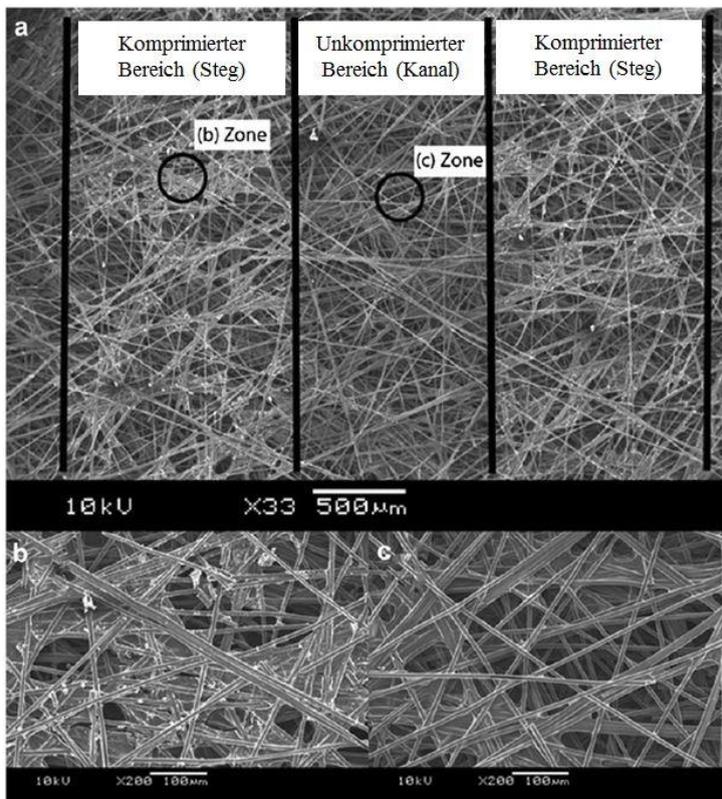
Durch die Faserstruktur der GDL-Materialien ergeben sich keine konstanten Materialkennwerte wie zum Beispiel ein Elastizitätsmodul (E-Modul), wie es bei Metallen der Fall ist. Um dennoch das Elastizitätsverhalten der drei GDL-Haupttypen (Papier, Vlies und Gewebe, **Abbildung 3**) von GDL Materialien zu charakterisieren nehmen Escribano et al. [17] Spannungs-Stauchungskurven mithilfe einer Universal-Materialprüfmaschine auf. Dazu werden 10 Proben gestapelt, von 0 bis 10 MPa belastet und die Verformung während der Belastung (plastischer und elastischer Verformungsanteil) sowie nach der Belastung (nur plastischer Verformungsanteil) gemessen. Dabei zeigen die GDL-Papier-Proben die größten plastischen Verformungen von etwa 30%, gefolgt von den GDL-Geweben mit 25% und den GDL-Vliesen mit unter 5%. Die hohe plastische Verformung der GDL-Papiere erklären sie mit der speziellen Struktur aus mit Binder zusammengehaltenen Fasern. Diese Binderbereiche, welche meist in den Kreuzungspunkten der Fasern entstehen, brechen unter Last und führen so zu den bleibenden Verformungen. Die GDL-Vliese dagegen erscheinen Escribano et al. aus flexibleren, weniger spröden Fasern zu bestehen, was die sehr geringe plastische Verformung erklären würde. Die Verformung unter Last stellt sich anders dar. Hier zeigt das GDL-Gewebe die größte Verformung mit knapp 70%, während das GDL-Papier mit 55% Verformung und das GDL-Vlies mit nur 25% Verformung auf die 10 MPa reagieren.



**Abbildung 3:** REM-Aufnahmen der drei verschiedenen GDL-Typen a)/d) Gewebe b)/e) Papier c)/f) Vlies (adaptiert nach [18])

Es werden lediglich die Herstellerfirmen (Zoltek, Elat, Freudenberg und Toray) von Escribano et al. [17] angegeben, so dass aufgrund der fehlenden Typenbezeichnung der GDL-Materialien nur Tendenzen für GDL-Papiere, -Vliese und -Gewebe mit anderen Daten verglichen werden können. Die Tendenz, dass sich das GDL-Papier (TGP- H120 der Firma Toray) unter Last steifer als das GDL-Gewebe (1071HCB der Firma Avcarb) verhält, wird auch von Radhakrishnan et al. [19] beobachtet. Sie gehen ähnlich wie Escribano et al. [17] vor und verwenden 10 aufeinander gestapelte Proben die in einer Universal-Materialprüfmaschine mit Druck beaufschlagt werden. Hier werden die Proben mit 5 MPa belastet, wobei sich bei den Geweben eine doppelt so hohe Verformung (80%) unter Last einstellt als bei den GDL-Papieren (40%). Die Größen der Verformungen decken sich mit den Ergebnissen von Escribano et al. sowie denen von Mason et al. [20]. Die Erklärung dafür stützt sich auf die strukturellen Unterschiede der beiden GDL-Typen. Radhakrishnan et al. [19] argumentieren, dass die größeren Porendurchmesser/Lücken des Gewebes zu der größeren Verformung gegenüber den GDL-Papieren führen. Auf plastische Verformungen und deren Ursachen wird von Radhakrishnan et al. nicht eingegangen. Auf diesen Punkt gehen Mason et al. [21] näher ein. Sie belasten unter anderem GDL-Material der Firma Toray des Typs TGP-H 120 mit einem Flowfield und können anschließend durch REM Aufnahmen ausmachen, dass unterhalb der Stege des Flowfields die Kohlenstofffasern gebrochen sind und die Porosität durch die Bruchstücke verringert ist, während die Bereiche der GDL unterhalb des Kanals vollkommen intakt sind (siehe **Abbildung 4**). Bei Erhöhung

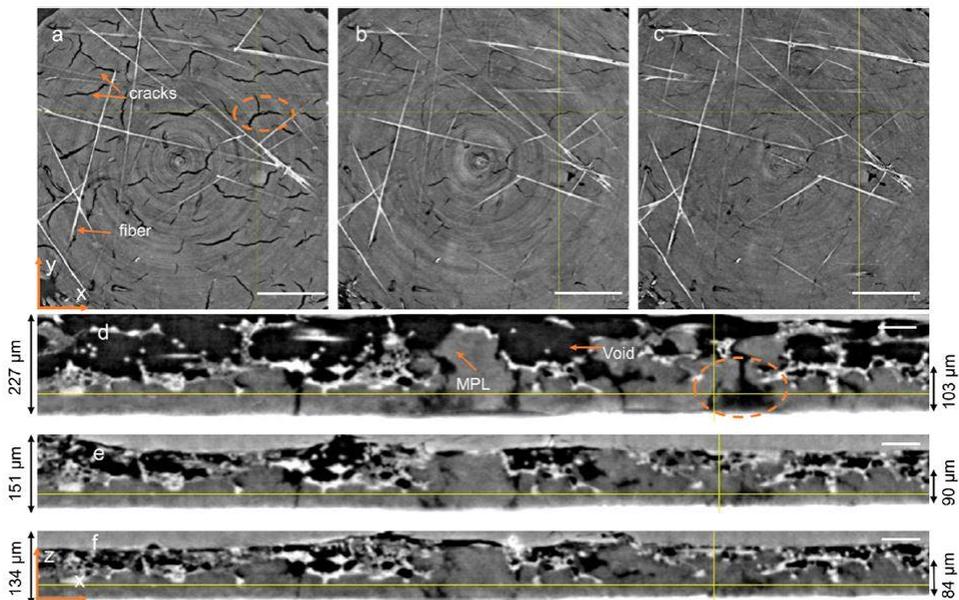
des Anpressdrucks auf 12,5 MPa wird der Effekt deutlicher. Diese Beobachtungen decken sich mit der Erklärung für die plastischen Verformungen von Escribano et al. [17]. Sie fügen aber noch an, dass neben den brechenden Fasern auch brüchige Binder-Bereiche auftreten, welche dann gemeinsam mit den gebrochenen Fasern zu den beobachteten plastischen Verformungen führen. Dass diese Binderbereiche tatsächlich in GDL-Papieren bei zu hohen Drücken auftreten zeigen die REM-Aufnahmen von Lin et al. [22]. Sie belasten zwei GDL-Papiere mit Druck, beobachten gebrochene Binderbereiche und geben an, dass Faserschädigungen erst bei sehr hohen Drücken auftreten, ohne dabei die Druckhöhe bekannt zu geben.



**Abbildung 4:** Faserbrüche von Toray TGP-H 120 nach Komprimierung durch Flowfield mit 2,5 MPa (adaptiert nach [21])

Neben dem Faserverbund aus Kohlenstofffasern existiert häufig noch eine weitere Schicht, die unter anderem die Aufgabe übernimmt, die Gase noch einmal feiner auf der Membran- bzw. Katalysator-Oberfläche zu verteilen und das Wasser von dieser wegzuleiten [23]. Diese

Schicht wird Mikro-Poröse-Schicht (engl.: micro porous layer, MPL) genannt und besteht herkömmlicherweise aus Kohlenstoffpulver mit Anteilen an PTFE. Die MPL wird meist als flüssige Suspension auf die Faserstruktur der GDL aufgebracht [24, 25]. Abhängig vom Auftragsverfahren der MPL kann diese nur oberflächlich auf der Kohlenstofffaserschicht liegen oder tief in die Faserstruktur eingezogen sein. Dies wirkt sich entscheidend auf die mechanischen Eigenschaften aus, wie Atkinson et al. [25] feststellen. Sie betrachten das GDL-Vlies H2315 C2 der Firma Freudenberg (mit dünner aufliegender MPL) und das GDL-Papier 29BC der Firma SGL (mit tief eingezogener MPL) und beobachten, dass bei einer Kompression der SGL-GDL um 34% feine Risse und Strukturierungen auf der Oberfläche der MPL verschwinden. Dieser Effekt verstärkt sich bei einer Kompression um 41% noch weiter (siehe **Abbildung 5**). Beim Freudenberg-Vlies machen sie die gleichen Beobachtungen, komprimieren die GDL jedoch nur um 14% bzw. 28%.



**Abbildung 5:** Oberflächenglättung der MPL nach Kompression um a) 0% b) 34% c) 41% - SGL 29BC (adaptiert nach [25])

Unterschiedlich verhalten sich die beiden Materialien jedoch bezüglich des Eindringens der MPL in den Faserverbund aufgrund der Kompression. Die MPL des Freudenberg-Vlieses dringt nicht in die Poren der Faserstruktur ein, während die MPL des SGL-Papiers, welche grundsätzlich schon tiefer in die Faserstruktur verwurzelt ist, deutlich in die Poren der noch

freien Faserstruktur eindringt. Atkinson et al. [25] erklären dies damit, dass das Freudenberg-Vlies der MPL durch die kleinere Porenradienverteilung mehr Widerstand bietet als die größeren Poren des SGL-Materials können. Durch CT-Aufnahmen kann sehr deutlich gezeigt werden, dass das MPL-Material umverteilt wird und die Poren dadurch verschlossen werden. Diese Möglichkeit der plastischen Verformung führt dazu, dass sich das SGL-Papier auch hier (genauso wie bei Escribano et al. [17]) duktiler als das GDL-Vlies verhält.

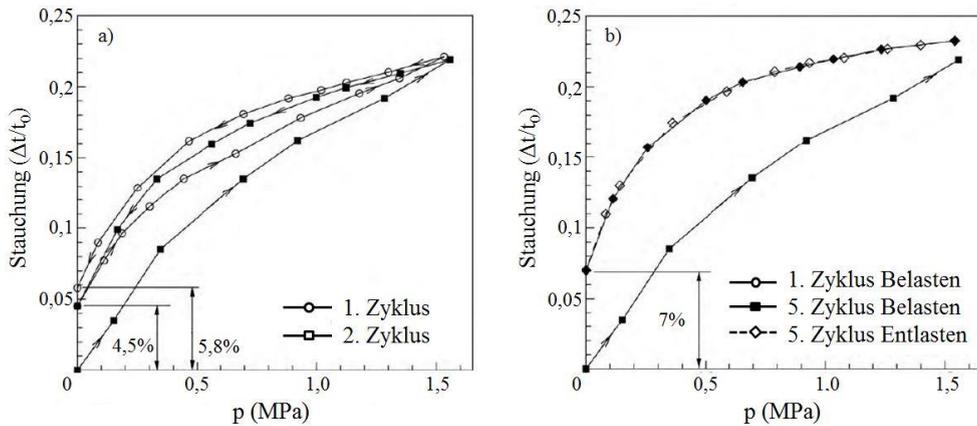
Es lässt sich also festhalten, dass sich GDL-Vliese generell steifer als die GDL-Papiere verhalten. Die Papiere erleiden mehr Schädigungen in Form von bleibender, plastischer Verformung nach der Druckbelastung, welche durch gebrochene Fasern und geschädigte Binderbereiche erklärt werden können. Das Verhalten der Gewebe ähnelt eher dem der GDL-Papiere, variiert in seinen Tendenzen aber stärker aufgrund verschiedener Web-Parameter. Mal ist es steifer als das für den Vergleich herangezogene GDL-Papier, mal reagiert es weniger steif. Typische Drücke der durchgeführten Kompressionsversuche lagen dabei im Bereich von 5 bis 15 MPa, was sich in 5 bis 35% plastischer Verformung und 25 bis 80% Verformung unter Last (elastischer und plastischer Anteil zusammen) auswirkt. Die Ergebnisse können nicht immer quantitativ für bestimmte Materialien ausgewertet werden, so dass generelle Unterschiede zwischen den einzelnen GDL-Typen zwar herausgearbeitet werden, das konkrete Verhalten bestimmter, gebräuchlicher Materialien jedoch nicht erfasst wird.

Bei der Assemblierung und dem Betrieb einer Brennstoffzelle wird das GDL-Material nicht nur einem Kompressionszyklus unterzogen, sondern erleidet eine Vielzahl an Kompressionen und Dekompressionen. Aufgrund des komplexen Aufbaus und der daraus resultierenden plastischen Verformungen der GDL-Materialien führt schon die erste Kompression zu einer Änderung des mechanischen Verhaltens und kann sich durch weitere Ermüdung/plastische Deformation weiter ändern. Daher wird im Folgenden das bereits Bekannte über die Auswirkungen zyklischer Kompression auf die mechanischen Eigenschaften der GDL-Materialien zusammengetragen.

### 2.3.2 GDL-Material unter zyklischer Kompression

Im Betrieb einer PEM-Brennstoffzelle verändert sich der Wassergehalt der Membran in Abhängigkeit der Last, Temperatur und Feuchte der zugeführten Gase. Mit steigendem Wassergehalt schwillt die Membran und bringt zu dem schon vorhandenen Anpressdruck etwa 0,5 MPa zusätzlich auf [26]. Dieses Anschwellen und Abschnellen der Membran geschieht bei einem dynamischen Betrieb der Zelle mehrere tausend Mal während der gesamten Lebensdauer. Dazu kommt, dass eine Zelle bei der Assemblierung mehrere Male auseinander und wieder zusammengebaut werden kann. Daher ist das mechanische Verhalten der GDL-Materialien unter zyklischer Beanspruchung durchaus von Interesse.

Sadeghi et al. [27] führen Untersuchungen zum zyklischen, mechanischen Verhalten des Toray TGP-H 120 GDL-Papiers durch, indem sie die GDL-Proben in einer Kompressionsvorrichtung von 0,25 bis 1,5 MPa bis zu 5 mal komprimieren (siehe **Abbildung 6**). Dieser Beanspruchungszyklus beschreibt zunächst nur die mechanische Beanspruchung der GDL durch mehrmalige Assemblierung/Wartung. Während dieser fünf Zyklen kann eine deutliche Hysterese zwischen den Belastungszyklen gezeigt werden. Diese schlägt sich nieder in der Steigerung der plastischen Verformung vom ersten Zyklus mit 4,5% über den zweiten mit 5,8% bis hin zum fünften mit 7%. Danach verschwindet die Hysterese und das Material erleidet keine weitere signifikante plastische Verformung mehr, ein annähernd konstantes Materialverhalten stellt sich ein. Die gleichen Untersuchungen wurden von Gigos et al. [28] an verschiedenen SGL-Papieren mit deutlich höherem Druck (7 bis 12,6 MPa) und 20 Zyklen durchgeführt. Der höhere Druck wird durch die Ergebnisse von Bograchev et al. [29] begründet, die feststellen, dass die GDL durch inhomogene Druckverteilungen durchaus Druckspitzen von über 10 MPa ertragen muss. Gigos et al. [28] stellen ebenso wie Sadeghi et al. [27] fest, dass sich nach etwa 5 Zyklen reproduzierbare Spannungs-Stauchungskurven ohne weitere plastische Verformungen einstellen.



**Abbildung 6:** Toray TGP-H 120 - Spannungs-Stauchungsdiagramme mit 5 Kompressionszyklen (adaptiert nach [27])

Alle Untersuchungen zum Einfluss der Belastungszyklen eint bis hier hin, dass sich nach etwa 5 Zyklen die mechanischen Eigenschaften nicht mehr ändern. Jedoch wird eine Brennstoffzelle durch einen dynamischen Betrieb mehrere tausend Mal durch das Schwellen und Abschwelen der Membran mit zusätzlichen 0,5 MPa komprimiert bzw. entlastet [26]. Diesem Thema widmet sich Y. Shen [30] in seiner Doktorarbeit. Auch er beobachtet wie Gigos et al. [28] und Sadeghi et al. [27], dass nach etwa 5 Zyklen die größte plastische Verformung bereits stattgefunden hat. Jedoch belastet er die SpectraCarb 2050A-0850 GDL-Papiere mit insgesamt 2000 Zyklen und stellt fest, dass sich bei dem GDL-Material erst nach 1000 Zyklen (mit 20 Gew.-% PTFE-Gehalt in der GDL) bzw. nach 1500 Zyklen (ohne PTFE) ein Plateau bis zum 2000. Zyklus einstellt, die plastische Verformung also konstant bleibt. Da er die Versuche mit 5 aufeinander gestapelten Proben durchgeführt hat und selbst feststellen musste, dass die Anzahl der aufeinander gestapelten Proben einen starken Einfluss auf die gemessenen Verformungen der Proben haben, können die erzielten Verformungen von 21% (mit PTFE) und 32% (ohne PTFE) nach 2000 Zyklen nur schwer mit anderen Literaturwerten verglichen werden. Da sowohl die zuvor erwähnten Ergebnisse von Escribano et al. [17] und Radhakrishnan et al. [19] mithilfe von aufeinander gestapelten GDL-Proben erzielt wurden, sind auch deren Absolutwerte nur bedingt mit anderen Messungen vergleichbar.

Die essentielle Aussage ist, dass gerade nach der ersten Kompression mit einer größeren plastischen Verformung der GDL zu rechnen ist, welche sich bis etwa zum 5. Belastungszyklus noch geringfügig ändern kann. Mehrere tausend Belastungszyklen

scheinen eine weitere plastische Verformung zu generieren. Dies ist jedoch nicht einwandfrei belegt, da hier ein veränderter Versuchsaufbau von mehreren übereinandergestapelten Proben verwendet wurde, der andere dominierende Effekte beinhalten könnte. Es bleibt also zu zeigen, ob der Effekt auch bei einer zyklischen Belastung von nur einer GDL-Probe zu sehen ist. Darüber hinaus fehlen einige gebräuchliche Materialien in den Betrachtungen, deren mechanisches Verhalten möglicherweise von dem hier gezeigten abweicht.

Wie bei den Messergebnissen weiter oben schon angemerkt, spielt der PTFE-Gehalt eine nicht unwesentliche Rolle bei den gemessenen Verformungen. Weitere veränderbare Parameter können die Feuchtigkeit, die Temperatur, die Belastungsdauer und die Belastungsgeschwindigkeit während der Versuche sein. Daher wird im folgenden Kapitel auf die Einflüsse dieser Parameter genauer eingegangen.

### 2.3.3 GDL-Material unter Einfluss von PTFE-Gehalt, Feuchtigkeit, Temperatur, Belastungsdauer und Belastungsgeschwindigkeit

Zur Einstellung der gewünschten hydrophoben bzw. hydrophilen Eigenschaften der GDL werden viele GDL-Materialien mit PTFE versetzt. Dabei lagert sich das PTFE vorzugsweise an den Faserkreuzungspunkten an und besitzt damit einen großen Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften der GDL [31].

Durch die Verstärkung der Faserkreuzungspunkte mit PTFE können Ismail et al. [32] in ihren Kompressionsversuchen zeigen, dass sich die Steifigkeit generell proportional zum PTFE-Gehalt verhält. So bewirkt eine Erhöhung des PTFE-Gehalts von 5 Gew.-% auf 30 Gew.-% eine Erhöhung der Steifigkeit von etwa 15 % bei den geprüften SGL-Papieren (10BA und 10EA). Zu den gleichen Schlüssen kommen auch Escribano et al. [17] in ihrer Veröffentlichung. Y. Shen [30] beobachtet das gleiche Verhalten für die Toray TGP-H120 GDL. Hier erhöht sich die Steifigkeit sogar um 30 % beim Vergleich einer GDL mit 0 Gew.-% PTFE-Anteil und 40 Gew.-% PTFE-Anteil. Das SGL-Material 10BC aus der Arbeit von Ismail et al. [32] hat einen PTFE-Anteil von 23 Gew.-%, verhält sich jedoch steifer als das 10EA Material mit nur 30 Gew.-% PTFE-Anteil. Dies führt auf den ersten Blick zu einem nicht konsistenten Bild, ist aber durch die zusätzliche MPL zu erklären, die zu einer weiteren Versteifung der GDL führt. Durch REM-Aufnahmen von Ismail et al. [32] kann gezeigt werden, dass durch Einlagerungen von PTFE oder MPL-Material im

Faserverbund, eine Verkleinerung der Poren, also eine Verstärkung/Häufung der Faserkreuzungspunkte und damit eine kompaktere Struktur einhergehen, die zu dem beobachteten steiferen Verhalten führen. Dieser optische Eindruck der kleiner werdenden Poren wird durch Porositätsmessungen von Lobato et al. [33] untermauert. So verliert die getestete Toray TGP-H120 GDL mit 40 Gew.-% PTFE-Gehalt etwa die Hälfte ihres aufsummierten Porenvolumens im Vergleich zur GDL ohne PTFE-Anteil, während die Porengrößenverteilung unberührt davon bleibt.

Unabhängig vom GDL-Typ lässt sich festhalten, dass die Einlagerung von PTFE oder MPL-Material an den Faserkreuzungspunkten zu einem steiferen Verhalten führt. So ergibt sich aus einem um mehrere Prozentpunkte gestiegenen PTFE-Gehalt auch ein um die gleiche Größenordnung gestiegenes steiferes Materialverhalten (Spannung im Verhältnis zur Dehnung).

Nachdem die Einflüsse der Materialzusammensetzung und Struktur der GDL auf die mechanischen Eigenschaften erläutert wurden, bleibt noch zu klären, welchen Einfluss denn die Umgebungs- und Betriebsparameter auf das mechanische Verhalten besitzen. Wissend, dass sowohl die MPL als auch die Einlagerungen aus der Hydrophilisierung bzw. Hydrophobierung aus Polymeren bestehen, liegt es nahe, dass sowohl die Temperatur als auch die Feuchtigkeit einen Einfluss besitzen können. Auch ist es nicht unüblich, dass Polymere ein zeitabhängiges mechanisches Verhalten zeigen.

Widererwartend stellt Y. Shen [30] aber in seiner Doktorarbeit fest, dass sowohl die Temperatur, als auch die relative Feuchte der umgebenden Luft keinen Einfluss auf die Steifigkeit der SpectraCarb 2050A-0850 GDL besitzen. Die GDL hat jedoch keinen PTFE-Anteil, so dass hier lediglich geschlussfolgert werden kann, dass die Temperatur und Feuchte keinen Einfluss auf den Binder zu haben scheinen. Belastungsgeschwindigkeiten und Belastungsdauer werden nur selten in den Veröffentlichungen angegeben, so dass sich hier kein zusammenhängendes Bild der Einflüsse ergibt.

Die GDL wird in der Regel nicht über die gesamte Fläche gleichmäßig belastet, sondern vornehmlich durch regelmäßige Strukturen, wie sie die meisten Flowfields besitzen. Daher wird im Folgenden auf das Zusammenspiel dieser Strukturen mit der GDL eingegangen.

### 2.3.4 Zusammenspiel von Flowfield und GDL

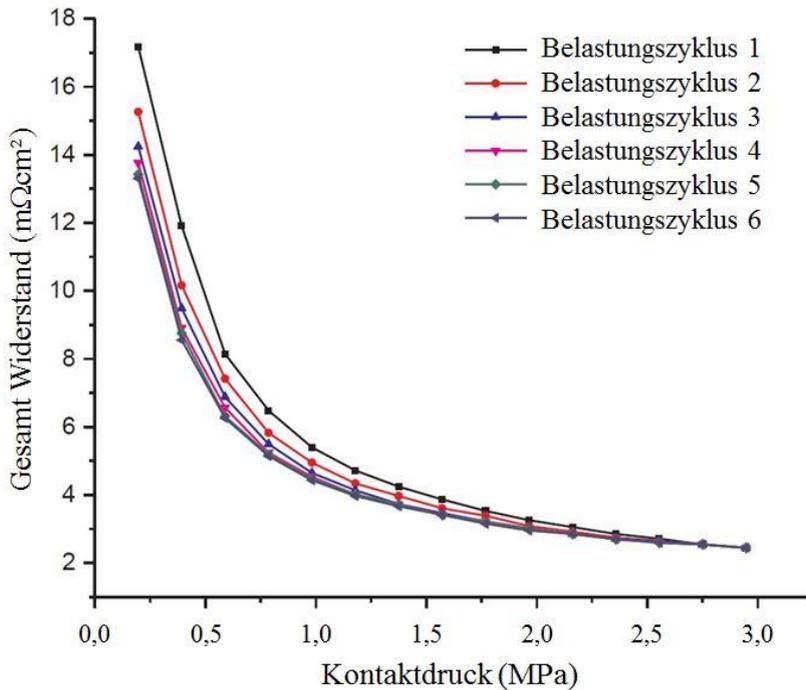
Die direkten Kontaktpartner der GDL sind auf der einen Seite die mit Katalysator beschichtete Membran (engl.: catalyst coated membrane, CCM) und auf der anderen Seite das Flowfield. Da das Flowfield eine strukturierte Oberfläche mit meist kanalartigen Strukturen besitzt, ist der Kontakt zwischen Flowfield und GDL mechanisch von besonderem Interesse. So können das Verhältnis von Kanal- zu Stegfläche oder scharfkantig gefräste Stegkanten den lokalen Druck auf der GDL und damit die Leistung beeinflussen [34]. Dieser Thematik nehmen sich Zhou et al. [35] an und zeigen durch ihre Simulationen auf Basis der Porosität und einer Näherung des E-Moduls zweier SGL-GDLs, dass ein kleinerer Kantenradius des Steges zu einer höheren Porosität unterhalb des Steges führt (eckige Steg-Kante: 0,84, runde Steg-Kante: 0,76, bei 1 kN/m). Ebenso ist auch der Kontaktwiderstand der eckigen Steg-Kanten-Geometrie im Gegensatz zu den runderen Steg-Kanten niedriger (eckige Steg-Kanten: 0,53 m $\Omega$  m, runde: 0,76 m $\Omega$  m, bei 0,4 kN/m). Gestützt werden die Ergebnisse zur Porosität von Garcia-Salaberri et al. [36]. Auch sie stellen eine Verminderung der Porosität bei Vergrößerung des Steg-Kanten-Radius fest, und begründen dies mit der kleineren Kontaktfläche des abgerundeten Steges. Gleichzeitig glättet sich aber die Druckverteilung unter dem Steg, was zu weniger Peak-Belastung der GDL führt.

Wie sich der veränderte Kantenradius und die veränderte Kontaktfläche auf den Kontaktwiderstand und die Porosität auswirken, wurde durch Messungen noch nicht belegt. Dass sich die veränderte Porosität aber auf den elektrischen Widerstand und den Massentransportwiderstand auswirkt, wird im nächsten Kapitel verdeutlicht.

### 2.3.5 Auswirkungen der Mechanik auf den elektrischen Widerstand und den Massentransportwiderstand

Im vorherigen Kapitel wurde bereits gezeigt, dass der elektrische Widerstand, der sich aus Kontakt- und Material-Widerstand zusammensetzt, durch die Druckverteilung beeinflusst wird. Dies wird durch Untersuchungen wie die von Escribano et al. [17] und Mason et al. [37] bestätigt. Auch allen gemein ist die Erkenntnis, dass der elektrische Widerstand mit steigendem Anpressdruck sinkt. Dies hängt zum Beispiel damit zusammen, dass der elektrische Materialwiderstand von der Faserstruktur abhängt und mit der Anzahl der Kontaktstellen zwischen den Fasern korreliert [38]. Darüber hinaus hängt der elektrische

Widerstand nach Radhakrishnan et al. [19] auch von den vorangegangenen Lastzyklen und deren mechanischen Schädigungen ab. Selbiges beobachten auch Qiu et al. [5] und Mason et al. [21]. Diese Lastzyklen-Abhängigkeit sowie typische elektrische Widerstandswerte für GDL-Materialien sind in **Abbildung 7** exemplarisch für das TGP-H 060 der Firma Toray dargestellt. Die Messwerte beziehen sich auf einen Lastzyklus beginnend bei 0,25 MPa und einer schrittweisen Erhöhung um 0,25 MPa auf 3 MPa. Danach wird der nächste Lastzyklus wieder bei 0,25 MPa begonnen.



**Abbildung 7:** Gesamtwiderstand von Toray TGP H 060 in Abhängigkeit des Kontaktdrucks und des Belastungszyklus (adaptiert nach [5])

Nicht nur der Kontaktwiderstand zwischen GDL und Flowfield wird unter größerem Anpressdruck kleiner, sondern nach Kleemann et al. [39] auch der zwischen Katalysatorschicht und GDL. Ihren Simulationen nach sind die Werte deutlich unterhalb derer von GDL und Flowfield und liegen im Bereich von weniger als 5 mΩ cm<sup>2</sup> bei Anpressdrücken von 0,5 MPa. Daher ist der Kontaktwiderstand zwischen Katalysatorschicht und GDL nur selten der Mittelpunkt von Untersuchungen und die Mehrheit der Veröffentlichungen konzentriert sich auf Kontaktwiderstände zwischen GDL und Flowfield.

Neben dem Kontaktwiderstand hat der Anpressdruck auch einen starken Einfluss auf die Porosität und damit auf die Massentransportwiderstände innerhalb der GDL. So stellen Holzer et al. [6] in ihren Untersuchungen der SGL-GDL 25BA und Hussaini et al. [7] fest, dass sowohl der in-plane- als auch der through-plane-Durchflusswiderstand unter Druck größer wird, was auf die verringerte Porosität zurückzuführen ist. So sinkt beispielsweise die through-plane Permeabilität um 17 % bei einer Erhöhung der Kompression von 7 auf 9 %, die in-plane Permeabilität sogar um 20 %. Chang et al. [40] geben neben den Kompressionen auch die herrschenden Anpressdrücke auf der GDL an. Hier verringert sich die in-plane Permeabilität zum Beispiel um 50 %, bei einer Erhöhung des Anpressdrucks von 0,5 auf 1 MPa und Verwendung der Toray-GDL. Fazeli et al. [41] bestätigen die Ergebnisse mit ihren Simulationen für Gase und fügen hinzu, dass die erhöhten Massentransportwiderstände auch für Wasser gelten. Bei Kombination einer Gas- und Flüssigkeitsströmung verstärkt sich der Effekt der Permeabilitätserhöhung sogar noch. So erhöht sich der Gas-Massentransportwiderstand in einer trockenen GDL um 25 % bei einer Erhöhung der Kompression von 10 auf 20 %, während er sich in einer nassen GDL sogar um 40 % erhöht.

Eine qualitative Methode zur Veranschaulichung der Auswirkungen des Anpressdrucks auf den Massentransport und damit die Leistung ist der Betrieb einer Testzelle mit konstanter Gaszufuhr. Nähert man sich mit der Stromdichte dem Bereich nahe  $\lambda = 1$  macht sich ein Unterschied der Massentransportwiderstände deutlich in der maximal erreichbaren Stromdichte bemerkbar. Mit diesem Verfahren zeigen Ge et al. [42], dass sowohl GDL-Gewebe als auch GDL-Papiere auf eine höhere Kompression mit niedrigeren maximal erreichbaren Stromdichten, also höheren Massentransportwiderständen reagieren. Mason et al. [43] bestätigen diese Ergebnisse für die GDL-Papiere mit dem Material TGP-H060 der Firma Toray.

Aus den vorangegangenen Kapiteln geht deutlich hervor, dass die Mechanik einen großen Einfluss auf die Faserstruktur, die Porosität derselben, und die der MPL sowie den elektrischen Widerstand besitzt. Dies muss zwangsläufig auch zu einer Beeinflussung der Brennstoffzellen-Leistung führen. Daher wird im nächsten Kapitel der Stand zur Abhängigkeit der Leistung einer Brennstoffzelle vom Anpressdruck zusammengetragen.

## 2.4 Einzelzellen- und Stackmechanik

Die Leistung einer Brennstoffzelle hängt vornehmlich von ihren Widerständen innerhalb der Zelle ab. Die wichtigsten sind der Aktivierungs-Widerstand, der Ohm'sche-Widerstand und der Massentransport- bzw. Diffusions-Widerstand [3]. Gerade die beiden letzteren hängen dabei entscheidend vom Anpressdruck der Zellkomponenten ab. So kann zum Beispiel mithilfe von elektrochemischen-Impedanz-Spektroskopie (EIS) Messungen gezeigt werden, dass sich der Diffusionswiderstand der GDL proportional zum Anpressdruck verhält [8]. Daher spiegelt sich die Höhe des Anpressdrucks auch in der Leistung der Brennstoffzelle wieder.

### 2.4.1 Zelleistung in Abhängigkeit des Anpressdrucks

Lee et al. [44] beobachten als eine der ersten genau diese Abhängigkeit der Leistung vom Anpressdruck, indem sie ganz naheliegend die Schraubenverbindungen, die ihre Zellkomponenten verspannen, mit einem höheren Drehmoment anziehen und auf den jeweiligen Drehmomentstufen Polarisationskurven aufzeichnen. Sie stellen zunächst fest, dass eine Erhöhung des Anzugsmoments der Schrauben von umgerechnet 11,3 Nm (100 in-lb) auf 14,1 Nm (125 in-lb) zu einer deutlichen Leistungssteigerung der Zelle mit einer ELAT-GDL über den gesamten Stromdichtebereich führt. Bei 1 A/cm<sup>2</sup> zum Beispiel erhöht sich die Leistung der Zelle um etwa 7%. Noch deutlicher ist der Zuwachs bei hohen Stromdichten jenseits der 1 A/cm<sup>2</sup>. Bei einer weiteren Erhöhung des Drehmoments der Schrauben auf 16,9 Nm (150 in-lb) sinkt die Leistung oberhalb von 0,8 A/cm<sup>2</sup> jedoch wieder, bleibt aber über der Leistung des niedrigsten Anzugsmoments. Der Grund für den Einbruch der Leistung bei weiterer Erhöhung des Drehmoments/Anpressdrucks liegt in zwei konkurrierende Effekten begründet. Zum einen sinken die Ohm'schen Widerstände (hauptsächlich Kontaktwiderstände) durch einen höheren Anpressdruck. Zum anderen steigt aber der Massentransportwiderstand der GDL durch die verringerte Porosität [8]. Dass sich der Einbruch der Leistung bei den Messungen von Lee et al. [44] nur im oberen Stromdichtebereich oberhalb von 0,8 A/cm<sup>2</sup> auswirkt, liegt daran, dass hier nicht die Ohm'schen Widerstände wie im mittleren Stromdichtebereich dominieren, sondern die Massentransportwiderstände das „Nadelöhr“ darstellen [3]. Daher bleibt die durch den niedrigeren Ohm'schen Widerstand (durch den höheren Anpressdruck) gewonnene Leistung

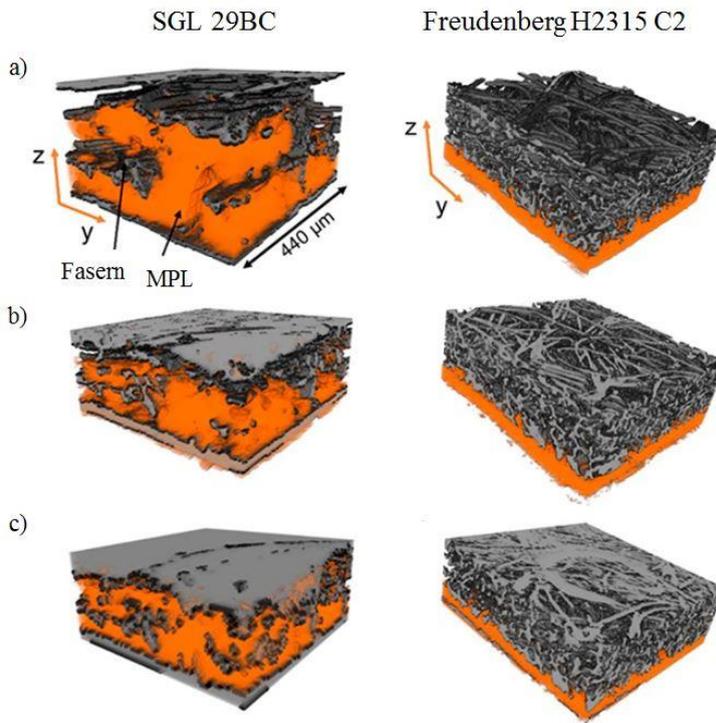
im gesamten Stromdichtebereich erhalten während im oberen Stromdichtebereich der gestiegene Massentransport-Widerstand überwiegt und den gewonnenen Leistungszuwachs zunichtemacht. Für das GDL-Material „TORAY medium“ können Lee et al. [44] keine Leistungssteigerung für die verwendeten Anzugsdrehmomente feststellen. Hier sinkt die Leistung der Zelle ausgehend vom niedrigsten Anzugsdrehmoment immer weiter mit steigendem Anzugsdrehmoment. Im Nachgang haben Lee et al. [44] mithilfe von Druckmessfolien den aus den Drehmomenten resultierenden Anpressdruck für Toray bestimmt und festgestellt, dass der optimale Anpressdruck unterhalb von 1,6 MPa liegen muss. Weitere Arbeiten wie die von Rao et al. [45], Wen et al. [46] und Gatto et al. [47] sind in der Lage zu belegen, dass es einen optimalen Anpressdruck hinsichtlich der Leistung einer Zelle gibt, jedoch bestimmen sie dieses Optimum ausschließlich über das Anzugsdrehmoment der Verspannschrauben des jeweiligen Stackdesigns. Diese Ergebnisse können daher nur qualitativ verwertet werden, da der Anpressdruck auf die Brennstoffzellen-Komponenten nicht angegeben oder gemessen wurde, die Anzugsdrehmomente also nur für das jeweilige ganz spezielle Testzellen-Design gültig sind und nicht auf andere Testzellen-Designs übertragbar sind.

Knöri et al. [48] bestätigen die qualitativen Ergebnisse der zuvor erwähnten Drehmoment-optimierten Testzellen und können durch einen nach unten erweiterten Anpressdruckbereich auch ein Optimum für das verwendete Toray GDL-Material finden. Sie geben dabei den Anpressdruck auf der aktiven Fläche an, was die Ergebnisse mit anderen Literaturwerten erst möglich macht. So erzielen sie für das GDL-Material E-TEK „single sided V2“ für Stegbreiten von 1 mm den höchsten Strom von 0,62 A/cm<sup>2</sup> bei 500 mV für einen Anpressdruck von 10 MPa. Für die Leistungsmessungen mit der Toray-GDL sind keine quantitativen Ergebnisse festgehalten. Hier ergänzen die Ergebnisse von Chang et al. [40] das Bild stellvertretend für die GDL-Papiere. Sie stellten für ihre selbsthergestellte MEA und nicht näher spezifizierte Papier-GDL einen optimalen Anpressdruck von 1 bis 2 MPa fest.

Als Erklärung für die gefundenen Optima ziehen Knöri et al. [48] neben dem Zusammenspiel aus sinkendem Ohm'schen Widerstand und steigendem Massentransportwiderstand einen zusätzlichen Faktor, anders als alle anderen, heran. So stellten sie für das E-TEK Material fest, dass dieses im Gegensatz zum getesteten Toray-Material in den Kanal hineinragt. Bei höheren Anpressdrücken von zum Beispiel 8 MPa können sie eine Eindringung von bis zu 0,3 mm beobachten. Dass sich bestimmte GDL-Materialien in die Kanäle wölben wird auch

von Tötze et al. [49] beobachtet und stützt die Ergebnisse von Knöri et al. [48]. Sie beobachteten ebenfalls eine Eindringung von knapp 0,3 mm bei einer Kompression des GDL-Materials von 29%. Dabei stellten sich niedrigere Porositäten unterhalb des Steges ein, höhere Porositäten jedoch unter dem Kanal. Diese Beobachtung machten auch Froning et al. [50] in ihren Simulationen. In wie weit sich das Aufwölben der GDL in den Kanal auf die Leistung auswirkt wird jedoch nicht untersucht.

Neben dem bereits mehrfach erwähnten Toray GDL-Papier werden zwei weitere häufig verwendete GDL-Materialien von Atkinson et al. [25] unter leistungstechnischen Gesichtspunkten untersucht. Sie beobachten bei den Materialien 29BC der Firma SGL und dem H2315 C2 der Firma Freudenberg die gleichen Tendenzen für die Existenz eines optimalen Anpressdrucks. Sie betrachten für das SGL-Material vier Kompressionsstufen (14 %, 28 %, 34 % und 41 %) und beobachten, dass der niedrigste Anpressdruck zur höchsten Leistung führt. Eine Erhöhung des Anpressdrucks führt kontinuierlich zu einer Verringerung der Leistung. Ein anderes Material der Firma SGL betrachten El-Kharouf et al. [51]. Sie können im Gegensatz zu Atkinson et al. [25] eine optimale Leistung bei einer Kompression auf 150 bis 200  $\mu\text{m}$  feststellen, was einer Komprimierung von etwa 20-40 % entspricht. Dass bei bestimmten SGL-Materialien ein Optimum existiert, wird auch von Chang et al. [52] beschrieben und unterstreicht noch einmal, dass dies stark von dem verwendeten Material abhängt. Beim Freudenberg-Material von Atkinson et al. [25] zeigt sich aber wieder ein Optimum. Hier besitzt die Zelle bei 28 % Kompression der GDL die höchste Leistung, während 14 % respektive 40 % Kompression zu einer geringeren Leistung führen. Der Einbruch der Leistung wird auch hier durch die kleiner werdenden Poren bei höheren Drücken begründet. Der Unterschied des Verhaltes zwischen dem SGL- und Freudenberg-Material liegt für sie darin begründet, dass die SGL-GDL eine in die Faserstruktur eingezogene MPL besitzt, die unter Kompression die Poren des Faserverbands stärker verschließt. Die Freudenberg GDL hingegen besitzt eine auf der Oberfläche des Faserverbands liegende MPL, welche aufgrund der kleineren Poren des Vlieses nicht so stark in die Poren gedrückt werden kann, wie es beim SGL-Material möglich ist. Zu sehen ist dieser Unterschied in **Abbildung 8**.



**Abbildung 8:** CT-Aufnahmen von GDL Materialien unter Kompression - links: SGL 29BC mit a) 0 % b) 34 % c) 41 % - rechts Freudenberg H2315 C2 mit a) 0 % b) 14 % c) 28 % (adaptiert nach [25])

Im Forschungsfeld zum optimalen Anpressdruck existieren auch einige simulationsbasierte Arbeiten. Su et al. [53] und Toghyani et al. [54] zum Beispiel berücksichtigen in ihren Modellen keine sich mit dem Anpressdruck verändernden Kontaktwiderstände, so dass ihre Ergebnisse nicht zu einem optimalen Anpressdruck führen sondern der jeweils geringste Anpressdruck zur höchsten Leistung der Zelle führt. Die Brücke zwischen experimentellen Ermittlungen und den Simulationen schlagen dann aber Zhou et al. [55]. Ihr Modell berücksichtigt sowohl die mechanischen Verformungen als auch die davon abhängigen Massentransportwiderstände und Kontaktwiderstände. Damit können sie einen optimalen Assemblierungsdruck zwischen 0,1 und 0,5 MPa je nach Lastzustand ausmachen. Validieren können sie ihr Modell durch experimentelle Messungen bei verschiedenen Anpressdrücken und stellen lediglich bei höheren Stromdichten fest, dass ihr Modell von der Realität abweicht. Dies liegt nach ihrer Einschätzung an der nicht berücksichtigten Zwei-Phasen-Strömung, welche vornehmlich in genau diesen Stromdichteregionen vorliegt.

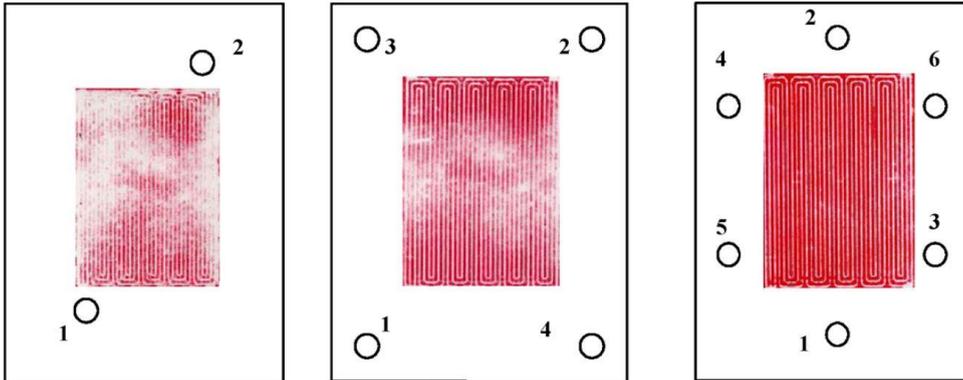
Xing et al. [56] nehmen sogar Materialien von SGL (10BA und 10BB) als Vorbild für ihr Modell der GDL und halten für eine Spannung von 0,5 V einen optimalen Anpressdruck von 0,15 MPa (10BA) bzw. 0,43 MPa (10BB) fest. In ähnlichen Regionen bewegen sich die Ergebnisse von Taymaz et al. [57] (0,5 bis 1 MPa) und Wang et al. [58] (1 MPa). Eine Abhängigkeit des Druckoptimums von der GDL-Dicke konnten Mohavedi et al. [59] in ihren Simulationen feststellen. Bei den dickeren GDL-Materialien lag der optimale Anpressdruck höher als bei den dünneren Materialien, lag aber immer im Bereich von 0,25 bis 1 MPa.

Aus der Literatur geht deutlich hervor, dass ein Optimum für den Anpressdruck existieren muss. Dies ist darin begründet, dass bei steigendem Anpressdruck die Ohm'schen Widerstände sinken, während gleichzeitig der Massentransportwiderstand durch die GDL steigt. Diese beiden gegenläufigen Effekte müssen daher zu einem Optimum führen. Bis auf wenige Ausnahmen werden die optimalen Anpressdrücke im Bereich von 0,25 bis 2 MPa bestimmt. Diese Optima werden in den experimentellen Arbeiten nicht fein aufgelöst, so dass zum Beispiel eine von drei gemessenen Druckstufen als die Beste bestimmt wird. Auch können aufgrund der wenigen Messpunkte keine Anpressdruck-Bereiche angegeben werden, in denen die Zelle optimal läuft. Anstelle des Anpressdrucks geben viele die Kompression der GDL in Prozent an. Für Zusammenhänge, welche Kompression zu welchem Druck auf der aktiven Fläche führt, existieren aber keine Arbeiten, die es möglich machen würden, die Ergebnisse zu vergleichen. Dazu kommt, dass die Arbeiten teilweise schon vor längerer Zeit durchgeführt worden sind und so nur wenige heute noch gebräuchliche Materialien verwendet wurden. Daher bietet es sich an, einige häufig verwendete Materialien mit fein aufgelösten Druckstufen hinsichtlich der Leistung der Zelle zu vermessen, die tatsächlich herrschenden Drücke auf der aktiven Fläche aufzunehmen und durch Komprimierungsmessungen zu ergänzen. So erhält man ein ganzheitliches und vergleichbares Bild zum optimalen Anpressdruck der jeweiligen Materialien.

Da der optimale Anpressdruck meist extra mit für diesen Zweck ausgelegten Zellen ermittelt wird, muss selbstverständlich überprüft werden, ob dieser auch auf der gesamten aktiven Fläche der normalerweise verwendeten Test-Zellen vorliegt. Daher werden im folgenden Kapitel die Druckverteilung auf der aktiven Fläche und deren Einfluss auf die Leistung genauer beleuchtet.

#### 2.4.2 Druckverteilung und deren Einfluss auf die Leistung der Brennstoffzelle

Ein gleichmäßiger Anpressdruck auf der aktiven Fläche ist von großer Wichtigkeit, bedenkt man, dass aus den vorherigen Kapiteln hervorgeht, dass nur bestimmte Anpressdruckniveaus zur optimalen Leistung der Brennstoffzelle führen. Die Bereiche der aktiven Fläche, die einen zu niedrigen oder zu hohen Anpressdruck erfahren, können nicht optimal arbeiten, was zu einer höheren Belastung der aktiveren Bereiche führt. Genau diesen Aspekt betrachten Asghari et al. [8] in ihrer Arbeit und können die Schlussfolgerung ziehen, dass ein ungleichmäßiger Anpressdruck zu ungleichmäßigen Stromdichten führt, was wiederum zu ungleichmäßigen Temperaturverteilungen und schlussendlich zu schneller alternden Bereichen auf der aktiven Fläche führt, die die Lebensdauer der Zelle negativ beeinflussen. Dass die ungleichmäßigen Temperaturverteilungen auch tatsächlich zu einer schnelleren Alterung der Zelle führen, wird von Lüke [60] in seiner Dissertation durch Messung der lokalen Stromdichte sehr schön veranschaulicht. Hier wird gezeigt, dass die heißeren Bereiche über die Zeit langsam keinen Strom mehr liefern. Wo die inhomogenen Druckverteilung ihren Ursprung haben, ist in den Untersuchungen von Montanini et al. [61] zu sehen. Sie können mithilfe einer Dualkamera, die ein räumliches Bild der Endplatte aufzeichnet, zeigen, dass sich die Endplatten ihrer Zelle, durch die üblicherweise nur am Rand der Endplatte befindlichen Verschraubungen unter der Schraubkraft verbiegen und die Zelle nicht gleichmäßig über die gesamte Fläche mit Druck beaufschlagen. Noch deutlicher ist der Effekt in den Simulationen von Bates et al. [62] und Lee et al. [63] zu sehen. Während Bates et al. sich auf die inhomogenen Spannungen in den Endplatten beschränken, zeigen Lee et al., dass deren vergleichsweise kleine Endplatte sich schon im Randbereich bis zu 0,13 mm relativ zur Mitte der Platte verbiegt. Besonders stark und daher besonders gut sind die Auswirkungen sich verwindender Endplatten in **Abbildung 9** von Wen et al. [46] zu sehen. Die Druckbilder wurden mithilfe von druckempfindlichen Folien erstellt, deren Oberfläche sich proportional zum Anpressdruck rot einfärbt. Hier ist zu erkennen, dass die Verschraubung an zwei Punkten zu großen weißen Bereichen auf der aktiven Fläche führt, welche dadurch nicht oder kaum mechanisch und damit auch elektrisch kontaktiert ist. Auf dem rechten Bild bei der Verschraubung an 6 Punkten ist eine gleichmäßige Druckverteilung über die gesamte aktive Fläche zu sehen.



**Abbildung 9:** Druckverteilungen einer Testzelle mit veränderten Schraubenanordnungen - links: Verschraubung an 2 Punkten, Mitte: 4 Punkte, rechts 6 Punkte [46]

Der mögliche Leistungszuwachs durch die Optimierung der Druckverteilung hängt selbstverständlich von der Ausgangsbasis der Druckverteilung ab. Für den in **Abbildung 9** gezeigten Fall von Wen et al. [46] konnte die Leistung der 2-Punkt-Lösung durch die 4-Punkt-Lösung um 30% gesteigert und durch Verwendung der 6-Punkt-Lösung um insgesamt 40% angehoben werden. Wang et al. [64] haben statt der Veränderung der Verschraubung ein hydraulisches Kissen verwendet, um die Druckverteilung zu optimieren. Sie konnten dadurch eine Leistungssteigerung von weniger als 5% erzielen. Dennoch wird deutlich, dass die Endplatten einen entscheidenden Einfluss auf die Druckverteilung und damit die Leistung einer Zelle haben. Daher werden im nächsten Kapitel einige dieser verbesserten Endplattendesigns vorgestellt.

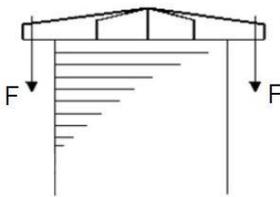
### 2.4.3 Endplattendesigns zur Homogenisierung der Druckverteilung auf der aktiven Fläche

Nachdem im letzten Kapitel deutlich wurde, dass eine sich unter dem Anzugsmoment der Verschraubung die Endplatte verformt und so zu einer inhomogenen Druckverteilung und damit geringeren Leistung der Zelle führt, wurde bereits an einigen Stellen nach einem optimierten Design der Endplatten gesucht.

Sehr naheliegend ist der Ansatz von Beckhaus et al. [65]. Sie fügen dort, wo sich die Endplatte aufwölbt, es also an Anpresskraft durch Schrauben mangelt, zusätzliche Schrauben hinzu. Damit diese Schrauben nicht direkt auf die Brennstoffzellenkomponenten wie zum Beispiel das Flowfield drücken, kommt zwischen Endplatte und dem eigentlichen Stack eine

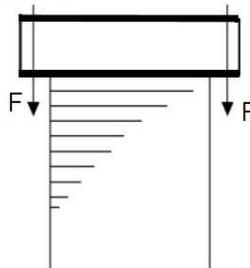
Druckverteilerplatte zum Einsatz, die die Schraubenkraft aufnimmt. Kurpiela [66] und Ruge [67] gehen dieses Thema etwas grundlegender an. Sie verfolgen über den Grundsatz der direkten Kraftleitung Konzepte, die die Kraft nicht nur seitlich auf die Endplatte aufbringen, sie damit verformen, um dann anschließend die Verformung auszugleichen, sondern sie versuchen die Kraft ebenfalls in der Mitte der Platte, bzw. möglichst flächig in die Endplatte einzuleiten, um von vornherein weniger Verformungen zu provozieren. So ergeben sich verschiedene Spannkonzpte aus denen eine Auswahl in **Abbildung 10** dargestellt sind.

Variante A



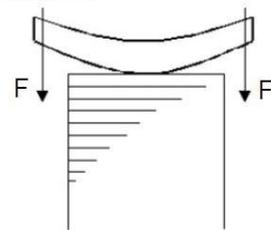
Steife Platte aus Kohlefaser-  
Verbundmaterial

Variante B



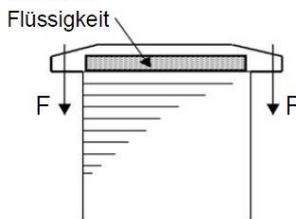
Sandwich als hochsteife Platte

Variante C



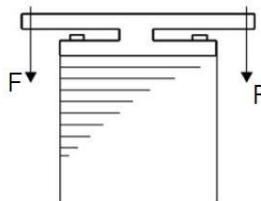
Vorgekrümmte, elastische  
Platte

Variante D



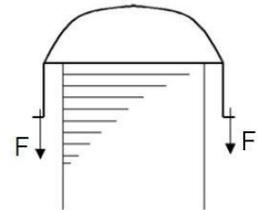
Übertragung mittels hydro-  
statischem Druck

Variante E



Krafteinleitung erfolgt über  
die Mitte und den Rand

Variante F



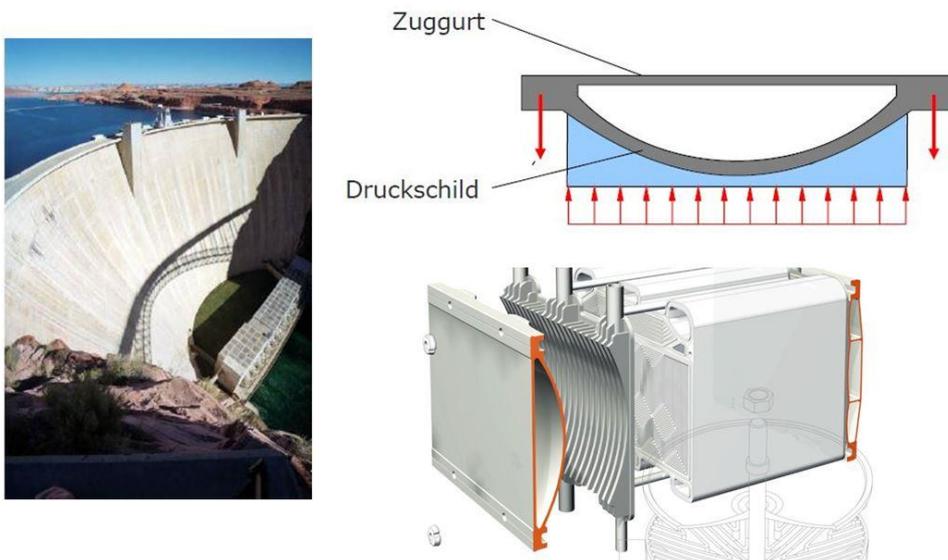
Metallischer Schaumkern  
verteilt die Kraft

**Abbildung 10:** Prinzipielle Kraftleitungskonzepte für die Endplatte einer Brennstoffzelle zur direkten Kraftleitung [67]

Eine weitere Möglichkeit die Endplatten steifer zu gestalten besteht darin Komposit-Endplatten aus hochfesten, faserverstärkten Kunststoffen zu verwenden. Dieser Idee bedienen sich Yu et al. [68] und nutzen zusätzlich den Vorteil, dass bei der Laminierung der faserverstärkten Kunststoffteile eine der Verformung unter Last entgegengesetzte Form

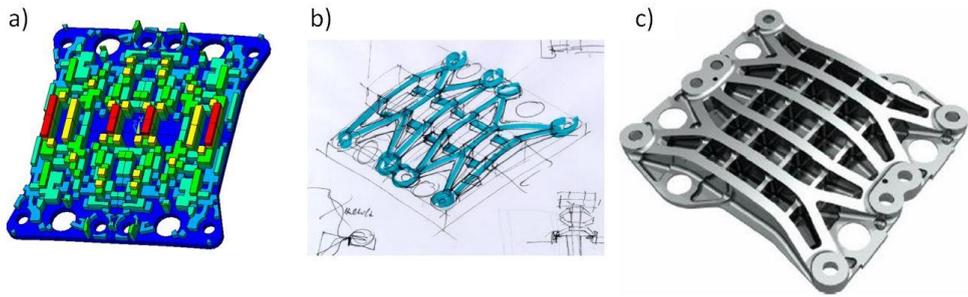
laminiert werden kann, so dass sich die Oberfläche der Endplatte dann unter Last zu einer ebenen Anpressfläche formt.

Eine technisch etwas aufwändigere Form der Endplatte stellt die Firma Tribecraft vertreten durch Herrn Evertz in ihrer Präsentation [69] vor. Ihr sogenanntes D-Bow Konzept lehnt sich an die Bauweise eines Staudammes an, dessen parabelartige Form dazu führt, dass innerhalb der tragenden Wand ausschließlich Druckspannungen herrschen, die die Staumauer nicht verformen (siehe **Abbildung 11**). Dieses konstruktiv im Gegensatz zu anderen Endplatten komplizierte Endplattensystem kann so zu einer homogenen Druckverteilung bei gleichzeitig geringem Materialeinsatz beitragen.



**Abbildung 11:** D-Bow Endplattenkonzept der Firma Tribecraft in Anlehnung an Staudammkonstruktionen (adaptiert nach [69])

König [70] nutzt für die Optimierung seiner Endplatte eine Simulationssoftware, die den verformten Zustand der Endplatte zusammen mit den herrschenden Spannungen im Material berücksichtigt und iterativ Material an den Stellen abträgt, die eine geringe Spannung zeigen und dort hinzufügt, wo sehr hohe Spannungen vorherrschen. So ergibt sich eine flache Endplatte mit einer Art Rippenstruktur, die die Endplatte steifer und gleichzeitig leichter macht, indem nur dort Material existiert, wo auch Kräfte geleitet werden müssen. Das Ergebnis ist in **Abbildung 12** zu sehen.



**Abbildung 12:** Softwaregestützte Topologie-Optimierung einer Endplatte - a) Simulationsausgabe b) Mechanische Interpretation der Simulation c) Umgesetzter Prototyp (adaptiert nach [70])

Gemeinsam haben alle diese Konzepte, dass versucht wird der Brennstoffzelle unter Belastung eine möglichst ebene Anpressfläche zu bieten und so für einen möglichst homogenen Anpressdruck auf der aktiven Fläche zu sorgen. Diese Konzepte sind allerdings sehr individuell und müssen auf jedes Stack- oder Zelldesign angepasst werden und es muss im Einzelfall entschieden werden, welches das Richtige für den jeweiligen Anwendungsfall ist.

## 2.5 Zusammenfassung

Im Kapitel 2 wurden die Grundlagen und der Stand der Technik für diese Arbeit zusammengetragen und diskutiert. Begonnen wurde mit der allgemeinen Mechanik der verschiedenen GDL-Materialien. Als Essenz daraus bleibt festzuhalten, dass die komplexe Struktur der GDL-Materialien aus Kohlenstofffasern, Bindern, PTFE und zusätzlich aufgetragenen MPL-Materialien zu einem komplexen mechanischen Verhalten führen. Unterscheiden lassen sich hier vornehmlich drei Typen: Papiere, Vliese und Gewebe. Während Vliese sich meist elastisch verformen lassen, erleiden sie die geringste plastische Verformung. Papiere erleiden einen sehr viel höheren Teil plastischer Verformung. Die Gewebe lassen sich durch ihre oft unterschiedlich gewebte Struktur nicht allgemein einordnen und verhalten sich mal steifer und mal weniger steif als die anderen GDL-Typen. Für alle drei Typen gilt, dass sie während der ersten 5 bis 10 Zyklen die größte plastische Verformung erfahren, welche sich bei weiteren Zyklen kaum noch vergrößert. Belastungen mit mehreren tausend Zyklen zeigen weitere Effekte, die jedoch mit dem verwendeten Versuchsaufbau nicht eindeutig auf die GDL-Materialien zurückzuführen sind.

Ein erhöhter PTFE-Gehalt führt in der Regel zu einem steiferen Verhalten, welches aber auch durch eine in der Faserstruktur eingezogene MPL geschehen kann. Eine Abhängigkeit der Steifigkeit von Temperatur und Feuchte kann innerhalb der Betriebsbedingungen der PEM-Brennstoffzelle nicht festgestellt werden. Die Belastungsdauer und die Belastungsgeschwindigkeiten der Kompressionsversuche werden meist nicht angegeben oder nicht variiert, so dass hier keine konsistenten Schlussfolgerungen gezogen werden können.

Das Zusammenspiel von Flowfield und GDL ist Thema einiger Simulationen, die feststellen können, dass abgerundete Steg-Ecken zu einer geringeren Porosität der GDL unterhalb des Steges und zu einer höheren unterhalb des Kanals führen. Der Kontaktwiderstand steigt dabei aufgrund der kleineren Kontaktfläche der Stege. Diese Ergebnisse wurden bislang nicht experimentell bestätigt.

Wird die ganze Zelle betrachtet, spielt der Anpressdruck auf der aktiven Fläche eine große Rolle für den Kontaktwiderstand und den Massentransportwiderstand und damit für die Leistung der Brennstoffzelle. Generell gilt, dass mit steigendem Anpressdruck der Kontaktwiderstand sinkt, während die Porosität ebenfalls sinkt, der Massentransportwiderstand also steigt. Diese beiden gegenläufigen Effekte führen zu einem Optimum für den Anpressdruck. Dieses Optimum wird in der Literatur aber nur sehr grob und meist für nicht mehr gebräuchliche GDL-Materialien bestimmt und liegt bis auf wenige Ausnahmen in der Größenordnung von 0,25 bis 2 MPa.

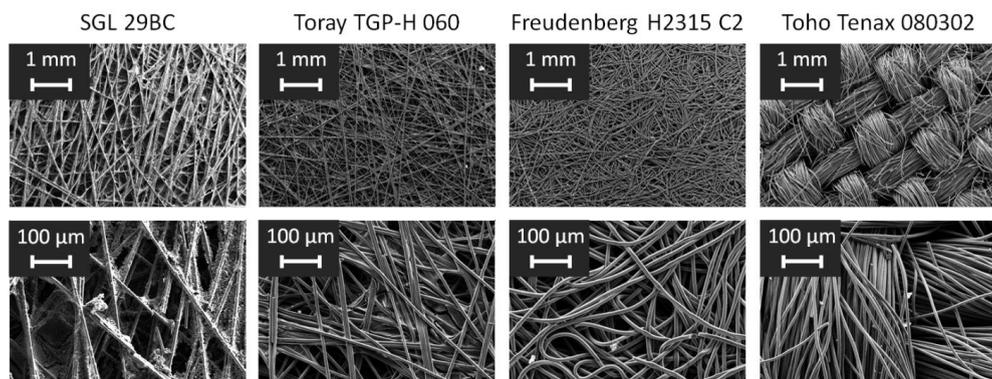
Um diesen optimalen Anpressdruck auf der gesamten aktiven Fläche sicherzustellen, werden einige Endplattenkonzepte vorgestellt, deren Aufgabe es ist, den Druck möglichst homogen auf der aktiven Fläche zu verteilen und somit eine gleichmäßige Stromdichteverteilung zu ermöglichen. Dass dieser Umstand von Wichtigkeit ist, wurde durch Messungen unterstrichen, die belegen, dass eine ungleichmäßige Stromdichteverteilung zu einer ungleichmäßigen Temperaturverteilung führt, die eine ungleichmäßige Alterung der aktiven Fläche verursacht, während die optimale Stromdichte nicht auf der gesamten aktiven Fläche erreicht wird.

### 3 Methodenentwicklung und verwendete Materialien

In diesem Kapitel werden zunächst die für die Versuche verwendeten GDL-Materialien vorgestellt. Anschließend wird die Entwicklung der Methoden zur Ermittlung der mechanischen Eigenschaften und Strukturen der GDL-Materialien erläutert, die verwendete Testzelle zur Leistungsmessung in Abhängigkeit des Anpressdrucks betrachtet und zum Schluss die Methode zur Druckverteilungsbestimmung entwickelt.

#### 3.1 Verwendete Materialien

Das zentrale Element der Untersuchungen dieser Arbeit stellt die Gas-Diffusions-Lage dar. Es existieren verschiedene kommerzielle Hersteller, die jeweils mehrere GDL-Typen für diverse Anwendungen anbieten. Für diese Arbeit wurden drei in diesem Institut häufig verwendete Typen, welche auch in der Literatur auf entsprechende Resonanz stoßen, der Firmen SGL Carbon SE, Deutschland, Toray Industries Inc., Japan und Freudenberg Performance Materials SE & Co. KG, Deutschland ausgesucht. Die Firmen weisen für die PEM-Brennstoffzelle in den jeweiligen Datenblättern unter anderem den Typ 29BC von SGL, TGP-H 060 von Toray und H2315 C2 (neuer Name H23C2) von Freudenberg als geeignet aus [71-74]. Genau diese Typen werden in der vorliegenden Arbeit näher untersucht. In **Abbildung 13** sind diese in REM-Aufnahmen zusammen mit einem vierten Material der Firma Toho Tenax Co. Ltd., Japan dargestellt, dessen besondere Struktur später an einigen Stellen ausschließlich als Vergleich dient.



**Abbildung 13:** REM-Aufnahmen der GDL-Material-Strukturen

Die Struktur des SGL-Materials ist aus geraden Fasern aufgebaut, welche mittels Binder zusammengehalten werden. Sie besitzt als einzige GDL in dieser Arbeit einen PTFE-Anteil

im Faserverbund. Die Poren sind im Vergleich zum Toray-Material etwas größer und der Binder deutlich unebener. Das Toray-Material ist ähnlich aufgebaut, besitzt aber keine MPL. Das Freudenberg-Material ist aus ineinander verschlungenen Fasern aufgebaut und erlangt den Zusammenhalt der Fasern über die Verschlingung derselben, besitzt also keinen Binder. Das Toho Tenax-Material zum Vergleich ist dagegen gewebt.

In **Tabelle 1** sind einige wichtige technische Daten der GDL-Materialien zusammengestellt. Gemeinsam haben die Materialien eine Dicke von etwa 200 bis 250  $\mu\text{m}$  bei einem Flächengewicht von 85 bis 135  $\text{g}/\text{m}^2$ . Die restlichen Angaben lassen sich nur schwer vergleichen, da hier unterschiedliche Messverfahren verwendet wurden oder die Angaben teilweise fehlen.

**Tabelle 1:** Herstellerangaben zu den technischen Daten der GDL-Materialien

Material	SGL 29BC [73, 75]	Toray TGP-H 060 [74]	Freudenberg H2315 C2 [71, 72]
Dicke	235 $\mu\text{m}$	190 $\mu\text{m}$	255 $\mu\text{m}$
Flächengewicht	90 $\text{g}/\text{m}^2$	83,6 $\text{g}/\text{m}^2$	135 $\text{g}/\text{m}^2$
Porosität	(offene) 40 - 41 %	78 %	-
TP* Gurley	0,9 - 1,3 $\text{cm}/\text{s}$	-	70 s
TP* Permeabilität	6 - 7 $\mu\text{m}^2$	1900 $\text{ml mm}/\text{cm}^2 \text{ hr mm Aq}$	-
PTFE Gehalt	5 $\pm$ 1 %	0 %	0 %
TP* el. Widerstand	2,4 - 2,7 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$ (bei 1 MPa)	80 $\text{m}\Omega\text{cm}$	10 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$ (bei 1 MPa)
MPL	Ja	Nein	Ja

\*TP: through plane

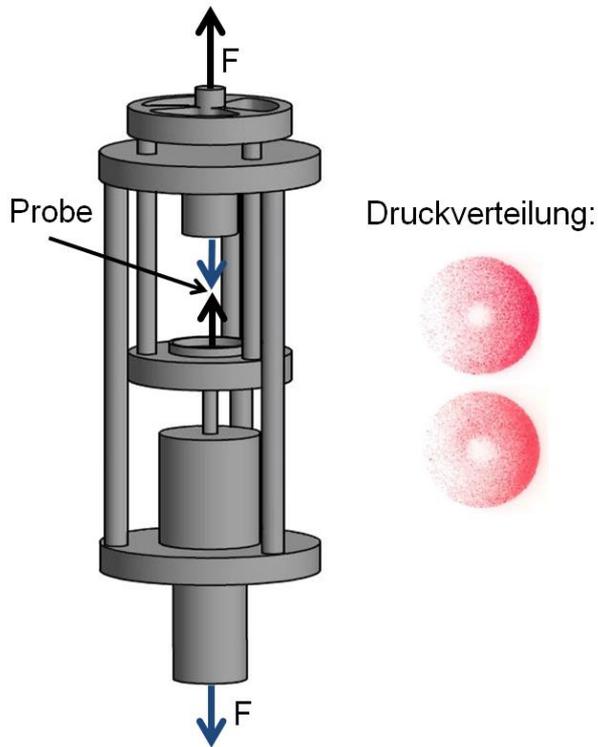
Um die Einflüsse der unterschiedlichen Strukturen und Konfigurationen der GDL-Materialien auf die mechanischen Eigenschaften zu ermitteln, werden diese in einer Universal-Materialprüfmaschine untersucht, welche im Folgenden vorgestellt wird.

## 3.2 Mechanische Materialeigenschaften

### 3.2.1 Universal-Materialprüfmaschine zur Ermittlung von Materialkennwerten

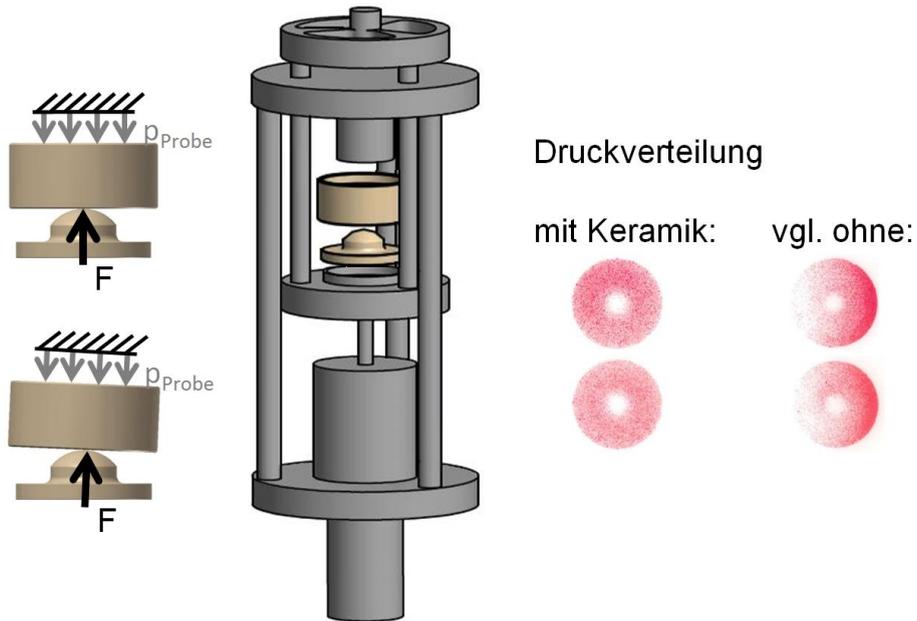
Zur Ermittlung der Materialeigenschaften von GDL-Materialien unter Druck werden mithilfe einer Universal-Materialprüfmaschine Z005TE Allround-Line der Firma ZwickRoell GmbH & Co. KG, Deutschland Spannungs-Stauchungs-Diagramme aufgezeichnet. Ihr Wegaufnehmer besitzt eine Genauigkeit von  $0,04\ \mu\text{m}$  [76] und der Kraftaufnehmer Xforce HP eine Genauigkeit von 0,25 % der Nominalkraft [77]. Bei der Nominalkraft von 5.000 N entspricht das 12,5 N. Diese Genauigkeiten verleiten dazu anzunehmen, dass sehr präzise Unterschiede von unter  $1\ \mu\text{m}$  gemessen werden können. Durch eine überschlägige Rechnung zum Beispiel zur Temperaturexpansion der Zug-Mechanik aus Edelstahl (V4A, 1.4571) mit einer Länge von 118 cm bei nicht ganz konstanter Raumtemperatur und einem linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten von  $16,5 \cdot 10^{-6}/\text{K}$  ([78], S. Dea13) erhält man für eine Temperaturänderung von 0,25 K eine Längenänderung von  $4,87\ \mu\text{m}$ . Einflüsse wie dieser sollten bei der Auswertung der Ergebnisse berücksichtigt werden.

Die Universalprüfmaschine ist in der Lage eine maximale Kraft von 5.000 N aufzubringen und dafür konfiguriert Zugprüfungen durchzuführen. Damit auch Druckprüfungen durchgeführt werden können, wird ein spezieller Aufbau in die Prüfmaschine eingebaut, der es ermöglicht die Probe zwischen zwei Stempeln auf Druck zu belasten, während die Maschine eine Zugkraft auf den Aufbau gibt. Der Aufbau ist in **Abbildung 14** zu sehen. Dieser ist eine Eigenentwicklung des Instituts IEK-3.



**Abbildung 14:** Aufbau zur Änderung der Zugkraft in Druckkraft

Bei diesem Aufbau besteht jedoch das Problem, dass die beiden Stempel, zwischen die die Probe gelegt wird, nicht absolut planparallel zueinander ausgerichtet sind. Dies ist fertigungstechnisch nur mit sehr hohem Aufwand und einer Abänderung der bestehenden Konstruktion möglich. Daher wird eine zusätzliche Mechanik eingelegt, deren Stempel auf einer Kugeloberfläche mit 15 mm Radius aufliegt und sich dadurch exakt nach dem oberen metallischen Stempel ausrichtet. Zu sehen ist die Konstruktion in **Abbildung 15** in beiger Farbgebung. Wie dort zu sehen, ist die Druckverteilung mit den Zusatzstempeln nun homogen und der Aufbau kann in dieser Form für die geplanten Druckversuche verwendet werden.



**Abbildung 15:** Druckaufbau mit Keramik-Konstruktion zur Homogenisierung der Druckverteilung

Bei der Auslegung der Zusatzstempel muss beachtet werden, dass der Punktkontakt eine Hertzsche Pressung darstellt. Die dabei knapp unterhalb der Oberfläche entstehende, maximale Spannung kann mit folgenden Formeln berechnet werden ([79], S. E100):

$$\sigma_{max} = \frac{3F}{2\pi a^2} \quad (3.1)$$

$$a = \sqrt[3]{\frac{3Fr}{2E^{*2}}} \quad (3.2)$$

$$E^* = \frac{2E_1E_2}{(1-\nu_1)E_2 + (1-\nu_2)E_1} \quad (3.3)$$

$$r = \frac{r_1r_2}{r_1+r_2} \quad (3.4)$$

mit:

$\sigma_{\max}$ :	maximal Auftretende Spannung des Hertzschen Kontakts	(MPa)
F:	Kraft	(N)
a:	Ersatzterm	(m <sup>2</sup> )
r:	Ersatzradius	(m)
r <sub>1</sub> :	Kugelradius 1	(m)
r <sub>2</sub> :	Kugelradius 2	(m)
E*:	Ersatz E-Modul	(N/m <sup>2</sup> )
E <sub>1</sub> :	E-Modul Körper 1	(N/m <sup>2</sup> )
E <sub>2</sub> :	E-Modul Körper 2	(N/m <sup>2</sup> )
v <sub>1</sub> :	Poisson-Zahl Körper 1 (Querkontraktionszahl)	( - )
v <sub>2</sub> :	Poisson-Zahl Körper 2 (Querkontraktionszahl)	( - )

Zur Berechnung der maximal auftretenden Spannung werden die Poissonzahlen (Querkontraktionszahlen) der Werkstoffe sowie die E-Moduln benötigt. Für gehärtete Vergütungsstähle liegt der E-Modul bei ungefähr  $210 \cdot 10^3 \text{ N/mm}^2$  ([80], S. E99). Die Querkontraktionszahl für Stähle liegt in der Regel bei 0,3 ([80], S. E99). Zusammen mit  $r_1 = \infty$  (gerader Stempel) und  $r_2 = 15 \text{ mm}$  (Kugeloberfläche) errechnet sich die maximale Spannung der Hertzschen Pressung für eine Druckkraft der Prüfmaschine von 5.000 N zu  $3.852 \text{ N/mm}^2$  (Rechnung im Anhang auf Seite 134). Vergleicht man die entstehende maximale Spannung der Hertzschen Pressung mit der maximalen Zugfestigkeit von Vergütungsstahl von unter  $1.500 \text{ N/mm}^2$  ([80], S. E100), wird deutlich, dass selbst gehärteter Vergütungsstahl der Belastung bei Weitem nicht gewachsen ist. Keramiken sind jedoch in der Lage Druckfestigkeiten in dieser Region vorzuweisen. Beispielsweise besitzt Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) eine Druckfestigkeit von  $4.000 \text{ N/mm}^2$  ([81], S. 9). Mit dem entsprechenden E-Modul von  $376 \cdot 10^3 \text{ N/mm}^2$  [82] und einer Querkontraktionszahl von 0,19 [82] ergibt sich eine maximal auftretende Spannung von  $5513 \text{ N/mm}^2$  (Rechnung im Anhang auf Seite 135). Da auch dieser Wert die maximale Druckspannung des Keramikwerkstoffes von  $4.000 \text{ N/mm}^2$  überschreitet, wird die maximale Kraft zu  $3.627 \text{ N}$  berechnet, mit der die

Universalprüfmaschine betrieben werden darf. Die Konstruktionszeichnungen der Stempel in  $\text{Al}_2\text{O}_3$  befinden sich im Anhang auf Seite 136 ff.

Mit diesem Aufbau ist nun sichergestellt, dass die GDL-Proben flächig und homogen mit Druck beaufschlagt und die entsprechenden Spannungs-Stauchungs-Kurven aufgenommen werden können.

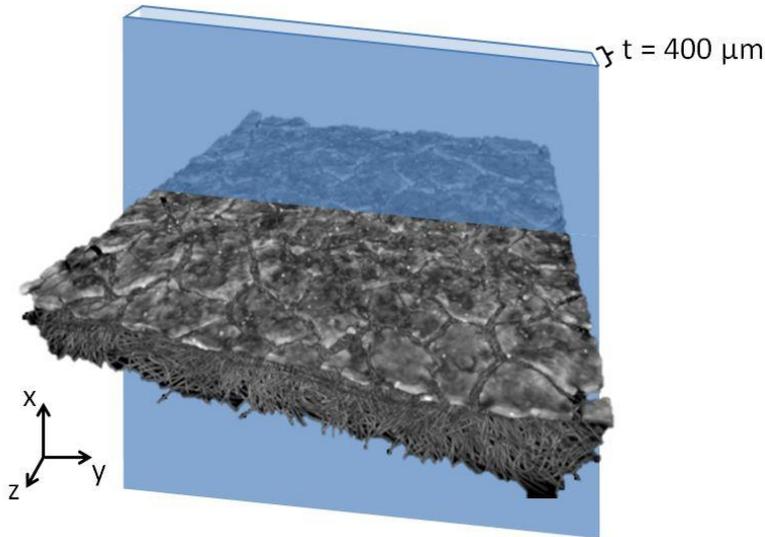
Um die strukturellen Schäden der GDL-Materialien aufgrund der Belastungen der Werkstoffprüfung untersuchen zu können, werden im nächsten Kapitel die verwendeten bildgebenden Verfahren vorgestellt.

### 3.2.2 Bildgebende Verfahren zur Untersuchung der Struktur von GDL-Materialien

Für die Oberflächenbetrachtung der GDL-Strukturen wird ein Raster-Elektronen-Mikroskop (REM) des Typs Ultra Plus der Firma Carl Zeiss Microscopy GmbH, Deutschland eingesetzt. Dabei wird eine Primärstrahlspannung von 10 kV verwendet und das Bild durch die Sekundärelektrode SE2 aufgenommen. Die GDL-Proben bedürfen keiner besonderen Vorbehandlung und können mit ihrer Größe von 50x50 mm direkt aus den Materialprüfungen und den getesteten Brennstoffzellen für die Aufnahmen verwendet werden.

Für die 3D-Aufnahmen (Tomogramme) der inneren Struktur kommt ein Computer-Tomograph (CT) des Typs Xradia 410 Versa der Firma Carl Zeiss Microscopy GmbH, Deutschland mit einem Auflösungsvermögen im Nanometerbereich (500 nm, [83] S. 32) zum Einsatz. Zur Erstellung der Nano-CT-Aufnahmen werden einzelne Röntgenaufnahmen der Probe in verschiedenen Winkeln gemacht (für die hier gemachten Aufnahmen 1600 Einzelbilder gleichmäßig verteilt auf eine ganze Umdrehung der Probe um die Hochachse). Diese werden bei einer Röntgenstrahlleistung von 6,96 W (80 kV, 87  $\mu\text{A}$ ) und einer Belichtungszeit von jeweils 2 s aufgenommen. Die Auflösung beträgt dabei 3,9  $\mu\text{m}$  pro Bildpixel. Die Einzelaufnahmen werden anschließend durch eine Software zu einem 3D-Bild zusammengefügt. Dieses 3D-Bild besteht aus 1000 Schichten mit einer Tiefe von je etwa 4  $\mu\text{m}$  die hintereinander geschichtet wurden. Zur Auswertung der aufgenommenen Bilder werden in den späteren Kapiteln 400  $\mu\text{m}$  tiefe Ausschnitte der 3D-Bilder, wie in **Abbildung 16** dargestellt, verwendet, um eine gewisse Tiefenschärfe zu erlangen. Auch hier können die GDL-Proben ohne Vorbehandlung für die Aufnahmen verwendet werden. Sie

werden lediglich in einen Probenhalter geklemmt, der es dem Nano-CT ermöglicht die Probe um die Hochachse zu drehen.



**Abbildung 16:** Ausschnitt der Nano-CT-Aufnahmen für die spätere Analyse der GDL-Strukturen in blau dargestellt [84]

Nachdem die Methoden zur grundlegenden mechanischen Untersuchung der GDL-Struktur vorgestellt wurden, werden in den folgenden Kapiteln die Methoden zur Ermittlung der mechanischen Einflüsse während des Brennstoffzellenbetriebs sowie auf betriebsrelevante Parameter vorgestellt.

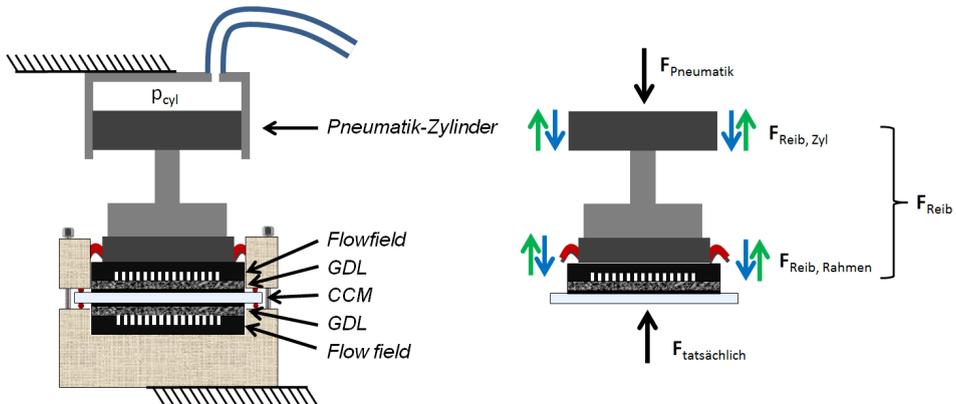
### 3.3 Leistungsmessungen unter Anpressdruckvariation

In diesem Kapitel werden die Testzelle zur Ermittlung des optimalen Anpressdrucks sowie die Messaufbauten zur weiteren Analyse der ex-situ-Analyse der Materialien erläutert.

#### 3.3.1 Brennstoffzellen-Testsystem mit variablem Anpressdruck

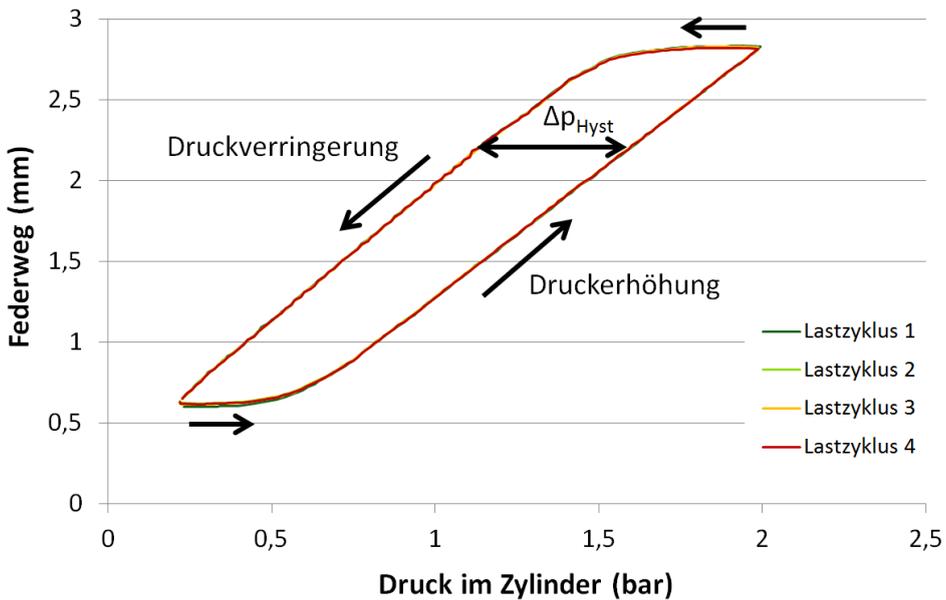
Zur Bestimmung des optimalen Anpressdrucks auf die aktive Fläche kommt eine Testzelle der Firma balticFuelCells GmbH, Deutschland zum Einsatz. Die Testzelle des Typs qCf FC25 ist durch einen pneumatischen Zylinder in der Lage den Anpressdruck auf der aktiven Fläche von  $25 \text{ cm}^2$  während des Brennstoffzellenbetriebs durch Änderung des Drucks im

Pneumatik-Zylinder in einem Bereich von 250 bis 8000 mbar zu variieren [85]. Ein schematischer Aufbau ist in **Abbildung 17** zu sehen.



**Abbildung 17:** Schematischer Aufbau der qCf FC25 Testzelle der Firma balticFuelCells GmbH - links: Gesamtaufbau, rechts: Kräftegleichgewicht

Der Druck, der im Pneumatik-Zylinder herrscht, muss mithilfe des Flächenverhältnisses von Kolbenfläche zu aktiver Fläche in den Druck auf der aktiven Fläche umgerechnet werden. Da sowohl der Kolben im Pneumatik-Zylinder als auch der Kolben in der Testzelle reibungsbehaftet sind, muss zusätzlich die Reibkraft, die der Bewegung des Kolbens stets entgegengesetzt ist, abgezogen bzw. hinzugefügt werden. Bewegt sich der Kolben nach unten, wird also der Druck erhöht, so muss die Reibkraft subtrahiert werden. Bewegt sich der Kolben nach oben, wird also der Druck verringert, muss die Reibkraft addiert werden. Durch dieses nichtlineare Verhalten ergibt sich eine Hystereseschleife für das Kraft-Weg-Diagramm der Testzelle. Um diese aufzunehmen, wurden anstelle der Zelle (Flowfields, CCM und GDLs) 4 Federn mit einer Federrate von je 118 N/mm eingesetzt und der Druck im Zylinder von 0,25 bis 2 bar variiert. Die sich ergebende Hystereseschleife ist in **Abbildung 18** dargestellt.



**Abbildung 18:** Kraft-Weg-Diagramm qCf FC25 mit Hystereseschleife

Hier ist zu erkennen, dass die Kompression der Federn bei Druckerhöhung bzw. Druckverringerung unterschiedlich ist. Das bedeutet, dass die Federn bei der Druckerhöhung eine geringere Kraft und bei Druckverringerung eine höhere Kraft erfahren, nämlich:

$$F_{\text{tatsächlich, Erhöhung}} = F_{\text{Pneumatik}} - F_{\text{Reib}} \quad (3.5)$$

$$F_{\text{tatsächlich, Verringerung}} = F_{\text{Pneumatik}} + F_{\text{Reib}} \quad (3.6)$$

mit:

- $F_{\text{tatsächlich, Erhöhung}}$ : Kraft auf aktiver Fläche bei Druckerhöhung
- $F_{\text{tatsächlich, Verringerung}}$ : Kraft auf aktiver Fläche bei Druckverringerung
- $F_{\text{Pneumatik}}$ : Kraft aufgrund des Drucks im Pneumatik-Zylinder
- $F_{\text{Reib}}$ : Aufsummierte Reibkraft der Komponenten

Durch Subtraktion der Gleichungen 3.5 und 3.6 ergibt sich:

$$|F_{\text{tatsächlich, Erhöhung}} - F_{\text{tatsächlich, Verringerung}}| = 2F_{\text{Reib}} \quad (3.7)$$

$F_{\text{tatsächlich, Erhöhung}}$  und  $F_{\text{tatsächlich, Verringerung}}$  sind aufgrund der linearen Federkennlinie der verwendeten Federn proportional zum Federweg aus **Abbildung 18** und können mit folgender Formel berechnet werden:

$$F_{\text{tatsächlich}} = 4 * \Delta x_{\text{Feder}} * c_{\text{Feder}} \quad (3.8)$$

mit:

- $\Delta x_{\text{Feder}}$ : Federweg
- $c_{\text{Feder}}$ : Federkonstante einer einzelnen Feder

Damit ergibt sich aus Gleichung 3.7 zusammen mit 3.8:

$$4 * c_{\text{Feder}} (\Delta x_{\text{Feder, Erhöhung}} - \Delta x_{\text{Feder, Verringerung}}) = 2F_{\text{Reib}} \quad (3.9)$$

Aus **Abbildung 18** kann abgelesen werden, dass die Diskrepanz der Verformung der Feder zwischen Druckerhöhung und Druckverringerung  $\Delta p_{\text{Hyst}}$  entspricht. So ergibt sich:

$$4 * c_{\text{Feder}} * (\Delta x_{\text{Feder, Erhöhung}} - \Delta x_{\text{Feder, Verringerung}}) = \Delta p_{\text{Hyst}} * A_{\text{Kolben}} \quad (3.10)$$

mit:

- $\Delta p_{\text{Hyst}}$ : Druckdifferenz der Hystereseschleife
- $A_{\text{Kolben}}$ : Fläche des Kolbens des Pneumatik-Zylinders

Durch Gleichsetzen von Gleichung 3.9 und 3.10 ergibt sich:

$$F_{\text{Reib}} = \frac{1}{2} \Delta p_{\text{Hyst}} * A_{\text{Kolben}} \quad (3.11)$$

$\Delta p_{\text{Hyst}}$  kann aus **Abbildung 18** zu 0,2 bar abgelesen werden. Zusammen mit dem Flächenverhältnis von Pneumatikzylinderkolben zu aktiver Fläche  $A_{\text{Kolben}}/A_{\text{akt. Fl.}}$  von 3,14 mit einer aktiven Fläche von 25 cm<sup>2</sup> kann der Korrekturwert für den tatsächlich auf der aktiven Fläche herrschenden Druck zu 0,0314 N/mm<sup>2</sup> bestimmt werden. Die Rechnung befindet sich im Anhang auf Seite 139. Mithilfe dieses Korrekturwertes werden die Druckangaben auf den tatsächlichen Druckwert auf der aktiven Fläche korrigiert.

Bei der Bestimmung des optimalen Anpressdrucks werden drei Brennstoffzellen mit unterschiedlichen GDL-Materialien aufgebaut und vermessen. Dazu werden die Zellen zunächst auf Basis der Empfehlungen des CCM-Herstellers W. L. Gore & Associates Inc.,

USA einer Einfahrprozedur [86] unterzogen. Die verwendete CCM stammt aus der PRIMEA®-Serie für Niedertemperatur-Brennstoffzellen. Die Flowfields wurden speziell für diese Zelle konstruiert und lehnen sich an das Design des RoBiPo-Stacks an [87, 88]. Sie besitzen 4 parallele, sich nebeneinander von oben nach unten windende Meanderkanäle und generieren so eine Hauptfließrichtung von oben nach unten (siehe **Abbildung 19**). Die Kanalbreite als auch Kanaltiefe haben ein Maß von 1 mm. Die Stege sind ebenfalls 1 mm breit. Durch die Meanderstruktur und die sich ergebenden größeren Stegbereiche im Kurvenbereich der Kanäle ergibt sich ein Kanal-Steg-Verhältnis von 0,8. Die Konstruktionszeichnungen der Flowfields befinden sich im Anhang auf Seite 140 ff.



**Abbildung 19:** Verwendetes Flowfield für die Leistungsmessungen bezüglich des optimalen Anpressdrucks (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH)

Nach der Einlaufphase bei einem Anpressdruck von 0,7 MPa werden 5 Polarisationskurven auf jeder der 21 Druckstufen, verteilt auf den Druckbereich von 0,14 bis 2,57 MPa, aufgenommen. Um erfassen zu können, ob die Zellen mechanische Schädigungen erleiden, wird nach jeder Druckstufe eine Referenzmessung bei 0,7 MPa aufgenommen bzw. die Polarisationskurven erneut auf jeder der 21 Druckstufen aufgenommen, nachdem der maximale Anpressdruck erreicht wurde. Die Betriebsparameter können **Tabelle 2** entnommen werden.

**Tabelle 2:** Betriebsparameter für die Ermittlung des optimalen Anpressdrucks

GDL-Material	SGL 29BC	Freudenberg H2315 C2	Toray TGP-H 060
$\lambda_{\text{Kathode}}$	2,5	2,5	2,5
$\lambda_{\text{Anode}}$	2	2	2
$T_{\text{Zelle}}$	70 °C	70 °C	70 °C
$\phi_{\text{Kathode}}$	60-70 %	85-95 %	50-60 %
$\phi_{\text{Anode}}$	50-60 %	85-95 %	40-50 %

Einzig die relativen Feuchten variieren abhängig vom verwendeten GDL-Material. Sowohl bei dem Material von Toray als auch bei dem von SGL kann kein stabiler Betrieb für 90 % relative Feuchte der Betriebsgase sichergestellt werden. Daher werden hier die maximalen relativen Feuchten gewählt, bei denen ein stabiler Betrieb der Zelle möglich ist.

Die Testzelle wird in einen am Institut vorhandenen Teststand eingebaut und vermessen. Dieser besteht aus den Komponenten in **Tabelle 3**. Die Genauigkeit für die Datenerfassung des vorgegebenen Stroms der Zelle beläuft sich auf  $\pm 0,2\%$  und die der gemessenen Spannung auf  $\pm 0,002\%$ .

**Tabelle 3:** Teststands-Komponenten und deren Genauigkeit

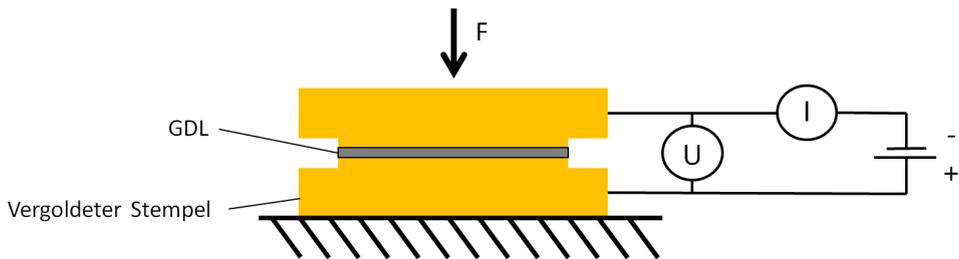
Komponente	Typ	Spezifikation	Genauigkeit
Thermostat Befeuchtung [89]	Haake F8	-60 °C bis 250 °C	± 0,01 K
Elektrische Last [90]	Höcherl und Hackl Serie ZS506	max. 60 VDC, 60 A, 500 W	Strom/Spannung: ± 0,2 % vom Messwert ± 0,05 % vom Nennwert
Temperaturfühler [91]	WIKA Thermoelement	NiCr-Ni Typ K	± 0,75 %
Beheizung Zuleitungen [92]	Winkler	max. 200 °C, 50 W	± 10 %
Durchflussregler Gase [93]	Bronkhorst	max. 2000 ml/min	± 0,8 % vom Messwert ± 0,02 % vom Endwert
Durchflussregler Wasser [94]	Bronkhorst Liqui flow H <sub>2</sub> O	max. 50 g/h	± 1 %
Feuchtemessung [95]	Vaisala HMT337 und HMT320	0 - 100 %rF	± 1 % (0 - 90 %rF) ± 2 % (90 - 100 %rF)
Datenlogger [96]	Keithley Integra 2700	DC 100 nV-1 kV	0,002 %
Temperaturregler Zelle ([97], S. 22)	Elotech 6-Zonen	R2000 621/622/626	≤ 0,25 %
Strommessung [98]	Shunt Widerstand	1 mΩ (K1 0,2)	±0,2 %

Zur Interpretation der Polarisationskurven werden die GDL-Materialien unter anderem elektrischen Widerstandsmessungen unterzogen, deren Aufbau im folgenden Kapitel erläutert wird.

### 3.3.2 Elektrische Widerstandsmessungen

Zur Überprüfung des elektrischen Widerstands werden die drei bereits benannten GDL-Materialien, und zur besseren Einordnung einige weitere GDL-Materialien einer Widerstandsmessung unterzogen.

Dazu werden die Materialien gemäß **Abbildung 20** zwischen zwei vergoldeten Stempel gelegt und in einer Presse mit einem Anpressdruck von 0 bis 6 MPa belastet. Dabei wird ein Strom  $I$  von 1 A durch die Proben geleitet und der Spannungsabfall  $U$  gemessen. Daraus wird dann nach dem Ohm'schen Gesetz der Widerstand  $R$  berechnet. Dieser Widerstand beinhaltet den Materialwiderstand der GDL sowie zweimal den Kontaktwiderstand von der GDL zum vergoldeten Stempel.



**Abbildung 20:** Versuchsaufbau zur elektrischen Widerstandsmessung

Um etwaige Veränderungen des Widerstands aufgrund von vorangegangenen Messungen/Belastungen zu erfassen, werden die Messungen mehrmals durchgeführt.

Da nicht nur der elektrische Widerstand für die Interpretation der Polarisationskurven von Bedeutung ist, sondern auch der Massentransportwiderstand, wird im folgenden Kapitel der Versuchsaufbau zur Bestimmung der Durchflusswiderstände erläutert.

### 3.3.3 Durchflusswiderstandsmessungen

Die Durchflusswiderstandsmessungen werden mithilfe eines Gurley-Densometers des Typs 4118N durchgeführt. Die Gurley-Zahl gibt die Zeit an, die  $100 \text{ cm}^3$  Luft bei einer Druckdifferenz von 0,0121 bar (0,176 psi) benötigen, um durch eine  $6,45 \text{ cm}^2$  (1 Quadratzoll) große Fläche zu strömen.

Um den Einfluss der irreversiblen Faserbrüche auf den Durchflusswiderstand deutlich zu machen, werden für diesen Versuch die drei GDL-Typen ohne MPL verwendet. Diese werden dazu zunächst in einer Presse flächig mit einem Druck von 0 bis 10 MPa belastet und anschließend die Gurley-Zahl bestimmt. Da die Materialien größeren Schwankungen in ihrer Strukturbeschaffenheit unterliegen, wird ein und dieselbe Probe zuerst mit einem Druck von

2 MPa belastet, die Gurley-Zahl bestimmt, anschließend mit 4 MPa belastet und wieder die Gurley-Zahl bestimmt. Dieses Schema wird bis zu einer Belastung mit 10 MPa fortgeführt. Die Kraft wird dabei innerhalb weniger Sekunden mittels einer Presse aufgebracht und für 10 s gehalten. Unmittelbar danach wird die Gurley-Messung durchgeführt.

Da die Durchflusswiderstandsbestimmung mittels Gurley-Zahl zwar sehr einfach ist, in der Literatur jedoch häufiger die Permeabilität angegeben wird, werden die ermittelten Gurley-Zahlen in Permeabilitäten umgerechnet. Nach Froning et al. [99] ergeben sich Reynolds-Zahlen bei der Durchströmung von GDLs in der Größenordnung von  $4 \cdot 10^{-4}$ . Da die Reynoldszahl deutlich unterhalb von 1 liegt, können die turbulenten Anteile (Forchheimer-Term) vernachlässigt werden ([100], S. 417). Die Permeabilität lässt sich daher aus dem Darcy Gesetz ableiten als ([101], S. 25):

$$K = \frac{Q \eta l}{A \Delta p} \quad (3.12)$$

mit:

- $K$ : Permeabilität ( $\mu\text{m}^2$ )
- $Q$ : Volumenstrom (ml/s)
- $\eta$ : Dynamische Viskosität der Luft (kg/ms)
- $l$ : Dicke der GDL (mm)
- $A$ : Durchströmte Querschnittsfläche der GDL ( $\text{mm}^2$ )
- $\Delta p$ : Druckdifferenz (Pa)

Die dynamische Viskosität von Luft beträgt  $17,16 \cdot 10^{-6}$  kg/ms ([102], S. 185).  $A$  entspricht den  $6,45 \text{ cm}^2$  (1 Quadratinch,  $0,000645 \text{ m}^2$ ) aus der Definition der Gurley-Zahl und die Druckdifferenz  $\Delta p$  beträgt 0,0121 bar (0,176 psi, 1213 Pa). Der Volumenstrom  $Q$  entspricht den  $100 \text{ cm}^3$  ( $0,0001 \text{ m}^3$ ) Luft innerhalb der gemessenen Gurley-Zeit, und  $l$  entspricht der jeweiligen GDL-Dicke. Somit lässt sich die Gurley-Zahl mit folgender Gleichung in eine Permeabilität umrechnen:

$$K = \frac{1 * 10^{-4} \text{ m}^3 * 17,16 * 10^{-6} \frac{\text{kg}}{\text{ms}} * l}{\text{Gurley--zahl} * 6,45 * 10^{-4} \text{ m}^2 * 1213 \text{ Pa}}$$

$$\begin{aligned} &= 2,1985 \cdot 10^{-9} \text{ m s} * \frac{l}{\text{Gurleyzahl}} \\ &= 2,1985 \cdot 10^{-3} \mu\text{m s} * \frac{l}{\text{Gurleyzahl}} \end{aligned}$$

Durch diese Umrechnung sind die ermittelten Gurley-Zahlen mit anderen Literaturwerten vergleichbar. Zusammen mit den Kontaktwiderständen in Abhängigkeit des Anpressdrucks kann nun eine Interpretation der Polarisationskurven bezüglich des optimalen Anpressdrucks durchgeführt werden.

Bei den erfassten Polarisationskurven und deren Interpretation wurde bis jetzt nur vom optimalen durchschnittlichen Anpressdruck auf der aktiven Fläche geredet. Dieser Wert wurde für ein Flowfield mit einem Kanal-Steg-Verhältnis von 0,8 ermittelt. Sollen die Erkenntnisse auch auf andere Geometrien übertragen werden, so müssen die lokalen Drücke unter Kanal und Steg mit in Betracht gezogen werden, da diese tatsächlich herrschenden Drücke die GDL-Eigenschaften maßgeblich verändern. Daher wird im nächsten Kapitel auf die Bestimmung dieser tatsächlich auf der GDL herrschen Drücke eingegangen.

### 3.4 Anpressdruckverteilungen unter Kanal-Steg-Strukturen

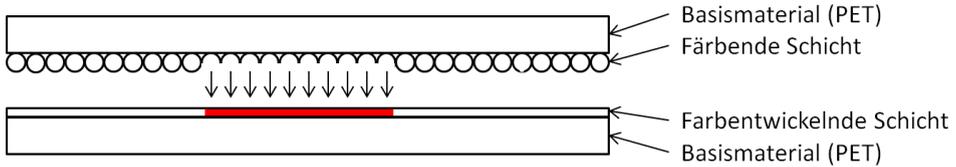
Der optimale durchschnittliche Anpressdruck auf der aktiven Fläche gibt Aufschluss darüber, in welchem Bereich die Brennstoffzelle am besten läuft. Jedoch ist dieser Wert zuerst einmal nur in Verbindung mit dem verwendeten Flowfield und dessen Geometrie gültig. Möchte man die optimalen Anpressdruckbereiche verstehen und auf andere Flowfield-Geometrien übertragen, muss der Anpressdruck unter Kanal und Steg gesondert betrachtet werden. So ist es in der Regel der Fall, dass unter dem Steg ein vielfaches des durchschnittlichen Drucks herrscht, hier also die Faserstruktur der GDL Schäden erleiden kann, während die GDL unter dem Kanal sogar den Kontakt zur CCM verlieren kann.

Daher werden in diesem Kapitel das entwickelte Messverfahren zur Bestimmung der Druckverteilungen sowie die verwendeten/hergestellten Proben und Aufbauten vorgestellt.

#### 3.4.1 Druckmessfolien und Auswertung

Zur Messung der Druckverteilungen werden druckempfindliche Folien der Firma Fujifilm Holdings K. K., Japan des Typs Prescale verwendet. Die verwendeten Folien sind

zweigeteilt, wobei sich auf der einen Folie Farbreservoirs befinden, die eine Flüssigkeit enthalten und beim Erreichen von bestimmten Drücken platzen. Diese Flüssigkeit reagiert auf der zweiten Folie mit einer farbentwickelnden Schicht und färbt diese proportional zum Druck in Rotschattierungen ein (siehe **Abbildung 21**).



**Abbildung 21:** Funktionsprinzip Fujifilm Prescale Folien (adaptiert nach [103])

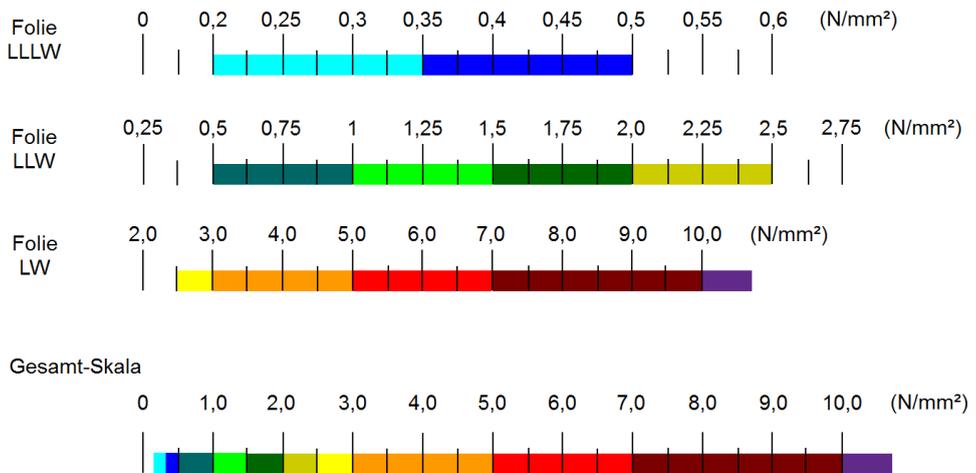
Die sich ergebenden Druckverteilungen können mit einer Auflösung von 0,125 bis 0,25 mm je nach Folie eingescannt werden. Die Software FDP-8010e ist anschließend in der Lage, die Rotschattierungen genau den entsprechenden Druckbereichen zuzuordnen.

Die Druckbereiche der einzelnen Folientypen (**Tabelle 4**) reichen nicht, um den zu erwartenden Anpressdruckbereich in Gänze abzudecken.

**Tabelle 4:** Fujifilm Prescale Druckmessfolien-Spezifikationen [103]

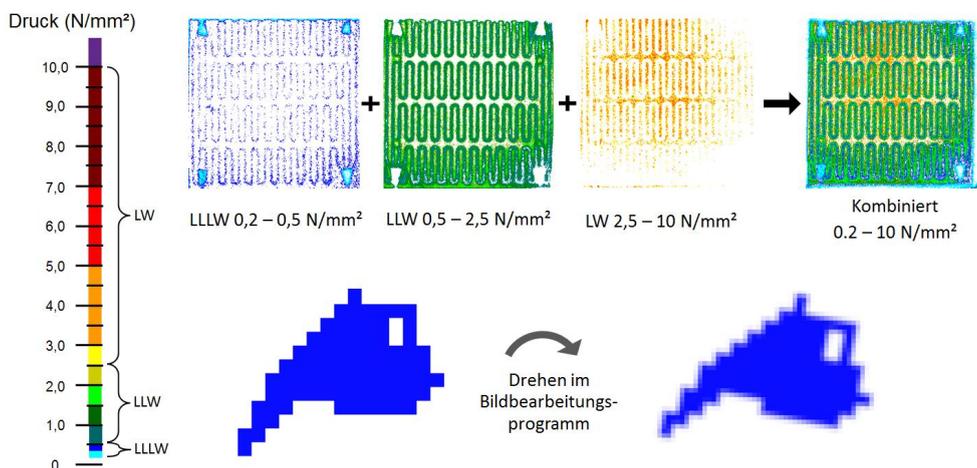
Folientyp	Bezeichnung	Druckbereich in (MPa)
Extrem niedriger Druck	4LW	0,05 - 0,2
Ultrasuperniederdruck	LLLW	0,2 - 0,6
Superniederdruck	LLW	0,5 - 2,5
Niederdruck	LW	2,5 - 10
Mittlerer Druck	MW	10 - 50

Daher wird eine Kombination der Folien LW, LLW und LLLW verwendet. Dazu werden die 3 Folienpaare übereinander geschichtet, so dass ein Druckbereich von 0,2 bis 10 MPa abgedeckt werden kann. Die Skalen der einzelnen Folien werden aufeinander angepasst, so dass sich eine fortlaufende Skala über den gesamten Druckbereich ergibt (**Abbildung 22**).



**Abbildung 22:** Skalen der Druckmessfolien und zusammengesetzte Gesamt-Skala

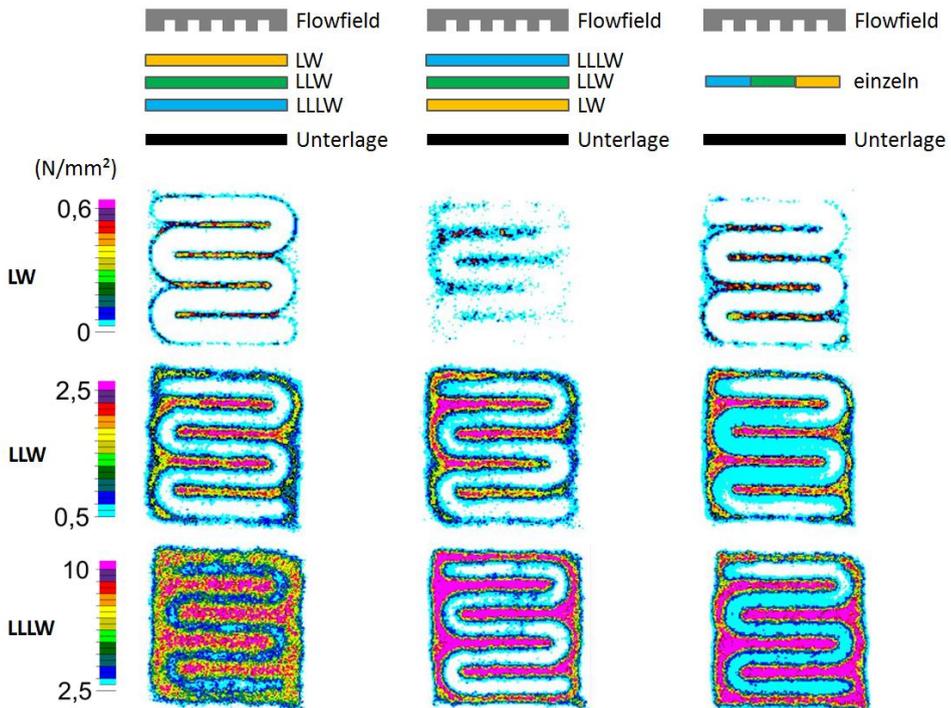
Die Druckbilder der einzelnen Folien werden mithilfe eines Bildbearbeitungsprogramms zu einem Gesamtdruckbild zusammengesetzt. Da beim Einscannen der Druckmessfolien diese nicht einhundertprozentig gerade eingescannt werden können, müssen die Druckbilder beim Zusammenfügen im Bildbearbeitungsprogramm leicht gedreht werden. Dies führt jedoch dazu, dass die Pixel verwischt werden, was dann unmöglich macht die Pixel einer bestimmten Farbe, also eines bestimmten Druckbereichs zur Auswertung auszuzählen (siehe **Abbildung 23**).



**Abbildung 23:** Kombination der einzelnen Druckmessfolien

Daher werden die Druckbilder vor dem Zusammenstellen zu einem Druckbild in der Form ausgewertet, dass die Pixel der jeweiligen Druckstufen gezählt und ins Verhältnis zur Gesamtpixelzahl gesetzt werden. Auf diese Weise erhält man den prozentualen Anteil der Fläche, auf welcher der jeweilige Druck herrscht. Danach werden die Einzelbilder zur qualitativen Interpretation der Druckverteilung zusammengesetzt.

Da durch die insgesamt 6 aufeinander geschichteten Folien die Druckverteilung beeinflusst wird, werden Vorversuche im Rahmen einer Masterarbeit im Forschungszentrum Jülich durchgeführt, um das bestmögliche Ergebnis zu erzielen [104]. In **Abbildung 24** ist zu sehen, dass die Druckverteilungen der LW- und LLLW-Folien, sofern sie einzeln verwendet werden (rechte Spalte), von den Druckverteilungen der Kombinationen abweichen. Werden die Folien jedoch in direktem Kontakt mit dem Flowfield verwendet, weichen die Druckverteilungen nicht von der Einzelverwendung ab. Da die LW-Folie einen deutlich höheren Druckbereich abdeckt (2,5 - 10 MPa) als die LLLW-Folie (0,2 - 0,6 MPa) und die feine Auflösung dieses niedrigen Druckbereichs nicht entscheidend ist, wird die LW-Folie in den späteren Versuchen in direkten Kontakt mit dem Flowfield gebracht (linke Anordnung).



**Abbildung 24:** Einfluss der Reihenfolge der Druckmessfolien bei Kombination

Damit sind die Grundlagen zur Erfassung und detaillierten Auswertung der Druckverteilungen geschaffen. Um aber die Auswirkungen verschiedener Flowfield-Geometrien auf die Druckverteilung und die Kontaktwiderstände untersuchen zu können, werden noch spezielle Proben mit verschiedenen Geometrien benötigt. Die Herstellung dieser wird daher im nächsten Kapitel erläutert.

### 3.4.2 Probenherstellung

Herkömmlicherweise werden entweder graphitische oder metallische Flowfield-Platten verwendet. Der mechanisch größte Unterschied dieser beiden Flowfield-Typen liegt darin, dass graphitische Flowfields durch Fräsen von Kanälen in mehrere Millimeter dicke Graphit-Komposit-Platten hergestellt werden [105-107], während metallische Flowfields aus dünnen, nur wenige Zehntelmillimeter dicken Metallbögen tiefgezogen werden [108-110]. Daraus ergibt sich eine rechteckige, scharfkantige Kanal-Steg-Struktur für die graphitischen Flowfields und eine herstellungsbedingt abgerundete Kontur für metallische Flowfields. Um

festzustellen, in wie weit die abgerundeten Kanten der Stege der metallischen Flowfields die Druckverteilung und den Kontaktwiderstand beeinflussen, sollen tiefgezogene metallische Bleche mit unterschiedlichen Radien an den Stegen hergestellt werden.

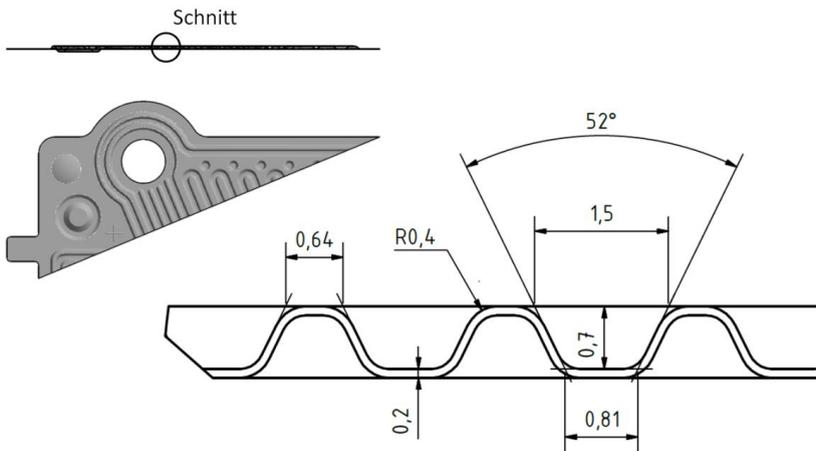
Dazu muss zunächst eine Tiefziehvorrichtung konstruiert werden (siehe **Abbildung 25**). Diese beinhaltet eine Grundplatte, welche den unteren Stempel trägt, und eine obere Verfahrplatte die den oberen Stempel trägt. Um während des Tiefziehprozesses Falten 1., 2. und 3. Art zu vermeiden wird eine weitere Platte integriert, welche den Niederhalter trägt ([111], S. 289 ff.). Dieser hält den Außenbereich nieder, so dass dieser keine Wellen schlägt. Gleichzeitig darf der Außenbereich nicht zu stark fixiert werden, da von dort Material in Richtung Mitte des Blechs nachfließen muss. Kann nicht genug Material nachfließen, reißt das Blech im Umformbereich und das Bauteil wird unbrauchbar. Zur Anpassung der Niederhalterkraft sieht die Konstruktion insgesamt 12 Steckplätze für Federn zwischen der oberen Verfahrplatte und der Niederhalteplatte vor. Diese Federn werden während des Tiefziehvorgangs 5 mm zusammengedrückt. Zusammen mit den jeweiligen Federraten ergibt sich die Niederhalterkraft. Durch eine passende Wahl an Werkzeugfedern mit verschiedenen Federraten kann die Tiefziehkraft so auf den jeweiligen Prozess angepasst werden.

Zwischen dem oberen und unteren Stempel muss sich ein sogenannter Fließspalt befinden. Dieser dient dazu, dass das Material während der Verformung nachfließen kann und nicht zu stark an den Oberflächen der Tiefziehstempel reibt. In diesem Fall ist das Material 0,2 mm dick, so dass ein Fließspalt von etwa 0,05 mm gewählt wird. Dies führt dazu, dass die obere und untere Platte absolut präzise aufeinander geführt werden müssen, da bei einem Versatz von nur 50  $\mu\text{m}$  die Stempel zusammen mit dem Tiefziehmaterial auf Block gehen würden und der Fließspalt nicht mehr vorhanden wäre. Daher wird als Basis für die Konstruktion ein Gestell der Firma Strack Norma GmbH, Deutschland verwendet. So kann eine Führungstoleranz der Grundplatten von 5 bis 12  $\mu\text{m}$  in Kombination mit Führungsbuchsen der Klasse A mit einem Durchmesser von 24 mm gewährleistet werden ([112], S. 4.75).



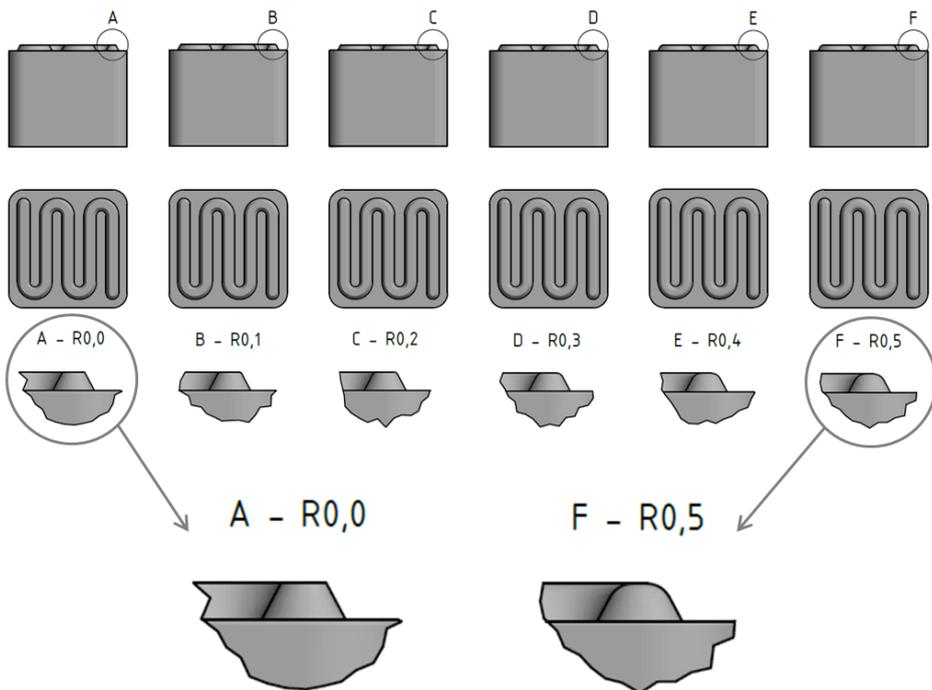
**Abbildung 25:** Foto der Tiefziehvorrichtung zur Herstellung von metallischen Flowfields (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH)

Bei der Konstruktion der Stempel/Tiefziehwerkzeuge wird sich an der Kanal-Steg-Geometrie des bereits erwähnten RoBiPo-Designs [88] orientiert (siehe **Abbildung 26**). Dazu wird versucht, eine Kanalbreite von etwa 1 mm und eine Kanaltiefe von ebenfalls etwa 1 mm zu erreichen. Aufgrund herstellungstechnischer Limitierungen durch das Tiefziehverfahren ist ein Kanal mit 1,5 mm Breite (maximaler Breite) und 0,7 mm Tiefe ein akzeptabler Kompromiss, liegt damit nah genug an der Zielgeometrie und ist durch die schrägen Wände des Kanals noch sehr gut herstellbar.



**Abbildung 26:** Kanal-Steg-Geometrie RoBiPo-Design

Zur Herstellung verschiedener metallischer Flowfield-Proben werden Stempel mit 0 bis 0,5 mm Eckenradius hergestellt.



**Abbildung 27:** Stempel-Geometrien zur Herstellung metallischer Flowfield-Proben mit verschiedenen Stegkanten-Radien

Für die Durchführung des Tiefziehprozesses müssen die Parameter Tiefziehkraft, Niederhaltekraft und die Schmierung der Oberflächen richtig eingestellt werden, um ein einwandfreies tiefgezogenes Blech zu erhalten. Diese Parameter wurden in Zusammenarbeit mit einem Studenten im Rahmen dieser Dissertation ermittelt [113]. Durch Tiefzieh-Versuche mit einer idealisierten kreisrunden Kanalgeometrie ergibt sich eine Tiefziehkraft von 110 N pro Millimeter Kanallänge ( $110 \text{ N/l}_{\text{Kanal}}$ ) bei einer Niederhaltekraft des Randbereichs von 0,5 MPa. Die Verwendung von Tiefzieh-Öl zur Verbesserung des Materialflusses unter dem Niederhalter ist bei dieser simplen Kanalgeometrie nicht von Nöten. Mithilfe dieses Wertes können für andere Tiefzieh-Geometrien Richtwerte für die Kräfte errechnet werden, welche dann durch weitere Tiefzieh-Versuche optimiert werden können. Die Richtwerte wurden durch die Herstellung eines funktionsfähigen Flowfields mit einer aktiven Fläche von 50x50 mm verifiziert und bedurften keiner Korrektur. Die dazu benötigten Tiefziehwerkzeuge wurden in Zusammenarbeit mit einem Masteranden entwickelt [114]. Bilder und Konstruktionszeichnungen zu dem funktionsfähigen metallischen Flowfield sowie die Abbildungen der benötigten Werkzeuge befinden sich im Anhang auf der Seite 155 ff.

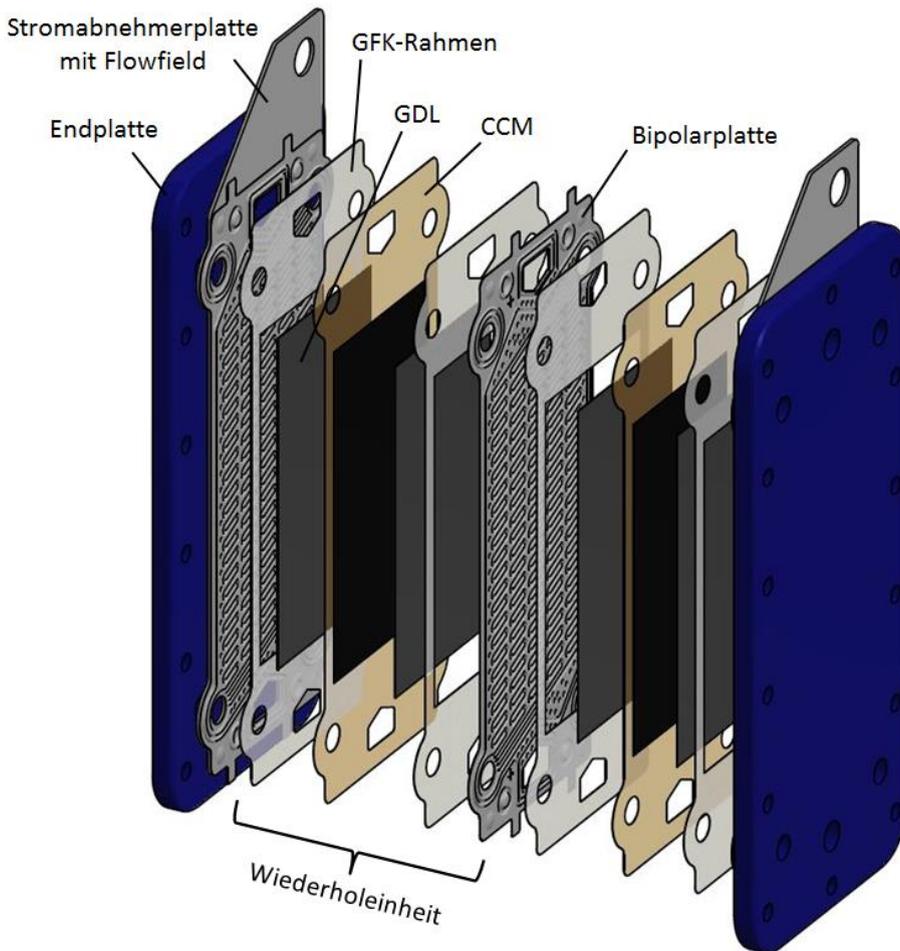
Mit der Tiefziehvorrichtung können nun 16x16 mm große Flowfield-Proben mit verschiedenen Stegkanten-Radien hergestellt werden. Diese dienen später bei der Untersuchung des Einflusses des Stegkanten-Radius auf den Kontaktwiderstand und die lokalen Druckverteilungen als Proben. Alle Konstruktionszeichnungen bezüglich der Tiefziehvorrichtung befinden sich im Anhang Seite 143 ff.

Um auch die globalen Druckverteilungen über der gesamten aktiven Fläche untersuchen zu können, werden im folgenden Kapitel die verwendeten Short-Stacks vorgestellt, an welchen die Druckverteilungen ermittelt werden.

### 3.4.3 Getestete Short-Stacks

Das aktuell am Institut verwendete Stack-Design ist aufgebaut aus flachen Aluminium-Endplatten welche rundum mit 16 Stück M6-Schrauben miteinander verschraubt werden. Auf die Endplatte wird eine Gummimatte zur elektrischen Isolation der Endplatten aufgelegt, der die Stromabnehmerplatten aus vergoldetem Edelstahl folgen. Auf der Stromabnehmerplatte ist im Falle von metallischen Flowfields bereits ein Flowfield aufgeschweißt. Bei graphitischen Flowfields wird eine Flowfield-Platte aufgelegt. Darauf

folgt ein Rahmen aus glasfaserverstärktem Kunststoff (GFK) der eine Aussparung für die GDL besitzt. Die Rahmenhöhe muss dabei auf die verwendete GDL angepasst werden. Die Abdichtung zwischen Flowfield und Rahmen wird durch eine Dichtnaht aus Srintec Hochtemperatur-Silikon übernommen, die in eine dafür vorgesehene Nut im Flowfield von einem Dispenser flüssig aufgetragen wird. Auf den Rahmen wird anschließend die CCM mit eigenem Rahmen (Subgasket) aufgelegt, welcher gleichzeitig die Dichtungsfunktion übernimmt. Darauf folgt wieder ein GFK-Rahmen mit eingelegter GDL. Die nächste Schicht stellt die Bipolarplatte dar. Sie besitzt auf beiden Seiten ein Flowfield und trägt innerhalb der Platte die Kanäle zur Kühlmittelführung. Im graphitischen Aufbau besteht die Bipolarplatte aus zwei einzelnen Flowfield-Platten, wobei eine der Platten auf der Rückseite die eingefrästen Kühlmittelkanäle trägt. Auch hier kommt zur Abdichtung eine Srintec-Naht zum Einsatz. Im metallischen Aufbau bestehen die beiden Flowfields aus tiefgezogenen Halbschalen, welche miteinander verschweißt werden [88]. Der sich ergebende Zwischenraum der Negativ-Formen des Flowfields wird dabei zur Kühlmittelführung genutzt. Exemplarisch ist in **Abbildung 28** der Aufbau des metallischen Stacks dargestellt. Im Anhang auf Seite 157 befindet sich eine Darstellung mit graphitischen Flowfields.



**Abbildung 28:** RoBiPo-Stackdesign mit metallischen Bipolarplatten

Für die später verwendeten Short-Stacks werden mehrere dieser Wiederholeinheiten zu einem 5-Zellen-Stack zusammengebaut. Durch Assemblierungshilfen, an die die Komponenten angelegt werden, wird eine präzise Ausrichtung der Schichtkomponenten erreicht. Die Schrauben werden über Kreuz in einem ersten Schritt mit 2 Nm angezogen, danach mit 4 Nm und anschließend auf 6 Nm angezogen.

Damit sind an dieser Stelle die Grundlagen, der Stand der Technik, die Methoden und die verwendeten Materialien, die als Basis für den Ergebnisteil dieser Arbeit dienen, gelegt und es kann im folgenden Kapitel mit der Darstellung der erzielten Ergebnisse begonnen werden.



## 4 Ergebnisse

Die in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse beziehen sich auf die offengebliebenen Fragestellungen der Literaturrecherche aus Kapitel 2. Dabei wird geklärt, wie sich aktuell gebräuchliche GDL-Materialien mechanisch verhalten - bestehen dabei Zeit-, Feuchte- oder Temperaturabhängigkeiten und liegen diese Verhaltensweisen in Strukturveränderungen begründet. Weiter wird untersucht, welchen Einfluss diese Veränderungen auf betriebsrelevante Eigenschaften der GDL wie den Ohm'schen Widerstand oder den Massentransportwiderstand besitzen. Für die praktische Anwendung werden die optimalen Anpressdrücke für drei häufig verwendete GDL-Materialien genau bestimmt und der ermittelte optimale durchschnittliche Anpressdruck auf der aktiven Fläche kritisch mit den tatsächlich lokal herrschenden Drücken unter Kanal und Steg verglichen. Zur besseren Vergleichbarkeit und Anwendbarkeit der Erkenntnisse zum optimalen Anpressdruck wird der Fokus auf verschiedene Stack-Konzepte erweitert und auftretende Probleme durch die Hochskalierung der Einzel-Testzelle auf Stackgröße untersucht. Dabei werden Richtgrößen entwickelt, die eine Abschätzung des optimalen Anpressdrucks für andere Zell- und Stackdesigns zulassen.

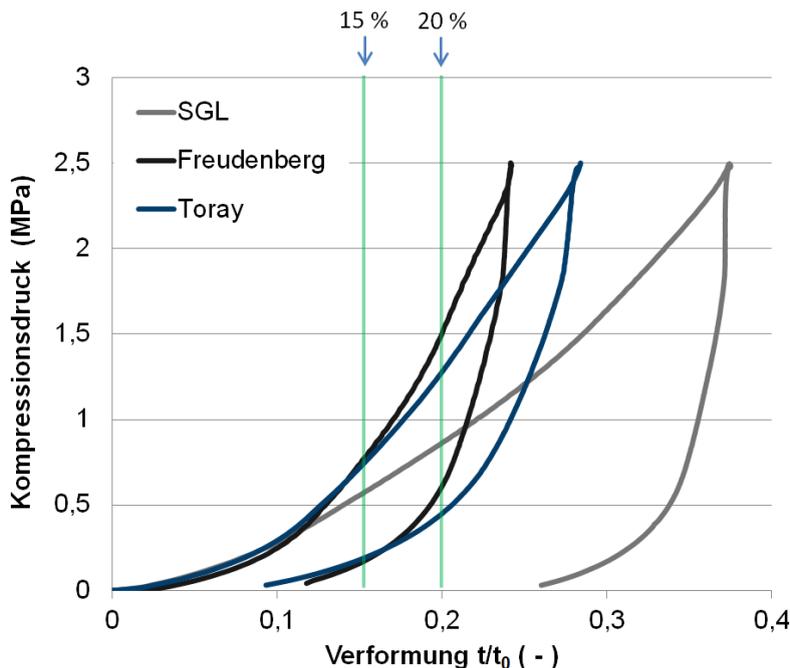
### 4.1 GDL-Materialien unter Druckbeanspruchung: Spannungs-Stauchungs-Diagramme

GDL-Materialien werden bei der Assemblierung teilweise mehrfach, mindestens aber einmal komprimiert. Dazu kommen weitere Komprimierungszyklen durch das An- und Abschwollen der Membran und der Wärmeausdehnung während des dynamischen Betriebs der Brennstoffzelle. Daher wird im ersten Unterkapitel auf die Abhängigkeit der Verformung und der Steifigkeit der GDL-Materialien von den Lastzyklen eingegangen. Die Ergebnisse aus Kapitel 4.1 sind hauptsächlich in Zusammenarbeit mit einem Masteranden entstanden [104].

#### 4.1.1 Lastzyklen

Der einfachste Fall ist, dass das GDL-Material einmal komprimiert wird. Einige Hersteller von GDL-Materialien geben dabei Richtwerte von zum Beispiel 20 % Komprimierung der GDL als optimalen Betriebspunkt der Zelle an. Wird also die Zelle oder der Stack um 20 % bei der Assemblierung komprimiert, bedeutet das noch nicht zwangsläufig, dass auch die

GDL 20 % komprimiert wird, da die Steifigkeit der restlichen Komponenten nicht der der GDL entspricht und häufig sogar unbekannt ist. Sollen zur Bestimmung des optimalen Anpressdrucks noch Ergebnisse aus der Literatur zum optimalen Anpressdruck mit einer Anpressdruckangabe in MPa hinzugezogen werden, oder der Anpressdruck aufgrund der verwendeten Schraubendrehmomente durch Druckmessfolien überprüft werden, muss ein Diagramm herangezogen werden, durch welches die prozentuale Komprimierung einem Druck zugeordnet werden kann und umgekehrt (siehe **Abbildung 29**).



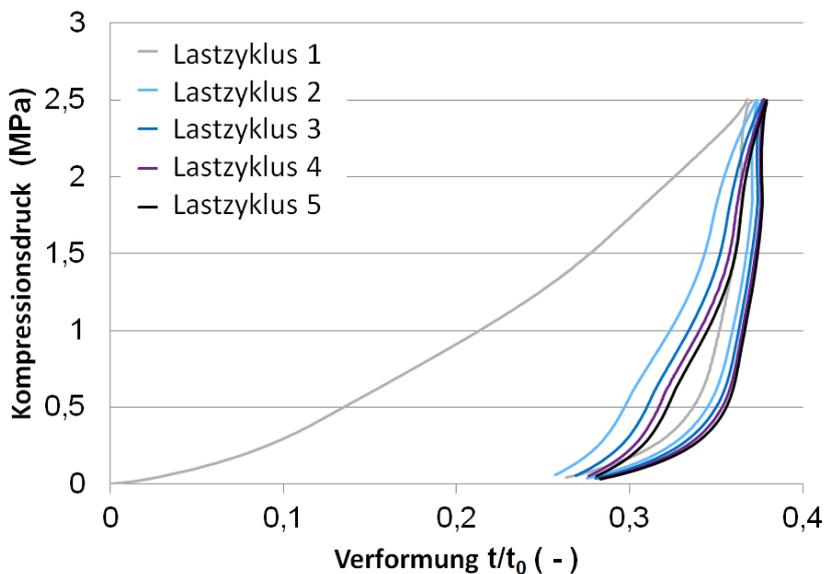
**Abbildung 29:** Einmalige Kompression der GDL-Materialien SGL 29BC, Freudenberg H2315 C2 und Toray TGP-H 060 (mit  $t$  = Verformung der GDL und  $t_0$  = Anfangsdicke der GDL)

Mithilfe dieser Graphen kann die Herstellerangabe von einer geforderten Kompression von 20 % in einen Anpressdruck übersetzt werden, der anschließend mittels einer Presse bei der Assemblierung auf die Zelle aufgebracht oder mittels Druckmessfolien eingestellt werden kann. Darüber hinaus können Angaben zum optimalen Anpressdruck in Komprimierungen übersetzt werden. Für das Freudenberg-Material ergibt sich für eine Komprimierung von 20 % ein Anpressdruck von 1,5 MPa, für das Toray-Material etwa 1,3 MPa und für das SGL-Material etwa 0,8 MPa.

Zu sehen in **Abbildung 29** ist auch, dass sich die Freudenberg-GDL (Vlies mit MPL) mit nur 24 % maximaler Verformung bei 2,5 MPa am Steifsten verhält, gefolgt von der Toray-GDL (Papier ohne MPL) mit 28 % und der SGL-GDL (Papier mit MPL) mit 37 %. Die bleibenden, plastischen Verformungen ordnen sich etwas anders. Hier erleidet die Toray-GDL mit 9 % die geringste plastische Verformung, gefolgt von der Freudenberg-GDL mit 12 %. Die SGL-GDL erleidet deutliche höhere plastische Verformungen von über 25 %.

Anhand der plastischen Verformungen wird klar, dass der erste Lastzyklus von den darauffolgenden abweichen muss. Daher werden an diese Untersuchungen weitere Messungen mit 5 aufeinanderfolgenden Kompressionen von 0 bis 2,5 MPa angeschlossen.

In **Abbildung 30** ist das GDL-Material mit der größten plastischen Verformung dargestellt (SGL 29BC). Hier ist zu sehen, dass der erste Lastzyklus die größte Diskrepanz aufgrund der plastischen Verformung von rund 25 % aufbaut, während die 4 nachfolgenden Lastzyklen lediglich eine weitere plastische Verformung von insgesamt 3 % hervorrufen. Dabei ist der Trend zu beobachten, dass mit jedem Lastzyklus der Zuwachs der plastischen Verformung kleiner wird, nach 5 Zyklen jedoch noch nicht gänzlich verschwunden sind.



**Abbildung 30:** 5 Kompressionszyklen des SGL 29BC GDL-Materials

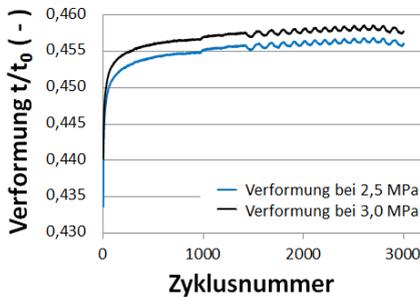
Die GDL-Materialien Freudenberg H2315 C2 und Toray TGP-H 060 zeigen das gleiche Verhalten, wobei die erreichten maximalen plastischen Verformungen für die

Freudenberg-GDL mit 13 % und für die Toray-GDL mit 11 % deutlich geringer ausfallen. Die Diagramme dazu befinden sich im Anhang auf Seite 159.

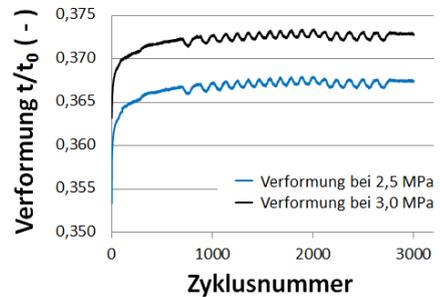
Bis zum fünften Kompressionszyklus wird der mit jedem Zyklus hinzukommende Anteil plastischer Verformung zwar geringer, ist aber noch nicht Null. Tatsächlich aber werden eine Brennstoffzelle und deren Komponenten in der Regel nicht häufiger als fünfmal komprimiert während der Assemblierung, so dass 5 Kompressionszyklen von 0 bis 5 MPa und auf 0 MPa zurück die Realität sehr gut abbilden. Jedoch erleiden die Komponenten weitere Lastzyklen aufgrund des An- und Abschwellens der Membran im realen Betrieb. Daher werden Messungen, angelehnt an diesen Betrieb, durchgeführt, die ausgehend von einem Assemblierungsdruck von 2,5 MPa als Basisdruck 3000 Druckerhöhungen um 0,5 MPa (Wert aus [26]) auf die GDL-Materialien aufgeben, welche das An- und Abswellen der Membran simulieren. Die Zykluszeit für die Belastung und Entlastung zusammen beträgt dabei 30 s. Die Ergebnisgraphen sind in **Abbildung 31** dargestellt. Durch sie wird deutlich, dass während der ersten etwa 1000 Lastzyklen je nach Material, mit jedem Lastzyklus etwas mehr plastische Verformung zur bereits erlittenen hinzukommen. Das Toray TGP-H 060 erreicht seinen Grenzwert für die plastische Verformung von 37,2 % (bei 3,0 MPa) bereits nach weniger als 1000 Lastzyklen, das Freudenberg H2315 C2 benötigt etwa 1100 Lastzyklen um eine konstante Verformung von 33,3 % zu erreichen und das SGL 29BC GDL-Material scheint auch nach über 2500 Lastzyklen noch kein absolut konstantes Materialverhalten zu zeigen und erreicht etwa 45,8 % Verformung. Das Wellenprofil kann vernachlässigt werden, da dieses aufgrund der sensibel ansprechenden optischen Sensoren zwar erfasst wird, mit einer entsprechenden Verformung von nur etwa 0,2  $\mu\text{m}$  aber sehr gering ist, und nicht auf tatsächlich stattfindende mechanische Verformungen zurückgeführt werden kann. Unter Berücksichtigung der y-Achsen-Skalierung wird in **Abbildung 31 d**) deutlich, dass der Effekt der Annäherung an einen Grenzwert während der ersten 1000 Lastzyklen jedoch sehr gering ist. Werden die ersten 10 bis 20 Zyklen außer Acht gelassen, ergibt sich lediglich eine weitere Kompression der GDL-Materialien um rund 5 % während der nächsten 1000 Zyklen. Für die meisten Anwendungen kann daher die Dickenänderung der GDL-Materialien nach den ersten 10 bis 20 Zyklen vernachlässigt werden. Ein annähernd konstantes Materialverhalten stellt sich ein. Für den realen Stack bedeutet das, dass der Stack durch die ersten zyklischen Belastungen an Vorspannung verliert und der Anpressdruck, der bei der Assemblierung eingestellt wurde, nicht gehalten werden kann. Ob ein Nachziehen des Stacks nach einer

gewissen Zeit, oder eine Vorkomprimierung des GDL-Materials zur Erlangung konstanten Materialverhaltens von Vorteil ist, ist noch nicht geklärt.

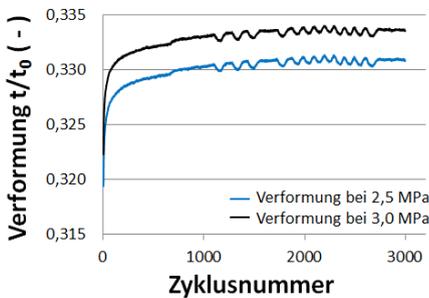
a) SGL 29BC



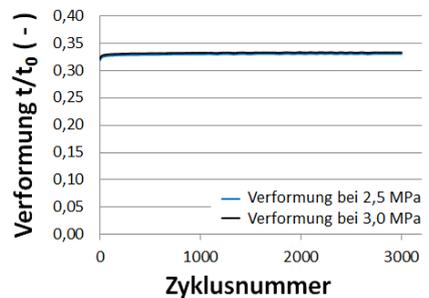
b) Toray TGP-H 060



c) Freudenberg H2315 C2



d) Freudenberg H2315 C2



**Abbildung 31:** GDL-Materialien unter 3000 schwingenden Lastzyklen von 2,5 bis 3,0 MPa - a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2 d) Freudenberg H2315 C2 mit geänderter y-Achsen-Skalierung

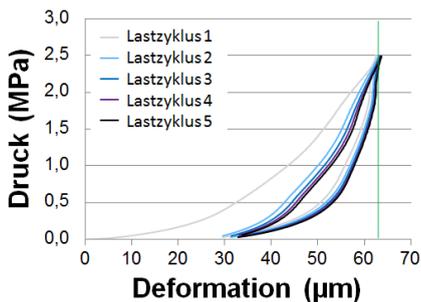
Die Ergebnisse zeigen, dass sich gerade der erste Lastzyklus deutlich von allen darauf folgenden Lastzyklen unterscheidet. Ist ein konstantes Materialverhalten der GDL-Materialien von Nöten, muss das Material vorkomprimiert werden.

Da die GDL-Materialien nicht ausschließlich aus Kohlenstoff bestehen, sondern aufgrund der MPL, des Binders und der Hydrophobierung bzw. Hydrophilisierung Anteile an Polymeren besitzen, werden in den nächsten Kapiteln die Zeit-, Feuchtigkeits- und Temperaturabhängigkeit der mechanischen Eigenschaften überprüft.

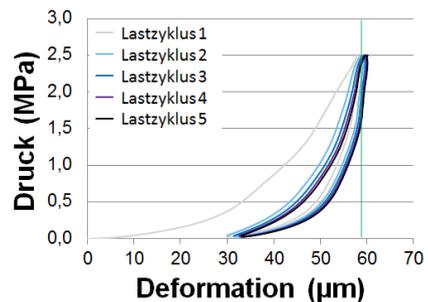
#### 4.1.2 Zeitabhängigkeit

Da die GDL-Materialien zu gewissen Teilen aus Polymeren bestehen, die zum Kriechen neigen, wird in den Versuchen nach einer Druckaufbringung von 2,5 MPa die Haltezeit des Drucks variiert und der Druck dabei im ersten Versuchsteil umgehend wieder abgebaut, im Zweiten 10 s gehalten und im Dritten 30 s gehalten um danach wieder auf 0 MPa zurückzufahren. Dieser Zyklus wird fünfmal durchlaufen. Exemplarisch für alle drei GDL-Materialien sind in **Abbildung 32** die Messungen für das Freudenberg-Material zu sehen. Für Polymere ist eine höhere Deformation bei höherer Belastungsdauer zu erwarten ([115] Seite 94 ff.). Die Deformation nimmt jedoch nicht mit höherer Belastungsdauer zu, sondern bleibt im Bereich von 59 bis 62  $\mu\text{m}$ . Damit liegt die Variation innerhalb des Messfehlers der Universalprüfmaschine und es kann kein Einfluss der Belastungsdauer unter diesen Versuchsparametern festgestellt werden. Die Messungen zum Material von Toray und SGL befinden sich im Anhang auf Seite 160 f. und lassen ebenfalls nicht auf eine Zeitabhängigkeit schließen.

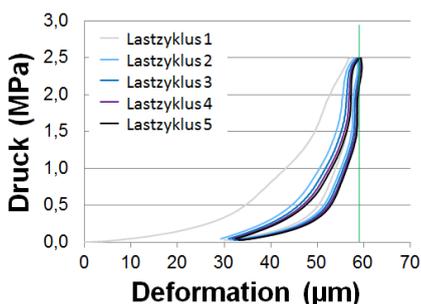
a) 0 s



b) 10 s



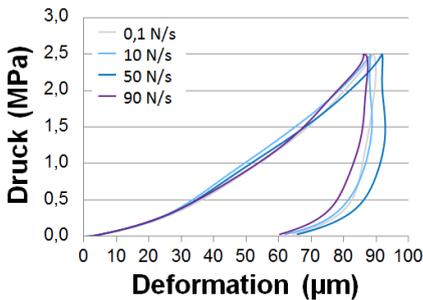
c) 30 s



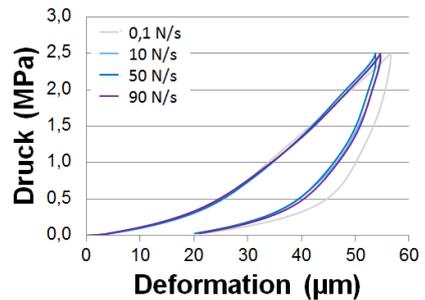
**Abbildung 32:** Belastungszeit-Variation Freudenberg H2315 C2 - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden

Eine weitere zeitabhängige Größe ist die Belastungsgeschwindigkeit. Um deren Einfluss festzustellen, werden die GDL-Proben mit einem Druck von 2,5 MPa (entspricht etwa 700 N) belastet während die Belastungsgeschwindigkeit zur Aufbringung des Drucks zwischen 0,1 N/s und 90 N/s variiert wird. Auch hier ist keine eindeutige Abhängigkeit des mechanischen Verhaltens der GDL-Materialien von der Belastungsgeschwindigkeit zu erkennen (siehe **Abbildung 33**).

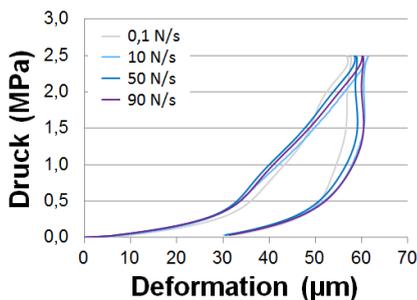
a) SGL 29BC



b) Toray TGP-H 060



c) Freudenberg H2315 C2



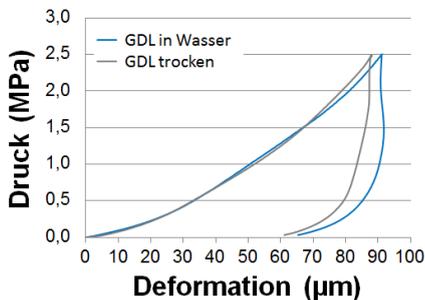
**Abbildung 33:** Belastungsgeschwindigkeit-Variation von 0,1 N/s bis 90 N/s für die GDL-Materialien a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2

Neben zeitlichen Abhängigkeiten können die mechanischen Eigenschaften von Polymeren auch aufgrund von Umgebungsbedingungen variieren. Daher wird im nächsten Kapitel die Feuchteabhängigkeit der mechanischen Eigenschaften der GDL-Materialien überprüft, da diese im Betrieb einer Niedertemperatur PEM mit flüssigem Wasser in Kontakt stehen.

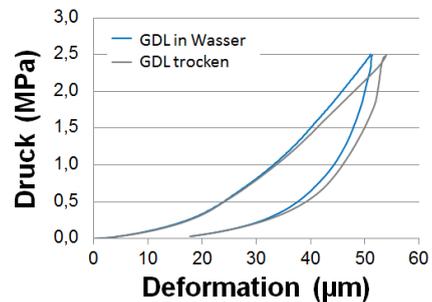
### 4.1.3 Feuchtigkeitsabhängigkeit

In einer PEM-Brennstoffzelle herrschen für gewöhnlich 30 bis 100 % relative Feuchte der Versorgungsgase und je nach Betriebspunkt kann flüssiges Wasser in den Kanälen und der GDL vorhanden sein. Daher werden die GDL-Materialien nach einem Wasserbad einer Komprimierung mit 2,5 MPa unterzogen und mit den Messungen im trockenen Zustand verglichen. Hier wird aus **Abbildung 34** klar, dass keines der drei gemessenen GDL-Materialien signifikant mit veränderten mechanischen Eigenschaften auf die Behandlung mit Wasser reagiert.

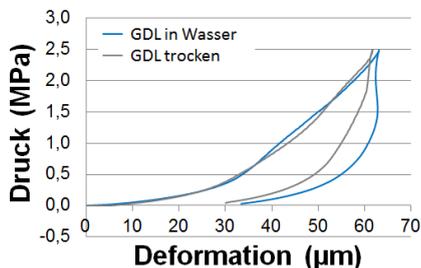
a) SGL 29BC



b) Toray TGP-H 060



c) Freudenberg H2315 C2



**Abbildung 34:** Feuchtigkeits Einfluss auf die GDL-Materialien a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2

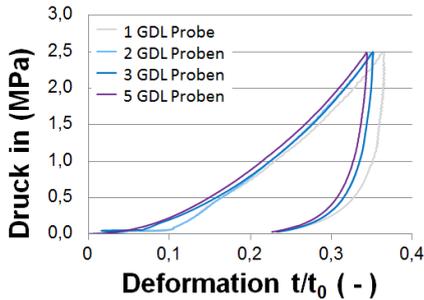
Eine Abhängigkeit der mechanischen Eigenschaften der GDL-Materialien von Belastungszeit, Belastungsgeschwindigkeit und Feuchte kann durch die Versuche nicht festgestellt werden. Sollen die Ergebnisse zur Zyklensabhängigkeit aber mit Literaturwerten verglichen werden, stellt sich das Problem, dass diese häufig mit aufeinandergestapelten Proben ermittelt werden, um die Messgenauigkeiten zu relativieren/verkleinern. Um zu klären, ob dieses

Aufeinanderstapeln der Proben die Ergebnisse verfälscht, werden im Folgenden einige der Versuche mit bis zu fünf aufeinandergestapelten Proben wiederholt.

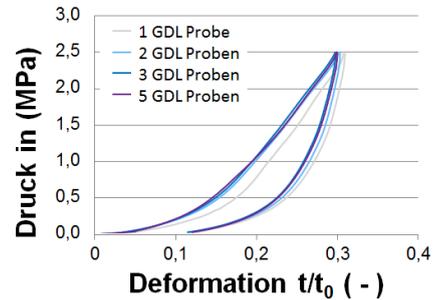
#### 4.1.4 Einflüsse bei der Verwendung mehrerer, aufeinandergestapelter GDL-Proben

In der Literatur werden bei solchen Kompressionsversuchen häufig mehrere, aufeinandergestapelte GDL-Proben für die Versuche verwendet, um die Probenverformung zu vervielfachen und damit die Messgenauigkeit zu erhöhen. Aufgrund der Stapelung der Proben kann es jedoch zu ungewollten Interaktionen der Kontaktflächen der GDL-Materialien kommen, die das Ergebnis verfälschen können. Daher werden für diesen Versuch zunächst einzelne GDL-Proben und dann Stapel von 2, 3 und 5 GDL-Proben Kompressionsversuchen unterzogen. In **Abbildung 35** ist zu sehen, dass die Messung der einzelnen Probe in allen drei Fällen etwa 2 bis 3 % mehr Verformung ergibt, als bei aufeinandergestapelten Proben. Diese relativ geringe Abweichung lässt einen Trend erahnen, ist aber mit ihrer Größenordnung nur ganz knapp oberhalb der Messtoleranz von 5  $\mu\text{m}$  (2 - 3 % entsprechen 4 - 7  $\mu\text{m}$ ). Daher kann keine eindeutige Aussage darüber getroffen werden, ob die Stapelung der Proben die Ergebnisse tatsächlich verfälschen.

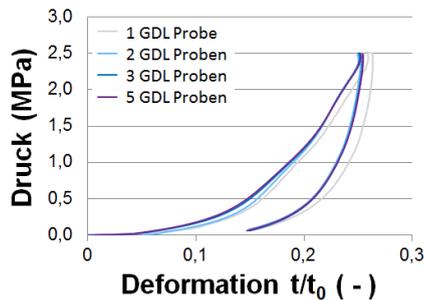
a) SGL 29BC



b) Toray TGP-H 060



c) Freudenberg H2315 C2

**Abbildung 35:** Einfluss der aufeinandergestapelten Probenanzahl

Werden also Messwerte einzelner Proben mit Messwerten, die mit aufeinandergestapelten Proben ermittelt wurden, mit der Literatur verglichen, sollten diese Abweichungen im Hinterkopf behalten werden und ggf. mit einem optimierten Versuchsaufbau überprüft werden.

Bis hierhin können mit den gewählten Versuchsparametern keine Zeitabhängigkeiten der mechanischen Eigenschaften, keine Feuchtigkeitsabhängigkeiten und nur geringe Einflüsse der gestapelten Probenanzahl ausgemacht werden. Es kann aber sehr wohl eine deutliche Abhängigkeit der Lastzyklen bzw. Lasthistorie festgestellt werden. Dies bedeutet, dass bei einer mechanischen Belastung irreversible Veränderungen der GDL-Eigenschaften auftreten, die es im nächsten Kapitel näher zu betrachten gilt.

#### 4.2 Einfluss der Mechanik auf charakteristische Eigenschaften der GDL

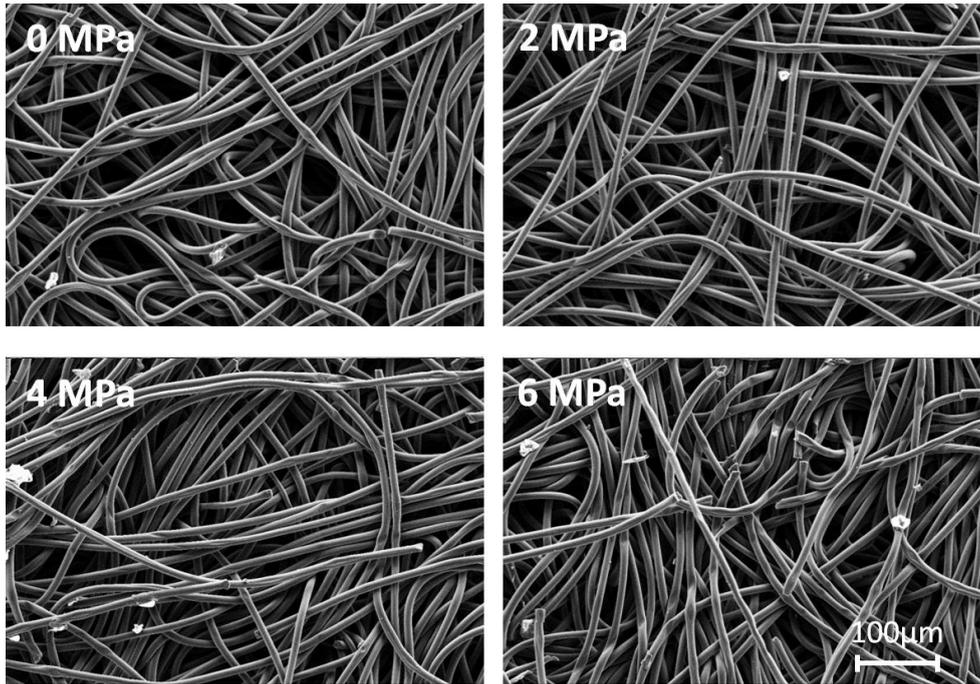
Durch eine mechanische Belastung der GDL-Materialien treten irreversible, plastische Verformungen im Material auf. Da die Strukturen der einzelnen GDL-Materialien sehr unterschiedlich sind, wird nun untersucht, inwieweit die jeweiligen Veränderungen des

mechanischen Verhaltens auf Strukturänderungen zurückzuführen sind und ob diese Veränderungen auch Einfluss auf für den Brennstoffzellenbetrieb entscheidende Größen wie den Massentransportwiderstand und den Ohm'schen Widerstand besitzen.

#### 4.2.1 Bruchmechanik

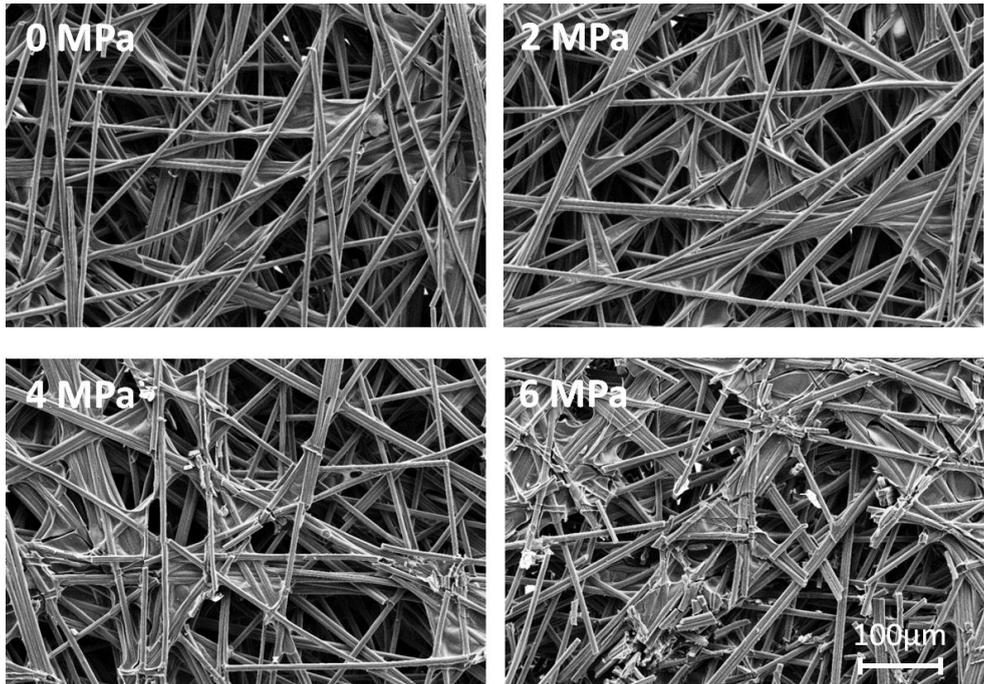
Zur Visualisierung der Struktur werden zunächst REM-Aufnahmen der unbelasteten GDL-Materialien erstellt. Danach werden die Proben in einer hydraulischen Presse mit 2, 4 und 6 MPa für 10 s flächig belastet und nach jeder Druckstufe REM-Aufnahmen der Oberflächenstruktur gemacht.

In **Abbildung 36** sind die Aufnahmen des Freudenberg H2315 C2 GDL-Materials dargestellt. Wird zuerst das Bild nach 6 MPa betrachtet, sind deutlich Dellen in den Faseroberflächen zu sehen, welche sich bereits auf den Bildern nach 4 und 2 MPa abzuzeichnen beginnen. Das Bild ohne vorherige Last dient als Vergleich und zeigt nur sehr vereinzelt Dellen in den Fasern, die möglicherweise bereits im Herstellungsprozess oder durch die Handhabung entstanden sind. Die Fasern bleiben aber intakt und brechen grundsätzlich nicht durch die Druckbelastung.



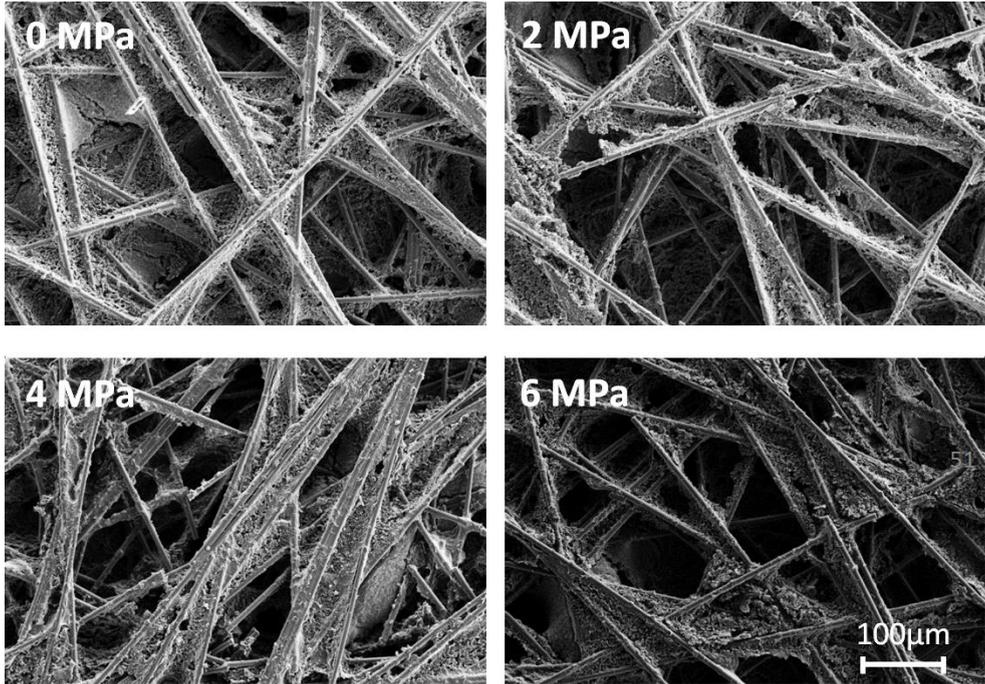
**Abbildung 36:** REM-Aufnahmen des Freudenberg H2315 C2 GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84])

In **Abbildung 37** sind die REM-Aufnahmen des Toray TGP-H 060 GDL-Materials zu sehen. Hier zeigt sich ein deutlich anderes Bild. Beginnend mit dem Bild nach 6 MPa sind große Bereiche mit gebrochenen Fasern und brüchigem Bindermaterial zu sehen. Es scheint, als sei fast jede Faser gebrochen. Nach 4 MPa sind die zerstörten Bereiche deutlich kleiner, aber auch hier sind einige Fasern bereits gebrochen. Die Binderbereiche scheinen unversehrt. Ein Druck von 2 MPa schädigt die Faserstruktur noch nicht und lässt das Material unversehrt wie vor der Belastung erscheinen. Es lässt sich festhalten, dass die Fasern des Toray-GDL-Papiers zwischen 2 und 4 MPa beginnen zu brechen.



**Abbildung 37:** REM-Aufnahmen des Toray TGP-H 060 GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84])

Das SGL 29BC GDL-Material zeigte bei den Komprimierungsversuchen die größten plastischen Verformungen. Sowohl die Faserstruktur als auch die Binderbereiche scheinen aber auch nach einer Druckbelastung von 6 MPa unversehrt (**Abbildung 38**). Oberflächlich lässt sich keine Veränderung aus diesen 2D Bildern erkennen.

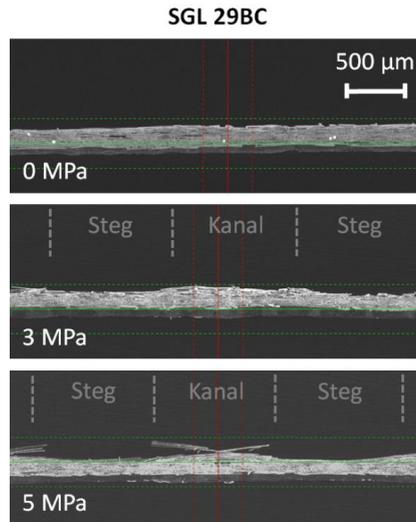


**Abbildung 38:** REM-Aufnahmen des SGL 29BC GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84])

Da nur das Toray GDL-Material deutliche Veränderungen bzw. Schädigungen der Struktur auf den REM-Bildern erkennen lässt, werden zur zusätzlichen Untersuchung der 3D-Struktur Nano-CT Aufnahmen erstellt, die Aufschluss über die räumliche Veränderung der GDL-Materialien nach einer Kompression zulassen. Diese Aufnahmen wurden in Zusammenarbeit mit einem Bacheloranden erstellt [116].

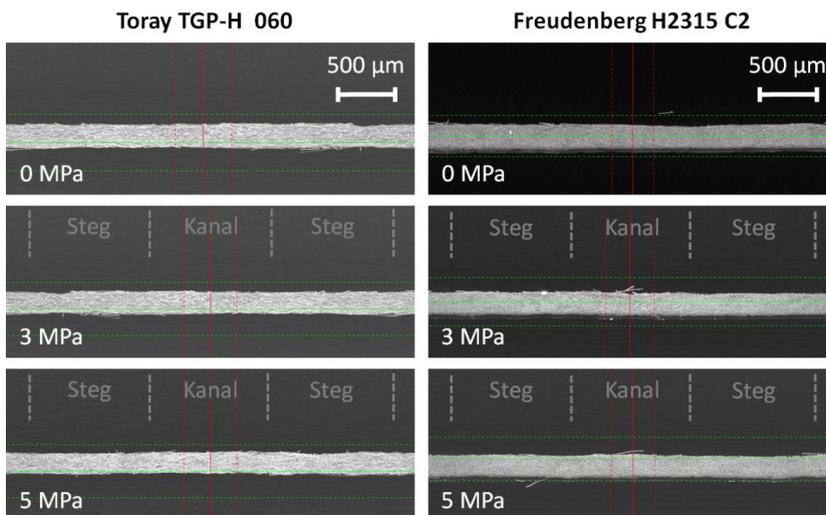
Für die Nano-CT Aufnahmen werden die Proben diesmal vor der Bildaufnahme nicht flächig, sondern mit einer Flowfield-Struktur mit 1 mm breiten Kanälen und Stegen belastet. Der Druck unter den Stegen liegt dabei bei 3 und 5 MPa. Während der Messung werden die Proben nicht mit Druck beaufschlagt.

In **Abbildung 39** ist für das SGL-Material nach 3 MPa eine deutliche Komprimierung der GDL in dem Bereich zu sehen, in dem zuvor der Steg die GDL zusammengedrückt hat. Eine Erhöhung des Drucks auf 5 MPa verstärkt den Effekt und führt sogar an einigen wenigen Stellen zu Faserbrüchen, deren Bruchenden in den Kanalbereich hineinragen. Hier lässt sich ein proportionales Verhalten zwischen Dickenänderung und Druck feststellen.



**Abbildung 39:** Nano-CT Aufnahmen der SGL 29BC GDL unbelastet und nach Belastung durch eine Flowfield-Struktur mit 3 und 5 MPa unter dem Steg (adaptiert nach [84])

Sowohl das Toray- als auch das Freudenberg-Material zeigen keine deutlichen Spuren durch die Komprimierung mit der Flowfield-Struktur (siehe **Abbildung 40**).



**Abbildung 40:** Nano-CT Aufnahmen der Toray und Freudenberg GDL unbelastet und nach Belastung durch eine Flowfield-Struktur mit 3 und 5 MPa unter dem Steg (adaptiert nach [84])

Die gezeigten Bildaufnahmen der GDL-Materialien nach Krafteinwirkung lassen darauf schließen, dass durch die vorhandenen Strukturänderungen, wie zum Beispiel gebrochene

Fasern und Dickenänderungen der Materialien, die Porosität und damit die Massentransportwiderstände beeinträchtigt werden. Daher wird im folgenden Kapitel der Einfluss der mechanischen Belastung auf den Massentransportwiderstand untersucht.

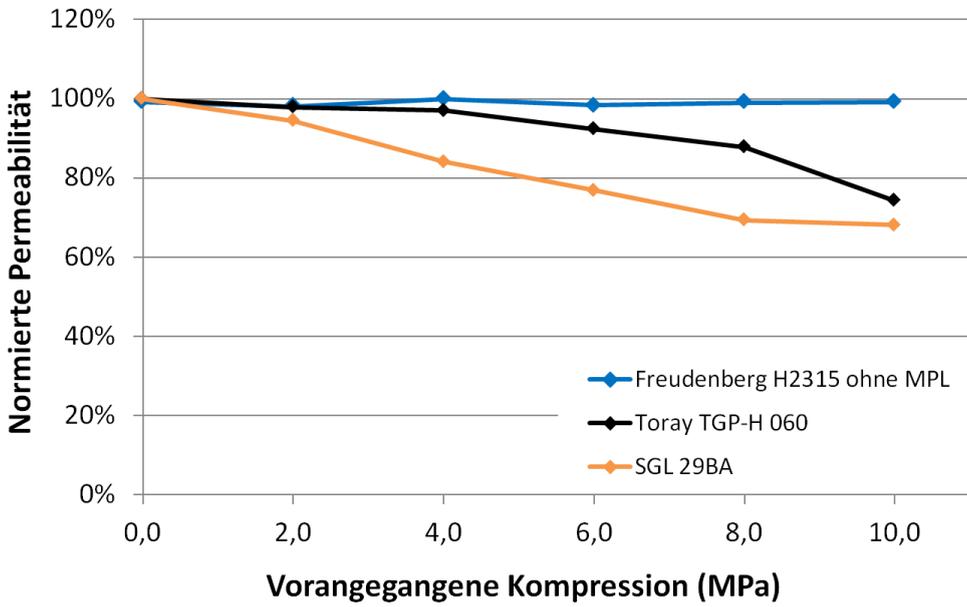
#### 4.2.2 Massentransportwiderstand

Der Massentransport der GDL spielt in höheren Stromdichteregionen der PEM-Brennstoffzelle eine entscheidende Rolle. Daher wird in diesem Kapitel die Through-Plane-Permeabilität nach vorangegangener Druckbelastung der Materialien untersucht. Um allein den Einfluss der Faserstrukturveränderungen aufgrund von mechanischer Belastung sichtbar zu machen, werden die GDL-Proben hier ohne MPL verwendet. Dazu wird dieselbe Probe zunächst ohne vorherige Belastung in einem Gurley-Densometer vermessen. Anschließend wird die Probe in 2 MPa Schritten mit bis zu 10 MPa für 10 s flächig belastet. Nach jeder Druckstufe wird die Gurleyzahl erneut erfasst. Zur besseren Vergleichbarkeit wird die Gurleyzahl in die Permeabilität umgerechnet und auf die Anfangspermeabilität normiert.

Typische Ausgangswerte für die Permeabilitäten der unbelasteten GDLs sind für das SGL 29BA Material etwa  $27,5 \mu\text{m}^2$ , für das Toray TGP-H 060 etwa  $7,8 \mu\text{m}^2$  und für das Freudenberg H2315  $6,7 \mu\text{m}^2$ . Dabei fällt auf, dass die Permeabilität des SGL-Materials deutlich über denen der anderen beiden GDLs liegt. Dies ist allerdings im Betrieb, bei dem zusätzlich eine MPL vorhanden ist, nicht zwingend der Fall, da die MPL des SGL-Materials erheblich in die Gesamtstruktur dieser GDL eingreift. Stärker als dies bei den anderen beiden Materialien der Fall ist. In diesem Kapitel soll sich aber auf die Faserstruktur der GDL-Materialien konzentriert werden, so dass der Einfluss der MPL zunächst außen vor gelassen wird.

In **Abbildung 41** ist zu sehen, dass die Freudenberg-GDL keine bleibende Veränderung der Permeabilität aufgrund der vorangegangenen Belastung bis 10 MPa erfährt. Die Permeabilität der Toray-GDL ist dagegen irreversibel verringert und zeigt einen progressiven Verlauf bis zur maximalen Belastung. Die Permeabilität sinkt um etwa 8 % bei einer vorherigen Belastung von 6 MPa. 6 MPa entsprechen dabei in etwa den Belastungen, die die GDL-Materialien in einer laufenden Brennstoffzelle stellenweise erleiden. Die SGL-GDL reagiert noch deutlicher auf die Belastung und erleidet eine Verringerung der Permeabilität

von über 20 % bei einer Belastung von 6 MPa vor der Messung. Sie zeigt jedoch einen degressiven Verlauf der Permeabilitätsverringerung.



**Abbildung 41:** Permeabilitäten der GDL-Materialien nach vorangegangener Kompression (adaptiert nach [84])

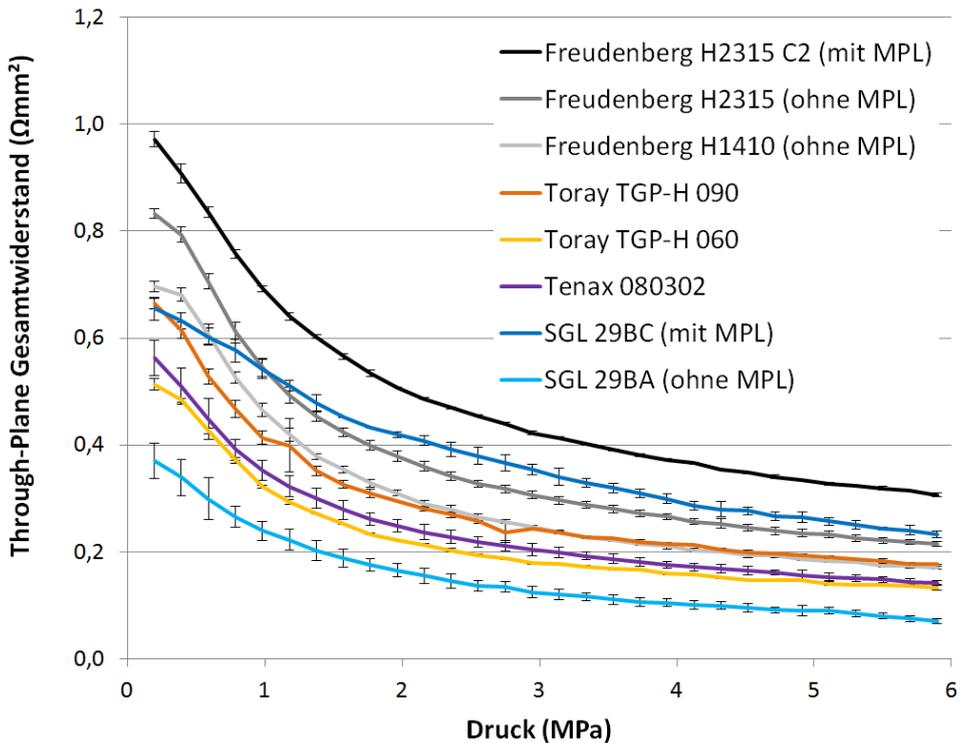
Die Verhaltensweisen der GDL-Materialien während der Permeabilitätsmessungen passen sehr gut zu den Beobachtungen aus den REM-Aufnahmen. Das Freudenberg-Material zeigt keinerlei Strukturveränderungen und bleibt auch bei den Permeabilitätsmessungen unbeeinflusst. Die Fasern des Toray-Materials beginnen zwischen 2 und 4 MPa an zu brechen und deren Bruchenden ragen in die Poren hinein. Dies kann in den Permeabilitätsmessungen durch eine verringerte Permeabilität beobachtet werden. Das SGL-Material reagiert schon auf geringe mechanische Belastung mit einer Dickenänderung und damit mit einer insgesamt verringerten Porosität, was sich auch in den Permeabilitätsmessungen durch einen erhöhten Durchflusswiderstand bemerkbar macht. Eine besondere Position nimmt damit das Freudenberg GDL-Material ein, welches sich gänzlich unbeeindruckt von den mechanischen Belastungen in einer PEM-Brennstoffzelle zeigt.

Ein weiterer Parameter, der durch die Strukturänderungen aufgrund von mechanischer Belastung beeinflusst wird, ist der Ohm'sche Widerstand. Dieser wird im folgenden Kapitel näher untersucht.

#### 4.2.3 Ohm'scher Widerstand

Der Ohm'sche Widerstand dominiert in der PEM-Brennstoffzelle bei moderaten Stromdichten. Da dieser unter anderem aus den Kontaktwiderständen der einzelnen Schichtkomponenten der Zelle zusammengesetzt ist und diese maßgeblich vom Anpressdruck der Schichten abhängig ist, wird in diesem Kapitel der Einfluss des Anpressdrucks auf den Ohm'schen Gesamtwiderstand der GDL-Materialien ermittelt. Dazu werden die Proben, wie in Methoden-Kapitel beschrieben, zwischen zwei Goldstempel gelegt, mit Druck belastet und dabei die Spannung gemessen, die benötigt wird, um einen Strom von 1 A durch die Probe fließen zu lassen. Der hier gemessene Gesamtwiderstand setzt sich demnach aus zweimal dem Kontaktwiderstand von GDL und Goldstempel und dem Materialwiderstand der GDL zusammen. Zum Vergleich werden neben der SGL 29BC, der Toray TGP-H 060 und der Freudenberg H2315 C2 GDL noch weitere GDL-Materialien mit und ohne MPL vermessen. Der Kontaktwiderstand wird bei Anpressdrücken von 0,2 bis 6 MPa gemessen, wobei die Proben vor der ersten Messung für 10 s mit 6 MPa vorkomprimiert werden. Dies ist nötig, da sich der Kontaktwiderstand nach der ersten Kompression um 15 bis 20 % verringert und erst danach reproduzierbar gemessen werden kann (siehe [5]).

In **Abbildung 42** ist das typisch exponentielle Verhalten des Ohm'schen Widerstandes der GDL-Materialien mit steigendem Anpressdruck zu sehen. Mit steigendem Anpressdruck sinkt der Gesamtwiderstand und nähert sich langsam einem Grenzwert an. Die GDL-Materialien der Firmen Freudenberg und SGL zeigen mit einer MPL etwa 15 bis 20 % höhere Widerstände als ohne MPL. Eine wichtige Erkenntnis für alle GDL-Materialien ist, dass nach 2 MPa der Widerstand der GDL-Materialien bereits auf 40 bis 60 % des Ausgangswertes gefallen ist, nach 3 MPa sogar auf 30 bis 40 %. Eine weitere Erhöhung des Anpressdrucks verringert den Widerstand nur noch in geringem Maße.



**Abbildung 42:** Through-Plane Gesamtwiderstandsmessungen in Abhängigkeit des Anpressdrucks verschiedener GDL-Materialien mit 36 mm Probendurchmesser bei 1 A Stromstärke und vorheriger Kompression mit 6 MPa

Nachdem nun die Einflüsse der Mechanik auf charakteristische Eigenschaften der GDL-Materialien, welche allesamt einen Einfluss auf die Leistung einer Brennstoffzelle besitzen, untersucht wurde, wird im folgenden Kapitel abschließend die Leistung einer PEM-Brennstoffzelle in Abhängigkeit der Mechanik, also des Anpressdrucks der Brennstoffzellenkomponenten bestimmt und ein optimaler Anpressdruck für die jeweiligen GDL-Materialien ermittelt.

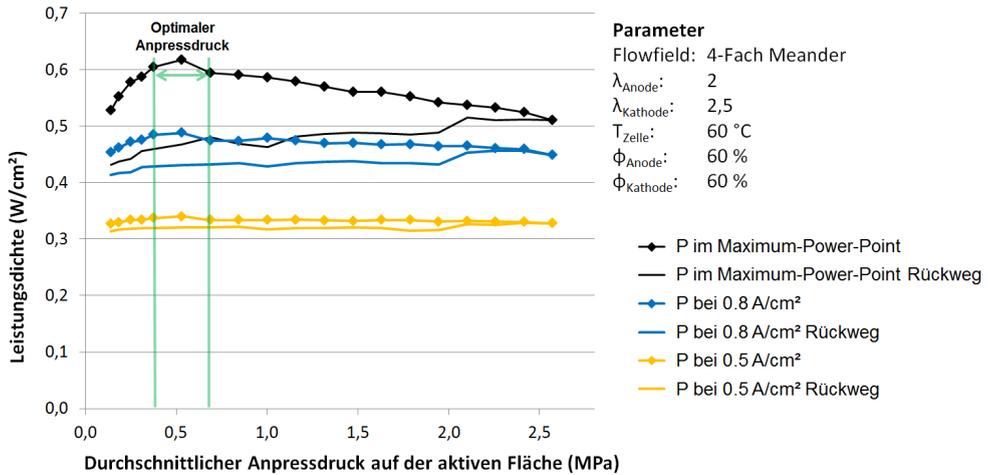
### 4.3 Leistung einer Einzelzelle unter Variation des Anpressdrucks

Bisher wurden die verschiedenen Parameter, auf die die Mechanik einen Einfluss hat, für sich alleine betrachtet und nur darauf verwiesen, dass diese einen Einfluss auf die Leistung der Zelle besitzen müssen. Da zur Optimierung der einzelnen Parameter teilweise konträre Ansprüche an das optimale Arbeitsfenster gestellt werden, soll nun ermittelt werden, wo das optimale Arbeitsfenster der gesamten Brennstoffzelle mit der jeweiligen GDL liegt. Dazu

werden drei Brennstoffzellen mit den drei verschiedenen GDL-Materialien von SGL, Toray und Freudenberg aufgebaut und ausschließlich deren aktive Fläche in der quickCONNECTfixtute der Firma Baltic Fuel Cells mit Anpressdrücken von 0,14 bis 2,79 MPa beaufschlagt. Der Druckbereich wird dabei in 21 Druckstufen unterteilt, wobei der Druckbereich unterhalb von 0,4 MPa feiner gestaffelt ist. Auf jeder Druckstufe werden dann mehrere Polarisationskurven aufgenommen und die Durchschnittswerte ermittelt. Die Polarisationskurven in Gänze sind im Anhang ab Seite 161 zu finden. Stellvertretend für alle Messungen ist die Standardabweichung bei den Polarisationskurven mit Freudenberg-GDL auf Seite 163 angetragen. Sie beträgt im Durchschnitt nur etwa 10 mV und fällt damit gering aus. Zu Beginn wird die jeweilige Zelle mit einem Anpressdruck von 0,6 MPa eingefahren. Danach wird der Anpressdruck auf das Minimum von 0,14 MPa verringert und von dort der Druck Schrittweise für die Messungen erhöht bzw. nach Erreichen des maximalen Anpressdrucks wieder verringert (Rückweg).

#### 4.3.1 GDL-Papier mit MPL: SGL 29BC

Die maximale Leistung (aus der Polarisationskurve für den jeweiligen Anpressdruck) der Zelle mit SGL 29BC GDL, dargestellt in **Abbildung 43**, zeigt ein sehr deutliches Optimum für den Anpressdruck in der Nähe von 0,5 MPa. Nach dem Optimum fällt die maximale Leistung annähernd linear mit steigendem Anpressdruck ab, um gegen Ende des Druckbereichs bei 2,6 MPa nur noch 88 % der höchsten Leistung zu erreichen. Bei maximaler Leistung ist das Optimum am stärksten ausgeprägt, ist aber auch bei einer mittleren Stromstärke von 0,8 A/cm<sup>2</sup> noch deutlich erkennbar. Hier ist der Verlust gegen Ende des Druckbereichs jedoch nur etwa 7 %. Bei Stromstärken von 0,5 A/cm<sup>2</sup> und niedriger (siehe Anhang Seite 161) lässt sich kaum ein Einfluss des Anpressdrucks ausmachen. Nachdem die Zelle mit dem höchsten Druck beaufschlagt wurde, werden die Polarisationskurven noch einmal auf allen Druckstufen aufgenommen („Rückweg“). Dies dient dem Zweck, evtl. irreversible Strukturschäden in der GDL, die sich auf die Leistung auswirken, sichtbar zu machen. Der Leistungseinbruch der Zelle ist im Falle der SGL-GDL nicht reversibel. Die Zelleleistungen auf dem Rückweg (Druckverringering) liegen deutlich unterhalb denen des Hinwegs, was darauf schließen lässt, dass die Zelle durch den Anpressdruck mechanische Schäden erlitten hat. Auch hier kann kein Einfluss bei geringeren Stromdichten erfasst werden.



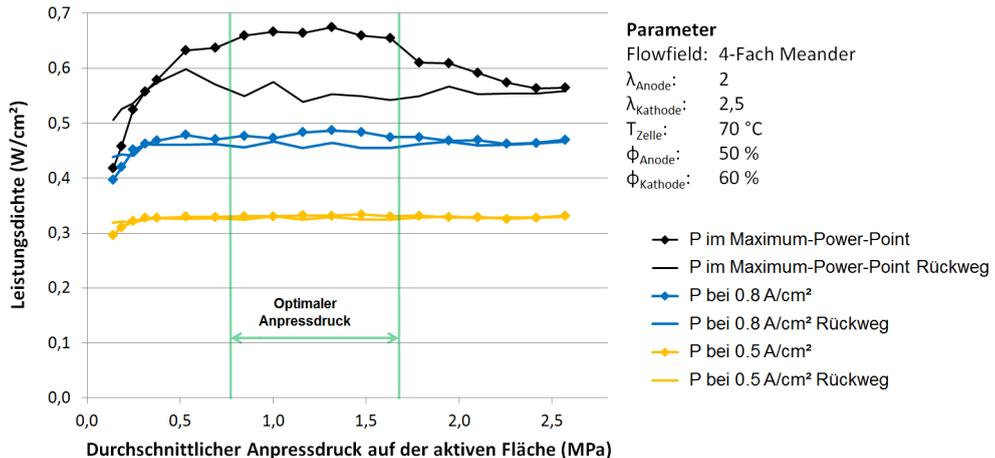
**Abbildung 43:** Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit SGL 29BC GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84])

Das SGL-Material zeigt sich mit seinem sehr schmalen Optimum hinsichtlich der Leistung sehr sensibel gegenüber zu niedrigen und zu hohen Anpressdrücken. Es muss also bei diesem Material sehr genau auf den Anpressdruck bei der Assemblierung der Zelle geachtet werden, um die beste Performance zu erreichen. Dieses scharfe Optimum für den Anpressdruck lässt sich durch die besondere Struktur der SGL-GDL und deren MPL erklären. Durch kontinuierliche Verringerung der Dicke/Porosität wird die MPL in die Poren der Faserstruktur gedrückt und blockiert diese [25]. Zusammen mit den Beobachtungen der irreversiblen Erhöhung der Massentransportwiderstände erklärt dies auch den bleibenden Leistungsverlust auf dem Rückweg. Im Detail werden die Zusammenhänge noch einmal in der Diskussion in Kapitel 5 aufbereitet.

#### 4.3.2 GDL-Papier ohne MPL: Toray TGP-H 060

Ähnlich dem SGL-Material verhält sich die Zelle mit Toray TGP-H 060 GDL. Auch sie bildet ein deutliches Optimum für die maximal abrufbare Leistung der Zelle aus in Abhängigkeit vom Anpressdruck (siehe **Abbildung 44**). Dieses ist jedoch deutlich breiter als das der SGL-Zelle und erstreckt sich von 0,7 bis 1,7 MPa. Oberhalb von 1,7 MPa bricht die Leistung der Zelle relativ schnell stark ein und verliert innerhalb von 1 bis 2 Druckstufen (etwa 0,2 MPa) mehr als 9 % der Maximalleistung. Danach verliert die Zelle noch weitere 3 % bis

zum Ende des Druckbereichs. Das Optimum selber kann für  $0,8 \text{ A/cm}^2$  und weniger nicht ausgemacht werden, jedoch führen zu niedrige Anpressdrücke unterhalb von  $0,5 \text{ MPa}$  ebenfalls zu Leistungseinbußen. Die mechanischen Schädigungen der GDL machen sich beim Rückweg, ähnlich den SGL-Messungen, nur bei Maximalleistung bemerkbar. Die Leistung der Zelle bleibt deutlich unterhalb der zuvor auf dem Hinweg erzielten Leistung zurück und liegt im Bereich des vorherigen optimalen Anpressdrucks  $15 \%$  darunter.



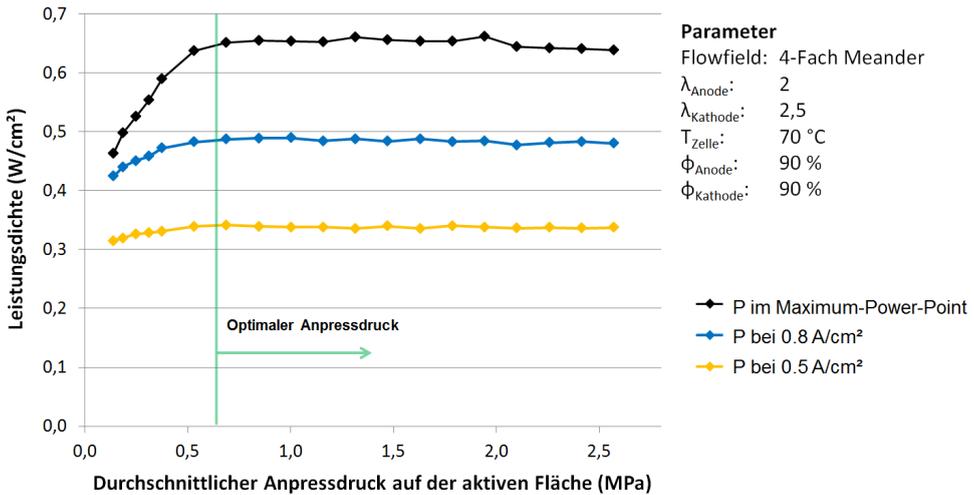
**Abbildung 44:** Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit Toray TGP-H 060 GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84])

Das Toray-Material zeigt sich demnach deutlich robuster als das SGL-Material, verzeiht aber keine Drücke über  $1,7 \text{ MPa}$  und reagiert darauf mit bleibenden Leistungseinbußen. Die Drücke ab denen die Leistungseinbußen auftreten decken sich mit den Drücken, bei denen Faserbrüche beobachtet werden können. Diese führen ebenfalls zu erhöhten irreversiblen Massentransportwiderständen. Das heißt, dass nicht wie beim SGL-Material die Poren durch die MPL verschlossen werden, sondern die Bruchstücke der Fasern und des Binders die Porosität herabsetzen und zu Leistungseinbrüchen führen. Auch an dieser Stelle wird wieder für eine detaillierte Analyse auf das Diskussionskapitel verwiesen.

#### 4.3.3 GDL-Vlies mit MPL: Freudenberg H2315 C

Das Freudenberg H2315 C2 GDL-Material zeigt sich in den Versuchen am Robustesten (siehe **Abbildung 45**). Lediglich unterhalb von  $0,6 \text{ MPa}$  erzielt die Zelle eine geringere Leistung. Die gleichbleibend höchste Leistung erreicht die Zelle oberhalb von  $0,6 \text{ MPa}$  und behält diese mit nur geringen Abweichungen von  $2$  bis  $3 \%$  bis zum Ende des Druckbereichs

von 2,6 MPa bei. Bei den nach jeder Druckerhöhung durchgeführten Referenzmessungen bei 0,7 MPa (als Alternative zu den Rückwegmessungen bei den zuvor beschriebenen Messungen) können dabei keine Leistungseinbußen verzeichnet werden, so dass davon ausgegangen werden kann, dass die Struktur des Freudenberg-Materials keinen Schaden durch die hier vorliegenden Maximaldrücke erleidet. Die Daten der Referenzmessungen sind im Anhang auf Seite 165 in Abbildung A27 dargestellt.



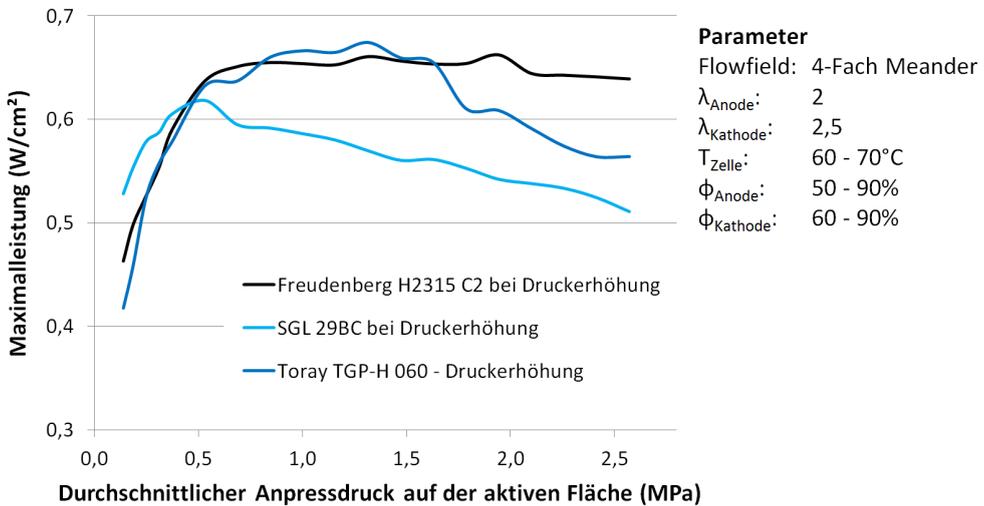
**Abbildung 45:** Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit Freudenberg H2315 C2 GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84])

Die Faserstruktur des Freudenberg GDL-Vlieses bleibt bei den hier verwendeten Drücken unversehrt, was die REM- und CT-Bildaufnahmen beweisen. Ein bleibend erhöhter Massentransportwiderstand kann im Gegensatz zu den anderen beiden GDL-Materialien nicht festgestellt werden, so dass davon auszugehen ist, dass die Unversehrtheit der Faserstruktur dazu führt, dass das Freudenberg H2315 C2 GDL-Vlies keine Leistungseinbußen bei diesen Anpressdrücken zeigt.

#### 4.3.4 Vergleich der GDL-Materialien

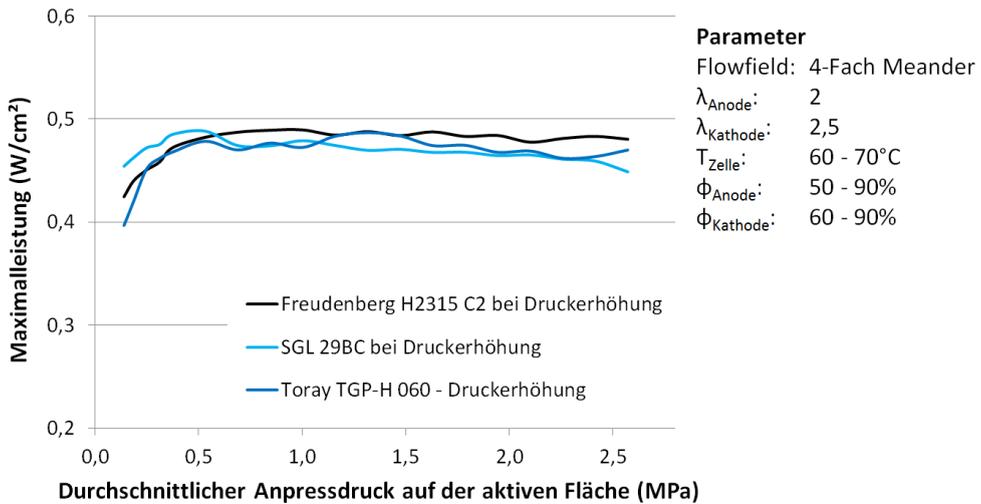
Werden die Graphen zur maximalen Leistung über dem Anpressdruck der drei Zellen mit den verschiedenen GDL-Materialien übereinander gelegt (**Abbildung 46**), wird deutlich, dass das Freudenberg H2315 C2 mit dem robustesten Verhalten keinen Leistungsnachteil gegenüber

den beiden anderen Materialien zeigt. Die Zelle mit der Toray-GDL erzeugt nur knapp 1,5 % mehr Leistung im Peak, was durchaus aufgrund der leicht anderen Betriebsparameter der Zelle der Fall sein kann. Die SGL-GDL mit dem schmalsten Optimum für den Anpressdruck bleibt mit ihrer Leistung deutlich (9 %) hinter den beiden anderen GDL-Materialien zurück. Es bleibt jedoch offen, ob sich die quantitativen Leistungsunterschiede aufgrund der verwendeten Betriebsparameter-Konfiguration ergeben. Eine jeweilige Optimierung der Betriebsparameter konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht geleistet werden, so dass, wie im Methodenkapitel bereits erwähnt, jeweils die Betriebsparameter so gewählt wurden, dass ein stabiler Betrieb der Zelle gewährleistet werden konnte, ohne Augenmerk auf die maximal erreichbare Leistung.



**Abbildung 46:** Vergleich der maximalen Leistungen der GDL-Materialien unter Anpressdruckvariation

Bei moderateren Stromdichten von 0,8 A/cm<sup>2</sup> fallen die Unterschiede nicht mehr so deutlich aus. Die GDL-Materialien erzielen maximale Leistungen von etwa 0,47 W/cm. Die Tendenzen, dass sowohl die Leistung der Toray- als auch die der SGL-GDL bei höheren Anpressdrücken abfallen, bleiben erhalten.



**Abbildung 47:** Vergleich der Leistungen der GDL Materialien bei  $0,8 \text{ A/cm}^2$  unter Anpressdruckvariation

Je nach Ausgangslage lässt sich allein durch die Anpassung des Anpressdrucks ein sehr deutlicher Leistungszuwachs erreichen. Maximal lässt sich so die Leistung verdoppeln. Wird nicht die schlechteste Ausgangsbasis (Anpressdruck  $0,2 \text{ MPa}$ ) gewählt, können immer noch mehrere Prozent Leistung durch Optimierung des Anpressdrucks erreicht werden. Am robustesten zeigt sich die Freudenberg-GDL H2315 C2. Die SGL-GDL 29BC reagiert am sensibelsten auf Anpressdruckveränderungen. Und die Toray-GDL TGP-H 060 verträgt nur die höheren Drücke über  $1,7 \text{ MPa}$  nicht. Diese Unterschiede im Verhalten können durch die unterschiedlichen Strukturen der GDL-Materialien und deren mechanischen Verhalten erklärt werden. Deren verschiedene Einflüsse werden im Diskussionskapitel genauer verglichen.

Bis jetzt wurde nur vom durchschnittlichen Anpressdruck auf der aktiven Fläche gesprochen. Da aber aufgrund der Flowfield-Struktur deutlich kleinere Bereiche den Druck tragen, ergeben sich unter den Stegen erheblich höhere Drücke als der durchschnittliche Anpressdruck. Um die Ergebnisse aus den Untersuchungen zu den mechanischen Schädigungen der GDL-Struktur zur Interpretation der Leistungsverläufe heranziehen zu können, werden also im nächsten Kapitel die lokalen Drücke unter Kanal und Steg untersucht.

#### 4.4 Lokale Druckverteilung unter Kanal und Steg

Die lokalen Druckverteilungen unter Kanal und Steg hängen entscheidend von der verwendeten Flowfield-Struktur ab. Die meist angegebenen durchschnittlichen Anpressdrücke

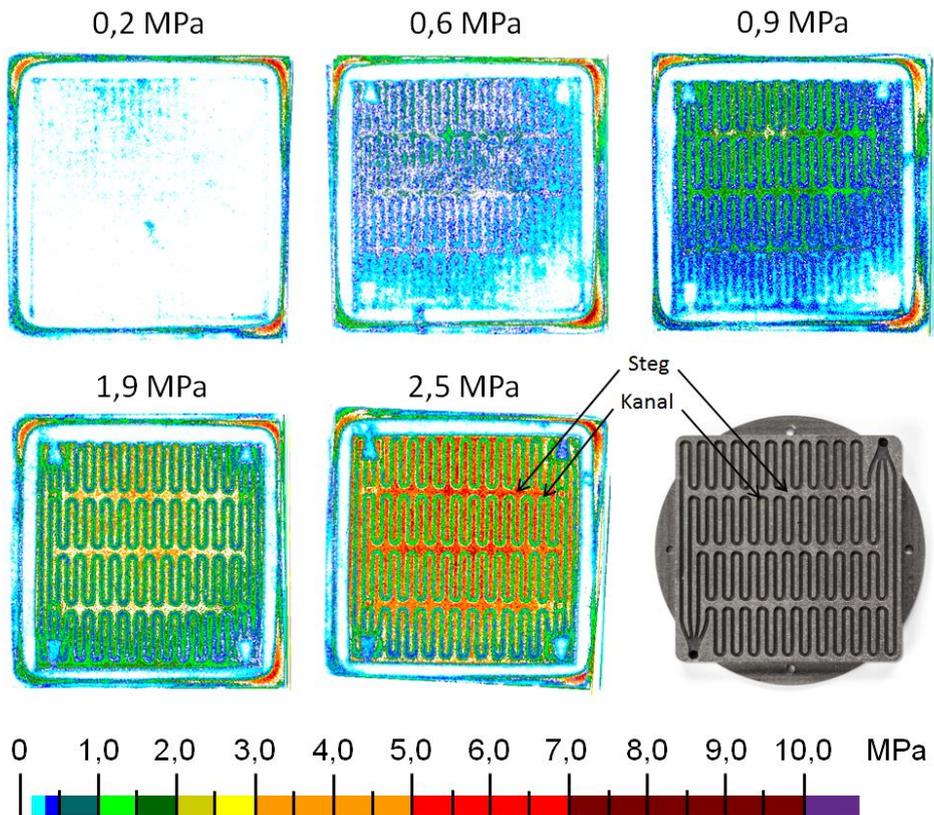
auf die aktive Fläche lassen daher kaum Schlüsse auf die tatsächlich herrschenden lokalen Drücke auf der GDL zu. Um die Ergebnisse aus dem vorherigen Kapitel zur Leistung in Abhängigkeit des Anpressdrucks detailliert verstehen und auf andere Zelldesigns übertragen zu können, werden in nächsten Kapitel die lokalen Druckverteilungen während der Versuche in diesem Kapitel erfasst. Darüber hinaus wird untersucht, wie sich andere Flowfield-Typen auf die Druckverteilung auswirken und welche Rolle die Stegeometrie dabei spielt.

#### 4.4.1 Druckverteilungen graphitischer Flowfields in der verwendeten Anpressdruck-Testzelle

Die Druckverteilungen auf fünf ausgewählten Druckstufen während der Leistungsmessung aus den vorherigen Kapiteln sind in **Abbildung 48** dargestellt. In der Abbildung sind exemplarisch die Druckverteilungen mit Freudenberg GDL zu sehen. Die Druckverteilungen der beiden anderen Materialien zeigen keine signifikanten Unterschiede und sind im Anhang auf S. 167 zu finden. Die Genauigkeit der hier verwendeten graphischen Auswertung ist mit einem durchschnittlichen Fehler von etwa 10 bis 20 % behaftet, wenn man den aufgeprägten durchschnittlichen Anpressdruck mit der aus der graphischen Auswertung resultierenden Durchschnittsdruck vergleicht. Bei niedrigeren Drücken sind die Abweichungen etwas größer (siehe dazu Tabelle A1 im Anhang auf Seite 169).

Das SGL-Material zeigte seine optimale Leistung bei einem durchschnittlichen Anpressdruck von 0,5 MPa. Wird die Druckverteilung bei 0,6 MPa aus der **Abbildung 48** zum Vergleich herangezogen, kann festgestellt werden, dass der Druck, den die GDL vorrangig erfährt, im Bereich von 0,5 bis 1,5 MPa liegt. Unter dem Kanal herrscht vornehmlich ein Druck von unter 0,5 MPa. Für die Toray-GDL ergab sich zuvor ein optimales Arbeitsfenster von 0,7 bis 1,6 MPa durchschnittlichem Anpressdruck auf der aktiven Fläche. Dies entspricht einem Druckbereich unter dem Steg von 0,5 bis etwa 4 MPa. Unter dem Kanal beträgt dabei der Anpressdruck um die 0,5 bis 1 MPa. Da die Druckmessfolien zwischen Flowfield und GDL positioniert sind, sind die gemessenen Drücke „unter dem Kanal“ nicht die tatsächlichen Drücke unter dem Kanal zwischen GDL und CCM, sondern ergeben sich dadurch, dass die GDL gegen die Druckmessfolie in den Kanal hinein drückt. Der tatsächliche Druckwert unter dem Kanal zwischen GDL und CCM kann daher von den gemessenen Werten leicht abweichen. Das GDL-Material von Freudenberg funktionierte bei einem durchschnittlichen Anpressdruck von 0,6 bis 2,7 MPa am besten, was einem Druck unter dem Steg von 0,5 bis

etwa 7 MPa entspricht. Hier erreicht der Anpressdruck unter dem Kanal sogar 1,5 MPa. Auffällig ist, dass der Druck unter dem Steg durchaus unterhalb des durchschnittlichen Anpressdrucks liegen kann. Das bedeutet, dass die Druckverteilung nicht exakt homogen ist und die GDL ein breiteres Spektrum an Anpressdrücken erfährt, als zunächst vermutet wird. Im Durchschnitt liegt der Druck unter dem Steg jedoch oberhalb des durchschnittlichen Anpressdrucks der aktiven Fläche, während der durchschnittliche Anpressdruck unter dem Kanal niedriger liegt.



**Abbildung 48:** Druckverteilungen in der quickCONNECTfixture der Firma Baltic Fuel Cells GmbH zur anpressdruckabhängigen Leistungsmessung (adaptiert nach [84])

Sollen die in **Tabelle 5** zusammengefassten optimalen Anpressdruckfenster auf andere Flowfield- oder Zelldesigns übertragen werden, sollten nicht die durchschnittlichen Anpressdrücke als Richtwert herangezogen werden, sondern die tatsächlich wirkenden Drücke unter Kanal und Steg. Nur so ist gewährleistet, dass die GDL-Materialien keine zu hohen Drücke und damit mechanische Schädigungen erleiden.

**Tabelle 5:** Optimale Anpressdruckbereiche der verschiedenen GDL-Materialien - ermittelt mit graphitischen Flowfields mit 1 mm Kanaltiefe und -breite sowie 1 mm Stegbreite mit einem Kanal-Steg-Verhältnis von 0,8

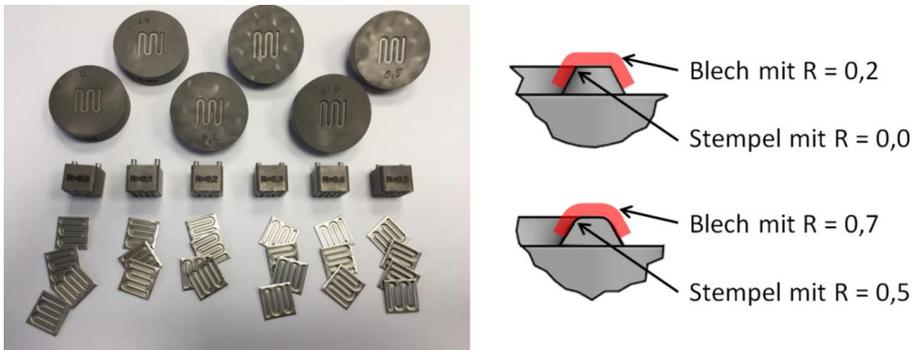
GDL Typ	Ø Anpressdruck auf aktiver Fläche (MPa)	Druckbereich unter Steg (MPa)	Druckbereich unter Kanal (MPa)
SGL 29BC	0,5	0,5 - 1,5	0,3 - 0,5
Toray TGP-H 060	0,7 - 1,6	0,5 - 4,0	0,5 - 1,0
Freudenberg H2315 C2	0,6 - 2,7	0,5 - 7,0	0,3 - 1,5

Mithilfe der in **Tabelle 5** zusammengefassten tatsächlichen Anpressdrücke unter den Stegen können die optimalen Arbeitsfenster für den Anpressdruck auf andere graphitische Flowfield-Designs mit abweichendem Kanal/Steg-Design übertragen werden, sofern diese dem hier verwendeten Design ähnlich sind. Dazu sollten die Drücke unter dem Steg denen aus der Tabelle entsprechen. Da aber nicht nur die Kanal- und Stegbreiten variieren können, sondern gerade bei tiefgezogenen metallischen Flowfields ganz andere Kanal- und Steggeometrien zum Einsatz kommen, wird im nächsten Kapitel genauer auf die Druckverteilung unter metallischen Flowfields eingegangen.

#### 4.4.2 Druckverteilungen metallischer Flowfields mit Variation der Steggeometrie

Die zwei geometrischen Hauptunterschiede zwischen gefrästen graphitischen Flowfields und tiefgezogenen metallischen Flowfields ist die Kanal- und Stegbreite sowie die Steggeometrie. Durch den Tiefziehprozess können nicht ohne weiteres so tiefe und gleichzeitig schmale Kanäle geschaffen werden, wie das beim Fräsen der Fall ist. So ergeben sich im Falle des RoBiPo-Designs von Janßen et al. [88] etwa 0,7 mm tiefe und an der breitesten Stelle 1,5 mm breite Kanäle, während die Stege nur knapp 1 mm Breite im Kontaktbereich zur GDL besitzen. Die gewünschten 1 mm Tiefe und 1 mm Breite sind in dem gewählten Herstellungsverfahren nicht ohne weiteres zu erreichen. Die Stegkanten können dabei auch nicht scharfkantig ausgeführt werden, so dass sich hier Radien von etwa 0,3 mm für die Stegkanten ergeben. Da genau diese Stegkanten einen entscheidenden Einfluss auf die tragende Stegfläche und die Druckverteilung darunter haben, werden diese für die Versuche in verschiedenen Radien ausgeführt. Dazu werden die 0,2 mm dicken Edelstahlbleche durch verschiedene Tiefziehstempel mit 0 bis 0,5 mm Kantenradius hergestellt. So ergeben sich

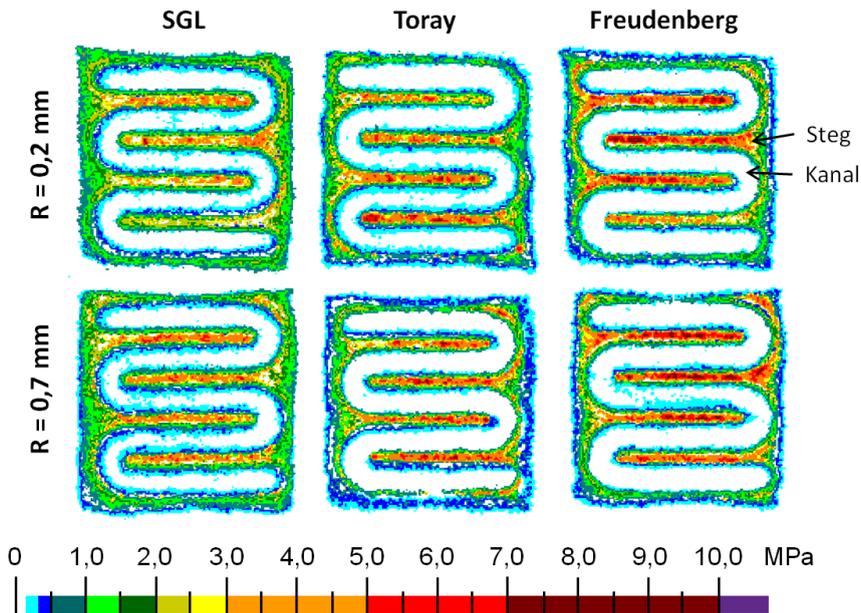
durch die Dicke des Blechs Flowfields mit 0,2 bis 0,7 mm Stegkantenradius (siehe **Abbildung 49**).



**Abbildung 49:** Tiefziehwerkzeuge mit Kantenradien von 0 bis 0,5 mm und die sich daraus ergebenden Stegkantenradien 0,2 bis 0,7 mm der tiefgezogenen Flowfields

Zunächst werden die Druckverteilungen mit einem durchschnittlichen Anpressdruck von 1,6 MPa bei verschiedenen Stegkantenradien und verschiedenen GDL-Materialien erfasst. Dabei wird das Flowfield mit der Kraft beaufschlagt, welche durch eine GDL auf die darunterliegenden Fujifilm Prescale Druckmessfolien geleitet wird. In **Abbildung 50** ist zu erkennen, dass Druckspitzen (rötliche Einfärbungen, 5 bis 7 MPa) bei der SGL-GDL kaum auftreten, die Kraft also gut unterhalb der Stege verteilt wird. Bei der Toray-GDL sind größere Bereiche rötlich eingefärbt und die Freudenberg-GDL scheint die Kraft am wenigstens zu verteilen. Die Druckspitzen reichen hier bis in die dunkelrote Region von 7 bis 10 MPa, während bei der SGL-GDL lediglich Druckspitzen von 5 bis 7 MPa auftreten.

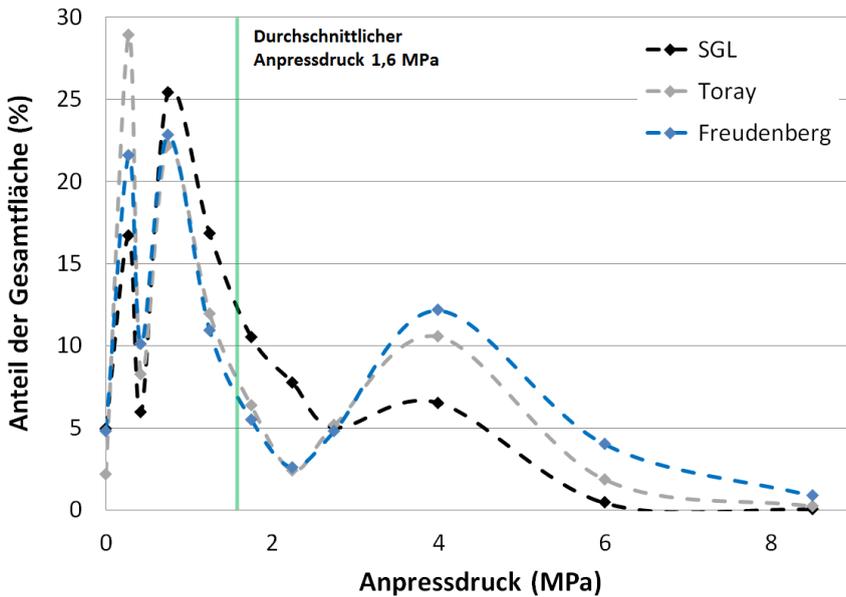
Werden die Druckverteilungen der metallischen Flowfields mit denen der graphitischen Flowfields aus **Abbildung 48** verglichen, fällt auf, dass die Stege der metallischen Flowfields keine scharfe Kontur im Druckbild hinterlassen, sondern in der Mitte des Steges Druckspitzen zeigen (z.B. 6 MPa), die zur Stegkante hin langsam gegen sehr niedrige Drücke auslaufen (0,3 MPa). Auch wird das GDL-Material unterhalb der Kanäle deutlich weniger mit Druck belastet. Bei dieser Geometrie wird die GDL sogar mit weniger als 0,2 MPa beaufschlagt und ist möglicherweise unterhalb des Kanals gar nicht elektrisch kontaktiert. Zum Vergleich: Der Bereich der GDL unterhalb des Kanals bei dem gefrästen graphitischen Flowfield aus dem vorherigen Kapitel wird mit etwa 1 MPa angedrückt.



**Abbildung 50:** Lokale Druckverteilungen unter metallischen Flowfields mit verschiedenen Stegkantenradien und verschiedenen GDL-Materialien

Die grafische Auswertung in **Abbildung 51** bestätigt den qualitativen Eindruck der Bilder bezüglich der unterschiedlichen Verhalten der GDL-Materialien und zeigt, dass gerade die Flächen mit Drücken um die 4 MPa bei der SGL-GDL deutlich kleiner ausfallen, als bei der Toray- und Freudenberg-GDL. Konsistent ist auch, dass die SGL-GDL dafür größere Flächen mit geringerem Druck um die 1 MPa vorweist.

Erläuterung: Der orange Messbereich der Druckmessfolien zum Beispiel erstreckt sich von 3 bis 5 MPa, also im Mittel 4 MPa. In der **Abbildung 51** ist nun für den Messpunkt bei 4 MPa die anteilige Fläche in Prozent angetragen, die den orangenen Druckbereich (3 bis 5 MPa) besitzt. Ebenso werden die anderen Druckbereiche in der Abbildung angetragen, so dass deutlich wird, wie die Verteilung der Drücke über der Fläche aussieht.

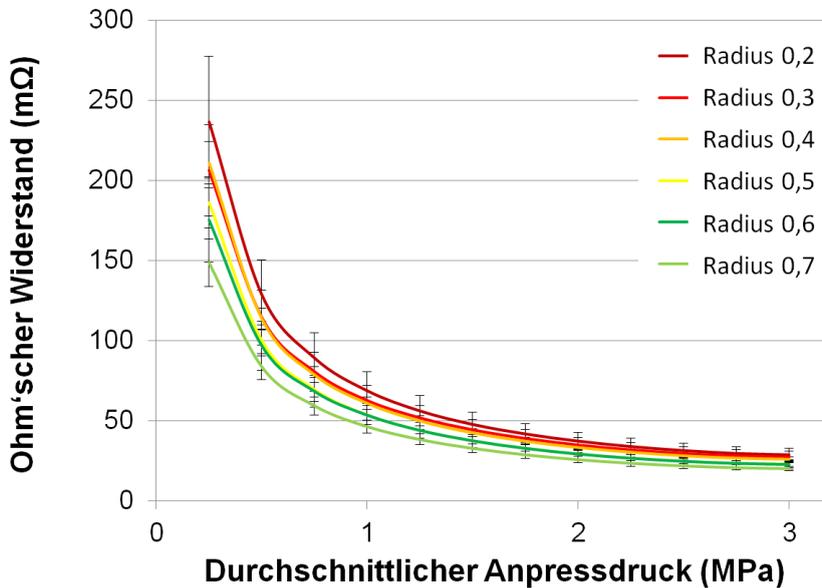


**Abbildung 51:** Anteilige Flächen der Druckverteilung bei einem Stegkantenradius von 0,2 mm und verschiedenen GDL-Materialien

Einen erkennbaren Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung scheint es zunächst nicht zu geben. Dies zeigen auch die grafischen Auswertungen im Anhang auf Seite 168. Wird jedoch der Ohm'sche Widerstand in Abhängigkeit des Stegkantenradius gemessen, zeigt sich sehr wohl ein Einfluss. Dazu wurden die Proben mit den verschiedenen Stegkantenradien zwischen zwei Freudenberg GDL-Proben gelegt und der Gesamtwiderstand des Sandwiches in Abhängigkeit des Anpressdrucks gemessen. In **Abbildung 52** ist der Trend zu sehen, dass ein kleinerer Stegkantenradius zu einem erhöhten Kontaktwiderstand führt. Der größte Radius von 0,7 mm führt dabei zu einem etwa 20 % geringeren Gesamtwiderstand im Vergleich zu den Proben mit dem kleinsten Radius von 0,2 mm.

Durch die größeren Radien verkleinert sich die effektiv tragende Fläche des Flowfields wodurch der Druck unter dem Steg zwangsläufig ansteigen muss. Da die Unterschiede der Radien aber nur einige Zehntelmillimeter betragen, können die Druckmessfolien mit ihrer Auflösung von 0,125 bis 0,25 mm die Differenzen in der Druckverteilung kaum sichtbar machen. So kann also nur vermutet werden, dass die kleinere tragende Fläche zu einem höheren Druck unter dem Steg führt, welcher wiederum zu einem geringeren Kontaktwiderstand und damit auch zu einem geringeren Gesamtwiderstand führen muss. Der

Effekt, dass bei größerem Stegkantenradius die tragende Fläche kleiner wird, und dadurch der Kontaktwiderstand steigen müsste, scheint hier weniger ins Gewicht zu fallen.



**Abbildung 52:** Ohm'scher Widerstand in Abhängigkeit des Stegkantenradiuses

Sollen also die Ergebnisse zum optimalen Anpressdruck aus dem vorherigen Kapitel mit gefrästen graphitischen Flowfields auf metallische Flowfields übertragen werden, sollte die deutlich unterschiedliche Druckverteilung bei der Auslegung des Anpressdrucks berücksichtigt werden. Zum einen entstehen bei metallischen Flowfields Druckspitzen unterhalb der Stege, welche das GDL-Material frühzeitig schädigen können, zum anderen ist je nach Kanal- und Steggeometrie die mit Druck beaufschlagte Fläche deutlich geringer, da zum Beispiel die GDL unterhalb der Kanäle mechanisch und damit auch elektrisch nicht kontaktiert ist.

Um zu klären, ob es bei der Hochskalierung der bislang betrachteten Proben und Testzellen auf Stack-Maßstab zu weiteren oder anderen mechanischen Verhalten kommt und die Ergebnisse aus kleinem Maßstab übertragen werden können, werden im folgenden Kapitel die mechanischen Verhältnisse in verschiedenen Short-Stacks erfasst und analysiert.

## 4.5 Globale Druckverteilung auf der aktiven Fläche

Da sich bei einem Stack die mechanischen Verhältnisse durch andere Verschraubungen, deutlich biegsamere Endplatten und das Vorhandensein einer Vielzahl an Schichtkomponenten erheblich von denen einer massiven Einzeltestzelle unterscheiden, werden in diesem Kapitel die Druckverhältnisse in zwei typischen Stackaufbauten untersucht. Zum einen wird ein Stack mit tiefgezogenen metallischen Flowfields und zum anderen wird einer mit gefrästen graphitischen Flowfields für die Versuche herangezogen.

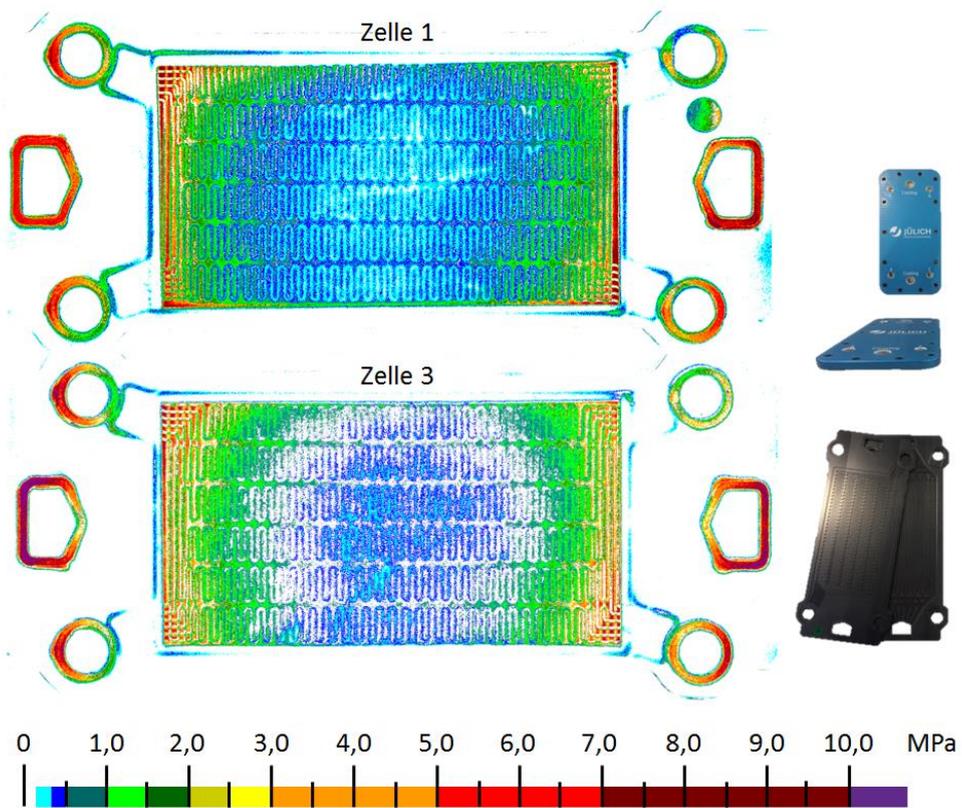
### 4.5.1 Druckverteilungen im graphitischen Stackaufbau

Aufgebaut wird ein 5-Zellen-Stack mit graphitischen Flowfields mit 6 parallel zueinander laufenden Mäandern. Dazu werden in jeder der 5 Zellen Fujifilm Prescale Druckmessfolien zwischen CCM und Freudenberg-GDL H2315 C2 eingelegt. Um den gesamten Druckbereich abzudecken werden drei Folienpaare (LW, LLW und LLLW aus Kapitel 473.4.1 S. 47) übereinander eingelegt. Der Stack wird mit 14 M6-Schraubverbindungen mit je 6 Nm angezogen.

Die vorhandenen GFK-Rahmen aus dem Stackaufbau, wie in Kapitel 3.4.3 beschrieben, führen dazu, dass die aktive Fläche mit nur etwa 0,1 MPa mechanisch kaum kontaktiert wird, da die Dicke der GDL zu gering ist bzw. die Dicke der GFK-Rahmen geringer sein müsste, um eine gute mechanische Kontaktierung zu gewährleisten. Daher werden im Folgenden die GFK-Rahmen für den graphitischen Stackaufbau nicht verwendet. Die Druckbilder mit dem zu geringen Anpressdruck aus dem Aufbau mit GFK-Rahmen befinden sich im Anhang auf Seite 171.

In **Abbildung 53** sind exemplarisch die erste und dritte Zelle dargestellt. Die Druckverteilungen dieser beiden Zellen unterscheiden sich kaum voneinander, ebenso wie die Druckverteilungen der restlichen Zellen (siehe Anhang auf Seite 172). Es ist deutlich zu sehen, dass die aktive Fläche sehr inhomogen mit Druck beaufschlagt wird. In der Mitte werden lediglich Drücke von 0,2 bis 0,5 MPa erreicht, während die Drücke über einen kleineren Bereich mit 1,5 MPa (grün) zum Rand der aktiven Fläche auf 5 bis 7 MPa steigen. Dies ergibt einen durchschnittlichen Anpressdruck von etwa 1 MPa auf der aktiven Fläche. Der optimale Druckbereich aus den Kapiteln zuvor liegt beispielsweise für die Freudenberg-GDL im Bereich von über 0,6 MPa. Damit ist der durchschnittliche

Anpressdruck im optimalen Arbeitsfenster. Die optimalen Drücke unter dem Steg haben sich jedoch zu 1 bis 3 MPa ergeben, was hier nur auf den grünen bis gelben Bereich zutrifft. Ein Großteil der Fläche wird also nicht genügend stark mechanisch kontaktiert, um die optimale Leistung der Zellen zu sichern, während im Außenbereich die GDL sehr stark komprimiert wird. Diese inhomogene Druckverteilung führt zwar zu einem durchschnittlichen Anpressdruck, der in seinem optimalen Arbeitsfenster liegt, tatsächlich wird aber ein Großteil der Fläche viel zu schwach angepresst, während andere Bereich einen deutlich zu hohen Anpressdruck erleiden. Dies wird wahrscheinlich zu einer nicht optimalen Leistungsfähigkeit des Stacks führen. Auch die Dichtungsbereiche sind nicht homogen mit Druck beaufschlagt. Der Anpressdruck der ringförmigen Dichtungen am Rand der Zelle erstreckt sich von 1 bis 7 MPa, während die rechteckige Dichtung um die aktive Fläche herum nur wenig Anpressdruck erfährt, in einigen Bereichen sogar gar keinen Anpressdruck, so dass die Dichtung ihrer Aufgabe nicht nachkommen kann. Durch eine Anpassung der GFK-Rahmenhöhe auf die GDL-Dicke könnte eine Erhöhung des Anpressdrucks auf den Dichtungen insgesamt erzielt werden, dies führt aber zwangsläufig dazu, dass die aktive Fläche noch weniger Anpressdruck erfahren würde, während die Randbereiche der Dichtung noch sehr viel stärker belastet werden würden. Daher müsste hier geprüft werden, ob die Dichtigkeit der Zelle auch ohne Rahmen zusammen mit einer dickeren Dichtung gewährleistet werden kann. Andernfalls müsste der Rahmenbereich in der Bipolarplatte ausgespart werden, so dass die aktive Fläche im Flowfield erhaben ist, und so der nötige Anpressdruck auf die GDL aufgebracht werden kann.



**Abbildung 53:** Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5 Zellen Stackaufbaus mit nicht verstrebtten Endplatten – oben: Zelle 1 nahe der Endplatte, unten: Zelle 3 mittig im Stack - hier ohne GFK-Rahmen um die GDL

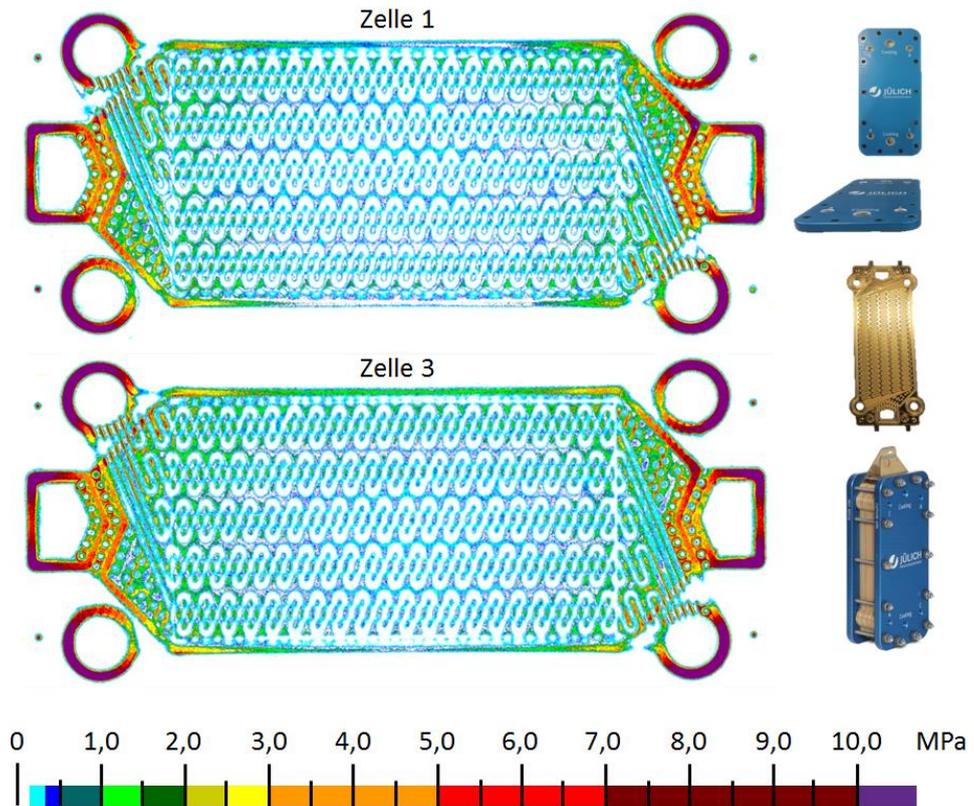
Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Zellen sehr inhomogen mit Druck beaufschlagt werden. Zusätzlich ist der Anpressdruck auf der aktiven Fläche in weiten Teilen zu gering. Eine Anpassung der GFK-Rahmen-Konzepts könnte zwar eine Anhebung des Druckniveaus bewirken, jedoch führt die Inhomogenität weiterhin zu Bereichen auf der aktiven Fläche, die nicht den optimalen Anpressdruck erfahren. In den Leistungsmessungen aus Kapitel 4.3 erzielten die Testzellen mit solch ähnlichen Anpressdruckbereichen nicht die optimale Leistung. Darüber hinaus muss auch die Dichtungshöhe angepasst werden, um die Dichtungsfunktion zu gewährleisten. Soll der Stack also mit einer optimalen Leistung sicher/dicht betrieben werden, sind diese konstruktiven Änderungen zwingend erforderlich.

Zum Vergleich wird im folgenden Kapitel der Stackaufbau mit metallischen Flowfields hinsichtlich seiner Druckverteilungen untersucht.

#### 4.5.2 Druckverteilungen im metallischen Stackaufbau

Aufgebaut wird der 5-Zellen-Stack mit metallischen Flowfields im RoBiPo Design genauso, wie der graphitische Stack zuvor, jedoch werden die GFK-Rahmen wieder verwendet.

Die in **Abbildung 54** dargestellten Druckverteilungen repräsentieren die erste und die mittlere Zelle des Stacks. Es ist zu erkennen, dass sich die Druckverteilungen nicht merklich unterscheiden. Die Druckverteilungen der anderen Zellen unterscheiden sich ebenfalls nicht von diesen beiden und sind im Anhang auf Seite 173 zu finden. Es ist deutlich zu erkennen, dass ein Großteil der aktiven Fläche der CCM keinen mechanischen Kontakt mit der GDL besitzt (weiße Flächen). Dies betrifft vornehmlich die Flächen unterhalb der Kanäle. Unter den Stegen bzw. an den Kreuzungspunkten der Stege von Anode und Kathode - die Flowfield-Kanäle wurden fertigungsbedingt schräg über Kreuz angeordnet - ergeben sich Drücke von etwa 0,2 bis 0,5 MPa, rechts und links am Rand der aktiven Fläche um die 1 MPa. Die graphische Auswertung der aktiven Fläche ergibt einen durchschnittlichen Anpressdruck von etwa 0,29 MPa. An den lila eingefärbten Dichtungsbereichen ( $> 10$  MPa) rechts und links am Rand der Zelle ist deutlich zu sehen, dass die Zelle dort am stärksten komprimiert wird. Entlang der Dichtung am Rand der aktiven Fläche fällt der Anpressdruck zu Mitte hin ab. Werden die kreisrunden Dichtungen in den Ecken der Zelle genauer betrachtet, fällt auf, dass diese nicht auf ihrem gesamten Umfang gleichmäßig angedrückt werden. In den ganz hellen Bereichen scheint sie sogar keinen Kontakt zu haben und kann die Aufgabe der Abdichtung nicht erfüllen. Ebenso ist fraglich, ob die Bereiche jenseits der 10 MPa (lila) das Dichtungsmaterial auf Dauer mechanisch schädigen würden.



**Abbildung 54:** Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrebten Endplatten – oben: Zelle 1 nahe der Endplatte, unten: Zelle 3 mittig im Stack

Diese inhomogene Druckverteilung mit geringen Drücken in der Mitte der Zelle (Farben hellblau und blau, 0,2 bis 0,5 MPa) und höheren Drücken am Rand der Zelle (Farbe graublau, hellgrün und grün, 0,5 bis 1,5 MPa) lässt darauf schließen, dass die gesamte Fläche aufgrund einer sich durchbiegenden Endplatte nicht homogen mit Druck beaufschlagt wird. Das Dichtungskonzept muss ebenfalls überarbeitet werden, um eine gleichmäßige Abdichtung des Stacks sicher zu gewährleisten. Generell liegt der Anpressdruck auf der aktiven Fläche deutlich unterhalb der optimalen Arbeitsfenster, welche in den Kapiteln zuvor erarbeitet wurden.

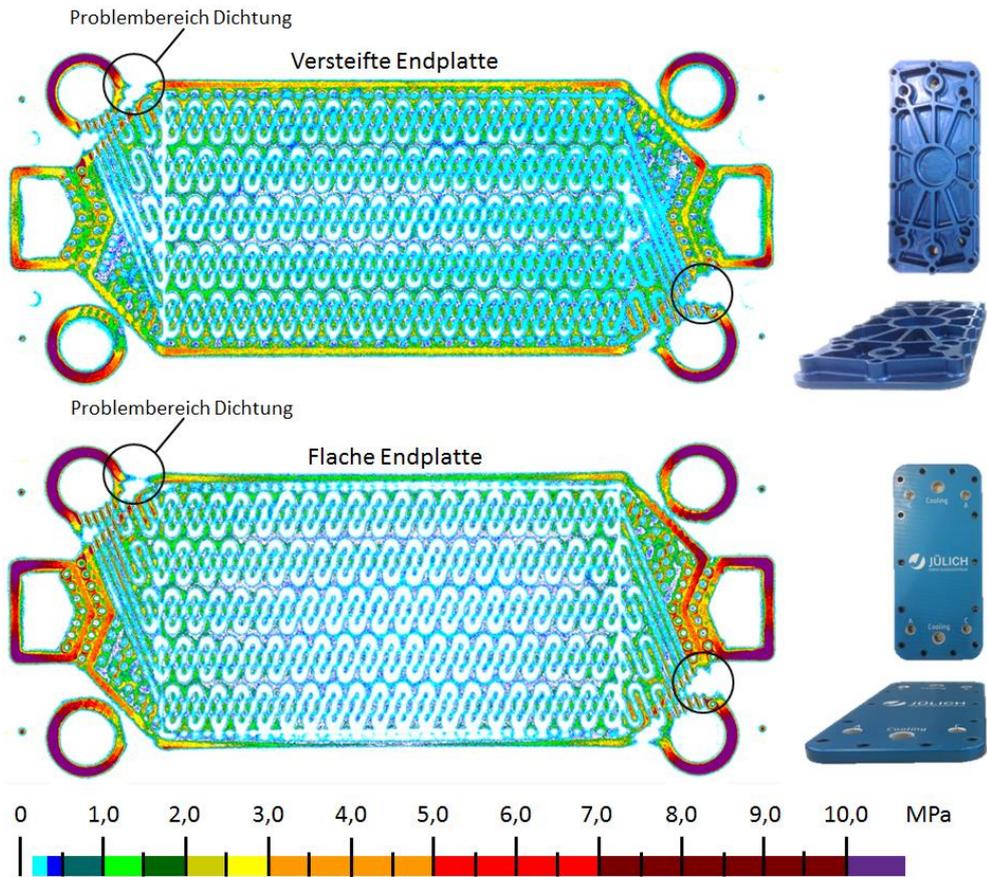
Da sowohl beim graphitischen als auch beim metallischen Stackaufbau die Homogenität der Druckverteilungen nicht ideal ist, wird der Einfluss einer steiferen Endplatte im folgenden Kapitel genauer beleuchtet.

#### 4.5.3 Einfluss der Endplatte auf Druckverteilung

Um eine möglichst homogene Kraftverteilung über die gesamte Stackfläche zu gewährleisten, darf sich die Endplatte, von der aus die Schraubenkraft auf der Stackfläche verteilt wird, nicht unter dieser Kraft verformen. Dazu werden als Ersatz für die flachen 10 mm Aluminium-Endplatten verstrebe Endplatten in Zusammenarbeit mit einem Studenten entworfen [117], die bei geringerem Gewicht ein deutlich steiferes Verhalten zeigen. Zusätzlich wurde das Verschraubungsmuster mit Schwerpunkt an den Enden weiter in die Mitte der Platte verschoben.

Um zu ermitteln, wie sich dieses steifere Verhalten der Endplatten auf die Druckverteilung auswirkt, werden noch einmal wie zuvor ein graphitischer und ein metallischer Stack aufgebaut und die Druckverteilungen mittels Fujifilm Prescale Druckmessfolien gemessen. Dabei werden die Schraubverbindungen wieder mit 6 Nm angezogen. Die Anzahl der Schrauben der beiden Endplatten-Designs ist gleich, so dass die gleich Kraft aufgebracht wie zuvor wird.

Beginnend mit dem metallischen Stackaufbau ist in **Abbildung 55** bei den Dichtungsverläufen zu sehen, dass die Druckverteilung mit den versteiften Endplatten erheblich homogener ist. Die Dichtung, die oben und unten an der aktiven Fläche vorbei läuft, ist nun auch in der Mitte mit etwa 3 MPa (gelb/orange) angedrückt, während die kreisrunden Dichtungen rechts und links weniger Druck erfahren und die Bereiche mit mehr als 10 MPa (lila) kleiner geworden sind. Auch die aktive Fläche ist nun homogener mit leicht höheren Drücken beaufschlagt. Durch graphische Auswertung werden diese qualitativen Ergebnisse auch quantitativ belegt. Der durchschnittliche Druck auf der aktiven Fläche beträgt mit der flachen Endplatte etwa 0,29 MPa während die versteifte Endplatte einen durchschnittlichen Druck von etwa 0,49 MPa erzielt. Die Probleme im Dichtungsbereich der kreisrunden Dichtung bleiben jedoch auch bei der versteiften Endplatte erhalten, so dass auch bei der Verwendung der versteiften Endplatten die Dichtungsgeometrie überarbeitet werden muss. Dies ist an den weißen Problembereichen oben links und unten rechts in **Abbildung 55** zu erkennen, wo eigentlich der Abdruck der Dichtung zu sehen sein müsste.

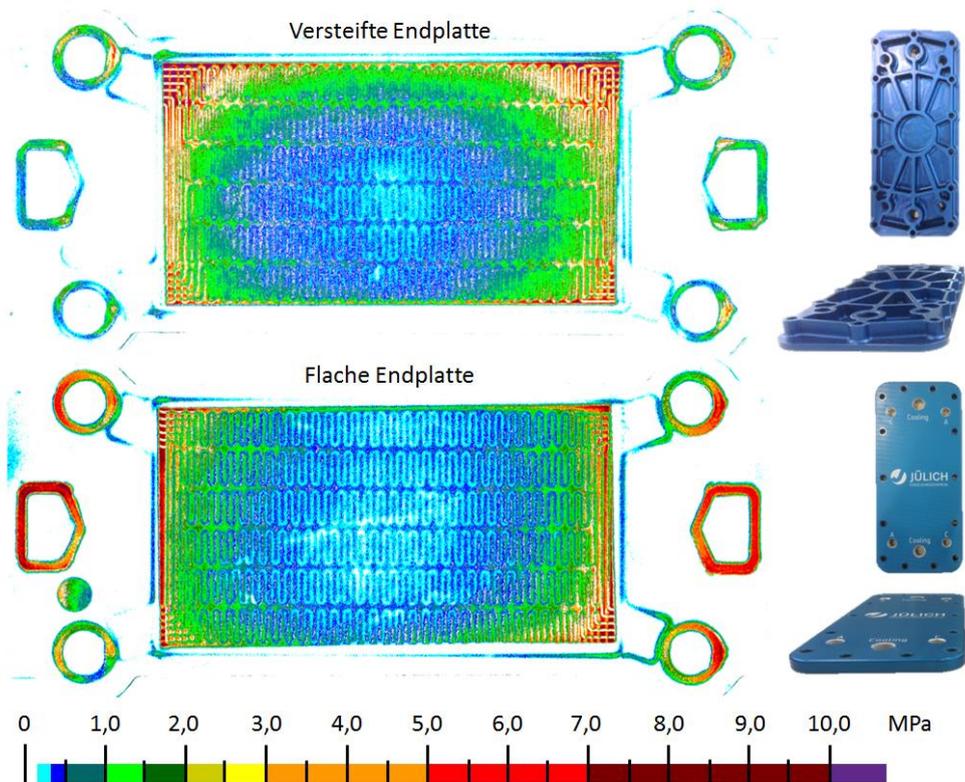


**Abbildung 55:** Vergleich der Druckverteilungen im metallischen Shortstack mit versteifter und nicht versteifter Endplatte

Festzuhalten bleibt, dass die versteifte Endplatte die Druckverteilung im metallischen Stack deutlich homogenisiert und zusätzlich das durchschnittliche Druckniveau auf der aktiven Fläche um knapp 70 % anhebt. Für die Optimierung des Anpressdrucks der Dichtungen reicht dies jedoch nicht aus. Hier muss das Dichtkonzept zusammen mit dem Rahmendesign überarbeitet werden.

Bei dem graphitischen Stackaufbau aus **Abbildung 56** ergibt sich ein anderes Bild. Hier bewirkt die Versteifung der Endplatte keine Homogenisierung der Druckverteilung auf der aktiven Fläche. Im Gegenteil, sie bewirkt zusätzliche, stark belastete Bereiche in den Ecken der aktiven Fläche (rot, um die 7 MPa), da durch das geänderte Verschraubungsmuster - mit mehr Schrauben zur Mitte hin - die Dichtungen weniger Last aufnehmen und die Kraft von

der aktiven Fläche getragen werden muss. Dass die Verteilung auf der aktiven Fläche aber nicht homogener wird liegt daran, dass der graphitische Stack aus massiven und damit steifen Platten aufgebaut ist, welche auch nicht die geringere Verbiegung der steiferen Endplatte ausgleichen können. Daher ergibt sich bei einem graphitischem Stack zwangsweise eine inhomogene Druckverteilung, solange die Endplatten nicht absolut eben unter Last bleiben. Eine Balligkeit der graphitischen Flowfield-Platten durch eine fehlerhafte Fertigung könnte eine solche Druckverteilung erzeugen. Dies kann jedoch durch die durchgeführten 3D-Vermessungen des FZJ-Instituts für Engineering und Technologie (ZEA-1) der graphitischen Flowfield-Platten ausgeschlossen werden (zu finden im Anhang auf Seite 176).



**Abbildung 56:** Vergleich der Druckverteilungen im graphitischen Shortstack mit versteifter und nicht versteifter Endplatte

Der metallische Stack verhält sich durch die metallischen Flowfield-Platten deutlich nachgiebiger, als es der graphitische Stack mit seinen massiven Flowfield-Platten tut.

Dadurch ist die Druckverteilung im metallischen Stack deutlich homogener und reagiert auf steifere Endplatten mit einer homogeneren Druckverteilung. Für einen graphitischen Stack reicht die einfache Versteifung der Endplatten nicht aus, um eine homogene Druckverteilung zu erzielen. Hier muss die Steifigkeit noch weiter erhöht oder durch andere Konstruktionen beeinflusst werden.

Mit dieser Erkenntnis schließt sich der Ergebnisteil, nachdem zunächst das grundlegende mechanische Verhalten von verschiedenen GDL-Materialien sowie deren Strukturen untersucht wurden, der Einfluss der Mechanik auf charakteristische Größen wie den Durchflusswiderstand und den elektrischen Widerstand geklärt wurde, um anschließend die Erkenntnisse auf die tatsächliche Leistungsfähigkeit einer Brennstoffzelle zu übertragen und die optimalen Anpressdruckfenster der verschiedenen GDL-Materialien zu ermitteln. Danach wurden diese optimalen Anpressdruckfenster im Detail analysiert und mithilfe der tatsächlichen Drücke unter Kanal und Steg Richtwerte aufgezeigt, welche sich auch auf andere Brennstoffzellen-Designs übertragen lassen, nicht ohne auf die Besonderheiten graphitischer und metallischer Flowfield-Designs bezüglich der Anpressdruckverteilungen einzugehen und in Stackversuchen zu zeigen, dass die ermittelten optimalen Anpressdruck-Fenster nicht immer ohne weiteres auf der gesamten aktiven Fläche erreicht werden können.

Zur Verknüpfung der Ergebnisse untereinander und deren Einbettung in die Literatur folgt nun das Diskussionskapitel dieser Arbeit.



## 5 Diskussion

Aus der Literaturrecherche geht hervor, dass die Mechanik ein häufig vernachlässigter Aspekt bei der Auslegung von Brennstoffzellen ist. Mit ihrer Optimierung kann die Leistung mit geringem Aufwand signifikant gesteigert werden. Damit dies möglich ist, muss zunächst ein grundlegendes Verständnis für die mechanische Struktur der verschiedenen GDL-Materialien geschaffen werden, welches anschließend dem Verständnis der elektrischen, thermischen und fluiddynamischen Vorgänge zuträglich ist. So hat diese Arbeit zum Ziel, die Einflüsse der mechanischen Eigenschaften der GDL-Materialien zu verstehen, die optimalen Arbeitsfenster für den Anpressdruck fein aufgelöst zu ermitteln und die Ergebnisse durch detaillierte Analyse auf möglichst viele Zelldesigns übertragbar zu machen.

Der Ergebnisteil zeigt deutlich auf, dass das mechanische Verhalten der GDL komplex ist und einen starken Einfluss auf die Leistungsfähigkeit einer Brennstoffzelle besitzt. So ergeben sich klare optimale Anpressdruck-Fenster, in denen die Zelle hinsichtlich ihrer Leistung am besten läuft. Das GDL-Papier mit MPL (SGL 29BC) erreicht seine höchste Leistung für  $0,5 \text{ MPa} \pm 0,1 \text{ MPa}$  durchschnittlichem Anpressdruck auf der aktiven Fläche. Dieses Fenster ist relativ schmal und ergibt sich aus der besonderen Struktur von MPL und Fasern. Die MPL ist durch den Auftragsprozess tief in die Faserstruktur eingezogen und beginnt die Poren bei einer Komprimierung des Materials zu verschließen, was auf den erstellten Nano-CT Aufnahmen deutlich zu erkennen ist. Dies wurde bereits von Atkinson et al. [25] beobachtet. Durch diese kontinuierliche plastische Verformung sinkt die Porosität und die Permeabilität wird stetig geringer. Dies führt zu dem beobachteten besonders großen Einfluss des Anpressdrucks auf die Leistung bei hohen Stromdichten ( $> 1 \text{ A/cm}^2$ ). Die sinkende Permeabilität führt zusammen mit fallendem Ohm'schen Widerstand bei steigendem Anpressdruck zu dem beobachteten Leistungsoptimum bei  $0,5 \text{ MPa}$ . Das GDL-Papier ohne MPL (Toray TGP-H 060) besitzt ein deutlich breiteres Leistungsoptimum. Es liegt bei  $0,7$  bis  $1,6 \text{ MPa}$  durchschnittlichem Anpressdruck auf der aktiven Fläche. Dieses Optimum ist deshalb breiter, da die Toray-GDL keine MPL besitzt, diese die Poren also nicht verschließen kann, sondern ausschließlich die Fasern und die Binderbereiche brechen, deren Bruchstücke die Poren verkleinern bzw. verschließen. Dies geschieht zwischen  $2$  und  $4 \text{ MPa}$ , was gut mit dem Einbruch der Leistung bei  $1,6 \text{ MPa}$  übereinstimmt, wenn man bedenkt, dass der Anpressdruck unter dem Steg durch das Kanal/Stegverhältnis in etwa doppelt so groß ist ( $3,2 \text{ MPa}$ ). Das bedeutet, dass hinsichtlich der Porosität möglichst geringe Anpressdrücke von

Vorteil sind. Es bildet sich aber dennoch ein Optimum aus, da die Ohm'schen Verluste bei sehr geringem Anpressdruck zu hoch sind und diese beiden gegenläufigen Effekte zu einem Optimum führen. Die mechanisch robusteste Struktur weist das GDL-Vlies (Freudenberg H2315 C2) auf. Weder durch REM-Aufnahmen noch durch Nano-CT-Aufnahmen konnten bedeutende strukturelle Schäden der Faserstruktur beobachtet werden. Dies spiegelt sich auch in den Leistungsmessungen wieder. Zunächst steigt die Leistung mit ansteigendem Anpressdruck und erreicht nach 0,6 MPa ein Plateau was bis zum Ende des Anpressdruckbereichs von 2,7 MPa erhalten bleibt. Da sich sowohl der Ohm'sche Widerstand als auch die Porosität einem Grenzwert mit steigendem Anpressdruck annähert, ergibt sich dieses konstante Verhalten zwischen 0,6 und 2,7 MPa, da die Porosität keine sprunghafte Veränderung durch strukturelle Schäden erfährt. Da zusätzlich die Leistung auf dem gleichen Niveau liegt wie die der verwendeten Toray-GDL und oberhalb der der SGL-GDL liegt, erweist sich die Freudenberg H2315 C2 GDL unter den hier verwendeten Versuchsbedingungen als die mechanisch überlegene GDL. Die Lage der optimalen Arbeitsfenster wird durch vereinzelte Literaturstellen in der Form bestätigt, dass die meist einzelnen Anpressdruckpunkte innerhalb der in dieser Arbeit ermittelten Fenster liegen [25, 40, 44, 48, 51, 53, 54]. Zusätzlich werden die einzelnen Punkte meist nicht in Druck sondern in prozentualer Kompression der GDL oder Zelle angegeben. So lassen sich mithilfe der Messungen zur einmaligen Kompression der GDL-Materialien die Ergebnisse aus der Literatur umrechnen und mit denen dieser und anderer Arbeiten erst vergleichen. Durch die grundlegenden mechanischen Untersuchungen zum Kompressionsverhalten der GDL-Materialien wird darüber hinaus bewusst, dass beim Vergleich von Kompressionsangaben und Anpressdruckangaben immer die Lashistorie in Betracht gezogen werden muss, da zum Beispiel im ersten Lastzyklus die größten plastischen Verformungen und damit bleibende, strukturelle Veränderungen auftreten und in den folgenden 10 bis 20 Zyklen noch weitere geringere Veränderungen entstehen. Für das SGL 29BC Material wird in der Literatur eine Kompression mit 0,6 MPa [25] respektive 1,5 MPa [51] als optimal ermittelt, während die nächst höhere Kompressionsstufe bereits bei weit über 3 MPa gewählt wurde und das Optimum so nicht bestimmt werden kann. Für das verwendete Toray-Material werden einzelne Werte von 1,6 MPa [44] und 1 bis 2 MPa [40] angegeben, sowie die Existenz eines Optimums bestätigt [45-47], wobei dort keine Zahlenwerte angegeben werden können, da die Optima mittels der Anzugsdrehmomente der Schrauben der jeweiligen Stackdesigns angegeben werden. Für das Freudenberg H2315 C2 Material wird

0,7 MPa [25] als Optimum für den Anpressdruck postuliert. So ergibt sich in der Literatur für keines der GDL-Materialien ein konkretes, abgegrenztes Optimum, da vornehmlich nur Extremwerte gegeneinander abgewogen werden. Jedoch liegen die Werte innerhalb der ermittelten Fenster und bestätigen die Ergebnisse dieser Arbeit dadurch punktuell.

Wie bereits angeschnitten, ist die Übertragung der angegebenen optimalen Anpressdrücke im Falle von Anzugsdrehmomenten gar nicht und bei Kompressionen sowie durchschnittlichen Anpressdrücken nur mit großer Sorgfalt auf andere Zelldesigns möglich. Das haben die Ergebnisse zu den detaillierten Druckverteilungen dieser Arbeit ergeben. Durch das Kanal/Stegverhältnis von 0,8 ergeben sich für die Anpressdrücke unter dem Steg deutlich höhere Niveaus als der durchschnittliche Anpressdruck. Konkret bedeutet das, dass das SGL 29BC im optimalen Bereich einen Anpressdruck von 0,5 bis 1,5 MPa unter dem Steg haben muss, das Toray TGP-H 060 0,5 bis 4,0 MPa und das Freudenberg H2315 C2 0,5 bis 7,0 MPa. Wird also ein Zelldesign mit anderem Kanal/Stegverhältnis verwendet, sind diese Werte die besseren Anhaltspunkte für die Übertragung der optimalen Arbeitsfenster. Die Werte haben jedoch nur eine uneingeschränkte Gültigkeit für gefräste graphitische Flowfields mit einer Kanal- und Stegbreite von etwa 1 mm. Diese Rahmenbedingungen sind entscheidend, da bei dieser Konfiguration auch die Bereiche unter dem Kanal nicht unwesentlich auf die CCM gepresst werden und somit zur elektrischen Kontaktierung der gesamten aktiven Fläche beitragen und die Zelleistung beeinflussen. Bei der Verwendung von Flowfields, deren Kanal- und Stegbreite deutlich von den 1 mm abweicht, muss die Lage des Optimums daher durch zusätzliche Versuche bestätigt werden.

Größere Unterschiede der Druckverteilungen ergeben sich hier für tiefgezogene, metallische Flowfields. Sie bilden fertigungsbedingt meist breitere Kanäle aus, während die Stegkanten abgerundet sind. Hier ergibt sich in den Druckverteilungen keine scharfe Abtrennung von Kanal- und Stegbereich. Unter den Stegen ergeben sich schmale Druckspitzen, die zum Kanal hin auslaufen. Welchen Einfluss die Druckspitzen auf die GDL-Struktur und damit auf die Leistung haben, bleibt zu klären. Durch die breiten Kanäle wird die GDL sogar teilweise nicht mehr mit der CCM kontaktiert was zu Problemen beim Kontaktwiderstand und der feinen Verteilung der Reaktionsgase auf der CCM-Oberfläche führen muss. Ein positiver Effekt konnte jedoch beim gesamten Ohm'schen Widerstand des GDL-Flowfield-Verbundes festgestellt werden. Bei den größeren Stegkantenabrundungen konnte ein geringerer Ohm'scher Gesamtwiderstand beobachtet werden, der sich durch die geringere tragende

Stegfläche und dem damit verbundenen höheren Anpressdruck unter dem Steg erklären lässt. Obwohl die geringere Kontaktfläche zu einem erhöhten Kontaktwiderstand führen müsste, scheint dieser Effekt weniger ins Gewicht zu fallen. Da sich die Anpressdruckverteilungen bei metallischen Flowfields also deutlich von denen der graphitischen unterscheiden, bleibt fraglich, ob sich die Ergebnisse zum optimalen Anpressdruckfenster der jeweiligen GDL-Materialien überhaupt auf Flowfield-Designs wie diese übertragen lassen. In der Literatur lassen sich keinerlei Anhaltspunkte zu lokalen Druckverteilungen verschiedener Flowfield-Designs finden, oder Angaben zu optimalen Anpressdrücken für metallische FlowFields. Daher wurde in dieser Arbeit der Grundstein durch die Möglichmachung der eigenständigen Herstellung von metallischen FlowFields durch die konstruierte Tiefziehvorrichtung gelegt. Die Durchführung der Versuche konnte aufgrund der Entwicklungsarbeit innerhalb dieser Arbeit nicht realisiert werden.

Nachdem die optimalen Anpressdruckfenster und die Druckverteilungen im Einzelzellen-Maßstab bekannt sind, muss geklärt werden, ob diese Erkenntnisse auch in den Stack-Maßstab übertragbar sind. Hier ergeben sich ganz neue Herausforderungen. Die Druckverteilungsmessungen aus einem 5-Zellen-Stack mit knapp 100 cm<sup>2</sup> aktiver Zellfläche offenbaren, dass es zunächst gilt die Homogenität des Drucks auf der aktiven Fläche sowie den Dichtungsbereichen sicherzustellen, bevor der Anpressdruck eingestellt werden kann. In einer ersten Version des Stacks mit 10 mm dicken, unstrukturierten Endplatten ergibt sich eine Druckverteilung im metallischen Stack, die zwar im ermittelten optimalen Anpressdruckfenster liegt, in weiten Teilen der aktiven Fläche aber einen viel zu niedrigen Anpressdruck vorweist. Eine Optimierung der Endplatte durch versteifende Strukturen kann für eine homogene Druckverteilung auf der aktiven Fläche sorgen, während das Dichtungskonzept aber weiterer Überarbeitung bedarf. Dieser konstruktive Kniff sorgt beim graphitischen Stack jedoch nicht für Abhilfe. Durch die massiven Flowfield-Platten quitiert der deutlich steifere Stackaufbau eine sich verwindende Endplatte sofort mit sehr inhomogenen Druckverteilungen. Somit lassen sich auch hier die Ergebnisse zum optimalen Anpressdruckfenster zunächst nicht auf den graphitischen Stack übertragen, sofern die Druckverteilung nicht annähernd so homogen wie in den Einzelzellen ist. Dazu muss eine grundlegende Änderung einiger Stackkomponenten durchgeführt werden.

Die Ziele dieser Arbeit wurden mit der detaillierten Bestimmung der optimalen Anpressdruckfenster erreicht und können aufgrund der Material- und Strukturuntersuchungen

---

verstanden werden. Sie lassen sich durch die Analyse der Druckverteilungen auf viele andere Stackdesigns übertragen und vergleichen, finden aber möglicherweise ihre Grenze der Übertragbarkeit aufgrund der sehr stark abweichenden Druckverteilungen bei metallischen Flowfield-Designs. Die Übertragung in den Stack-Maßstab wirft konstruktive Probleme hinsichtlich der Homogenität der Druckverteilungen auf, kann aber durch konstruktive Optimierung der Stackdesigns letzten Endes erfolgreich durchgeführt werden.

## 6 Zusammenfassung

Der Inhalt dieser Arbeit bezieht sich im Allgemeinen auf die mechanischen Eigenschaften der GDL einer PEM-Brennstoffzelle und hat zum Ziel ein grundlegendes Verständnis für das mechanische Verhalten und die Interaktion mit den angrenzenden Schichten zu schaffen, mit dessen Hilfe die optimalen Anpressdruck-Fenster im Brennstoffzellenbetrieb fein aufgelöst ermittelt und interpretiert werden können. Darüber hinaus sollen die ermittelten Werte durch Analyse der Druckverteilungen auf andere Zell-Designs übertragbar gemacht und überprüft werden, ob die mit Testzellen bestimmten Anpressdruckwerte auf Stack-Maßstäbe hochskaliert werden können.

Dazu werden in einem ersten Schritt mechanische Materialprüfungen an den GDL-Materialien SGL 29BC (GDL-Papier mit MPL), Toray TGP-H 060 (GDL-Papier ohne MPL) und Freudenberg H2315 C2 (GDL-Vlies mit MPL) durchgeführt und festgestellt, dass alle Materialien die größten plastischen Verformungen im ersten Belastungszyklus erfahren und in den nächsten 10 bis 20 Belastungszyklen nur noch geringe Änderungen des mechanischen Verhaltens auftreten. Eine Abhängigkeit der mechanischen Eigenschaften der GDL-Materialien von Feuchtigkeit und Belastungszeit kann nicht festgestellt werden.

Die optimalen Anpressdruckfenster werden mit Augenmerk auf die erzielbare Leistung in Brennstoffzellenversuchen durch Variation des Anpressdrucks auf der aktiven Fläche mithilfe einer speziellen Testzelle ermittelt. So ergibt sich für das SGL 29BC GDL-Material ein optimaler Anpressdruck von  $0,5 \text{ MPa} \pm 0,1 \text{ MPa}$ . Der Leistungseinbruch entsteht bei diesem Material durch den Verlust an Dicke und damit Einbußen der Porosität und Permeabilität. Das Toray TGP-H 060 GDL-Material erzielt die höchsten Leistungen in einem Anpressdruckbereich von 0,6 bis 1,7 MPa. Darüber bricht die Leistung aufgrund von Faser- und Bindermaterialbrüchen ein, deren Bruchstücke die Poren verstopfen und die Permeabilität irreversibel herabsetzen. Das Freudenberg H2315 C2 GDL-Material zeigt das breiteste Arbeitsfenster von 0,6 bis 2,7 MPa. Die Analyse der Faserstruktur der Freudenberg GDL brachte keine betriebsrelevanten Veränderungen zu Tage. Ihre unregelmäßig ineinander verschlungenen Fasern scheinen die mechanischen Belastungen deutlich besser abfedern und verteilen zu können, so dass keine Strukturschädigungen auftreten und die Porosität unbeeinträchtigt bleibt.

Die angegebenen Werte zu den optimalen Anpressdruckbereichen sind durchschnittliche Anpressdrücke auf der aktiven Fläche und können nicht ohne Berücksichtigung der Kanal- und Steggeometrie und den daraus resultierenden tatsächlich herrschenden Drücken auf der GDL auf andere Zelldesigns übertragen werden. Für von dem hier verwendeten graphitischen Flowfield abweichende Kanal/Stegverhältnisse sollten die tatsächlichen Drücke für die mechanische Optimierung herangezogen werden, ohne dabei zu sehr von dem hier verwendeten Design abzuweichen. Für das SGL 29BC sollten Anpressdrücke unter dem Steg von 0,5 bis 1,5 MPa, für das Toray TGP-H 060 etwa 0,5 bis 4,0 MPa und für das Freudenberg H2315 C2 0,5 bis 7 MPa eingestellt werden, während unter den Kanälen 0,3 bis 1,5 MPa je nach Druckbereich herrschen. Sollen statt gefrästen graphischen Flowfields metallische Flowfields mit deutlich abweichender Kanal/Steggeometrie verwendet werden, können die optimalen Anpressdruckbereiche nur als Anhaltspunkte verwendet werden, da die Druckverteilung unter Stegen mit abgerundeten Stegkanten, wie dies bei tiefgezogenen Flowfields der Fall ist, deutlich abweicht und zum Einen Druckspitzen entstehen, die die GDL schädigen können, während aber zum Anderen der Kontaktwiderstand mit runderen Stegkanten geringer wird. Daher ist nicht klar, wie sich die geänderten Bedingungen auf die Leistung auswirken.

Bei der Hochskalierung der Ergebnisse auf den Stack-Maßstab ergeben sich zunächst andere, größere Probleme bezüglich der Homogenität des Anpressdrucks auf der aktiven Fläche. Dies unterstreicht, dass hier vor allem das Verständnis der Stackmechanik im Vordergrund steht und nicht die Bestimmung des optimalen Anpressdrucks durch Leistungsmessungen. Bei dem überprüften metallischen Stackdesign schafft eine steifere Endplatte Abhilfe, die in der Lage ist, den Druck homogen auf der aktiven Fläche zu verteilen. Jedoch ergeben sich aufgrund der breiten Kanäle große Bereiche unterhalb des Kanals, die mechanisch kaum mit der CCM-Oberfläche kontaktiert sind. Daher bleibt fraglich, ob die zuvor ermittelten optimalen Anpressdrücke dem Optimalfall für dieses Design entsprechen. Größere Probleme entstehen auch bei der Verwendung des graphitischen Stackaufbaus. Dieser Stack stellt deutlich höhere Ansprüche an die zu verwendenden Endplatten aufgrund seiner eigenen Steifheit und der daraus resultierenden Eigenschaft, dass erheblich weniger Verwindung der Endplatte ausgeglichen werden kann und dies mit einer inhomogenen Druckverteilung quittiert wird.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich das Freudenberg H2315 C2 GDL-Material als sehr robust herausgestellt hat, während es sich durch seine hervorragende Leistung

auszeichnet. Durch die Berücksichtigung der lokalen Drücke lassen sich die Ergebnisse zum optimalen Anpressdruck auch auf andere Zelldesigns übertragen. Weichen die Designs zu stark von dem hier verwendeten ab, muss die Übertragbarkeit kritisch begutachtet werden. Bei der Skalierung auf Stackgröße muss zudem die Homogenität der Druckverteilung sichergestellt werden, um einen optimalen Betrieb der Zellen zu gewährleisten. Hier zeigt sich der metallische Stackaufbau im Gegensatz zum Graphitischen deutlich toleranter.

#### Kernaussagen in Kurzform:

- Bei Faserbruch sinken die Porosität sowie die Permeabilität und damit die maximale Leistung der Brennstoffzelle
- Papierartige Materialien reagieren strukturbedingt wesentlich empfindlicher auf mechanische Druckbelastungen als Vliesmaterialien mit dem Ergebnis unterschiedlich breiter Fenster hoher Leistung
- Anpressdrücke unter den Stegen sind für Faserschädigungen verantwortlich und daher relevanter als durchschnittliche Anpressdrücke
- Metallische Flowfields zeigen signifikant andere Druckverteilungen aufgrund der abweichenden Kanal/Steg-Geometrie im Vergleich zu gefrästen graphitischen Flowfields
- Homogene Druckverteilungen sind nicht selbstverständlich und müssen durch konstruktive Arbeiten am Zell/Stack-Design erreicht werden, graphitische Stacks zeigen sich hier durch ihren steiferen Aufbau deutlich empfindlicher

## Literaturverzeichnis

1. P. Kurzweil, *Thermodynamik und Kinetik der Brennstoffzelle*. 2016: p. 17-52.
2. M. Klell, H. Eichlseeder, und A. Trattner, *Wasserstoff in der Fahrzeugtechnik*. 2018.
3. F. Barbir, *Fuel Cell Electrochemistry*, in *PEM Fuel Cells*. 2013. p. 33-72.
4. U. Reimer, Y. Cai, R. Li, D. Froning, und W. Lehnert, *Time Dependence of the Open Circuit Potential of Platinum Disk Electrodes in Half Cell Experiments*. Journal of The Electrochemical Society, 2019. **166**(7): p. F3098-F3104.
5. D. Qiu, H. Janßen, L. Peng, P. Irmscher, X. Lai, und W. Lehnert, *Electrical resistance and microstructure of typical gas diffusion layers for proton exchange membrane fuel cell under compression*. Applied Energy, 2018. **231**: p. 127-137.
6. L. Holzer, O. Pecho, J. Schumacher, P. Marmet, O. Stenzel, F.N. Büchi, A. Lamibrac, und B. Münch, *Microstructure-property relationships in a gas diffusion layer (GDL) for Polymer Electrolyte Fuel Cells, Part I: effect of compression and anisotropy of dry GDL*. Electrochimica Acta, 2017. **227**: p. 419-434.
7. I.S. Hussaini und C.Y. Wang, *Measurement of relative permeability of fuel cell diffusion media*. Journal of Power Sources, 2010. **195**(12): p. 3830-3840.
8. S. Asghari, A. Mokmeli, und M. Samavati, *Study of PEM fuel cell performance by electrochemical impedance spectroscopy*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**(17): p. 9283-9290.
9. M. Mathias, J. Roth, J. Fleming, und W. Lehnert, *Handbook of Fuel Cells - Fundamentals, Technology and Applications*. 2003.
10. G. Gaiselmann, C. Tötze, I. Manke, W. Lehnert, und V. Schmidt, *3D microstructure modeling of compressed fiber-based materials*. Journal of Power Sources, 2014. **257**: p. 52-64.
11. H. Ostadi, P. Rama, Y. Liu, R. Chen, X.X. Zhang, und K. Jiang, *3D reconstruction of a gas diffusion layer and a microporous layer*. Journal of Membrane Science, 2010. **351**(1-2): p. 69-74.
12. S. Odaya, R.K. Phillips, Y. Sharma, J. Bellerive, A.B. Phillion, und M. Hoorfar, *X-ray Tomographic Analysis of Porosity Distributions in Gas Diffusion Layers of Proton Exchange Membrane Fuel Cells*. Electrochimica Acta, 2015. **152**: p. 464-472.
13. G. Gaiselmann, D. Froning, C. Tötze, C. Quick, I. Manke, W. Lehnert, und V. Schmidt, *Stochastic 3D modeling of non-woven materials with wet-proofing agent*. International Journal of Hydrogen Energy, 2013. **38**(20): p. 8448-8460.
14. I.V. Zenyuk, D.Y. Parkinson, L.G. Connolly, und A.Z. Weber, *Gas-Diffusion-Layer Structural Properties under Compression Via X-Ray Tomography*. J. Power Sources, 2016. **328**: p. 364.

15. N. Parikh, J.S. Allen, and R.S. Yassar, *Microstructure of Gas Diffusion Layers for PEM Fuel Cells*. Fuel Cells, 2012. **12**(3): p. 382-390.
16. T. Van Nguyen, A. Ahosseini, X. Wang, V. Yarlagadda, A. Kwong, A.Z. Weber, P. Deevanhxay, S. Tsushima, and S. Hirai, *Hydrophobic Gas-Diffusion Media for Polymer-Electrolyte Fuel Cells by Direct Fluorination*. J. Electrochem. Soc., 2015. **162**: p. F1451.
17. S. Escribano, J.-F. Blachot, J. Ethève, A. Morin, and R. Mosdale, *Characterization of PEMFCs gas diffusion layers properties*. Journal of Power Sources, 2006. **156**(1): p. 8-13.
18. J. Millichamp, T.J. Mason, T.P. Neville, N. Rajalakshmi, R. Jervis, P.R. Shearing, and D.J.L. Brett, *Mechanisms and effects of mechanical compression and dimensional change in polymer electrolyte fuel cells – A review*. Journal of Power Sources, 2015. **284**: p. 305-320.
19. V. Radhakrishnan and P. Haridoss, *Effect of cyclic compression on structure and properties of a Gas Diffusion Layer used in PEM fuel cells*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**(20): p. 11107-11118.
20. V. Mishra, F. Yang, and R. Pitchumani, *Measurement and Prediction of Electrical Contact Resistance Between Gas Diffusion Layers and Bipolar Plate for Applications to PEM Fuel Cells*. ECS Trans., 2004.
21. T.J. Mason, J. Millichamp, T.P. Neville, A. El-kharouf, B.G. Pollet, and D.J.L. Brett, *Effect of clamping pressure on ohmic resistance and compression of gas diffusion layers for polymer electrolyte fuel cells*. Journal of Power Sources, 2012. **219**: p. 52-59.
22. J.-H. Lin, W.-H. Chen, Y.-J. Su, and T.-H. Ko, *Effect of gas diffusion layer compression on the performance in a proton exchange membrane fuel cell*. Fuel, 2008. **87**(12): p. 2420-2424.
23. J. Park, H. Oh, Y.I. Lee, K. Min, E. Lee, and J.-Y. Jyoung, *Effect of the pore size variation in the substrate of the gas diffusion layer on water management and fuel cell performance*. Applied Energy, 2016. **171**: p. 200-212.
24. S. Park, J.W. Lee, and B.N. Popov, *Effect of PTFE Content in Microporous Layer on Water Management in PEM Fuel Cells*. J. Power Sources, 2008. **177**: p. 457.
25. R.W. Atkinson, Y. Garsany, B.D. Gould, K.E. Swider-Lyons, and I.V. Zenyuk, *The Role of Compressive Stress on Gas Diffusion Media Morphology and Fuel Cell Performance*. ACS Applied Energy Materials, 2018. **1**(1): p. 191-201.
26. T.J. Mason, J. Millichamp, T.P. Neville, P.R. Shearing, S. Simons, and D.J.L. Brett, *A study of the effect of water management and electrode flooding on the dimensional change of polymer electrolyte fuel cells*. Journal of Power Sources, 2013. **242**: p. 70-77.

27. E. Sadeghi, N. Djilali, und M. Bahrami, *Effective thermal conductivity and thermal contact resistance of gas diffusion layers in proton exchange membrane fuel cells. Part 2: Hysteresis effect under cyclic compressive load*. Journal of Power Sources, 2010. **195**(24): p. 8104-8109.
28. P.A. Gigos, Y. Faydi, und Y. Meyer, *Mechanical characterization and analytical modeling of gas diffusion layers under cyclic compression*. International Journal of Hydrogen Energy, 2015. **40**(17): p. 5958-5965.
29. D. Bograchev, M. Gueguen, J. Grandidier, und S. Martemianov, *Stress and plastic deformation of MEA in running fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2008. **33**(20): p. 5703-5717.
30. Y. Shen, *Mechanical Degradation of Membrane Electrode Assemblies in Proton Exchange Membrane Fuel Cells*. 2017, University of Waterloo.
31. A. Rofaief, J.S. Ellis, P.R. Challa, und A. Bazylak, *Heterogeneous through-plane distributions of polytetrafluoroethylene in polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers*. Journal of Power Sources, 2012. **201**: p. 219-225.
32. M.S. Ismail, A. Hassanpour, D.B. Ingham, L. Ma, und M. Pourkashanian, *On the Compressibility of Gas Diffusion Layers in Proton Exchange Membrane Fuel Cells*. Fuel Cells, 2012. **12**(3): p. 391-397.
33. J. Lobato, P. Cañizares, M.A. Rodrigo, C. Ruiz-López, und J.J. Linares, *Influence of the Teflon Loading in the Gas Diffusion Layer of PBI-Based PEM Fuel Cells*. J. Appl. Electrochem., 2008. **38**: p. 793.
34. J. Scholta, G. Escher, W. Zhang, L. Küppers, L. Jörissen, und W. Lehnert, *Investigation on the influence of channel geometries on PEMFC performance*. Journal of Power Sources, 2006. **155**(1): p. 66-71.
35. P. Zhou, C.W. Wu, und G.J. Ma, *Contact resistance prediction and structure optimization of bipolar plates*. Journal of Power Sources, 2006. **159**(2): p. 1115-1122.
36. P.A. García-Salaberri, M. Vera, und R. Zaera, *Nonlinear orthotropic model of the inhomogeneous assembly compression of PEM fuel cell gas diffusion layers*. International Journal of Hydrogen Energy, 2011. **36**(18): p. 11856-11870.
37. A.P. Manso, F.F. Marzo, J. Barranco, X. Garikano, und M. Garmendia Mujika, *Influence of geometric parameters of the flow fields on the performance of a PEM fuel cell. A review*. International Journal of Hydrogen Energy, 2012. **37**(20): p. 15256-15287.
38. N. Zamel, X. Li, und J. Shen, *Numerical estimation of the effective electrical conductivity in carbon paper diffusion media*. Applied Energy, 2012. **93**: p. 39-44.
39. J. Kleemann, F. Finsterwalder, und W. Tillmetz, *Characterisation of Mechanical Behaviour and Coupled Electrical Properties of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell Gas Diffusion Layers*. J. Power Sources, 2009. **190**: p. 92.

40. W.R. Chang, J.J. Hwang, F.B. Weng, und S.H. Chan, *Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell*. Journal of Power Sources, 2007. **166**(1): p. 149-154.
41. M. Fazeli, J. Hinebaugh, Z. Fishman, C. Tötzke, W. Lehnert, I. Manke, und A. Bazylak, *Pore network modeling to explore the effects of compression on multiphase transport in polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers*. Journal of Power Sources, 2016. **335**: p. 162-171.
42. J. Ge, A. Higier, und H. Liu, *Effect of gas diffusion layer compression on PEM fuel cell performance*. Journal of Power Sources, 2006. **159**(2): p. 922-927.
43. T.J. Mason, J. Millichamp, P.R. Shearing, und D.J.L. Brett, *A study of the effect of compression on the performance of polymer electrolyte fuel cells using electrochemical impedance spectroscopy and dimensional change analysis*. International Journal of Hydrogen Energy, 2013. **38**(18): p. 7414-7422.
44. W.-k. Lee, C.-H. Ho, J.W.V. Zee, und M. Murthy, *The effects of compression and gas diffusion layers on the performance*. Journal of Power Sources, 1999. **84** (1999) **45-51**.
45. S.S.L. Rao, A. Shaija, und S. Jayaraj, *Performance analysis of a transparent PEM fuel cell at the optimized clamping pressure applied on its bolts*. Materials Today: Proceedings, 2018. **5**(1): p. 58-65.
46. C.-Y. Wen, Y.-S. Lin, und C.-H. Lu, *Experimental study of clamping effects on the performances of a single proton exchange membrane fuel cell and a 10-cell stack*. Journal of Power Sources, 2009. **192**(2): p. 475-485.
47. I. Gatto, F. Urbani, G. Giacoppo, O. Barbera, und E. Passalacqua, *Influence of the bolt torque on PEFC performance with different gasket materials*. International Journal of Hydrogen Energy, 2011. **36**(20): p. 13043-13050.
48. T. Knöri und M. Schulze, *Study of the mechanical interactions between the gas diffusion layer and the flow field structure in polymer electrolyte fuel cells (PEFCs)*. 2009.
49. C. Tötzke, G. Gaiselmann, M. Osenberg, J. Bohner, T. Arlt, H. Markötter, A. Hilger, F. Wieder, A. Kupsch, B.R. Müller, M.P. Hentschel, J. Banhart, V. Schmidt, W. Lehnert, und I. Manke, *Three-dimensional study of compressed gas diffusion layers using synchrotron X-ray imaging*. Journal of Power Sources, 2014. **253**: p. 123-131.
50. D. Froning, J. Yu, G. Gaiselmann, U. Reimer, I. Manke, V. Schmidt, und W. Lehnert, *Impact of compression on gas transport in non-woven gas diffusion layers of high temperature polymer electrolyte fuel cells*. Journal of Power Sources, 2016. **318**: p. 26-34.
51. A. El-kharouf und R. Steinberger-Wilckens, *The Effect of Clamping Pressure on Gas Diffusion Layer Performance in Polymer Electrolyte Fuel Cells*. Fuel Cells, 2015. **15**(6): p. 802-812.

52. H.M. Chang und M.H. Chang, *Effects of Assembly Pressure on the Gas Diffusion Layer and Performance of a PEM Fuel Cell*. Applied Mechanics and Materials, 2011. **110-116**: p. 48-52.
53. Z.Y. Su, C.T. Liu, H.P. Chang, C.H. Li, K.J. Huang, und P.C. Sui, *A numerical investigation of the effects of compression force on PEM fuel cell performance*. Journal of Power Sources, 2008. **183**(1): p. 182-192.
54. S. Toghyani, F. Moradi Nafchi, E. Afshari, K. Hasanpour, E. Baniasadi, und S.A. Atyabi, *Thermal and electrochemical performance analysis of a proton exchange membrane fuel cell under assembly pressure on gas diffusion layer*. International Journal of Hydrogen Energy, 2018. **43**(9): p. 4534-4545.
55. Y. Zhou, G. Lin, A.J. Shih, und S.J. Hu, *Multiphysics Modeling of Assembly Pressure Effects on Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performance*. Journal of Fuel Cell Science and Technology, 2009. **6**(4): p. 041005-041005-7.
56. X.Q. Xing, K.W. Lum, H.J. Poh, und Y.L. Wu, *Optimization of assembly clamping pressure on performance of proton-exchange membrane fuel cells*. Journal of Power Sources, 2010. **195**(1): p. 62-68.
57. I. Taymaz und M. Benli, *Numerical study of assembly pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell*. Energy, 2010. **35**(5): p. 2134-2140.
58. J. Wang, J. Yuan, und B. Sundén, *On electric resistance effects of non-homogeneous GDL deformation in a PEM fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2017. **42**(47): p. 28537-28548.
59. M. Movahedi, A. Ramiar, und A.A. Ranjber, *3D numerical investigation of clamping pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell with interdigitated flow field*. Energy, 2018. **142**: p. 617-632.
60. L. Lüke, *Analyse des Betriebsverhaltens von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen*, in Fakultät für Maschinenwesen. 2013, RWTH Aachen.
61. R. Montanini, G. Squadrito, und G. Giacoppo, *Measurement of the clamping pressure distribution in polymer electrolyte fuel cells using piezoresistive sensor arrays and digital image correlation techniques*. Journal of Power Sources, 2011. **196**(20): p. 8484-8493.
62. A. Bates, S. Mukherjee, S. Hwang, S.C. Lee, O. Kwon, G.H. Choi, und S. Park, *Simulation and experimental analysis of the clamping pressure distribution in a PEM fuel cell stack*. International Journal of Hydrogen Energy, 2013. **38**(15): p. 6481-6493.
63. S.-J. Lee, C.-D. Hsu, und C.-H. Huang, *Analyses of the fuel cell stack assembly pressure*. Journal of Power Sources, 2005. **145**(2): p. 353-361.
64. X. Wang, Y. Song, und B. Zhang, *Experimental study on clamping pressure distribution in PEM fuel cells*. Journal of Power Sources, 2008. **179**(1): p. 305-309.

65. P. Beckhaus, S. Gößling, T. Notthoff, und A. Heinzl. *Sub Kilowatt Fuel Cell Systems - Solutions for Applications*. in *18th World Hydrogen Energy Conference*. 2010.
66. A. Kurpiela, *Mechanische Analyse und Optimierung eines Endplattendesigns für DMFC-Stacks*, in *IEK-3*. 2014, FH Aachen.
67. M.D. Ruge, *Entwicklung eines flüssigkeitsgekühlten PEMFC-Stacks mit einer Leistung von 6,5kW*. 2005, Eidgenössischen Technischen Hochschule Zürich.
68. H.N. Yu, S.S. Kim, J.D. Suh, und D.G. Lee, *Composite endplates with pre-curvature for PEMFC (polymer electrolyte membrane fuel cell)*. *Composite Structures*, 2010. **92**(6): p. 1498-1503.
69. J. Evertz, *Zum Kopfnicken werden wir nicht engagiert*. 2007, Tribecraft.
70. O. König, *Topologie optimisation of a FC Endplate using genetic algorithms*. 2000, ETH Zürich.
71. Freudenberg FCCT SE & CO. KG, *Freudenberg Gas Diffusion Layers for PEMFC and DMFC*. 2017.
72. Freudenberg FCCT SE & CO. KG, *Datenblatt Freudenberg Gas Diffusion Layers*. 2018.
73. SGL Carbon Group, *SIGRACET GDL - Optimized gas diffusion layers for PEM and DMFC fuel cell applications*. 2018.
74. Toray Carbon Inc., *Produktdatenblatt Toray Carbon Fiber Paper "TGP-H"*. 2018.
75. SGL Group - The Carbon Company, *SGL SIGRACET Data Sheet*. 2016.
76. ZwickRoell GmbH & Co. KG, *Datenblatt - Tisch-Prüfmaschinen Z005 bis Z020 der Around-Line*. 2011.
77. ZwickRoell GmbH & Co. KG, *Datenblatt - Kraftaufnehmer Xforce P, Xforce HP und Xforce K*. 2018.
78. VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen, *VDI Wärmeatlas*. Vol. 10. 2006: Springer Verlag.
79. H. Czichos, *Hütte - Die Grundlagen der Ingenieurwissenschaften*. Vol. 31. 2000: Springer Verlag.
80. K.-H. Grote und J. Feldhusen, *Dubbel - Taschenbuch für den Maschinenbau*. Vol. 20. 2007: Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
81. K.-D. Linsmeier, *Technische Keramik*. Vol. 3. 2015: Moderne Industrie.
82. CeramTec GmbH, *Werkstoffdaten CeramTec*. 2018.
83. Carl Zeiss Microscopy GmbH, *Benutzerhandbuch Xradia Versa*. 2014.

84. P. Imscher, D. Qiu, H. Janßen, W. Lehnert, und D. Stolten, *Impact of Gas Diffusion Layer Mechanics on PEM Fuel Cell Performance*. submitted to Applied Energy, 2019.
85. Baltic Fuel Cell GmbH, *quickCONNECTfixture balticFuelCells*. 2017.
86. W. L. GORE & Associates Inc., *Technical Data - PRIMEA Series MEAs*. 2000.
87. H. Janßen, L. Lüke, W. Lehnert, und D. Stolten, *Setup and experimental validation of a 5 kW HT-PEFC stack*. International Journal of Hydrogen Energy, 2017. **42**(16): p. 11596-11604.
88. H. Janßen, A. Edelmann, T. Mildebrath, P. Müller, W. Lehnert, und D. Stolten, *Design and experimental validation of an HT-PEFC stack with metallic BPP*. International Journal of Hydrogen Energy, 2018. **43**(39): p. 18488-18497.
89. Gebrüder HAAKE GmbH, *Betriebsanleitung Thermostate F8 und N8 mit allen Badgefäßen (V 1.55)*.
90. Höcherl & Hackl GmbH, *Bedienungsanleitung - ZS Gleichstromlasten*.
91. WIKA, *Technische Informationen*. 2016.
92. Winkler AG, *Betriebsanleitung EX-Heizschläuche*. 2017.
93. Bronkhorst High-Tech, *EL-FLOW Digitale thermische Massedurchflussmesser und -regler für Gase*.
94. Bronkhorst Deutschland Nord GmbH, *Produktinformation LIQUI-FLOW Serie L10/L20*.
95. Vaisala, *User's Guide - Vaisala HUMICAP Humidity and Temperature Transmitter Series HMT330*. 2013.
96. Keithley Instruments, *Produktinformation - Multimeter/Data Acquisition/Switch Systems*.
97. Elotech Industrieelektronik GmbH, *Beschreibung und Bedienungsanleitung Zweipunkttemperaturregler*. 2004.
98. Deutsches Institut für Normung e.V. Berlin, *DIN43703 Elektrische Meßgeräte - Nebenwiderstände*. 1976.
99. D. Froning, G. Gaiselmann, U. Reimer, J. Brinkmann, V. Schmidt, und W. Lehnert, *Stochastic Aspects of Mass Transport in Gas Diffusion Layers*. Transport in Porous Media, 2014. **103**(3): p. 469-495.
100. H.D. Baehr und K. Stephan, *Wärme- und Stoffübertragung*. 2010, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg. online resource.

101. B. Hölting und W.G. Coldewey, *Hydrogeologie : Einführung in die Allgemeine und Angewandte Hydrogeologie*. 8. Aufl. ed. 2013, Berlin: Springer Spektrum. XXXVII, 438 S.
102. S.-W. Cha, F.B. Prinz, W.G. Colella, und R. O'Hayre, *Fuel cell fundamentals*. Third edition ed. 2016, Hoboken, NJ: Wiley. XX, 580 Seiten.
103. FujiFilm Holdings K. K., *Produktübersicht Druckmessfolie PRESCALE*. 2018.
104. J.J.S. Leon, *Investigation of the Mechanical Behavior of the GDL under Compressive Stresses in PEMFC*, in *Fakultät für Ingenieurwissenschaften - Lehrstuhl Energietechnik*. 2018, Universität Duisburg-Essen.
105. Eisenhuth GmbH & Co. KG, *SIGRACET BPP Bipolar Plate BBP4 (Phenolic Resin)*. 2004.
106. X. Li und I. Sabir, *Review of bipolar plates in PEM fuel cells: Flow-field designs*. International Journal of Hydrogen Energy, 2005. **30**(4): p. 359-371.
107. P. Pietrasz, *Next Generation Bipolar Plates for Automotive PEM Fuel Cells*. 2010.
108. S. Mahabunphachai, M. Koe, und J. Ni. *Development of novel process for manufacturing of FC bipolar plates*. in *International Conference on Manufacturing Science and Engineering*. 2006.
109. F.A. Khatir, M. Elyasi, H.T. Ghadikolaee, und M. Hosseinzadeh, *Evaluation of Effective Parameters on Stamping of Metallic Bipolar Plates*. Procedia Engineering, 2017. **183**: p. 322-329.
110. R. Taherian, *A review of composite and metallic bipolar plates in proton exchange membrane fuel cell: Materials, fabrication, and material selection*. Journal of Power Sources, 2014. **265**: p. 370-390.
111. K. Siegert, *Blechumformung*. 2015: Springer-Verlag Heidelberg.
112. Stracke Norma GmbH, *STRACK Normalien Gesamtkatalog 2012*. 2012.
113. M. Pesch, *Versuche zur Ermittlung von Parametern für das Tiefziehen dünner Edelstahlbleche*. 2017, Rheinische Fachhochschule Köln.
114. M. Pesch, *Entwicklung und Konstruktion von Tiefzieh-Werkzeugen für metallische Flowfields*. 2018, Rheinische Fachhochschule Köln.
115. C. Bonten, *Kunststofftechnik - Einführung und Grundlagen*. 2014: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG.
116. C. Ellsel, *Ermittlung des optimalen Anpressdruckes für eine PEM-Brennstoffzelle mit SGL-GDL*, in *Fakultät für Maschinenwesen, Lehrstuhl für Brennstoffzellen*. 2018, RWTH-Aachen University.

117. S.V.R. Aenugo, *Development of End Plates for High Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells Using Finite Element Analysis*, in *Fakultät für Maschinenwesen - Lehrstuhl für Brennstoffzellen*. 2016, RWTH Aachen University.



## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Aufbau und Funktionsprinzip einer PEM-Brennstoffzelle.....	4
Abbildung 2:	Strom-Spannungs-Kennlinie einer Brennstoffzelle und die dominierenden Verluste ([2] S. 150 Abb. 6.5).....	6
Abbildung 3:	REM-Aufnahmen der drei verschiedenen GDL-Typen a)/d) Gewebe b)/e) Papier c)/f) Vlies (adaptiert nach [18]).....	9
Abbildung 4:	Faserbrüche von Toray TGP-H 120 nach Komprimierung durch Flowfield mit 2,5 MPa (adaptiert nach [21]).....	10
Abbildung 5:	Oberflächenglättung der MPL nach Kompression um a) 0% b) 34% c) 41% - SGL 29BC (adaptiert nach [25]) .....	11
Abbildung 6:	Toray TGP-H 120 - Spannungs-Stauchungsdiagramme mit 5 Kompressionszyklen (adaptiert nach [27]).....	14
Abbildung 7:	Gesamtwiderstand von Toray TGP H 060 in Abhängigkeit des Kontaktdrucks und des Belastungszyklus (adaptiert nach [5]).....	18
Abbildung 8:	CT-Aufnahmen von GDL Materialien unter Kompression - links: SGL 29BC mit a) 0 % b) 34 % c) 41 % - rechts Freudenberg H2315 C2 mit a) 0 % b) 14 % c) 28 % (adaptiert nach [25]) .....	23
Abbildung 9:	Druckverteilungen einer Testzelle mit veränderten Schraubenanordnungen - links: Verschraubung an 2 Punkten, Mitte: 4 Punkte, rechts 6 Punkte [46].....	26
Abbildung 10:	Prinzipielle Kraftleitungskonzepte für die Endplatte einer Brennstoffzelle zur direkten Kraftleitung [67].....	27
Abbildung 11:	D-Bow Endplattenkonzept der Firma Tribecraft in Anlehnung an Staudammkonstruktionen (adaptiert nach [69]) .....	28
Abbildung 12:	Softwaregestützte Topologie-Optimierung einer Endplatte - a) Simulationsausgabe b) Mechanische Interpretation der Simulation c) Umgesetzter Prototyp (adaptiert nach [70]) .....	29
Abbildung 13:	REM-Aufnahmen der GDL-Material-Strukturen.....	31
Abbildung 14:	Aufbau zur Änderung der Zugkraft in Druckkraft .....	34
Abbildung 15:	Druckaufbau mit Keramik-Konstruktion zur Homogenisierung der Druckverteilung.....	35
Abbildung 16:	Ausschnitt der Nano-CT-Aufnahmen für die spätere Analyse der GDL-Strukturen in blau dargestellt [84] .....	38

Abbildung 17:	Schematischer Aufbau der qCf FC25 Testzelle der Firma balticFuelCells GmbH - links: Gesamtaufbau, rechts: Kräftegleichgewicht .....	39
Abbildung 18:	Kraft-Weg-Diagramm qCf FC25 mit Hystereseschleife .....	40
Abbildung 19:	Verwendetes Flowfield für die Leistungsmessungen bezüglich des optimalen Anpressdrucks (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH).....	42
Abbildung 20:	Versuchsaufbau zur elektrischen Widerstandsmessung .....	45
Abbildung 21:	Funktionsprinzip Fujifilm Prescale Folien (adaptiert nach [103]).....	48
Abbildung 22:	Skalen der Druckmessfolien und zusammengesetzte Gesamt-Skala.....	49
Abbildung 23:	Kombination der einzelnen Druckmessfolien.....	49
Abbildung 24:	Einfluss der Reihenfolge der Druckmessfolien bei Kombination .....	51
Abbildung 25:	Foto der Tiefziehvorrichtung zur Herstellung von metallischen Flowfields (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH) .....	53
Abbildung 26:	Kanal-Steg-Geometrie RoBiPo-Design.....	54
Abbildung 27:	Stempel-Geometrien zur Herstellung metallischer Flowfield-Proben mit verschiedenen Stegkanten-Radien .....	54
Abbildung 28:	RoBiPo-Stackdesign mit metallischen Bipolarplatten.....	57
Abbildung 29:	Einmalige Kompression der GDL-Materialien SGL 29BC, Freudenberg H2315 C2 und Toray TGP-H 060 (mit $t$ = Verformung der GDL und $t_0$ = Anfangsdicke der GDL) .....	60
Abbildung 30:	5 Kompressionszyklen des SGL 29BC GDL-Materials .....	61
Abbildung 31:	GDL-Materialien unter 3000 schwingenden Lastzyklen von 2,5 bis 3,0 MPa - a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2 d) Freudenberg H2315 C2 mit geänderter y-Achsen-Skalierung .....	63
Abbildung 32:	Belastungszeit-Variation Freudenberg H2315 C2 - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden .....	64
Abbildung 33:	Belastungsgeschwindigkeit-Variation von 0,1 N/s bis 90 N/s für die GDL-Materialien a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2.....	65
Abbildung 34:	Feuchtigkeitseinfluss auf die GDL-Materialien a) SGL 29BC b) Toray TGP-H 060 c) Freudenberg H2315 C2.....	66
Abbildung 35:	Einfluss der aufeinandergestapelten Probenanzahl.....	68

Abbildung 36:	REM-Aufnahmen des Freudenberg H2315 C2 GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84]).....	70
Abbildung 37:	REM-Aufnahmen des Toray TGP-H 060 GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84]) .....	71
Abbildung 38:	REM-Aufnahmen des SGL 29BC GDL-Materials nach Druckbelastung (adaptiert nach [84]) .....	72
Abbildung 39:	Nano-CT Aufnahmen der SGL 29BC GDL unbelastet und nach Belastung durch eine Flowfield-Struktur mit 3 und 5 MPa unter dem Steg (adaptiert nach [84]).....	73
Abbildung 40:	Nano-CT Aufnahmen der Toray und Freudenberg GDL unbelastet und nach Belastung durch eine Flowfield-Struktur mit 3 und 5 MPa unter dem Steg (adaptiert nach [84]) .....	73
Abbildung 41:	Permeabilitäten der GDL-Materialien nach vorangegangener Kompression (adaptiert nach [84]) .....	75
Abbildung 42:	Through-Plane Gesamtwiderstandsmessungen in Abhängigkeit des Anpressdrucks verschiedener GDL-Materialien mit 36 mm Probendurchmesser bei 1 A Stromstärke und vorheriger Kompression mit 6 MPa .....	77
Abbildung 43:	Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit SGL 29BC GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84]) .....	79
Abbildung 44:	Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit Toray TGP-H 060 GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84]) .....	80
Abbildung 45:	Abhängigkeit der Leistung einer PEM-Brennstoffzelle mit Freudenberg H2315 C2 GDL vom Anpressdruck auf der aktiven Fläche (adaptiert nach [84]).....	81
Abbildung 46:	Vergleich der maximalen Leistungen der GDL-Materialien unter Anpressdruckvariation.....	82
Abbildung 47:	Vergleich der Leistungen der GDL Materialien bei 0,8 A/cm <sup>2</sup> unter Anpressdruckvariation.....	83
Abbildung 48:	Druckverteilungen in der quickCONNECTfixture der Firma Baltic Fuel Cells GmbH zur anpressdruckabhängigen Leistungsmessung (adaptiert nach [84]) .....	85
Abbildung 49:	Tiefziehwerkzeuge mit Kantenradien von 0 bis 0,5 mm und die sich daraus ergebenden Stegkantenradien 0,2 bis 0,7 mm der tiefgezogenen Flowfields.....	87
Abbildung 50:	Lokale Druckverteilungen unter metallischen Flowfields mit verschiedenen Stegkantenradien und verschiedenen GDL-Materialien.....	88

Abbildung 51:	Anteilige Flächen der Druckverteilung bei einem Stegkantenradius von 0,2 mm und verschiedenen GDL-Materialien .....	89
Abbildung 52:	Ohm'scher Widerstand in Abhängigkeit des Stegkantenradiuses .....	90
Abbildung 53:	Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5 Zellen Stackaufbaus mit nicht verstrebt Endplatten – oben: Zelle 1 nahe der Endplatte, unten: Zelle 3 mittig im Stack - hier ohne GFK-Rahmen um die GDL.....	93
Abbildung 54:	Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrebt Endplatten – oben: Zelle 1 nahe der Endplatte, unten: Zelle 3 mittig im Stack.....	95
Abbildung 55:	Vergleich der Druckverteilungen im metallischen Shortstack mit versteifter und nicht versteifter Endplatte.....	97
Abbildung 56:	Vergleich der Druckverteilungen im graphitischen Shortstack mit versteifter und nicht versteifter Endplatte.....	98
Abbildung A1:	Unterer Stempel der Ausgleichselemente mit Kugeloberfläche.....	136
Abbildung A2:	Oberer Stempel der Ausgleichselemente mit Napf zur Aufnahme von Wasser für Messungen mit Feuchte Einfluss .....	137
Abbildung A3:	Kathoden Flowfield für Versuche zur Leistungsmessung mit Baltic qCf FC25 Zelle.....	140
Abbildung A4:	Anoden Flowfield für Versuche zur Leistungsmessung mit Baltic qCf FC25 Zelle.....	141
Abbildung A5:	Tiefziehvorrichtung - Übersichtsdarstellung .....	143
Abbildung A6:	Tiefziehvorrichtung - Schnittdarstellung .....	144
Abbildung A7:	Obere Verfahr-Platte der Tiefziehvorrichtung mit Bohrungen zur Aufnahme des oberen Tiefziehwerkzeuges und der Federpakete .....	145
Abbildung A8:	Mittlere Niederhalte-Platte der Tiefziehvorrichtung mit Bohrungen zur Aufnahme des Niederhalters und der Federpakete .....	146
Abbildung A9:	Grundplatte der Tiefziehvorrichtung mit Bohrungen zur Aufnahme des unteren Tiefziehwerkzeuges .....	147
Abbildung A10:	Obere Stempelaufnahme der Tiefzieheinrichtung .....	148
Abbildung A11:	Führungsstift zur Fixierung der Gegenfedern der Tiefziehvorrichtung.....	149
Abbildung A12:	Abstands-Stempel zur Betätigung der Tiefziehvorrichtung mittels Presse .....	150

Abbildung A13:	Übersicht der oberen Tiefziehwerkzeuge mit Variation des Kantenradius .....	151
Abbildung A14:	Oberes Tiefziehwerkzeug - Stellvertretend mit Kantenradius $R_k$ .....	152
Abbildung A15:	Unteres Tiefziehwerkzeug - Stellvertretend mit Kantenradius $R_k$ .....	153
Abbildung A16:	Niederhalter der Tiefziehvorrichtung .....	154
Abbildung A17:	Übersichtsdarstellung der Tiefziehwerkzeuge zur Herstellung eines funktionierenden, tiefgezogenen metallischen Flowfields mit 25 cm <sup>2</sup> aktiver Fläche .....	155
Abbildung A18:	Tiefgezogenes Flowfield in Edelstahl (1.4404/316L) mit 0,2 mm Dicke (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH) .....	156
Abbildung A19:	Graphitischer Stackaufbau im RoBiPo-Design .....	157
Abbildung A20:	5 Kompressionszyklen des Toray TGP H 060 GDL Materials .....	159
Abbildung A21:	5 Kompressionszyklen des Freudenberg H2315 C2 GDL Materials .....	159
Abbildung A22:	Belastungszeit Variation SGL 29BC - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden .....	160
Abbildung A23:	Belastungszeit Variation Toray TGP H 060 - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden.....	160
Abbildung A24:	Polarisationskurven mit SGL 29BC GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ , $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C).....	161
Abbildung A25:	Polarisationskurven mit Toray TGP-H 060 GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ , $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C).....	162
Abbildung A26:	Polarisationskurven mit Freudenberg H2315 C2 GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ , $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C) - mit Standardabweichung .....	163
Abbildung A27:	Referenzmessungen bei 0,6 MPa nach den jeweiligen Druckstufen 0,95 MPa, 1,9 MPa und 2,7 MPa für die Testzelle mit Freudenberg GDL H2315 C2.....	165
Abbildung A28:	Druckverteilungen in der quickCONNECTfixture der Firma Baltic Fuel Cells GmbH zur Anpressdruckabhängigen Leistungsmessung .....	167
Abbildung A29:	Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für Freudenberg H2315 C2 - Grafische Auswertung .....	168
Abbildung A30:	Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für Toray TGP-H 060 - Grafische Auswertung .....	168

---

Abbildung A31:	Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für SGL 29BC - Grafische Auswertung .....	169
Abbildung A32:	Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrehten Endplatten - ohne GFK-Rahmen um die GDL .....	171
Abbildung A33:	Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrehten Endplatten - herkömmlich mit GFK-Rahmen um die GDL.....	172
Abbildung A34:	Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrehten Endplatten .....	173
Abbildung A35:	Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrehten Endplatten - ohne GFK-Rahmen um die GDL .....	174
Abbildung A36:	Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrehten Endplatten .....	175
Abbildung A37:	3D-Vermessung der Vorder- und Rückseite exemplarisch für eine der graphitischen Flowfield-Platten.....	176

**Tabellenverzeichnis**

Tabelle 1:	Herstellerangaben zu den technischen Daten der GDL-Materialien .....	32
Tabelle 2:	Betriebsparameter für die Ermittlung des optimalen Anpressdrucks .....	43
Tabelle 3:	Teststands-Komponenten und deren Genauigkeit .....	44
Tabelle 4:	Fujifilm Prescale Druckmessfolien-Spezifikationen [103] .....	48
Tabelle 5:	Optimale Anpressdruckbereiche der verschiedenen GDL-Materialien - ermittelt mit graphitischen Flowfields mit 1 mm Kanaltiefe und -breite sowie 1 mm Stegbreite mit einem Kanal-Steg-Verhältnis von 0,8.....	86
Tabelle A1:	Genauigkeit der graphischen Auswertung der Fujifilm Prescale Druckmessfolien.....	169



## Formelzeichen und Indizes

### Lateinische Buchstaben

a	Ersatzterm	(m <sup>2</sup> )
A <sub>aktive Fläche</sub>	Flächeninhalt der aktiven Fläche	(cm <sup>2</sup> )
A <sub>Kolben</sub>	Flächeninhalt des Pneumatik-Kolbens	(cm <sup>2</sup> )
E*	Ersatz E-Modul	(N/m <sup>2</sup> )
E <sup>0</sup>	Standardpotential	(V)
E <sub>1</sub>	E-Modul Körper 1	(N/m <sup>2</sup> )
E <sub>2</sub>	E-Modul Körper 2	(N/m <sup>2</sup> )
F	Kraft	(N)
F	Faraday Konstante	(As/mol)
F <sub>max, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub>	Maximalkraft für Aluminiumoxid bei Hertzscher Pressung	(N)
F <sub>Pneumatik</sub>	Kraft aufgrund des pneumatischen Drucks	(N)
F <sub>Reib</sub>	Aufsummierte Reibkraft	(N)
F <sub>tatsächlich, Erhöhung</sub>	Tatsächliche Kraft auf Federn bei Erhöhung der Kraft	(N)
F <sub>tatsächlich, Verringerung</sub>	Tatsächliche Kraft auf Federn bei Verringerung der Kraft	(N)
Δ <sub>R</sub> G <sub>m</sub> <sup>0</sup>	freie Reaktionsenthalpie bei Standardzustand	(J/mol)
I	Strom	(A)
Δp <sub>Hyst</sub>	Differenzdruck der Hystereseschleife	(bar)
p <sub>Korrektur</sub>	Druckkorrekturwert aufgrund der Reibung der qCf FC25	(N/mm <sup>2</sup> )
r	Ersatzradius	(m)
r <sub>1</sub>	Kugelradius 1	(m)
r <sub>2</sub>	Kugelradius 2	(m)
T <sub>Zelle</sub>	Temperatur der Zelle	(°C)
U	Spannung	(V)
Δx <sub>Feder</sub>	Federweg	(μm)
z	Ladungszahl	(-)



**Griechische Buchstaben**

$\sigma_{max,Al_2O_3}$	maximal auftretende Spannung des Hertzschen Kontakts	(MPa)
$\sigma_{max,Al_2O_3}$	max. auftr. Span. Hertzscher Kontakt mit Aluminiumoxid	(MPa)
$\sigma_{max,Vergütungsstahl}$	max. auftr. Span. Hertzscher Kontakt mit Vergütungsstahl	(MPa)
$\Delta p_{Hyst}$	Differenzdruck der Hystereseschleife	(bar)
$\Delta R G_m^0$	freie Reaktionsenthalpie bei Standardzustand	(J/mol)
$\lambda_{Anode}$	Lambda der Anodenseite	( - )
$\lambda_{Kathode}$	Lambda der Kathodenseite	( - )
$\nu_1$	Poisson-Zahl Körper 1 (Querkontraktionszahl)	( - )
$\nu_2$	Poisson-Zahl Körper 2 (Querkontraktionszahl)	( - )
$\phi_{Anode}$	relative Feuchte der Anodenseite	(%)
$\phi_{Kathode}$	relative Feuchte der Kathodenseite	(%)



**Abkürzungsverzeichnis**

CCM	mit Katalysator beschichtete Membran (engl.: catalyst coated membrane)
CT	Computer-Tomographie
el.	elektrisch
E-Modul	Elastizitätsmodul
FEP	Polytetrafluorethylen-Hexafluorpropylen
FKM	Fluorkautschuk
FZJ	Forschungszentrum Jülich
GDL	Gasdiffusionslage
Gew.-%	Gewichtsprozent
IEK-3	Institut für Energie- und Klimaforschung am Forschungszentrum Jülich - Elektrochemische Verfahrenstechnik
IP	in plane
4LW	Fujifilm Prescale Folie - Extrem niedriger Druck
LLLW	Fujifilm Prescale Folie - Ultrasuperniederdruck
LLW	Fujifilm Prescale Folie - Superniederdruck
LW	Fujifilm Prescale Folie - Niederdruck
MPL	Mikro-Poröse-Schicht, engl.: micro porous layer
MW	Fujifilm Prescale Folie - Mittlerer Druck
PEM	Polymer-Elektrolyt-Membran
PTFE	Polytetrafluorethylen
REM	Raster-Elektronen-Mikroskopie
rF	relative Feuchte
Stk.	Stück
TP	through plane
vgl.	vergleiche
ZEA-1	Zentralinstitut für Engineering, Elektronik und Analytik am Forschungszentrum Jülich - Engineering und Technologie



**Anhang**

## zu Kapitel 3.2.1 Universal-Materialprüfmaschine zur Ermittlung von Materialkennwerten

Berechnung der maximal auftretenden Spannung einer Hertzschen Pressung für gehärteten Einsatzstahl:

1.  $E^*$  für Vergütungsstahl mit Formel 3.3:

$$E^* = \frac{2 * 210.000 \frac{N}{mm^2} * 210.000 \frac{N}{mm^2}}{(1 - 0,3^2) * 210.000 \frac{N}{mm^2} + (1 - 0,3^2) * 210.000 \frac{N}{mm^2}} = 230.769 \frac{N}{mm^2}$$

2.  $r$  mit  $r_2 = 15 \text{ mm}$  und Formel 3.4:

$$\begin{aligned} \lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{r_1 r_2}{r_1 + r_2} \right) &= \text{L'Hospital} \lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{\frac{d}{dr_1} r_1 r_2}{\frac{d}{dr_1} (r_1 + r_2)} \right) = \lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{r_2}{1} \right) = r_2 \\ &\Rightarrow r = r_2 = 15 \text{ mm} \end{aligned}$$

3.  $a$  für Vergütungsstahl mit Formel 3.2:

$$a = \sqrt[3]{\frac{3 * 5.000 \text{ N} * 15 \text{ mm}}{2 * 230.769 \frac{N}{mm^2}}} = 0,787 \text{ mm}$$

4.  $\sigma_{max}$  für Vergütungsstahl mit Formel 3.1:

$$\sigma_{max, \text{Vergütungsstahl}} = \frac{3 * 5.000 \text{ N}}{2 * \pi * (0,787 \text{ mm})^2} = 3.854 \frac{N}{mm^2}$$

Berechnung der maximal auftretenden Spannung einer Hertzschen Pressung für eine Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) Keramik:

1.  $E^*$  für  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit Formel 3.3:

$$E^* = \frac{2 * 380.000 \frac{N}{\text{mm}^2} * 380.000 \frac{N}{\text{mm}^2}}{(1 - 0,19^2) * 380.000 \frac{N}{\text{mm}^2} + (1 - 0,19^2) * 380.000 \frac{N}{\text{mm}^2}} = 394.232 \frac{N}{\text{mm}^2}$$

2.  $r$  mit  $r_2 = 15 \text{ mm}$  und Formel 3.4:

$$\lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{r_1 r_2}{r_1 + r_2} \right) \stackrel{! \text{Hospital}}{=} \lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{\frac{d}{dr_1} r_1 r_2}{\frac{d}{dr_1} (r_1 + r_2)} \right) = \lim_{r_1 \rightarrow \infty} \left( \frac{r_2}{1} \right) = r_2$$

$$\Leftrightarrow r = r_2 = 15 \text{ mm}$$

3.  $a$  für  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit Formel 3.2:

$$a = \sqrt[3]{\frac{3 * 5000 \text{ N} * 15 \text{ mm}}{2 * 394.232 \frac{N}{\text{mm}^2}}} = 0,658 \text{ mm}$$

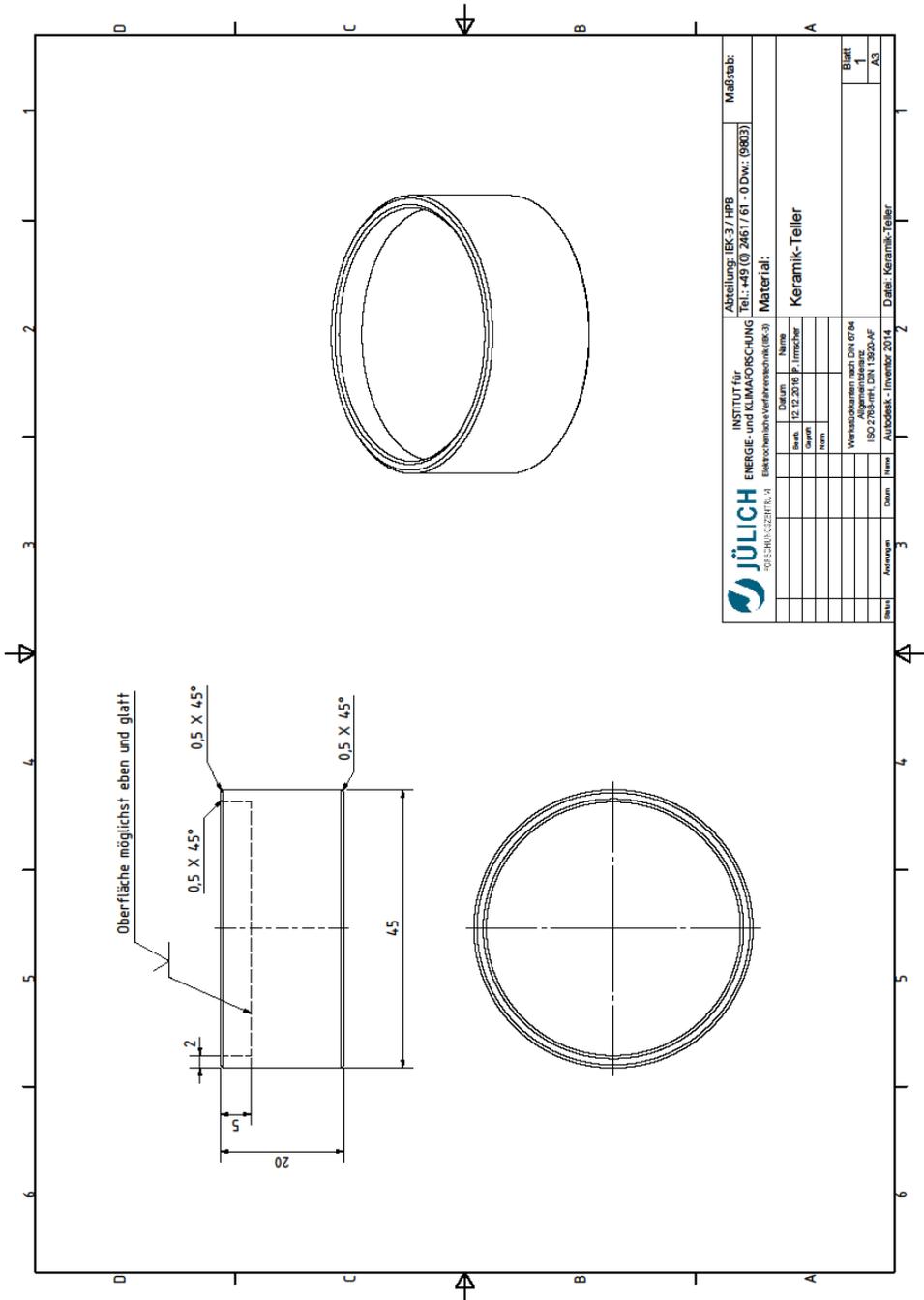
4.  $\sigma_{max}$  für  $\text{Al}_2\text{O}_3$ :

$$\sigma_{max, \text{Al}_2\text{O}_3} = \frac{3 * 5000 \text{ N}}{2 * \pi * (0,658 \text{ mm})^2} = 5513 \frac{N}{\text{mm}^2}$$

5. Bedingung  $\sigma_{max} \stackrel{!}{=} 4000 \frac{N}{\text{mm}^2}$ :

$$F_{max, \text{Al}_2\text{O}_3} = \frac{4000 \frac{N}{\text{mm}^2} * 2 * \pi * (0,658 \text{ mm})^2}{3} = 3627 \text{ N}$$





**Abbildung A2:** Oberer Stempel der Ausgleichelemente mit Napf zur Aufnahme von Wasser für Messungen mit Feuchte Einfluss

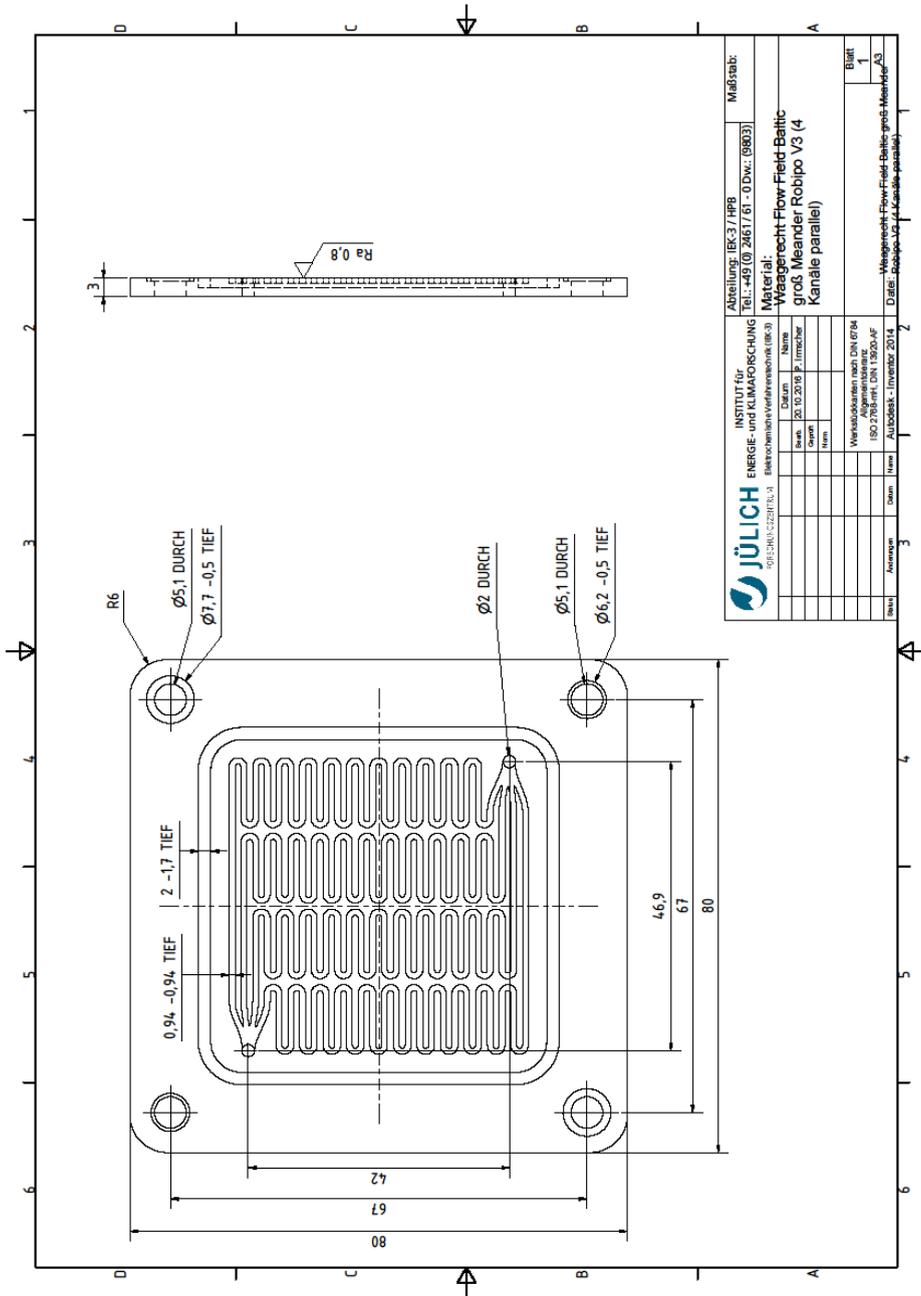
<b>JÜLICH</b> <small>FORSCHUNGSZENTRUM</small>		INSTITUT für <b>ENERGIE- und KLIMAFORSCHUNG</b> <small>Elektrotechnische Verfahrenstechnik (EE-3)</small>		Abteilung: EE-3 / HFB Teil: 442 (0) 2463 / 61 - 0 Dvr.: (9803)		Maßstab: 1	
		Datum: _____ Name: _____ Berechnung: _____ Gezeichnet: _____ Geprüft: _____		Material: Keramik-Teller		Blatt: 1 A3	
Wertschöpfungskette nach DIN EN 15027:2010-01 Allgemeine Norm: DIN EN 15027:2010-01 Autorschaft: Inventor 2014		Datum: _____ Name: _____ Berechnung: _____ Gezeichnet: _____ Geprüft: _____		Datum: _____ Name: _____ Berechnung: _____ Gezeichnet: _____ Geprüft: _____		Datum: _____ Name: _____ Berechnung: _____ Gezeichnet: _____ Geprüft: _____	



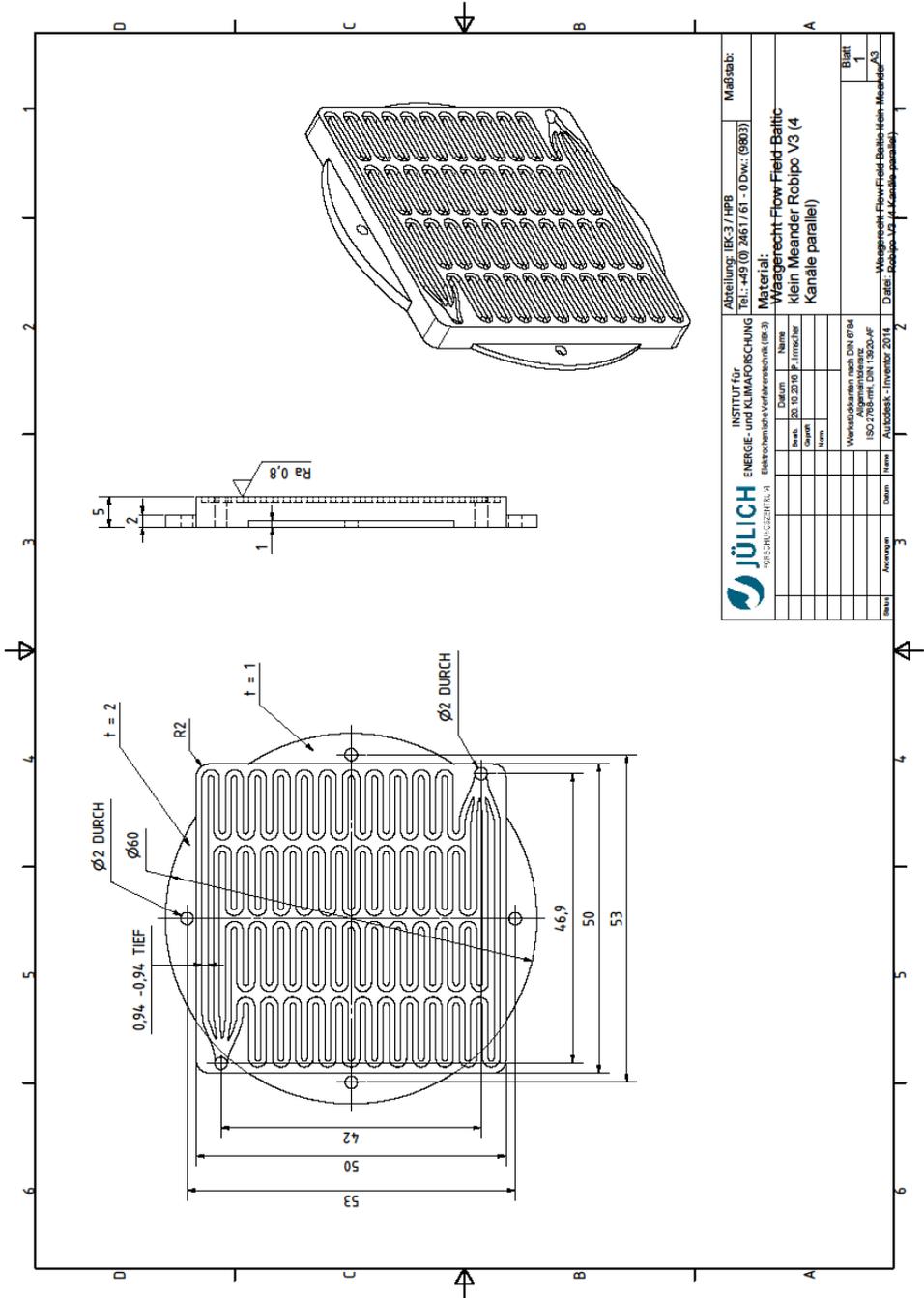
### zu 3.3.1 Zelleistung in Abhängigkeit des Anpressdrucks

Berechnung des Druck-Korrekturwertes zur Bestimmung des tatsächlichen Anpressdrucks auf der aktiven Fläche unter Berücksichtigung der Reibung:

$$\begin{aligned} p_{\text{Korrektur}} &= \frac{F_{\text{Reib}}}{A_{\text{akt. Fl.}}} = \frac{1}{2} \Delta p_{\text{Hyst}} \frac{A_{\text{Kolben}}}{A_{\text{akt.Fl.}}} \\ &= \frac{1}{2} * 0,02 \frac{\text{N}}{\text{mm}^2} * 3,14 \\ &= 0,0314 \text{ N/mm}^2 \end{aligned}$$



**Abbildung A3:** Kathoden Flowfield für Versuche zur Leistungsmessung mit Baltic qCf FC25 Zelle



 <b>JÜLICH</b> ENERGIE- und KLIMAFORSCHUNG FÖRSCHEUNGSZENTRUM		Abteilung: BEC.3 / HBR Teil: 442 (0 2461 / 61 - 0 Div.: 5803)	Maßstab: 1:1
Institut für Elektrochemieverfahrenstechnik (BE-3)		Material: Waagrecht-Flow-Field-Baltic Klein Meander Robiplo V3 (4 Kanäle parallel)	
Bezeichnung 20.10.2019	Name J. Irmscher		
Datum 20.10.2019			
Entwurf J. Irmscher			
Zeichnung J. Irmscher			
Werkstoffangaben nach DIN 6754 Allgemeine Normen ISO 2768-MT, DIN 15204-AF			
Autorisiert: Inventor 2014			
Blatt 1			
Datum 20.10.2019			
Name J. Irmscher			
Abteilung BEC.3 / HBR			
Institut BE-3			

Abbildung A4: Anoden Flowfield für Versuche zur Leistungsmessung mit Baltic qCf FC25 Zelle



zu Kapitel 3.4.2 Probenherstellung

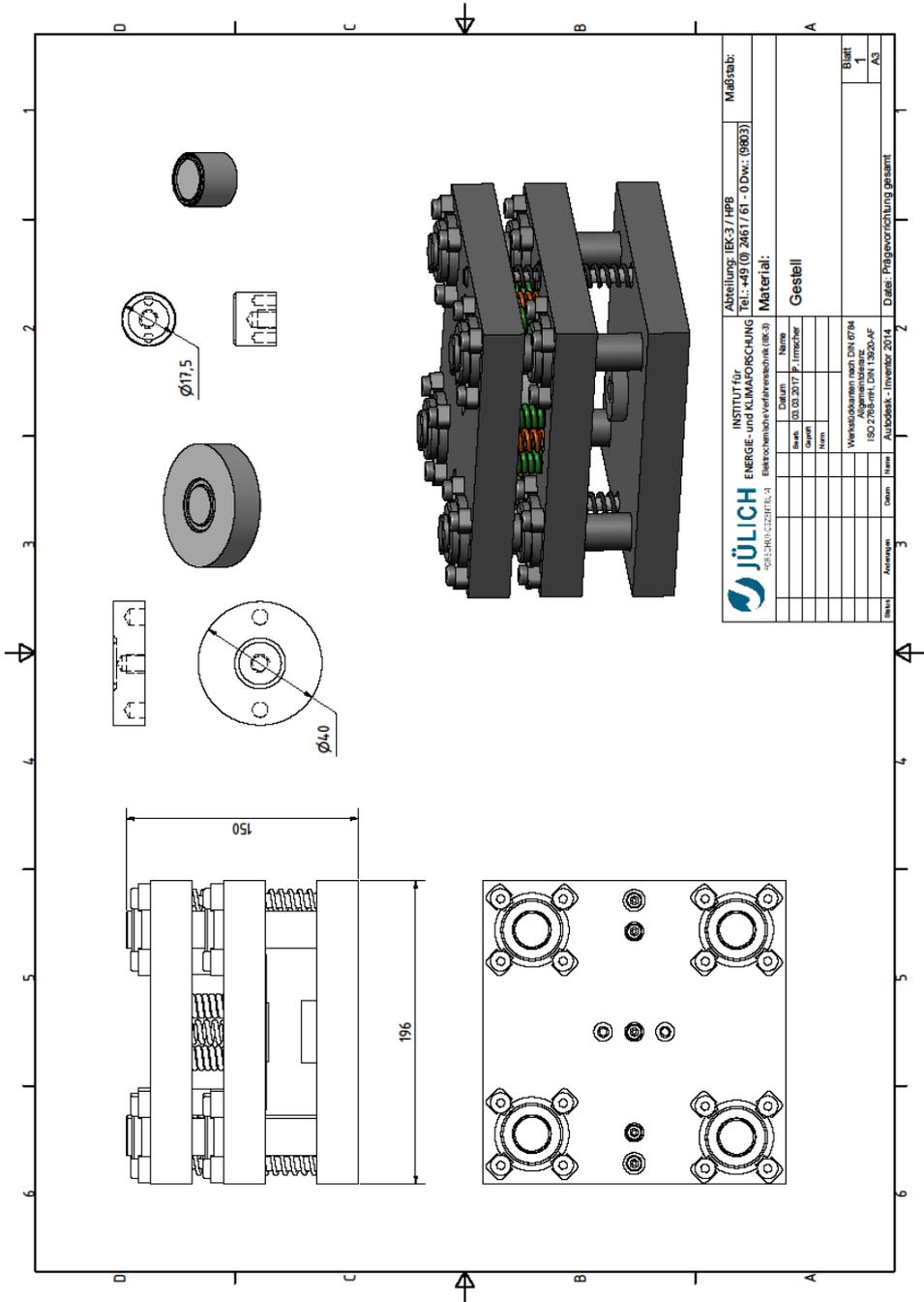


Abbildung A5: Tiefziehvorrichtung - Übersichtsdarstellung

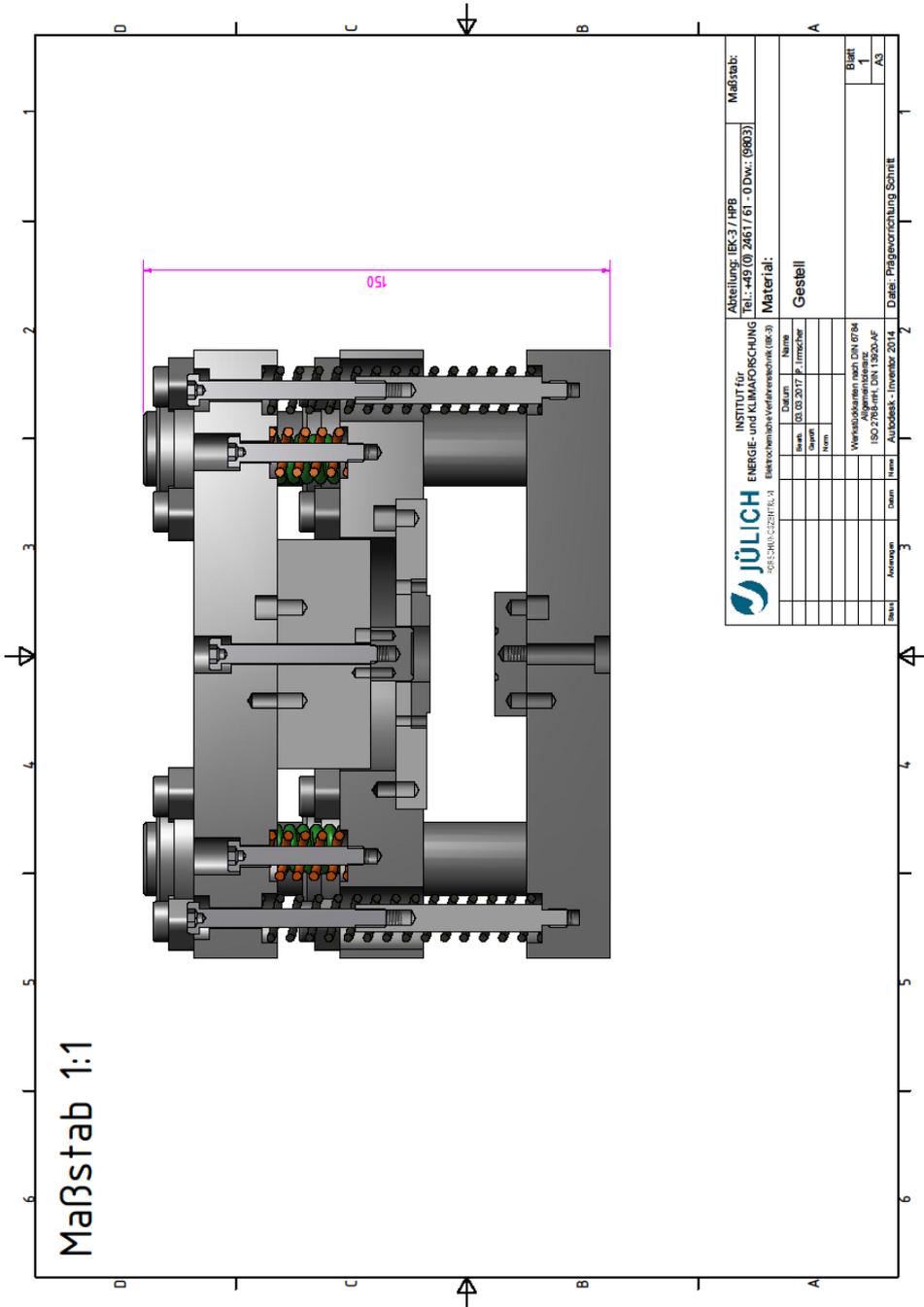
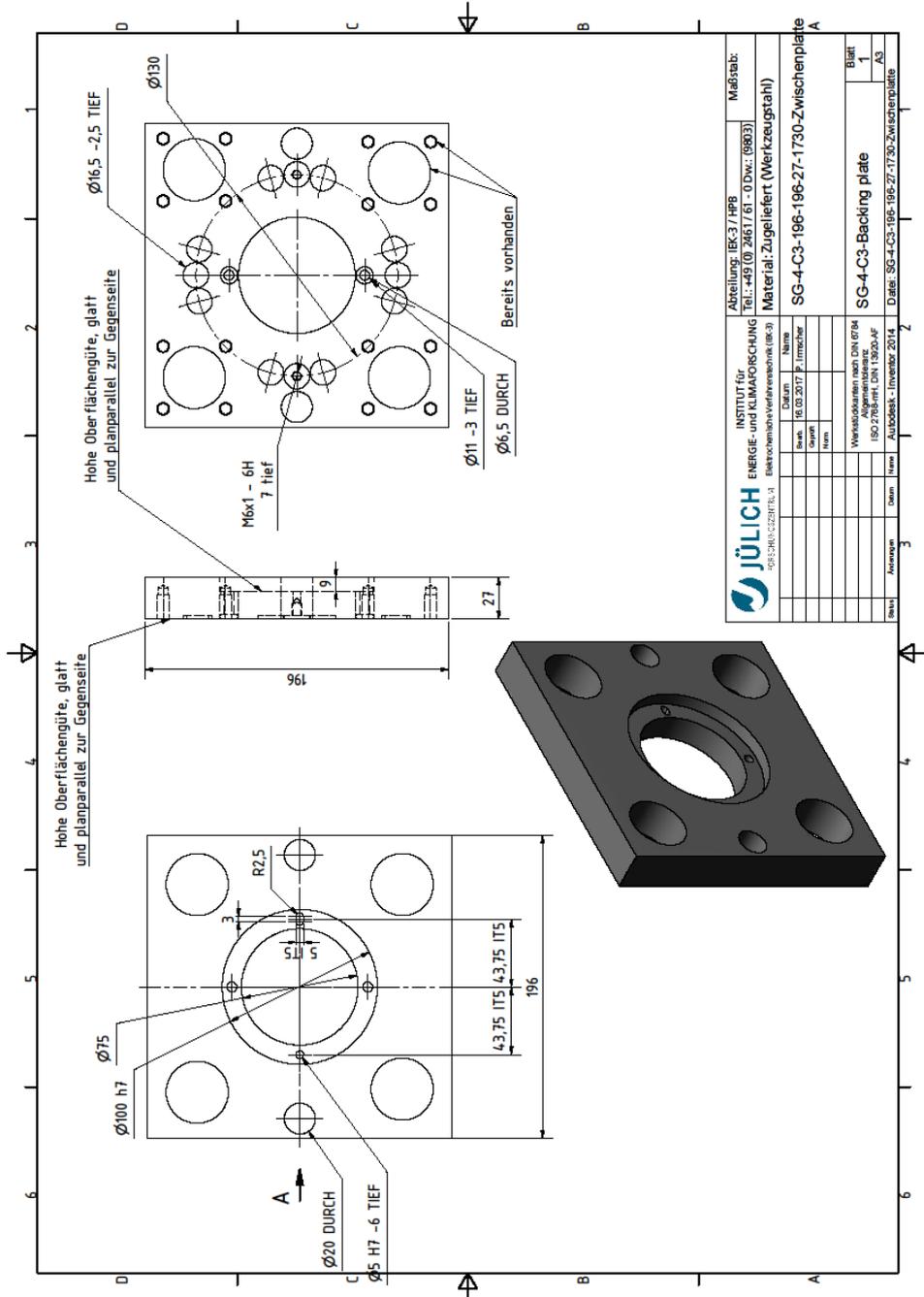


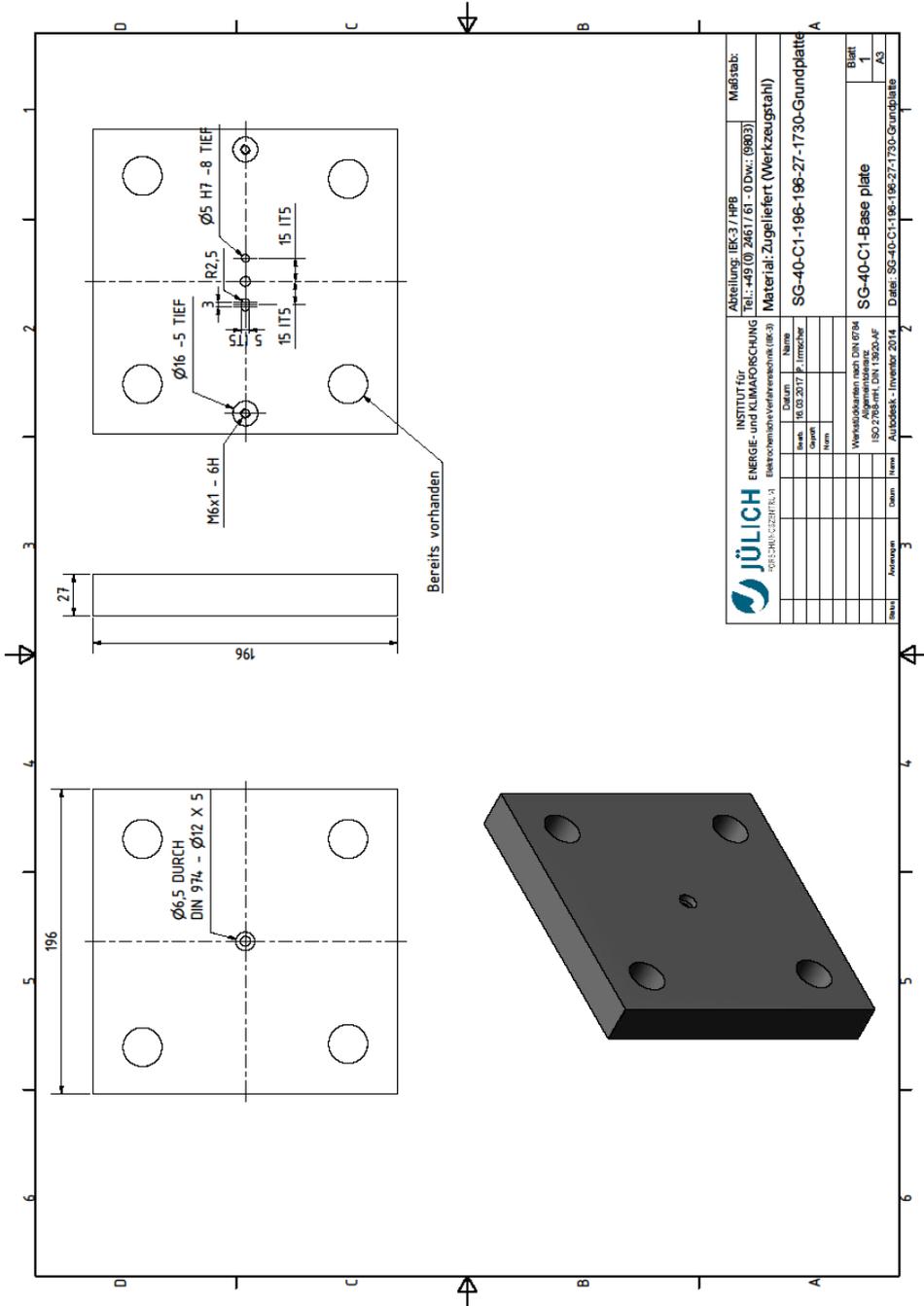
Abbildung A6: Tiefziehvorrichtung - Schnittdarstellung





<b>JÜLICH</b> <small>RESEARCH CENTER</small>		INSTITUT für <b>ENERGIE- und KLIMAFORSCHUNG</b> <small>Electronenbeschleunigeranlage (EB-3)</small>		Abteilung: IBC.3 / HPR Teil: 48 (0) 266 / 61 - 0 Doc: 9803	Maßstab: Material: zugeliefert (Werkzeugstahl)
Name: _____ Datum: _____ Rev. 16.03.2017 p. / r/mchler erstellt geprüft freigegeben		Material: _____ Werkstoffnorm nach DIN 9744 Allgemeinzugabe: ISO 2768-RT, DIN 15000-AF		SG-4-C3-196-196-27-1730-Zwischenplatte Blatt 1 A3	
Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____	Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____	Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____	Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____	Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____	Datum: _____ Autor: _____ Freigegeben: _____

**Abbildung A8:** Mittlere Niederhalte-Platte der Tiefziehvorrichtung mit Bohrungen zur Aufnahme des Niederhalters und der Federpakete





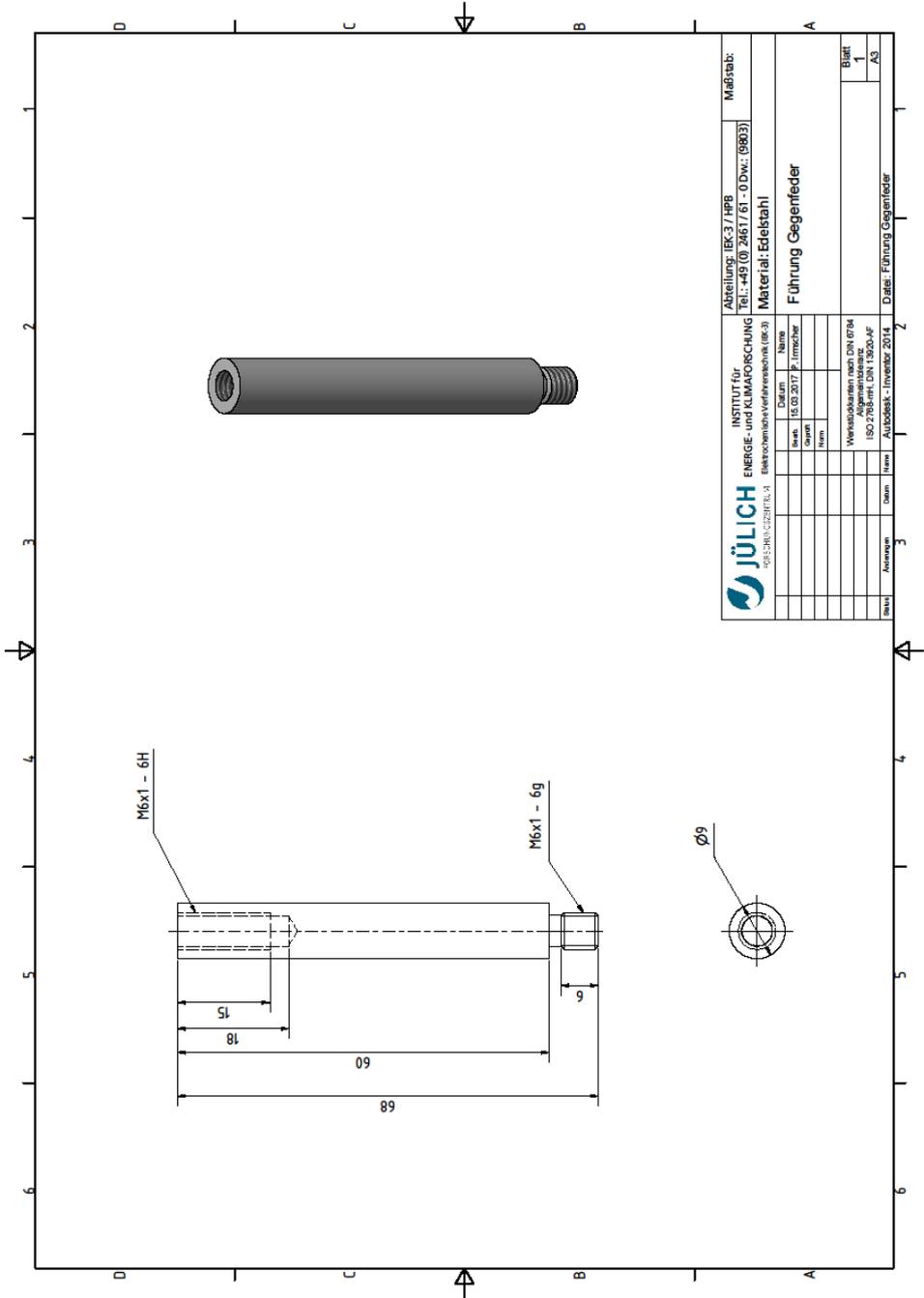
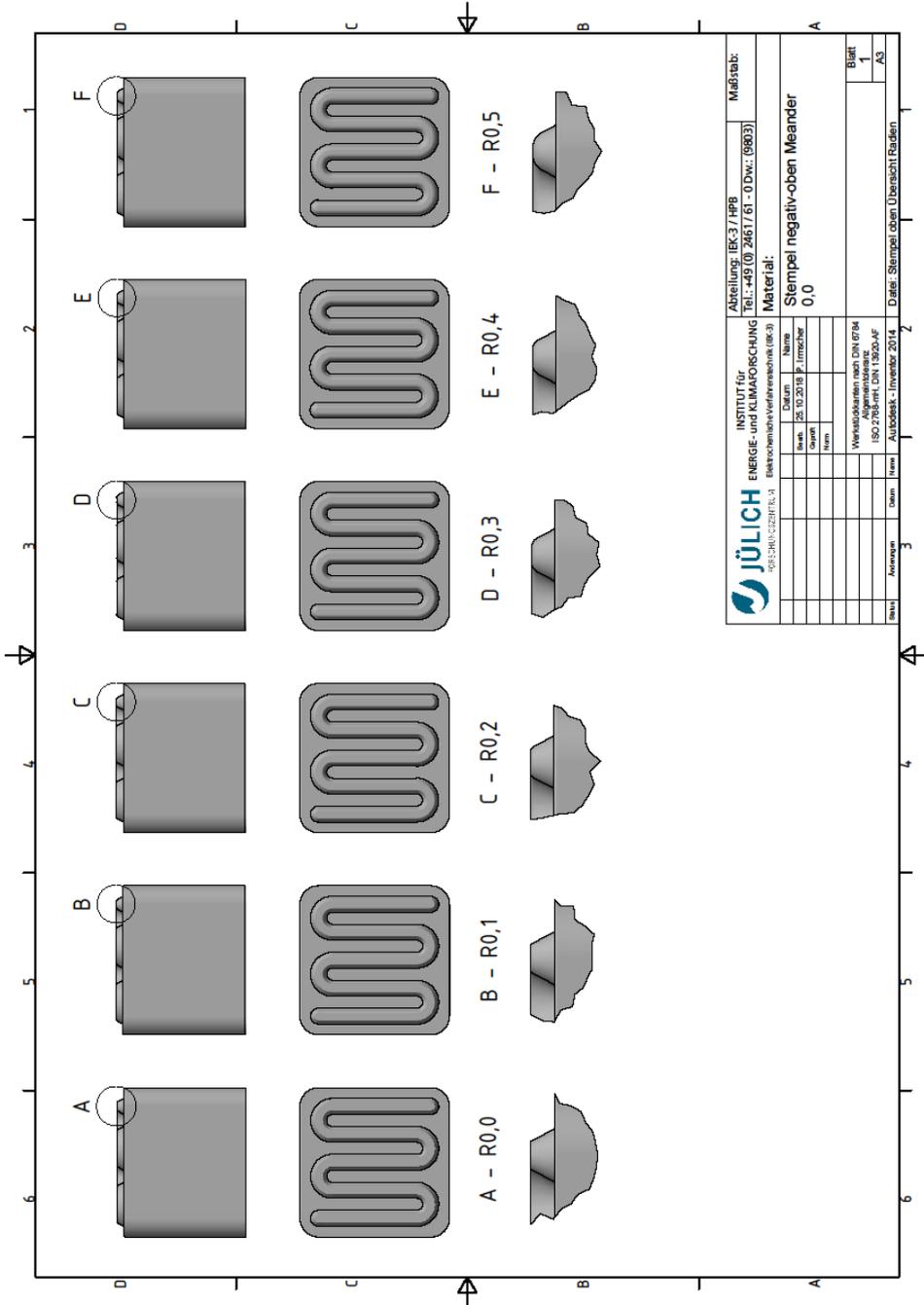


Abbildung A11: Führungsstift zur Fixierung der Gegenfedern der Tiefziehvorrichtung





**Abbildung A13:** Übersicht der oberen Tiefziehwerkzeuge mit Variation des Kantenradius

<b>JÜLICH</b> <small>FORSCHUNGSZENTRUM</small>		INSTITUT für <b>ENERGIE- und KLIMAFORSCHUNG</b> <small>Elektrotechnische Verfahrenstechnik (EE-3)</small>		Abteilung: EE-3 / HPR Tel.: +49 (0) 2461 / 61 - 0 Dvr.: (9803)	Maßstab: 1:1
Name: Datum: Bearb.: 28.10.2019 Gezeichnet: Von:		Material: Stempel negativ-oben Meander 0,0		Werkstoffkennlinie nach DIN 6754 Allgemeine Norm: ISO 2768-rt, DIN 15203-AF Autobest.- Inventar 2014	
Blatt	1	Datei		Stempel oben Übersicht Radien	
A3		3		Z	

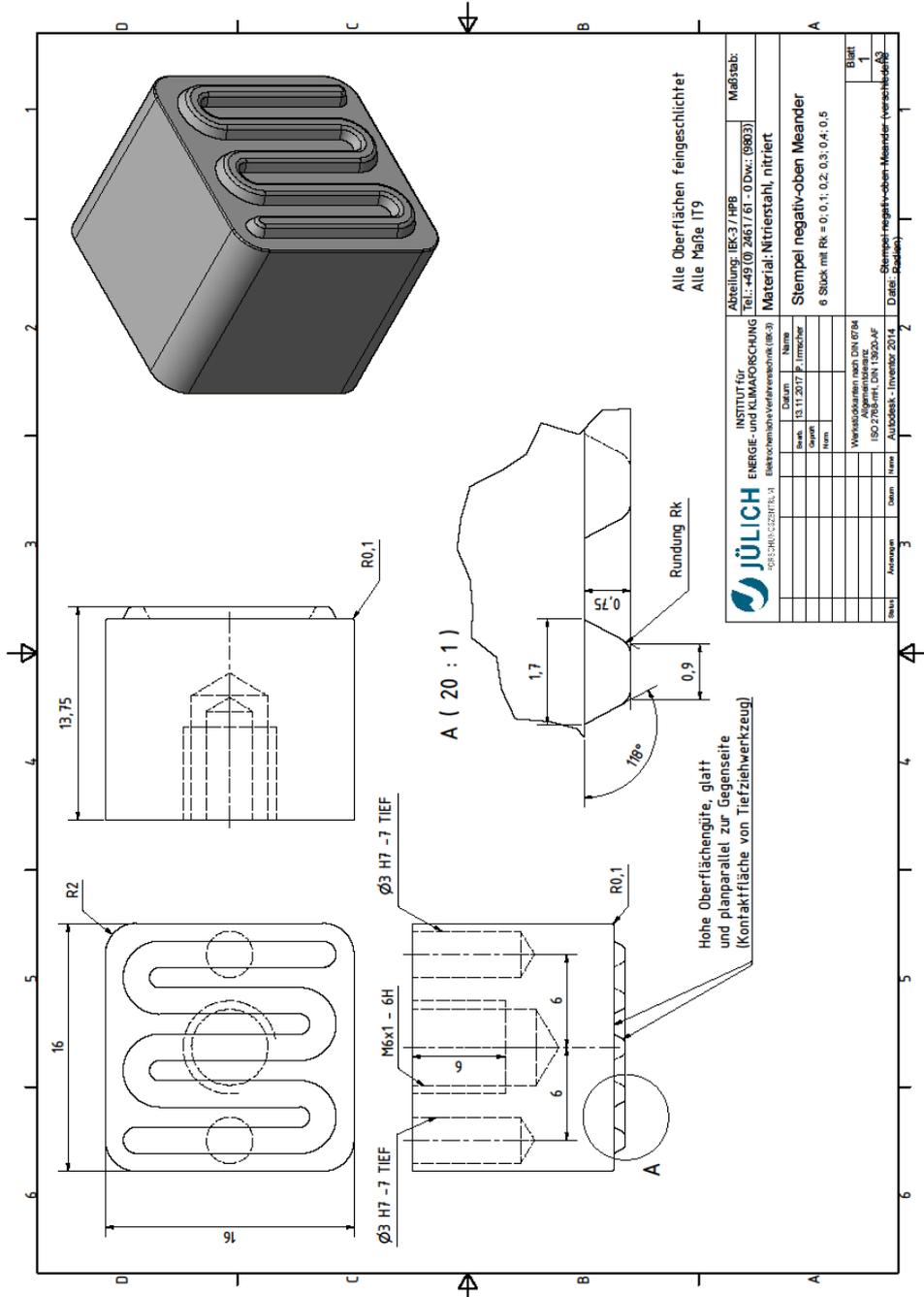


Abbildung A14: Oberes Tiefziehwerkzeug - Stellvertretend mit Kantenradius  $R_k$

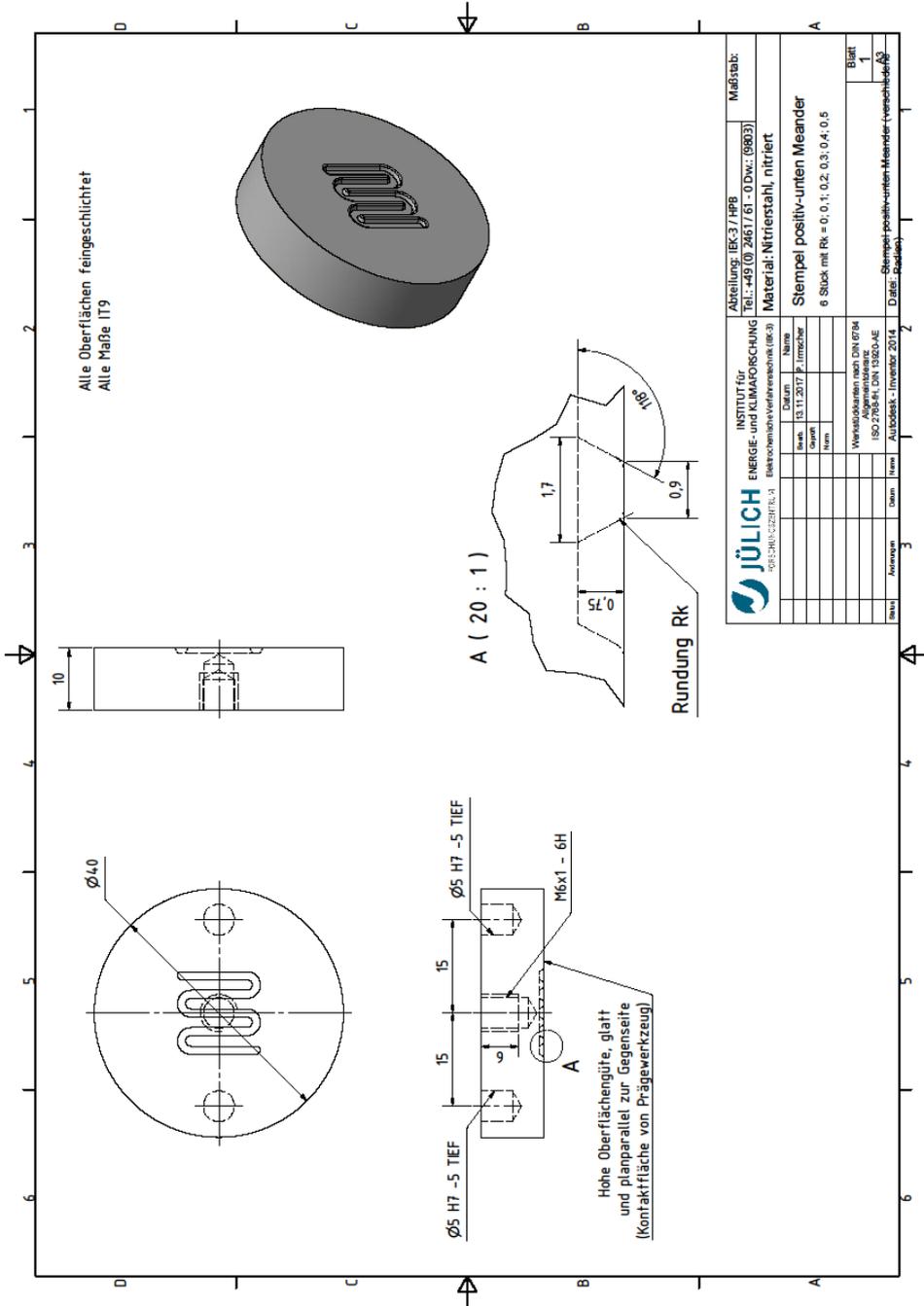


Abbildung A15: Unteres Tiefziehwerkzeug - Stellvertretend mit Kantenradius  $R_k$

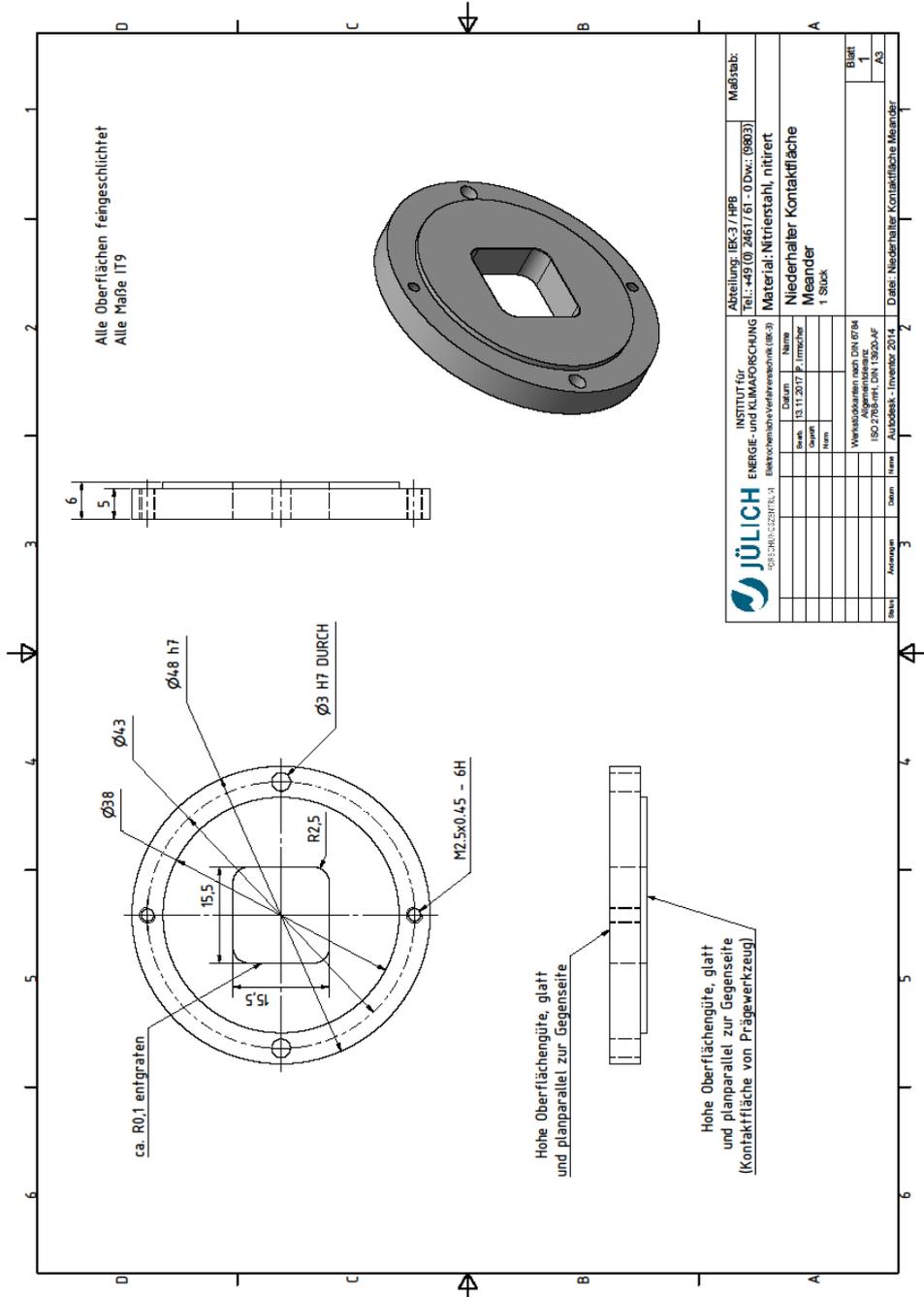
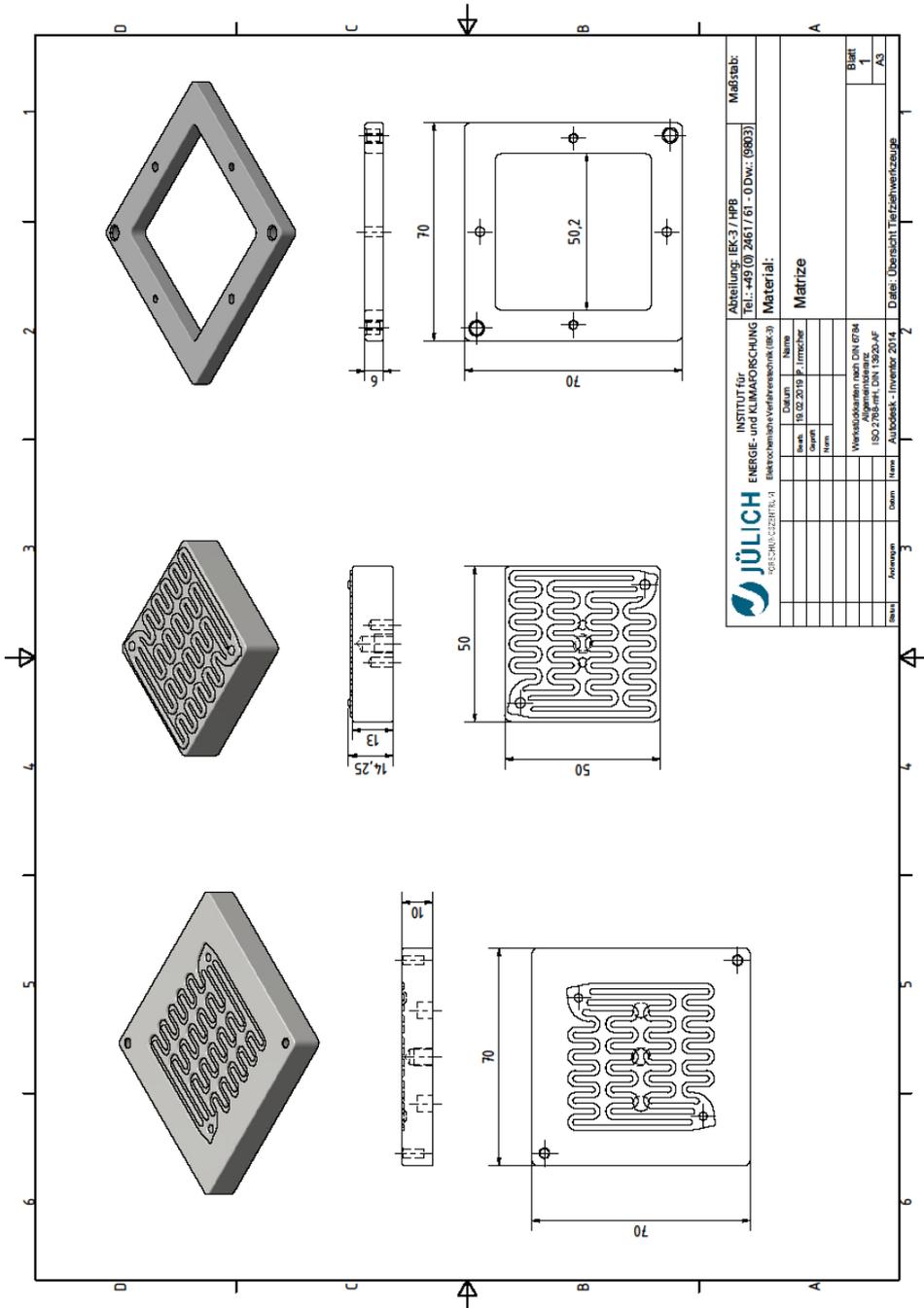
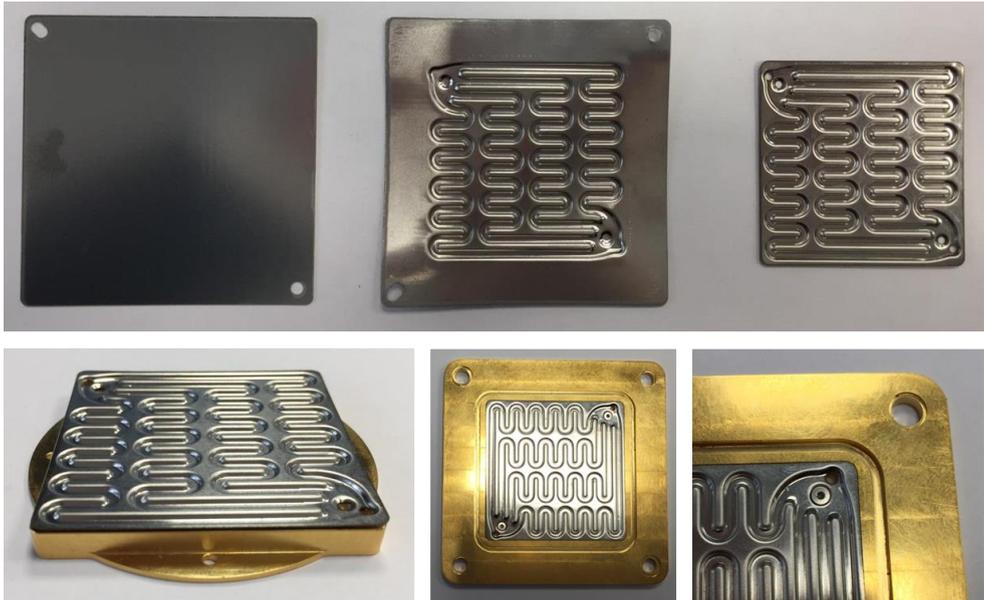


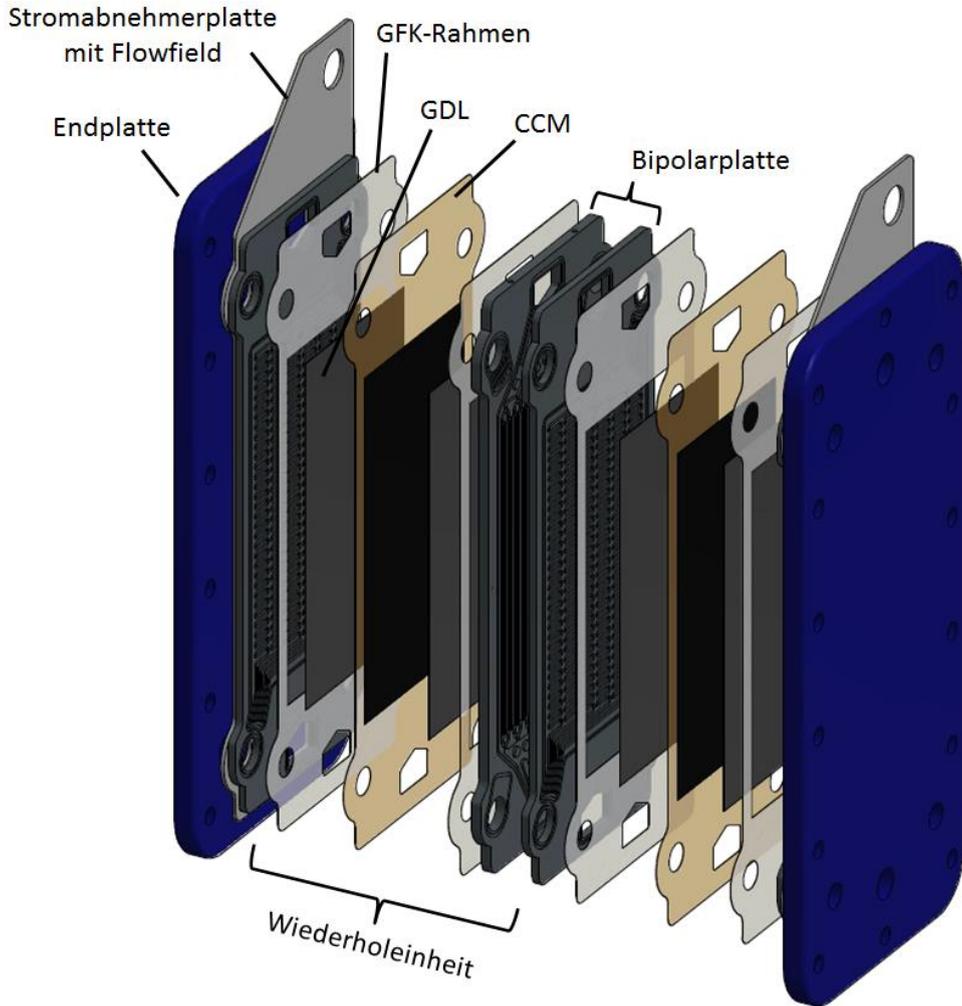
Abbildung A16: Niederhalter der Tiefziehvorrichtung



**Abbildung A17:** Übersichtsdarstellung der Tiefziehwerkzeuge zur Herstellung eines funktionierenden, tiefgezogenen metallischen Flowfields mit 25 cm<sup>2</sup> aktiver Fläche



**Abbildung A18:** Tiefgezogenes Flowfield in Edelstahl (1.4404/316L) mit 0,2 mm Dicke (Copyright: Forschungszentrum Jülich GmbH)

**zu Kapitel 3.4.3 Getestete Short-Stacks**

**Abbildung A19:** Graphitischer Stackaufbau im RoBiPo-Design



zu Kapitel 4.1 GDL-Materialien unter Druckbeanspruchung:  
Spannungs-Stauchungs-Diagramme

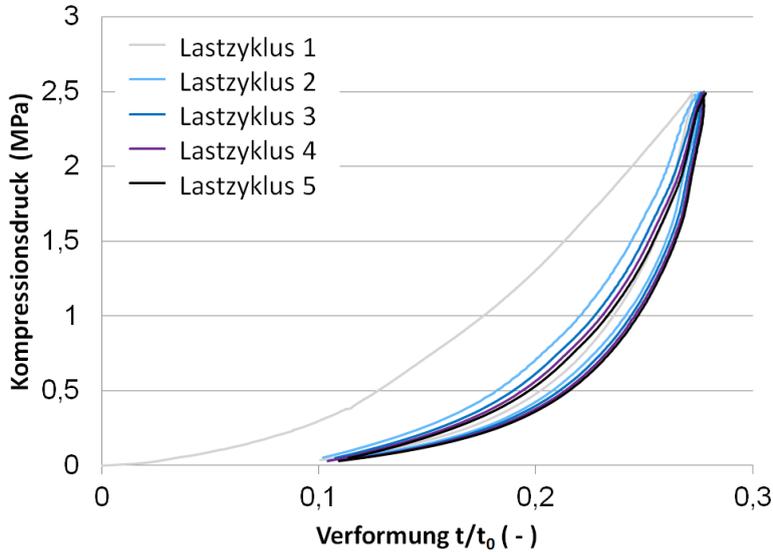


Abbildung A20: 5 Kompressionszyklen des Toray TGP H 060 GDL Materials

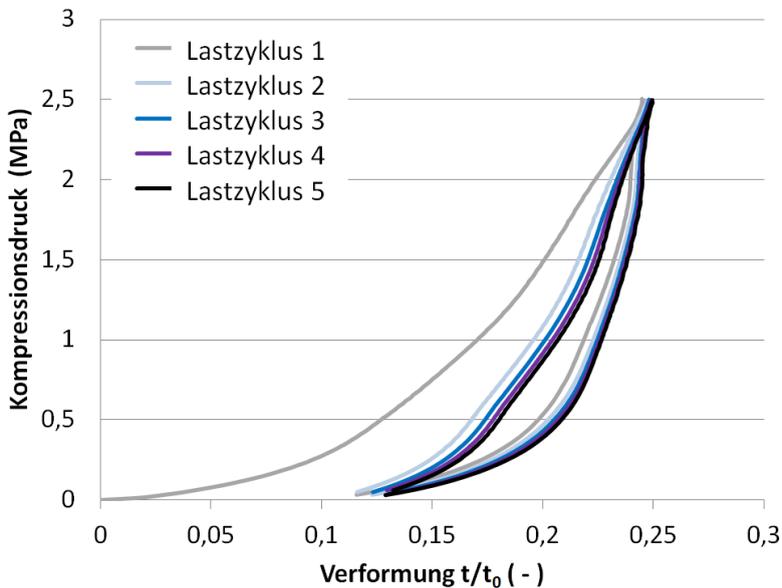
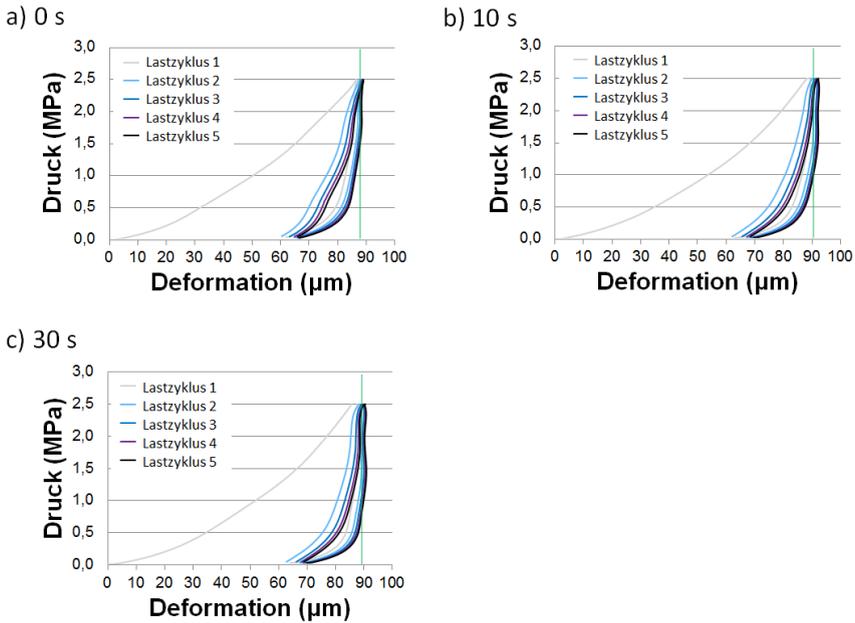
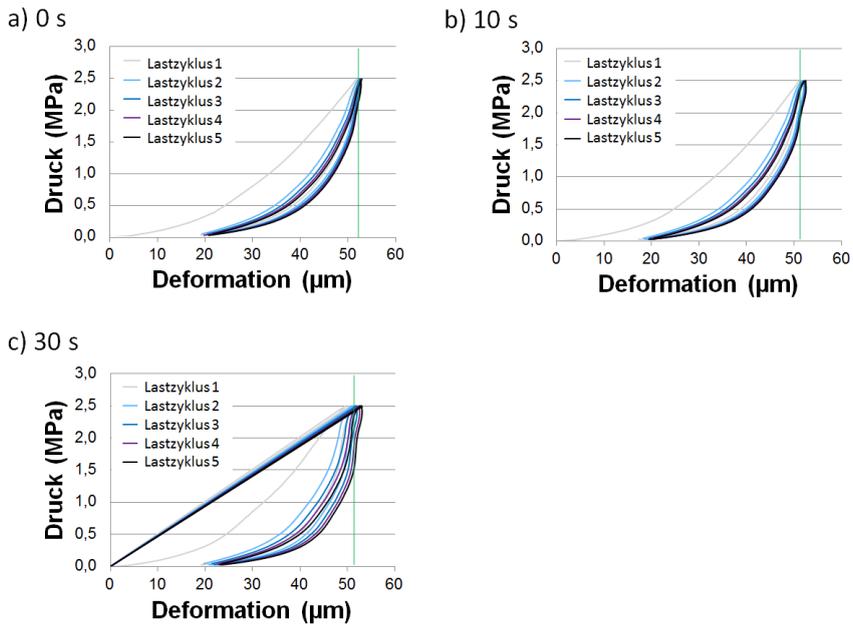


Abbildung A21: 5 Kompressionszyklen des Freudenberg H2315 C2 GDL Materials

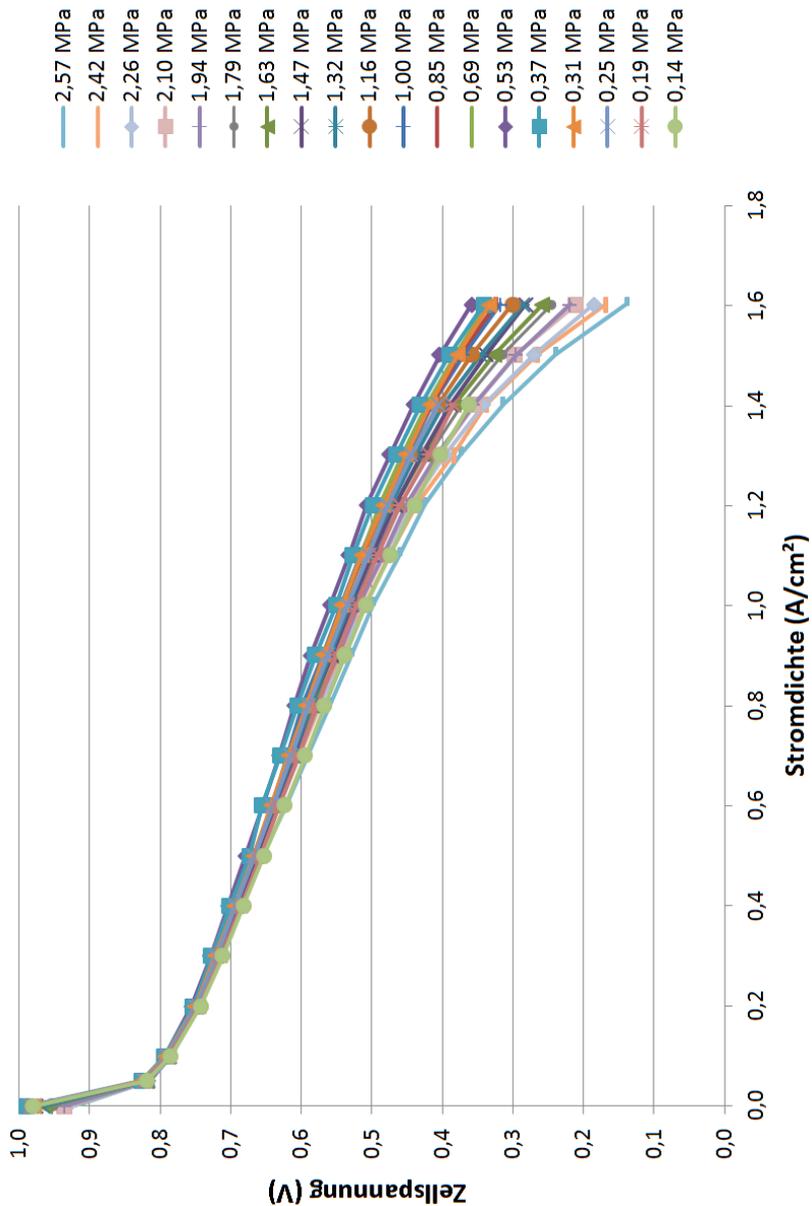


**Abbildung A22:** Belastungszeit Variation SGL 29BC - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden

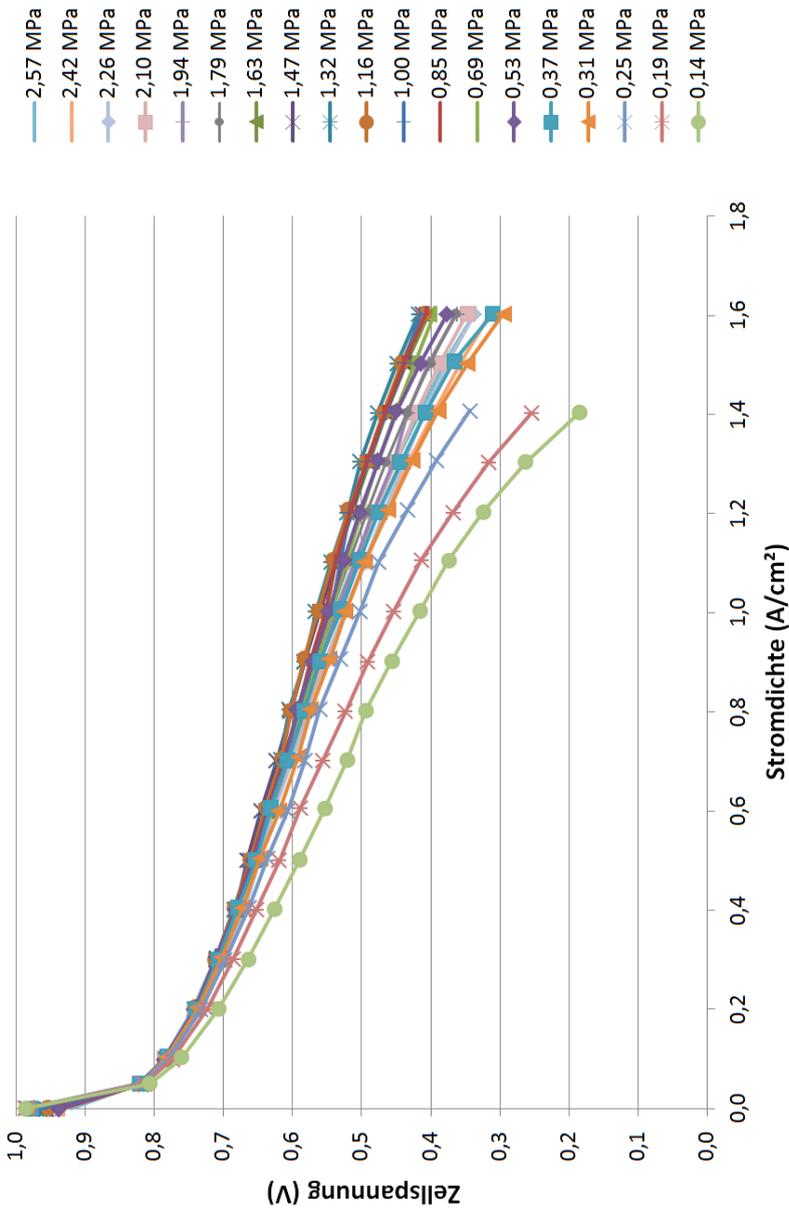


**Abbildung A23:** Belastungszeit Variation Toray TGP H 060 - Haltedauer der Last von 2,5 MPa für a) 0 Sekunden b) 10 Sekunden c) 30 Sekunden

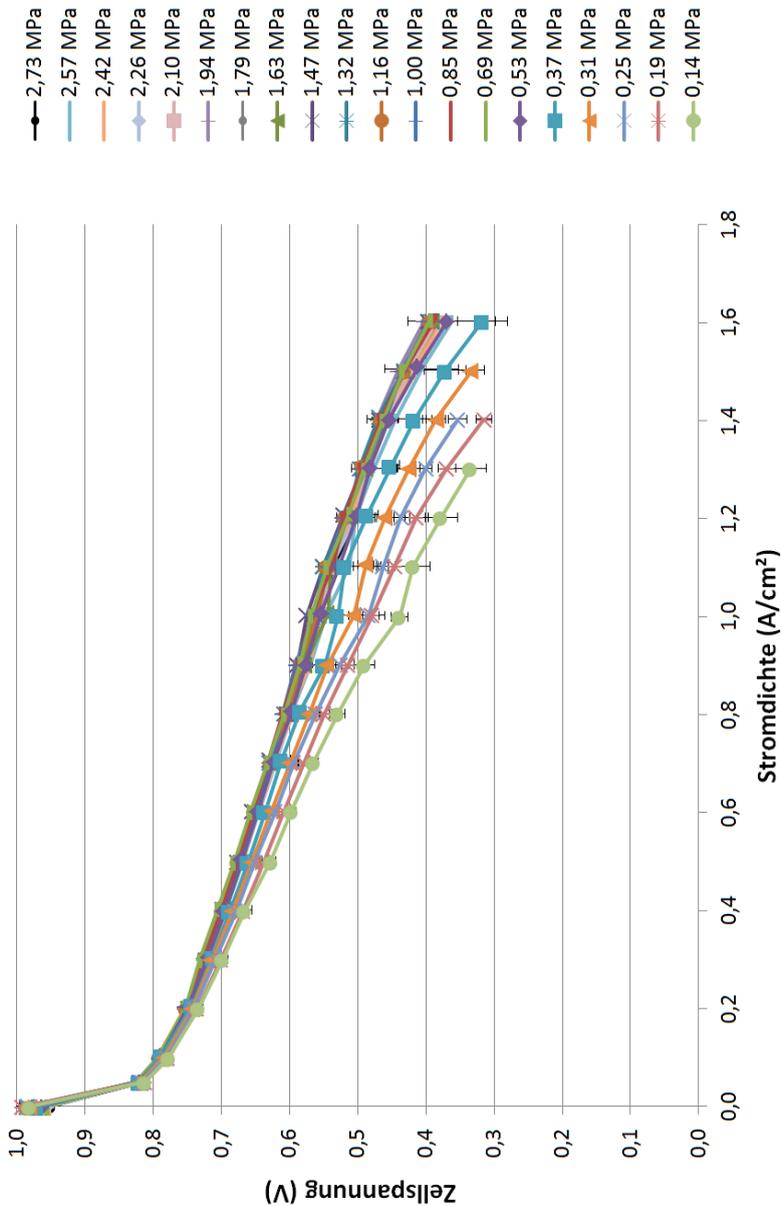
## zu Kapitel 4.3 Leistung einer Einzelzelle unter Variation des Anpressdrucks



**Abbildung A24:** Polarisationkurven mit SGL 29BC GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ ,  $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C)

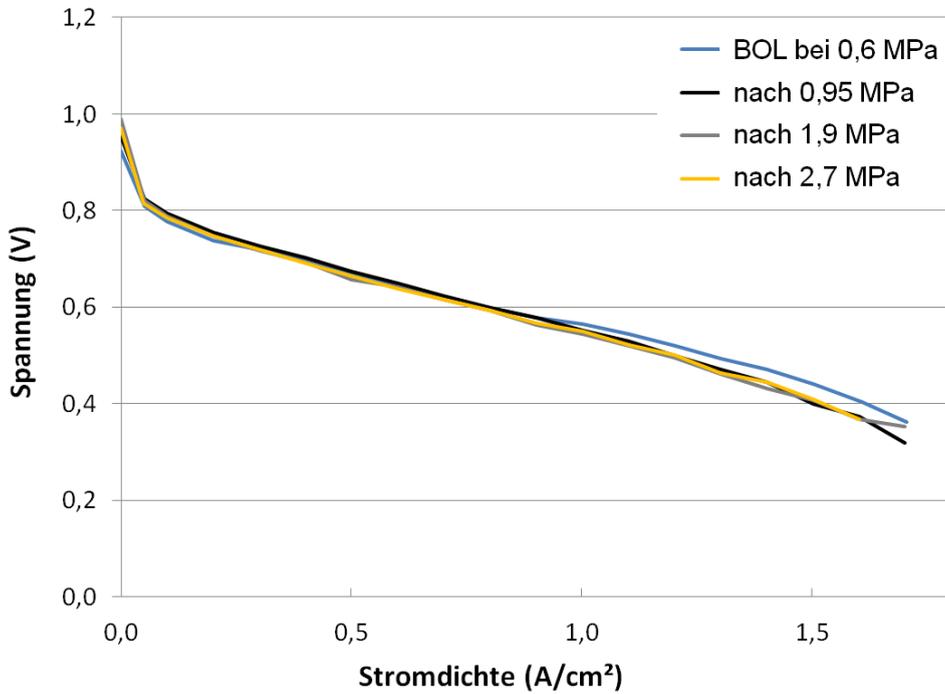


**Abbildung A25:** Polarisationkurven mit Toray TGP-H 060 GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ ,  $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C)



**Abbildung A26:** Polarisationskurven mit Freudenberg H2315 C2 GDL bei verschiedenen Anpressdrücken ( $\lambda_{\text{Anode}} = 2$ ,  $\lambda_{\text{Kathode}} = 2,5$ , Rel. Feuchte 60 %, 70 °C) - mit Standardabweichung

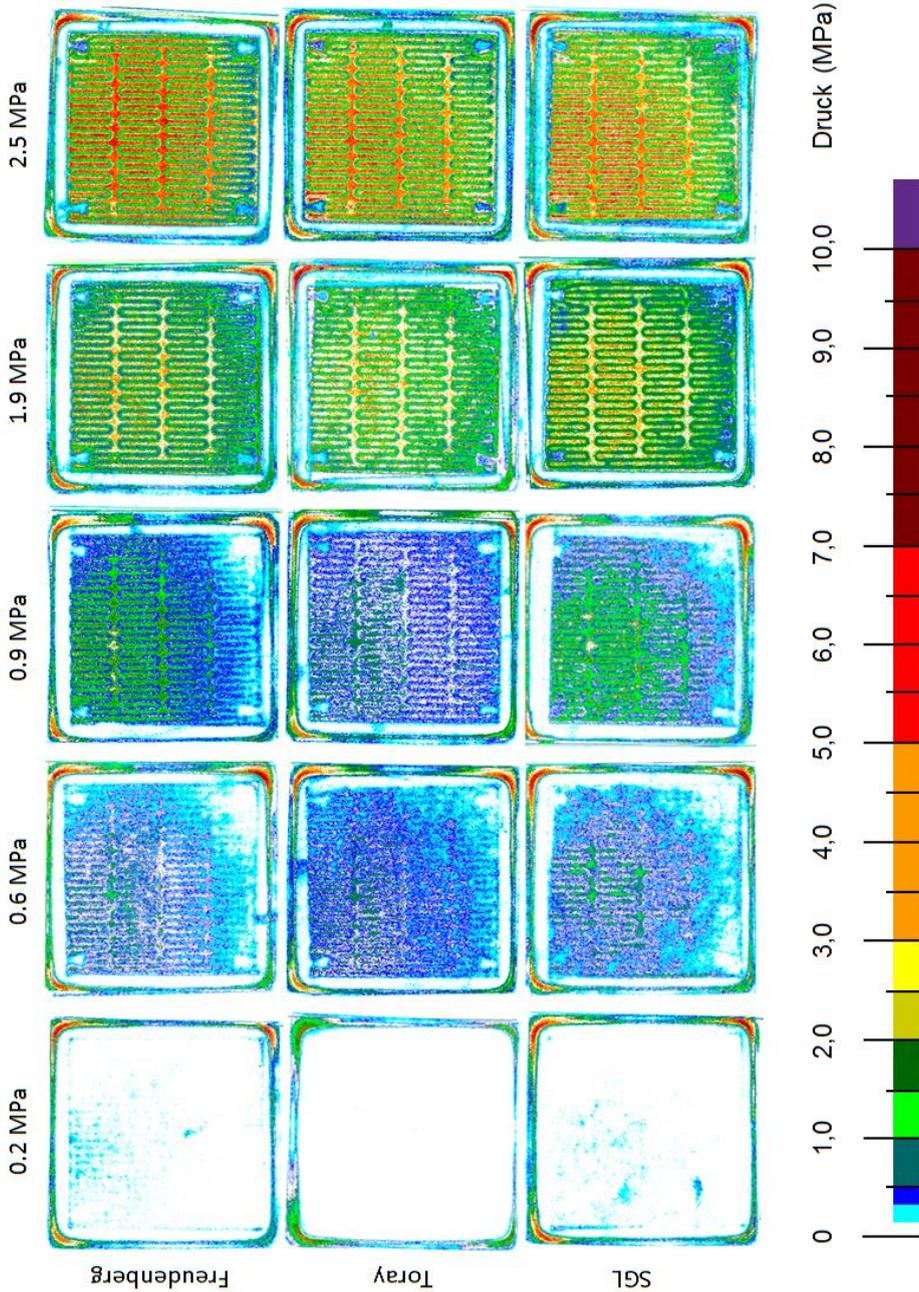


**zu Kapitel 4.3.3 GDL-Vlies mit MPL: Freudenberg H2315 C:**

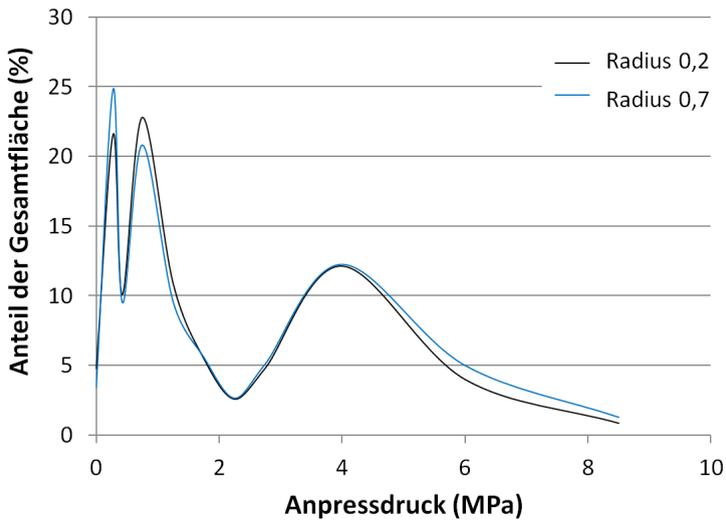
**Abbildung A27:** Referenzmessungen bei 0,6 MPa nach den jeweiligen Druckstufen 0,95 MPa, 1,9 MPa und 2,7 MPa für die Testzelle mit Freudenberg GDL H2315 C2



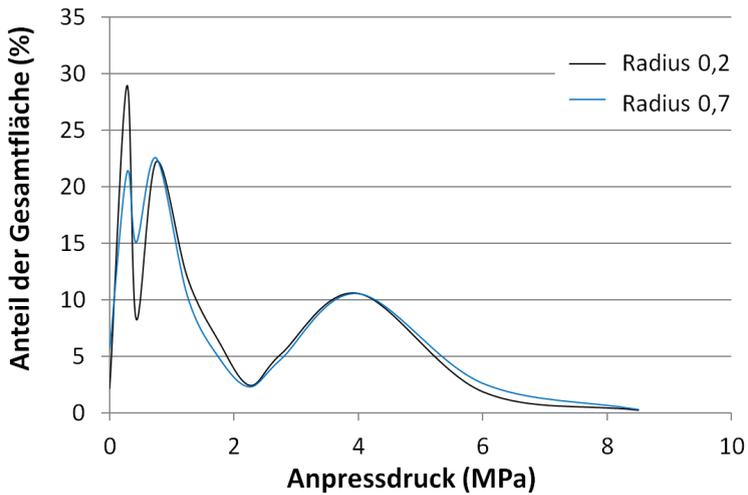
zu Kapitel 4.4 Lokale Druckverteilung unter Kanal und Steg



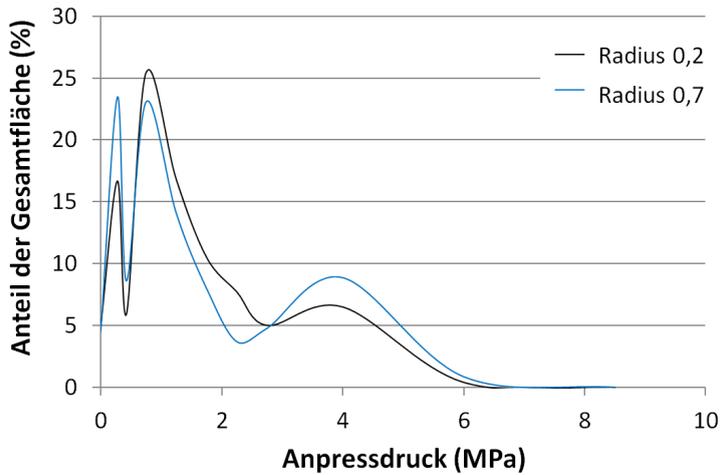
**Abbildung A28:** Druckverteilungen in der quickCONNECTfixture der Firma Baltic Fuel Cells GmbH zur Anpressdruckabhängigen Leistungsmessung



**Abbildung A29:** Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für Freudenberg H2315 C2 - Grafische Auswertung



**Abbildung A30:** Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für Toray TGP-H 060 - Grafische Auswertung



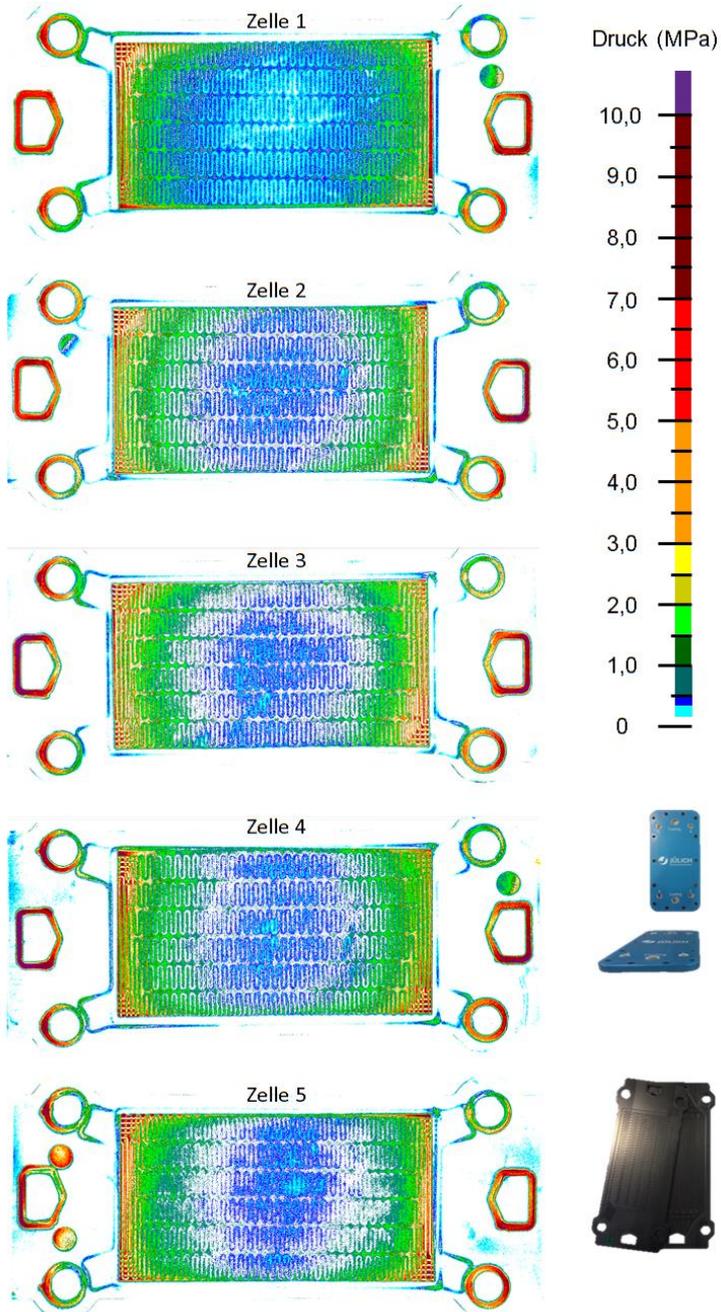
**Abbildung A31:** Einfluss des Stegkantenradius auf die Druckverteilung für SGL 29BC  
- Grafische Auswertung

**Tabelle A1:** Genauigkeit der graphischen Auswertung der Fujifilm Prescale Druckmessfolien

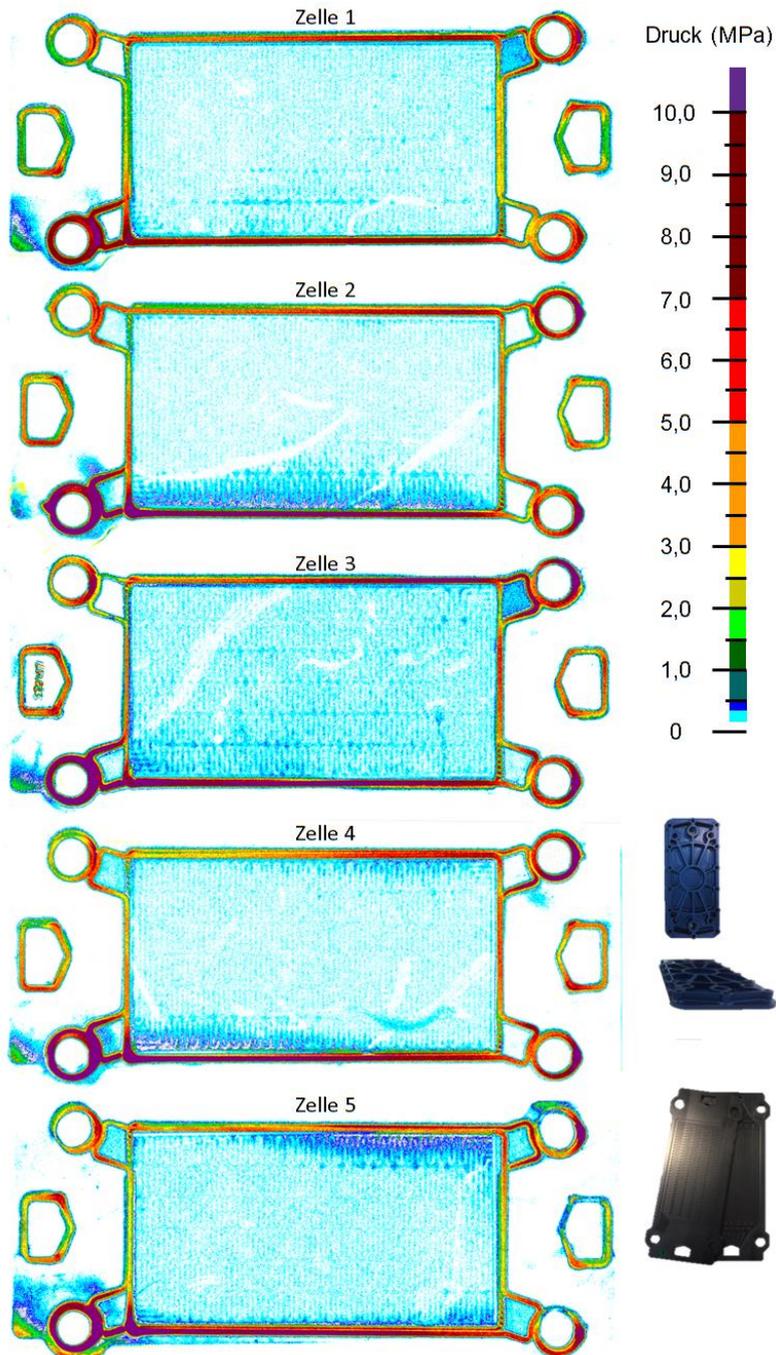
Sollwert durchschnittlicher Druck (MPa)	SGL 29BC		Toray TGP-H 060		Freudenberg H2315 C2	
	Graphische Auswertung Druck (MPa)	Abweichung	Graphische Auswertung Druck (MPa)	Abweichung	Graphische Auswertung Druck (MPa)	Abweichung
0,6	0,38	0,37	0,40	0,33	0,46	0,23
0,9	0,67	0,26	0,78	0,13	0,82	0,09
1,8	1,41	0,22	1,58	0,12	1,58	0,12
2,5	2,32	0,072	2,17	0,13	2,6	-0,04
	Mittelwert:	0,23	Mittelwert:	0,18	Mittelwert:	0,10



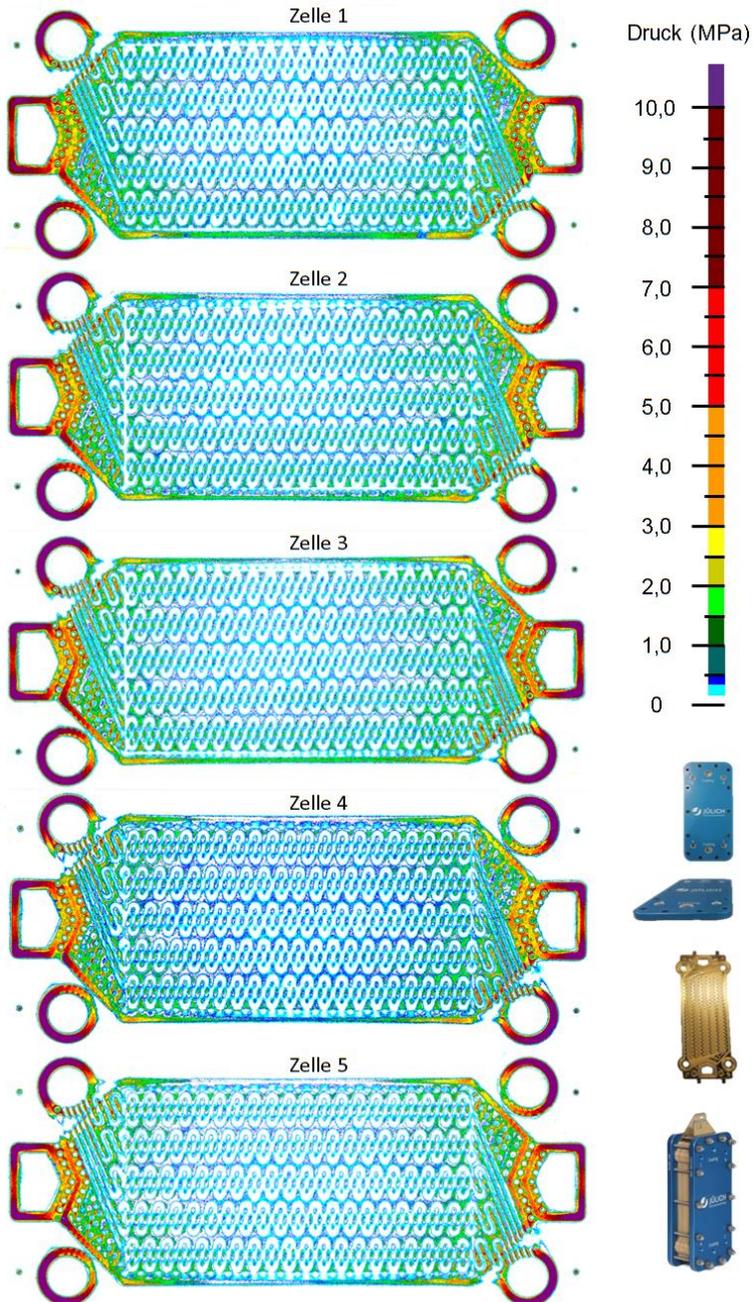
## zu Kapitel 4.5 Globale Druckverteilung auf der aktiven Fläche



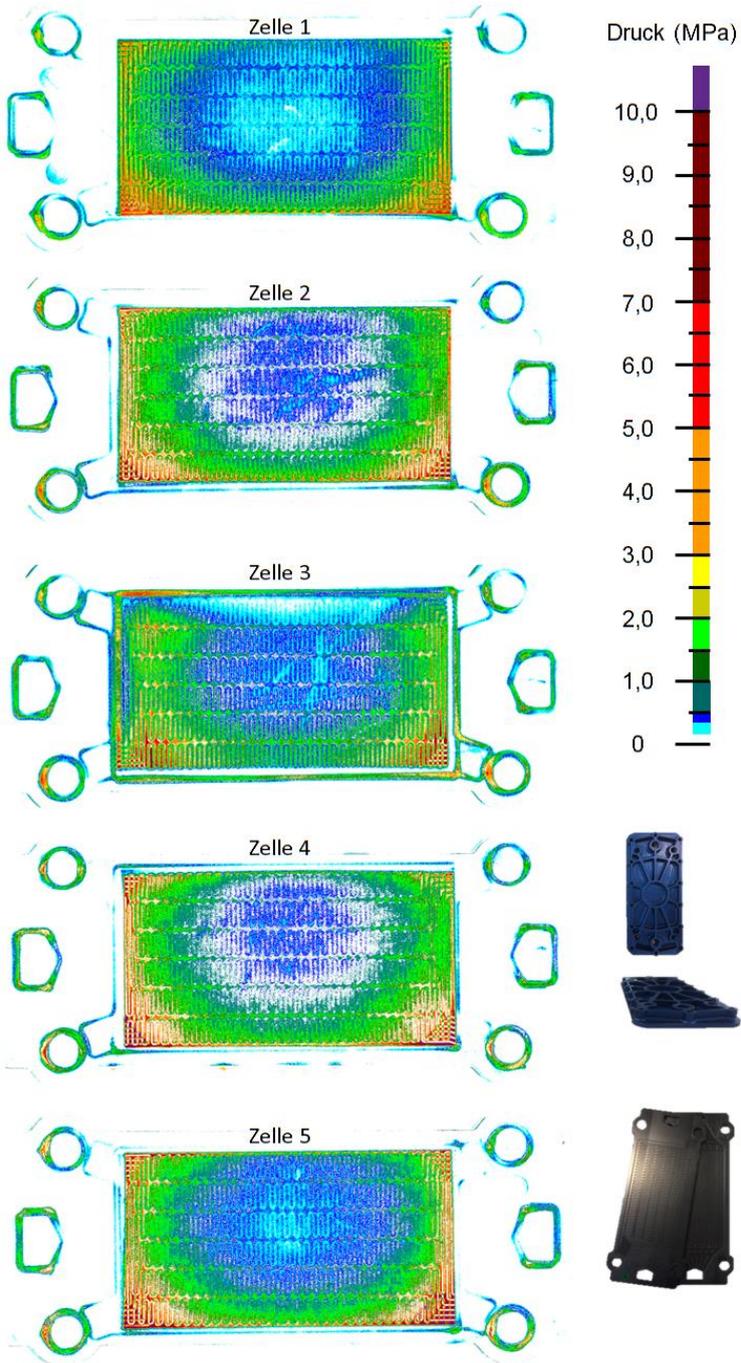
**Abbildung A32:** Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrebt Endplatten - ohne GFK-Rahmen um die GDL



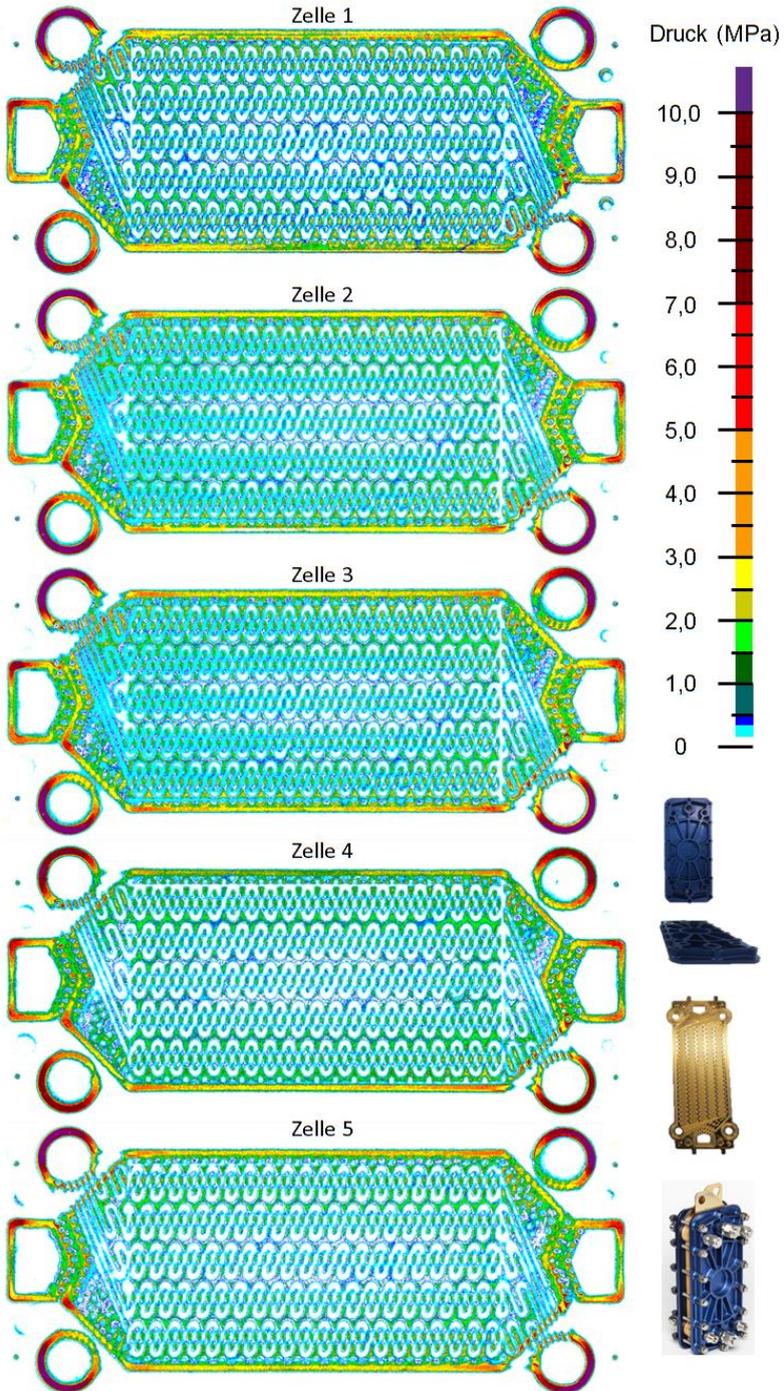
**Abbildung A33:** Druckverteilungen innerhalb des graphischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrebt Endplatten - herkömmlich mit GFK-Rahmen um die GDL



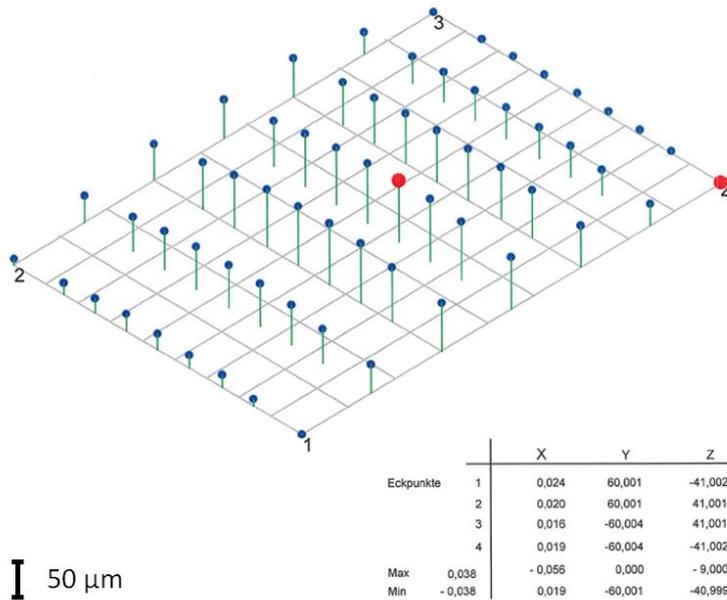
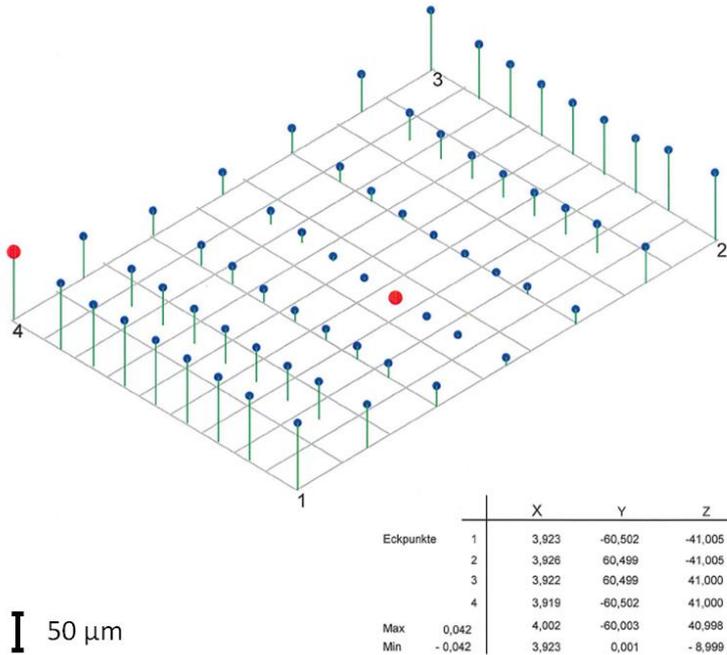
**Abbildung A34:** Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit nicht verstrebten Endplatten



**Abbildung A35:** Druckverteilungen innerhalb des graphitischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrehten Endplatten - ohne GFK-Rahmen um die GDL



**Abbildung A36:** Druckverteilungen innerhalb des metallischen 5-Zellen-Stackaufbaus mit verstrebten Endplatten



**Abbildung A37:** 3D-Vermessung der Vorder- und Rückseite exemplarisch für eine der graphitischen Flowfield-Platten

## **Danksagung**

Diese Arbeit ist während meiner Tätigkeit am Institut für Energie und Klimaforschung - Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3) entstanden, für deren Möglichmachung ich mich bei Herrn Prof. Dr. Detlef Stolten als Institutsleiter bedanken möchte.

Meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Werner Lehnert, ohne dessen Zutun dieses interessante Forschungsthema wohl nicht den verdienten Rahmen erhalten hätte, möchte ich für seine herausragende Betreuung über das normale Maß hinaus danken.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. Janßen, der mir durch seine besonders intensive Betreuung im Arbeitsalltag stets zur Seite stand und diese Arbeit durch seine Anregungen und Diskussionen bereichert hat.

Für die technische Unterstützung möchte ich zudem Frau Birgit Schumacher, Herrn Andreas Everwand, Herrn Eugen Hoppe, Herrn Richard Wegner und Stellvertretend für das Institut ZEA-1 Herrn Jürgen Böll hervorheben, durch deren Detailwissen und Fertigkeiten die komplexen Versuche erst möglich gemacht wurden.

Meinen Doktoranden-Kollegen, vor allem Frau Elena Borgardt, möchte ich für die Vielzahl an ergiebigen Diskussionen und Hilfestellungen danken.

Für die Zuarbeit durch die Abschlussarbeiten von Herrn Michael Pesch, Herrn Javier Jamie Solis Leon und Herrn Claudius Ellsel, die diesen Umfang der Arbeit erst ermöglicht haben, möchte ich mich ganz herzlich bedanken.

Zuletzt möchte ich mich bei meiner Familie für die immerwährende Unterstützung bedanken, besonders bei meinem Vater Prof. Dr. Rudolf Irscher, der mich erst auf diesen Weg gebracht hat und mich auf diesem immer mit allen erdenklichen Mitteln unterstützt hat. Neben meinem Vater möchte ich auch meine Verlobte Grit Piepers besonders hervorheben, mit deren Beistand ich auch die stressigen Phasen meistern konnte.



Band / Volume 464

**Development, calibration and deployment of an airborne chemical ionization mass spectrometer for trace gas measurements**

T. Khatatov (2019), 14, 125 pp

ISBN: 978-3-95806-404-1

Band / Volume 465

**IEK-3 Report 2019**

**Maßgeschneiderte Energieumwandlung für nachhaltige Kraftstoffe**

D. Stolten, B. Emonts (Eds.) (2019), 171 pp

ISBN: 978-3-95806-410-2

Band / Volume 466

**Initialinfrastruktur für Wasserstoffmobilität auf Basis von Flotten**

F. Grüger (2019), V, 209 pp

ISBN: 978-3-95806-413-3

Band / Volume 467

**Techno-ökonomische Analyse alternativer Wasserstoffinfrastruktur**

M. E. Reuß (2019), 205 pp

ISBN: 978-3-95806-414-0

Band / Volume 468

**Study on a miniaturized satellite payload for atmospheric temperature measurements**

J. Liu (2019), 153 pp

ISBN: 978-3-95806-415-7

Band / Volume 469

**Partitioning Water Vapor Fluxes by the Use of Their Water Stable Isotopologues: From the Lab to the Field**

M. E. Quade (2019), XVI, 113 pp

ISBN: 978-3-95806-417-1

Band / Volume 470

**Entwicklung von Reparaturmethoden für Nickel-Superlegierungen mittels thermischer Spritzverfahren**

T. Kalfhaus (2019), VI, 126, XXX pp

ISBN: 978-3-95806-418-8

Band / Volume 471

**Entwicklung von korrosionsstabilen Schutzschichten für oxidische Faserverbundwerkstoffe**

C. S. Gatzen (2019), II, 143 pp

ISBN: 978-3-95806-422-5

Band / Volume 472

**Coatings for Metallic Bipolar Plates in High-Temperature  
Polymer Electrolyte Fuel Cells**

R. Li (2019), II, 119 pp

ISBN: 978-3-95806-425-6

Band / Volume 473

**Thermochemische Eigenschaften von kombinierten Katalysator- und  
Sauerstoffträgersystemen für die partielle Oxidation von Teeren aus der  
Biomassevergasung**

M. Ma (2019), VII, 157 pp

ISBN: 978-3-95806-426-3

Band / Volume 474

**Einfluss der klimatischen Fertigungsumgebung auf die Mechanik und  
Rissstrukturierung der elektrodenbeschichteten Membran einer PEM-  
Brennstoffzelle**

B. Wienk-Borgert (2019), IV, 141 pp

ISBN: 978-3-95806-428-7

Band / Volume 475

**Reversible wasserstoffbetriebene Festoxidzellensysteme**

M. H. Frank (2019), 187 pp

ISBN: 978-3-95806-430-0

Band / Volume 476

**Partitioning of carbon dioxide exchange  
in rapidly and slowly changing ecosystems**

P. Ney (2019), xvi, 95 pp

ISBN: 978-3-95806-431-7

Band / Volume 477

**Massentransportphänomene in Schichtsystemen eines Elektrolyseurs**

U. Panchenko (2019), 107 pp

ISBN: 978-3-95806-433-1

Band / Volume 478

**Mechanische Eigenschaften von Polymer-Elektrolyt-Membran-  
Brennstoffzellen**

P. Irmscher (2019), vii, 177 pp

ISBN: 978-3-95806-435-5



Energie & Umwelt / Energy & Environment  
Band / Volume 478  
ISBN 978-3-95806-435-5