

# Potentialfeldmessungen zur Qualitätsbewertung von Bipolarplatten

Michael Sietmann

Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 564

ISBN 978-3-95806-606-9





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-14)

# **Potentialfeldmessungen zur Qualitätsbewertung von Bipolarplatten**

Michael Sietmann

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

Band / Volume 564

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-606-9



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 2021

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 564

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2021)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-95806-606-9

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

Um Brennstoffzellen einer breiteren Anwendung zugänglich zu machen, ist eine Kostensenkung erforderlich. Eine wichtige Komponente der Brennstoffzelle mit großem Kostenreduktionspotential ist die Bipolarplatte. Gleichzeitig ist die Qualität der Bipolarplatte von entscheidender Bedeutung für die Funktion einer Brennstoffzelle und deren Langlebigkeit. Für die Qualitätssicherung der Bipolarplatte werden neue Prüfmethode benötigt. In dieser Arbeit wird ein Prüfaufbau auf Basis der Ausbreitung des elektrischen Potentialfeldes für die Detektion von Mängeln in Graphit-Komposit-Bipolarplatten und Bipolarplattenmaterialien entwickelt. Über eine Punktkontaktierung wird ein Strom durch die Bipolarplatte geleitet. Mit Messpunkten um den Kontaktierungspunkt herum kann das Potentialfeld in der Bipolarplatte erfasst und auf Störungen analysiert werden. Zentrale Elemente des Prüfaufbaus sind zwei Prüfköpfe mit 25 gefederten Messspitzen, die über die Bipolarplatte bewegt werden. Die Messspitzen leiten je nach Programmierung einen Strom durch die Probe oder messen das sich in der Probe bildende Potentialfeld. Als Referenz und für die Bewertung der Messergebnisse des Prüfaufbaus dienen Untersuchungen mittels Röntgentomographie und Simulationen des elektrischen Potentials. An Materialstreifen von blanken Bipolarplatten mit Durchgangsbohrung als definierte künstliche Mängel wird die Messmethode erprobt und potentielle Messunsicherheiten identifiziert. In den Graphit-Komposit-Bipolarplatten bildet sich ein komplexes elektrisches Leitfähigkeitsnetzwerk durch die Graphitpartikel aus. Das Leitfähigkeitsnetzwerk wird als Messrauschen in den Ergebnissen der Potentialfeldmessungen sichtbar. Die Anwendung der Messmethode auf Bipolarplatten wird an Monopolarplatten mit einseitigem Strömungsfeld, in denen durch Kunststoffansammlungen, beigemischten Holz- und Stahlpartikeln künstliche Mängel imitiert werden, demonstriert. Die Kunststoffansammlungen repräsentieren nicht leitfähige Bereiche in der Bipolarplatte und die Holzpartikel repräsentieren vereinzelte Mängel wie Risse, Lunker oder nicht leitfähige Fremdkörper. Massive Mängel wie Kunststoffansammlungen können mit dem Prüfaufbau identifiziert und deren lokale Ausprägungen bestimmt werden. Vereinzelte Mängel hingegen werden mit dem Prüfaufbau nicht erkannt. Ohmsche Widerstandsmessungen an den Monopolarplatten und Ausschnitten aus den Monopolarplatten belegen, dass nur großflächige Mängel einen negativen Einfluss auf die elektrische Leitfähigkeit von Bipolarplatten besitzen. Brennstoffzellentest mit den Monopolarplatten bestätigen die Ergebnisse der ohmschen Widerstandsmessungen, nach der vereinzelte Mängel im Innern der Graphit-Komposit-Bipolarplatte keinen Einfluss auf den ohmschen Widerstand und die Brennstoffzellenleistung haben. Der entwickelte Prüfaufbau eignet sich zur stichprobenhaften Messung der elektrischen Eigenschaften und zum Erkennen von leistungsbeeinträchtigenden Mängeln in Bipolarplatten.



# Abstract

To make fuel cells accessible to a broader application, cost reduction is necessary. An important component of the fuel cell with great cost reduction potential is the bipolar plate. At the same time, the quality of the bipolar plate is of decisive importance for the function of a fuel cell and its longevity. New test methods are needed for the quality assurance of the bipolar plate. In this work, a method and a test setup based on the propagation of the electric potential field is developed for the detection of defects in graphite composite bipolar plates and bipolar plate materials. A current is passed through the bipolar plate via a point contact. With measuring points around the contacting point, the potential field in the bipolar plate can be recorded and analyzed for disturbances. Central elements of the test setup are two probes with 25 spring-loaded measuring tips, which are moved over the bipolar plate. Depending on the programming, the measuring tips conduct a current through the sample or measure the potential field forming in the sample. X-ray tomography and electrical potential simulations are used as a reference and to evaluate the measurement results of the test setup. The measurement method is tested and potential measurement uncertainties are identified on material strips of blank plates with through holes as defined artificial defects. A complex electrical conductivity network is formed in the graphite composite bipolar plates by the graphite particles. The conductivity network becomes visible as measurement noise in the results of the potential field measurements. The application of the measurement method to bipolar plates is demonstrated on monopolar plates with one-sided flow field, in which artificial defects are imitated by plastic accumulations, admixed wood and steel particles. The plastic accumulations represent non-conductive regions in the bipolar plate and the wood particles represent isolated defects such as cracks, voids or non-conductive foreign bodies. Massive defects such as plastic accumulations can be identified with the test setup and their local manifestations determined. Isolated defects, on the other hand, are not detected with the test setup. Ohmic resistance measurements on the monopolar plates and cutouts from the monopolar plates prove that only large-scale defects have a negative influence on the electrical conductivity of bipolar plates. Fuel cell tests with the monopolar plates confirm the results of the ohmic resistance measurements, according to which isolated defects have no influence on ohmic resistance and fuel cell performance. The developed test set-up is suitable for random measurement of electrical properties and detection of performance-impairing defects in bipolar plates.



# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Ziel der Arbeit .....	1
2	Grundlagen und Stand der Technik.....	3
2.1	Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle.....	3
2.2	Bipolarplatte.....	6
2.2.1	Metallische Bipolarplatten .....	8
2.2.2	Graphitische Bipolarplatten .....	9
2.2.3	Graphit-Komposit-Bipolarplatten .....	10
2.3	Elektrische Leitfähigkeit von Komposit-Bipolarplatten .....	11
2.3.1	Bulkwiderstand .....	12
2.3.2	Kontaktwiderstand .....	14
2.4	Fertigungsmängel von Bipolarplatten für PEM-Brennstoffzellen .....	15
2.4.1	Metallische BPP .....	15
2.4.2	Graphit-Komposit BPP.....	16
2.5	Messmethoden zur Charakterisierung und zur Erkennung von Defekten in Graphit-Komposit-Materialien .....	17
2.5.1	Visuelle Prüfung.....	18
2.5.2	Shearographie .....	18
2.5.3	Wirbelstrommessung.....	19
2.5.4	Ultraschall.....	20
2.5.5	Thermographie .....	21
2.5.6	Radiographie und Röntgentomographie.....	23
2.5.7	Elektrische Widerstandsmessungen .....	26
2.6	Zusammenfassung und Auswahl der Messmethoden für die Untersuchung an Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterialien .....	33
3	Methodenentwicklung und verwendete Materialien.....	35
3.1	Untersuchte Materialproben .....	35
3.2	Simulation des elektrischen Potentialfeldes in einem homogenen Bipolarplattenmaterial.....	37
3.2.1	Punktkontaktierung .....	37
3.2.2	Flächige Kontaktierung .....	40
3.3	Entwicklung eines Messaufbaus zur automatisierten Potentialmessung .....	41
3.3.1	Hardwareentwicklung.....	41
3.3.2	Messprinzip und Auswertungsschema .....	46
3.4	Alternative through-plane Widerstandsbestimmung durch Punktkontaktierung .....	49
3.5	Bewertung des Einflusses von Mängeln in Bipolarplatten auf die Brennstoffzellenleistung .....	53
3.5.1	Einzelzellenmessungen .....	53
3.5.2	Ohmsche Widerstandsmessungen .....	54

---

3.6	Röntgentomographieuntersuchungen zur Morphologie von Bipolarplattenmaterialien .....	57
4	Ergebnisse .....	60
4.1	Röntgentomographie von Bipolarplatten .....	60
4.1.1	Detektierte Beispielmängel .....	60
4.1.2	Vergleich zwischen Röntgentomographie und Rasterelektronenmikroskopie .....	64
4.1.3	Tomographie des gesamten Strömungsverteilerfeldes .....	66
4.2	Defekterkennung in einem Materialteststreifen und Bestimmung von Einflussgrößen .....	67
4.2.1	Potentialdifferenzverläufe entlang des Teststreifens und Reproduzierbarkeit der Messergebnisse .....	67
4.2.2	Einfluss der Positionierung des Prüfkopfes .....	71
4.2.3	Röntgentomographie des Teststreifens .....	73
4.2.4	Einfluss des Abstandes zwischen den Messspitzen und der Abrasterungsschrittweite .....	75
4.2.5	Unterschiedliche Messspitzenkombinationen .....	79
4.2.6	Materialeigenschaftsänderung in Teststreifen und in einer blanken Bipolarplatte .....	83
4.2.7	Zusammenfassung der Untersuchungen an den Teststreifen .....	85
4.3	Spezifische lokale Widerstandsbestimmung von blanken Bipolarplatten .....	86
4.3.1	Vergleich zwischen flächiger Kontaktierung und Punktkontaktierung für die through-plane Widerstandsbestimmung .....	86
4.3.2	Widerstandsmapping .....	91
4.4	Messungen an Platten mit Strömungsfeldstruktur .....	94
4.4.1	Referenzplatten .....	94
4.4.2	Monopolarplatten mit vereinzelt Fremdkörpern .....	100
4.4.3	Monopolarplatten mit flächigen nicht leitenden Bereichen .....	104
4.4.4	Monopolarplatte mit beschädigtem Strömungsfeld .....	112
4.5	Einfluss der detektierten Mängel auf die Brennstoffzellenleistung .....	114
4.5.1	Bestimmung des ohmschen Widerstandes bei Kontaktierung der aktiven Zellfläche .....	114
4.5.2	Detaillierte Widerstandsbestimmung an einem Monopolarplattenausschnitt .....	115
4.5.3	Brennstoffzellentest zur Bewertung von Mängeln in Monopolarplatten .....	119
5	Diskussion .....	124
6	Zusammenfassung .....	129
	Literaturverzeichnis .....	132
	Abbildungsverzeichnis .....	140
	Tabellenverzeichnis .....	146
	Abkürzungsverzeichnis .....	147
	Formelzeichen und Indizes .....	149
	Anhang .....	152
	Anhang zu Kapitel 3.1: Untersuchte Materialproben .....	152

Anhang zu Kapitel 4.2.2: Einfluss der Positionierung des Prüfkopfes.....	153
Anhang zu Kapitel 4.2.4: Einfluss des Abstandes zwischen den Messspitzen und der Abrasterungsschrittweite.....	154
Anhang zu Kapitel 4.3.1: Vergleich zwischen flächiger Kontaktierung und Punktkontaktierung für die through-plane Widerstandsbestimmung .....	155
Anhang zu Kapitel 4.4.2: Monopolarplatten mit vereinzelt Fremdkörpern.....	156
Anhang zu Kapitel 4.4.3: Monopolarplatten mit flächigen nicht leitenden Bereichen .....	157
Anhang zu Kapitel 4.4.4: Monopolarplatte mit beschädigtem Strömungsfeld .....	158
Anhang zu Kapitel 4.5.3: Brennstoffzellentest zur Bewertung von Mängeln in Monopolarplatten	159





# 1 Einleitung und Ziel der Arbeit

Die Wasserstofftechnologie ist eine Schlüsseltechnologie bei der erneuerbaren Energieversorgung und der Reduktion der Kohlenstoffdioxidemissionen unseres Landes. Aktuell sind die benötigten Technologien Brennstoffzelle und Elektrolyseure noch sehr kostenintensiv. Dies liegt unter anderem an niedrigen Stückzahlen und hohen Fertigungskosten für die einzelnen Komponenten. Die Bipolarplatte ist eine Komponente, bei der ein hohes Kostenreduktionspotential für die Anwendung in Brennstoffzellensystemen besteht. Eine vielversprechende Brennstoffzellentechnologie ist die Polymer-Elektrolyt-Membran Brennstoffzelle. Für die mobile Anwendung liegt ein besonderer Fokus der Industrie und der Forschung auf metallischen Bipolarplatten aufgrund ihres geringen Gewichtes und Volumens und der guten Fertigbarkeit. Für stationäre Anwendungen hingegen spielen die Faktoren Gewicht und Volumen eine untergeordnete Rolle, vielmehr ist eine lange Lebensdauer von großem Interesse. Dadurch wird eine Anwendung von Graphit-Komposit-Bipolarplatten, welche weniger korrosionsanfällig als metallische Bipolarplatten sind, interessant. Neben einer kostengünstigen massenproduktionstauglichen Fertigung ist die Qualität der Bipolarplatte entscheidend. Mängel und Defekte in der Bipolarplatte können dazu führen, dass die Brennstoffzelle schneller altert und an Effizienz einbüßt, bzw. total ausfällt. Für den Bipolarplattenhersteller ist es daher unerlässlich eine hohe Qualität der Bipolarplatte zu sichern.

Ziel der Arbeit ist es, eine Messmethode zu identifizieren und einen Prüfaufbau zu entwickeln, mit der Defekte in Graphit-Komposit-Bipolarplatten erkannt werden können. Die Messmethode bzw. der Prüfaufbau soll geeignet sein, den Herstellern Vorteile bei der Wareneingangs- bzw. Ausgangskontrolle im Rahmen eines Qualitätssicherungsprozesses zu bieten. Fehlerhafte Bipolarplatten können frühzeitig erkannt und den folgenden Produktionsprozessen entzogen werden, sodass die Fertigungskosten für Bipolarplatten und Brennstoffzellensysteme reduziert werden können. In einer Literaturstudie werden zunächst gängige Messverfahren zur Defekterkennung und Qualitätssicherung von Komposit-Materialien vorgestellt und die Möglichkeit, die Messverfahren auf graphitische Bipolarplatten anzuwenden, bewertet.

Die Vermessung eines Potentialfeldes, das sich ausgehend von einer Punktquelle und einer Punktsenke in einem Bipolarplattenmaterial ausbreitet, ist eine Möglichkeit auf die elektrischen Eigenschaften und Defekte in der Bipolarplattenprobe zu schließen. Auf Basis dieses Messverfahrens wird ein Prüfaufbau ausgelegt und entwickelt. Das Messverfahren und der Prüfaufbau werden zunächst an einer blanken Bipolarplattenmaterialprobe mit Durchgangsbohrungen als Beispielfekten getestet. Dabei werden Parameter, die das Messverfahren und die Genauigkeit des Prüfaufbaus beeinflussen, identifiziert und

analysiert. Zur Bewertung der Messmethode werden die Untersuchungen an den graphitischen Bipolarplattenmaterialien um die Röntgentomographie und die Simulationen der elektrischen Leitfähigkeit ergänzt. Anschließend wird das Messverfahren auf Monopolarplatten übertragen. Monopolarplatten sind Bipolarplattenhälften, die nur auf einer Seite eine Strömungsfeldstruktur besitzen, nur mit dieser Seite einer Brennstoffzelle zugewandt sind und beispielsweise in den äußeren Brennstoffzellen eines Brennstoffzellenstacks oder in Brennstoffeinzellern zum Einsatz kommen. Die Monopolarplatten besitzen ebenfalls definierte künstliche Mängel, mit denen die Möglichkeiten und Grenzen des Prüfaufbaus getestet werden.

Abschließend wird die Eignung des Prüfaufbaus, relevante Defekte zu erkennen, bewertet und der Einfluss der Mängel in den Monopolarplatten auf die Brennstoffzellenleistung analysiert. Für die Bewertung der Mängel werden ohmsche Widerstandmessung an den Monopolarplatten durchgeführt und Polarisationskurven sowie Impedanzspektren von Brennstoffzellentest mit unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen ausgewertet.

## 2 Grundlagen und Stand der Technik

In diesem Kapitel werden die Grundlagen für das detaillierte Verständnis dieser Arbeit aufbereitet und der aktuelle Stand der Technik vorgetragen. Dazu wird zunächst der Aufbau einer Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle (PEM-BZ) präsentiert und auf die Funktionen einer Bipolarplatte eingegangen. Dabei wird insbesondere der Aufbau und die Materialzusammensetzung von Graphit-Komposit-Bipolarplatten sowie deren Herstellungsmethoden diskutiert. Abschließend werden mögliche Prüfmethode zur Defekterkennung von Bauteilkomponenten vorgestellt und vielversprechende Methoden für die Anwendung bei einer Graphit-Komposit-Bipolarplatte für eine nähere Untersuchung ausgewählt.

### 2.1 Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzelle

Die Polymer-Elektrolyt-Membran Brennstoffzelle (PEM-BZ) ist aufgrund ihrer Arbeitstemperatur von 60°C bis 80°C, der hohen Leistungsdichte und der Möglichkeiten zum dynamischen Betrieb ein vielversprechender Brennstoffzellentyp für den mobilen Einsatz und die stationäre Anwendung in privaten Haushalten [1, 2]. Hauptkomponente der PEM-Brennstoffzelle ist eine protonenleitende Membran, die auf beiden Seiten mit einer Elektrode beschichtet ist. In den Elektroden befinden sich vornehmlich Platinkatalysatoren, um die Aktivierungsenergie zu senken. Diese Einheit bildet die Membran-Elektroden-Einheit (engl.: membrane electrode assembly, MEA). Zur Zuführung und Verteilung der Reaktionsgase an die Elektrodenoberfläche schließt sich eine Gasdiffusionslage (GDL) an die Elektroden an. Um eine noch feinere Verteilung der Reaktionsgase zu erreichen, kann die GDL mit einer mikroporösen Schicht (engl.: micro porous layer, MPL) beschichtet sein. Strömungsverteilerplatten (engl.: flow field plates, FFP) verteilen die Strömungen über den gesamten Bereich der Zelle. Abgeschlossen wird die Brennstoffzelle mit stabilen Endplatten. Um höhere Leistungen zu erreichen werden mehrere Brennstoffzellen zu einem Brennstoffzellestapel bzw. Brennstoffzellenstack gestapelt. In dem Brennstoffzellenstack befindet sich auf der Rückseite der Strömungsverteilerplatten ein zweites Strömungsfeld und eine zweite Brennstoffzelle schließt sich an. Da die Strömungsverteilerplatte nun jeweils einer Anoden- und einer Kathodenseite zweier angrenzender Brennstoffzellen zugewandt ist, wird von einer Bipolarplatte (BPP) gesprochen. Der Aufbau eines Brennstoffzellenstacks und das Funktionsprinzip einer PEM-Brennstoffzelle ist in Abbildung 2.1 gezeigt.

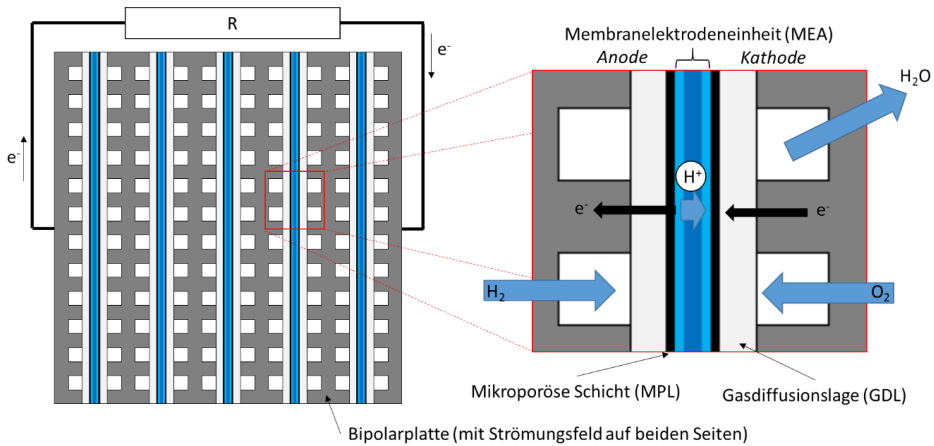
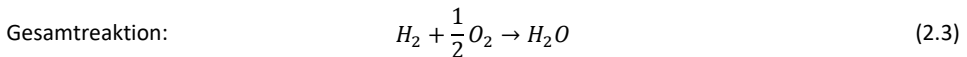
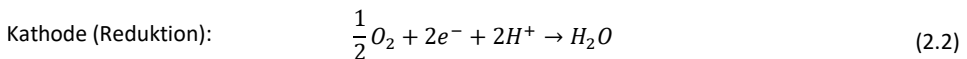
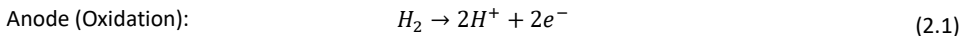


Abbildung 2.1: Brennstoffzellenstack mit fünf Brennstoffzellen (links), Ausschnitt aus Brennstoffzelle mit Funktionsprinzip (rechts)

In einer PEM-BZ wird die chemische Energie von Wasserstoff mit Hilfe von Sauerstoff bzw. Luft in elektrische Energie und Wärme umgesetzt. Auf der Anodenseite findet die Oxidation statt und der Wasserstoff wird in Elektronen und Protonen aufgespalten. Die Protonen fließen durch die protonenleitende Membran auf die Kathodenseite, während die Elektronen über die GDL, die BPP sowie einen externen Stromkreis zur Kathode geleitet werden. Der elektrische Strom kann als nutzbare Energie abgegriffen werden. Auf der Kathodenseite findet mit dem Sauerstoff die Reduktionsreaktion statt und es bildet sich Wasser. Die Reaktionen können mit folgenden Reaktionsgleichungen beschrieben werden:



Die thermoneutrale oder enthalpische Zellspannung  $E_{th}$  ist die höchste Spannung, die theoretisch durch diese Reaktion erzeugt werden könnte, wenn es keine Entropie gäbe. Sie lässt sich durch Gleichung 2.4 berechnen. Bezogen auf den oberen Heizwert von Wasser ( $\Delta H_o = -285,83 \text{ kJ/mol}$ ) beträgt diese Spannung 1,48 V bei Standardbedingungen (25 °C, 101325 Pa) und unter Berücksichtigung der Verdampfungswärme von Wasser. Ohne Verdampfungswärme und auf den unteren Heizwert ( $\Delta H_u = -241,82 \text{ kJ/mol}$ ) bezogen ergibt sich nach Gleichung 2.4 eine Spannung von 1,25 V [3].

$$E_{th} = \frac{-\Delta H^0}{z \cdot F} \quad (2.4)$$

Dabei ist  $z = 2$  die Anzahl der an der Reaktion beteiligten Elektronen,  $F = 96485 \text{ C/mol}$  die Faraday-Konstante und  $-\Delta H^0$  die Enthalpie bei Standardbedingungen.

Von technisch größerer Relevanz ist die reversible Zellspannung  $E$ , welche die Entropie bedingten Energieverluste berücksichtigt und mit Hilfe der freien Reaktionsenthalpie  $-\Delta G^0$  berechnet werden kann (vgl. Gleichung (2.5)).

$$E = \frac{-\Delta G^0}{z \cdot F} \quad (2.5)$$

Für eine PEM-Brennstoffzelle liegt die Betriebstemperatur bei  $60 \text{ }^\circ\text{C}$  bis  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  und es liegt nicht immer flüssiges Wasser als Reaktionsprodukt vor, sodass mit einer freien Reaktionsenthalpie von gasförmigen Wasser ( $\Delta G_u = -228,57 \text{ kJ/mol}$ ) gerechnet werden kann und sich die reversible Zellspannung zu  $1,18 \text{ V}$  ergibt.

Da die PEM-Brennstoffzelle nicht bei Standardbedingungen betrieben wird, müssen weitere Verluste zur Berechnung der Zellspannung berücksichtigt werden. Die Nernstspannung  $E_N$  berücksichtigt die Abweichung von den Standardbedingungen und die Partialdrücke der Reaktionspartner:

$$E_N = E^0 + \frac{R \cdot T}{z \cdot F} \cdot \ln \left( \frac{p_{H_2} \cdot p_{O_2}^{\frac{1}{2}}}{p_{H_2O}} \right) \quad (2.6)$$

Mit:

$E_N$	Nernstspannung	(V)
$E^0$	Standardpotenzial	(V)
$R$	Ideale Gaskonstante	$8,315 \left( \frac{\text{J}}{\text{mol K}} \right)$
$T$	Temperatur	(K)
$z$	Ladungszahl	(-)
$F$	Faraday-Konstante	$9,6485 \left( \frac{\text{C}}{\text{mol}} \right)$
$p_{H_2}$	normierter Partialdruck des Wasserstoffs	(-)
$p_{O_2}$	normierter Partialdruck des Sauerstoffs	(-)
$p_{H_2O}$	normierter Partialdruck des Wassers	(-)

Weitere Einflüsse, wie zum Beispiel Wasserstoff-Crossover oder technische Katalysatormaterialien verringern die tatsächlich messbare offene Zellspannung [4]. Die genannten Spannungsverluste sowie

der Spannungsverlauf unter Last in einer Brennstoffzelle kann mit einer Strom-Spannungs-Kennlinie anschaulich dargestellt werden (vgl. Abbildung 2.2). Bei steigender Last sinkt die anliegende Spannung weiter. Bei niedrigen Stromdichten dominieren die Aktivierungsverluste, im mittleren Stromdichtebereich dominieren die ohmschen Verluste und im Bereich mit hohen Stromdichten sind die Diffusionsverluste die Hauptursache für eine abfallende Spannung. Die ohmschen Verluste werden durch die Protonenleitfähigkeit der Membran, die elektrische Leitfähigkeit der einzelnen Brennstoffzellenkomponenten und die Kontaktwiderstände zwischen den Komponenten bestimmt. Einen Teil der ohmschen Verluste verursachen dabei auch die Bipolarplatten. Daher wird im Folgenden näher auf die Bipolarplatte und ihre Funktionen, sowie Eigenschaften eingegangen.

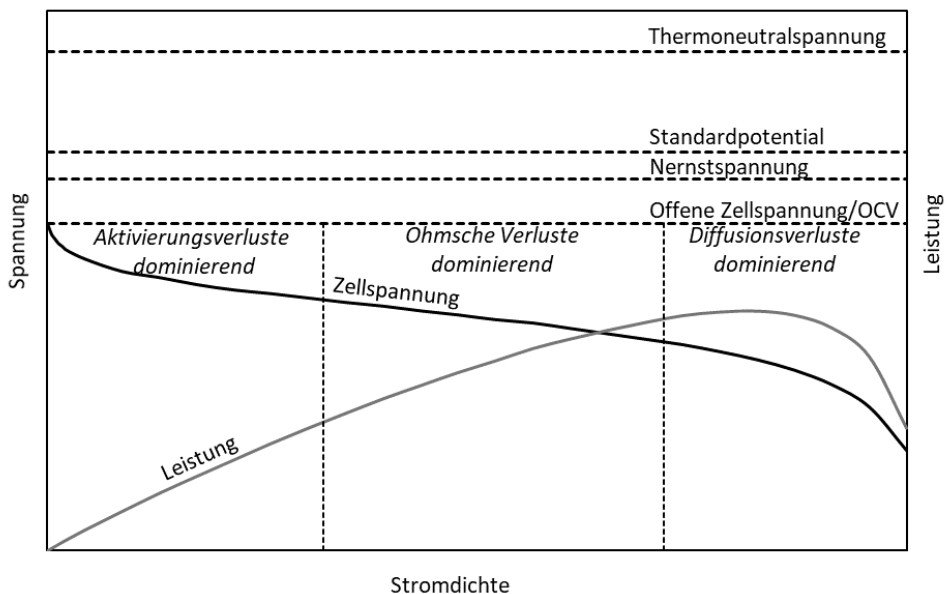


Abbildung 2.2: Strom-Spannungs-Kennlinie, adaptiert nach Klell [5]

## 2.2 Bipolarplatte

Die Bipolarplatte erfüllt in einem Brennstoffzellenstack mehrere Aufgaben. Die Bipolarplatte verteilt die Reaktionsgase über die aktive Zellfläche der Brennstoffzelle. Dabei ist sie einmal der Anode und einmal der Kathode zugewandt und trennt die zwei benachbarte Zellen sowie deren Gasströmungen voneinander. Die Bipolarplatte dient als Stromsammeler und elektrische Leiterplatte zwischen den einzelnen Brennstoffzellen in dem Brennstoffzellenstack. Gleichzeitig wird über die Bipolarplatte die in der Brennstoffzelle entstehende Wärme abgeleitet. Des Weiteren sorgt die Bipolarplatte für die mechanische Stabilität der Brennstoffzelle [6, 7]. Aus den Aufgaben der Bipolarplatte lassen sich

Anforderungen an ihre Eigenschaften ableiten. Um Leckagen und potenziell gefährliche Mischungen von Sauerstoff und Wasserstoff zu vermeiden, muss sie insbesondere für diese Gase dicht sein. Sie muss ein Strömungsverteilerfeld besitzen, mit dem die Reaktionsgase möglichst optimal auf der aktiven Zellfläche verteilt werden. Sie muss eine gute intrinsische elektrische und thermische Leitfähigkeit besitzen. Gleichzeitig muss die Bipolarplatte einen guten elektrischen und thermischen Kontakt mit der benachbarten GDL bilden. Neben den Anforderungen an die Funktion stellt die Umgebung der Brennstoffzelle mit ihren Spannungen sowie den Reaktionsgasen Wasserstoff und Sauerstoff Anforderungen an die Bipolarplatte. So muss die Bipolarplatte chemisch stabil und korrosionsbeständig unter PEM-Brennstoffzellen-Bedingungen sein und darf nur geringe Alterungserscheinungen vorweisen. Weitere ökonomische Anforderungen an eine Bipolarplatte sind ein geringes Volumen und ein geringes Gewicht, da die BPP bis zu 80 % des Gesamtgewichts und 75 % des Volumens eines Brennstoffzellenstacks ausmachen kann [6, 8]. Ebenso ist die Bipolarplatte für einen Großteil der Brennstoffzellenstackkosten verantwortlich. Abhängig von den Produktionszahlen sowie den verwendeten Materialien belaufen sich die Bipolarplattenkosten auf 28 % der Stackkosten [9]. Außerdem muss die Bipolarplatte eine gute Herstellbarkeit sowie geringe Produktions- sowie Materialkosten aufweisen. Im Zuge der weiteren Kommerzialisierung der PEM-Brennstoffzelle rücken vermehrt die Themen Langzeitstabilität, Massenproduktion und Qualitätskontrolle ihrer Komponenten, wie der Bipolarplatte, in den Fokus der Forschung und der Industrie. Für typische Anwendungsfälle im mobilen Sektor ist eine Lebensdauer von 5000 Stunden und für stationäre Anwendungen von 40000 Stunden gefordert [10]. Weitere Zielvorgaben für die BPP werden unter anderem von dem Department of Energy (DOE) aus den USA herausgegeben [11]. So wird für das Jahr 2020 eine Zielvorgabe für die Kosten einer Bipolarplatte in der automobilen Anwendung von drei Dollar pro Kilowatt und für das Plattengewicht von 0,4 kg pro Kilowatt angesetzt. Weitere wichtige Kennzahlen wie der spezifische elektrische Flächenwiderstand, die elektrische Leitfähigkeit oder die Biegefestigkeit werden mit jeweils  $0,006 \Omega\text{cm}^2$ , größer 100 S/cm oder 25 MPa angegeben. Teilweise können Bipolarplattenmaterialien einzelne der vorgegebenen Zielgrößen erreichen. Es sind jedoch keine Berichte über eine Bipolarplatte bekannt, die gleichzeitig alle der vom DOE vorgegebenen Zielgrößen erreicht (vgl. [11]).

Als mögliche Materialien für die Bipolarplatte werden grundsätzlich Metalle mit oder ohne Beschichtung, reines Graphit oder Graphit-Komposit-Materialien in Betracht gezogen. Konkrete Materialien und Materialkombinationen für die genannten Materialgruppen werden von Mehta und Cooper [1] sowie Hermann et al. [6] aufgelistet und eingeordnet. Für beschichtete metallische Bipolarplatten sind demnach Aluminium, Edelstahl, Titan oder Nickel mögliche Basismaterialien. Die Beschichtung kann aus einer kohlenstoff- oder metallbasierten Beschichtung bestehen. Komposit-Bipolarplatten können auf Metall- oder Kohlenstoffbasis aufgebaut sein. Der Begriff Komposit



beschreibt einen Verbundwerkstoff und zur Kennzeichnung des Hauptbestandteils wird der Name dieses Materials häufig vorangestellt. Im Fall der kohlenstoffbasierten Materialien besteht das Komposit-Material aus einem thermoplastischen oder duroplastischen Harz und Füllmaterialien wie Graphit, Ruß oder Kohlenstoffasern (vgl. Abbildung 2.3). Für die kohlenstoffbasierten Bipolarplatten werden in dieser Arbeit die Graphit-Komposit-Materialien betrachtet, da in den Bipolarplatten der Kohlenstoff hauptsächlich in Form von Graphit verwendet wird. Die Vor- und Nachteile der jeweiligen Materialien für die Anwendung in PEM-Brennstoffzellen werden im Folgenden kurz dargelegt.

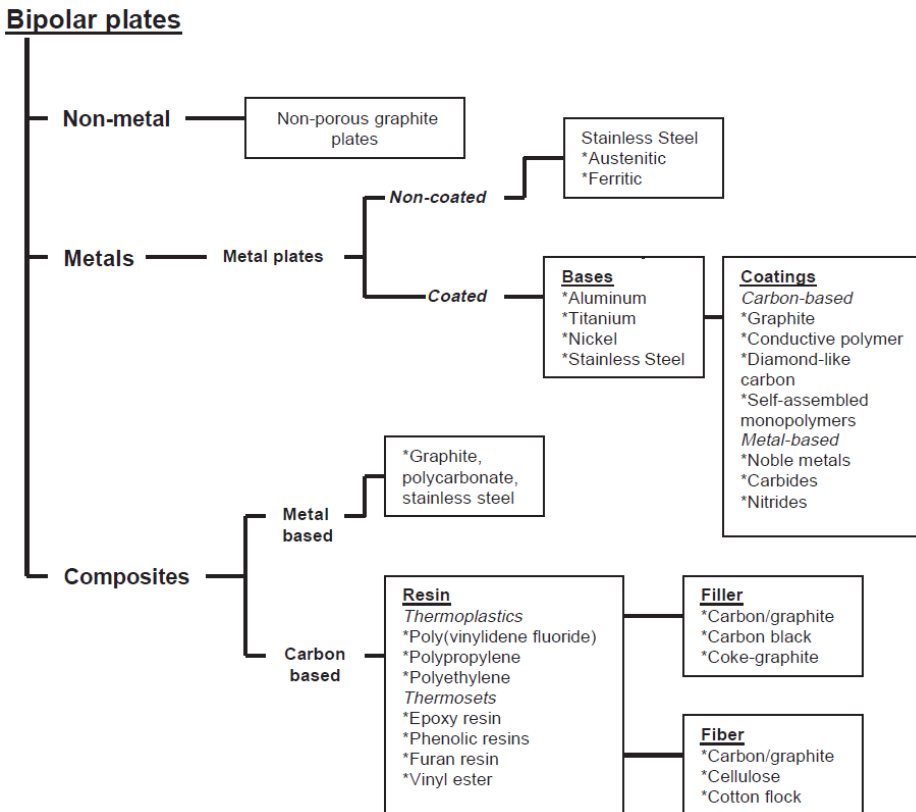


Abbildung 2.3: Bipolarplattenmaterialien nach Hermann et al. [6]<sup>1</sup>

### 2.2.1 Metallische Bipolarplatten

Die metallischen Bipolarplatten sind gute thermische und elektrische Leiter, sie besitzen gute mechanische Eigenschaften und eine geringe Permeabilität gegenüber den Gasen Wasserstoff und

<sup>1</sup> Nachdruck von International Journal of Hydrogen Energy, 30, Herman et al., *Bipolar plates for PEM fuel cells: A review*, 1297–1302, © 2005, mit der Genehmigung von Elsevier

Sauerstoff. Des Weiteren kann die metallische BPP leicht in Massenproduktion zu geringen Kosten hergestellt werden. Prägeverfahren, wie das traditionelle Prägen und das Hydroformen, sind etablierte Herstellungsverfahren für die Massenproduktion von metallischen BPP. Für das traditionelle Prägen werden zwei Prägestempel benötigt, eine Negativform und eine Positivform [12]. Bei dem Hydroformen wird ein Prägestempel durch eine Kammer ersetzt, in die Wasser mit sehr hohem Druck gepresst wird [13]. Durch die Möglichkeit metallische BPP sehr dünn und damit sehr leicht zu produzieren sind sie vor allem für die Massenproduktion und die Anwendung im mobilen Bereich von großem Interesse. Nachteilig an metallischen BPP ist ihre Neigung zur Korrosion und die Bildung von Passivschichten an den Oberflächen in Brennstoffzellenumgebungen, wodurch der Kontaktwiderstand zur anliegenden GDL massiv erhöht wird [14]. Die metallischen BPP benötigen daher eine entsprechende Beschichtung. Als Basismaterialien für metallische Bipolarplatten wurden Aluminium [15, 16], Titan [17, 18], Nickelverbindungen [19] und Edelmetalle [20, 21] untersucht. Dabei werden den Edelmetallen aufgrund ihrer relativ hohen Festigkeit und chemischen Stabilität sowie der Eignung zur Massenproduktion bei niedrigen Kosten das größte Potential für die Anwendung als BPP in Brennstoffzellensystemen zugesprochen [6]. In der Literatur werden Beschichtungen unter anderem aus Gold, Titanitrid, Chromnitrid, Zirkoniumnitrid sowie mit leitfähigen Polymeren beschrieben und in Übersichten von Taherian [22] und Antunes et al. [23] zusammengefasst. Die Korrosionsanfälligkeit der BPP kann durch die Beschichtungen stark reduziert werden. Die Langzeitstabilität von metallischen BPP in einer Brennstoffzellenumgebung ist jedoch weiter zu verbessern. Die von Taherian [22] betrachteten Forschungsarbeiten können auch mit Beschichtung der metallischen BPP keine 4000 Stunden Betriebsdauer ohne Degradation vorweisen. Porstmann et al. [24] bezweifeln, dass in naher Zukunft metallische BPP mit einer Betriebsdauer von 8000 Stunden entwickelt werden können.

### 2.2.2 Graphitische Bipolarplatten

Graphitische Bipolarplatten besitzen eine gute Korrosionsbeständigkeit und sind bei den Betriebsbedingungen in einer Brennstoffzelle chemisch stabil. Sie besitzen eine gute elektrische und thermische Leitfähigkeit. Nachteile der graphitischen BPP sind ihre hohen Herstellungskosten, da das Strömungsfeld in gepresstes Graphit gefräst werden muss. Weitere Nachteile sind die schlechten mechanischen Eigenschaften, die geringe Schockresistenz und schwere Handhabbarkeit aufgrund der Sprödigkeit des Materials [7]. Daher ist diese Art der Bipolarplatte weder für die mobile Anwendung noch für die Massenproduktion geeignet. Aufgrund ihrer guten Brennstoffzellenperformance werden reine Graphit-Bipolarplatten als Referenzmaterial zur Erforschung weiterer Komponenten und Materialien in der PEM-Brennstoffzelle sowie zum Prototypenbau benutzt [24, 25].

### 2.2.3 Graphit-Komposit-Bipolarplatten

Die Graphit-Komposit-Bipolarplatte vereint die Vorteile einer graphitischen BPP mit den Vorteilen eines Polymeranteils zur besseren Herstellbarkeit und Handhabbarkeit. Die Graphit-Komposit-Bipolarplatte kann im Vergleich zu reinen graphitischen Bipolarplatten günstiger hergestellt werden. Zu den Herausforderungen der Graphit-Komposit-Bipolarplatten gehören ihre geringere elektrische Leitfähigkeit und die Permeabilität von Wasserstoff [26]. Aufgrund der Korrosionsstabilität der Graphit-Komposit-Bipolarplatte eignet sich diese für langlebige Anwendungen wie Brennstoffzellen im Wohnbereich [27]. Laut Song et al. [28] ist eine Anwendung der Graphit-Komposit-Bipolarplatte im mobilen Sektor möglich, die Anwendungen von Graphit-Komposit-Bipolarplatten liegen aber eher in stationären Kraft-Wärme-Kopplungsanlagen oder in Auxiliary-Power-Unit Anlagen. Im stationären Bereich liegen die erforderlichen Betriebsstunden für Brennstoffzellen mit 40000 Stunden deutlich über der Anforderung in mobilen Anwendungen mit ca. 5000 Stunden [10], sodass die Langlebigkeit der Brennstoffzellen und ihrer Komponenten von entscheidender Bedeutung ist.

Die Graphit-Komposit- Bipolarplatte besteht aus einem Polymerbinder und einem elektrisch leitenden Füllmaterial. Dieses Füllmaterial besteht häufig auf einer Graphitbasis. Natürliches und synthetisches Graphit [29, 30], expandiertes Graphit [31, 32], Rußpartikel [29, 33, 34] Kohlenstofffasern und Kohlenstoffnanoröhrchen [35] sind dabei mögliche kohlenstoffbasierte Füllstoffe für Graphit-Komposit-Bipolarplatten.

Als Bindermaterial werden Duroplaste und Thermoplaste erforscht. Dabei können in Duroplasten hohe Graphitanteile realisiert werden. Allerdings besitzen diese Komposit-Materialien lange Zykluszeiten in der Herstellung. Daher liegt der Fokus der Materialentwicklung auf Thermoplasten, die sich wegen ihrer geringen Dichte und der günstigeren und einfacheren Fertigung eher für die Massenproduktion eignen. Bei Thermoplasten besteht die Herausforderung darin, den Füllstoffanteil zu erhöhen. Gleichzeitig besitzen die Komposite aufgrund von hoher Viskosität eine limitierte Fließfähigkeit und eine geringe Dimensionsstabilität wegen ihrer geringen Schmelztemperatur [36].

Die Hauptherstellungsverfahren für Graphit-Komposit-Bipolarplatten sind das Formpressen (engl. Compression moulding) und das Spritzgießverfahren (engl. Injection moulding). Beim Formpressen wird ein Verbundmaterial aus Polymeranteil und Füllstoffanteil in eine vorgewärmte Form gegeben. Während das Material fließt um die Kavität auszufüllen, wird es mit Hilfe einer hydraulischen Presse gepresst [37]. Für das Spritzgussverfahren wird mit einem Knetter oder einem Extruder bei Prozesstemperaturen von 200 °C bis 250 °C ein Verbundmaterial aus Thermoplasten und Kohlenstofffüllmaterial mit zusätzlichen leitfähigen Additiven erzeugt und anschließend zu Granulat

weiterverarbeitet [38]. Im weiteren Prozessschritt wird dieses Granulat einer Förderschnecke zugeführt und über eine Düse in eine Form gespritzt [37].

Die unterschiedlichen Herstellungsarten haben einen Einfluss auf die Eigenschaften der Komposit-Bipolarplatte und ihre Leistungsfähigkeit in der Brennstoffzelle. Beim Formpressen bildet sich in der Bipolarplatte eine homogene Struktur und beim Spritzgießen bildet sich eine ausgeprägte Oberflächen-Kernstruktur. Die innere Strukturbildung bei spritzgegossenen Proben ist abhängig von der Fließgeschwindigkeit der Spritzgussmasse. Sie bildet sich durch das Abkühlen und das vorzeitige Erstarren der Spritzgussmasse an den Wänden der Kavität bei gleichzeitig bewegter Spritzgussmasse im Inneren der Probe. Die elektrische Leitfähigkeit von formgepressten Proben ändert sich nicht mit der Dicke der Probe, wohingegen bei spritzgegossenen Proben die elektrischen Eigenschaften über der Höhe variieren [39]. Cho et al. [40] vergleichen zwei Komposit-Materialien mit Bipolarplatten aus reinem Graphit. Dabei wird die eine Komposit-Bipolarplatte durch Heißpressen eines Pulvergemisches zu einer ebenen Platte und anschließendem Fräsen der Kanalstruktur hergestellt. Bei dem anderen Komposit-Material wird die Kanalstruktur direkt durch Formpressen eingebracht. Beide Komposit-Materialien weisen in elektrischen Widerstandstests ähnliche Eigenschaften auf wie reine Graphit-Bipolarplatten. Das Komposit-Material aus Formpressen weist in Brennstoffzellentests bei hohen Stromdichten eine leicht bessere Zellperformance auf, da es einen höheren Kontaktwinkel für Wasser an der Oberfläche besitzt und so das in der Brennstoffzelle entstehende Wasser in den Kanälen der Bipolarplatte besser abgeführt werden kann.

Bei der Komposit-Bipolarplatte gilt es einen guten Kompromiss aus mechanischen und elektrischen Eigenschaften bei geringen Produktionskosten zu finden. Von den Anforderungen an die Eigenschaften der Komposit-Bipolarplatte ist eine hohe elektrische Leitfähigkeit am schwersten zu erreichen. Für eine gute elektrische Leitfähigkeit des Komposit-Materials wird ein hoher Füllstoffanteil benötigt. Bei einem hohen Füllstoffanteil ergeben sich jedoch Schwierigkeiten für den Herstellungsprozess. Des Weiteren kann ein zu hoher Füllstoffanteil eine Verringerung der mechanischen Stabilität zur Folge haben [41]. Das nächste Kapitel beschäftigt sich daher eingehender mit der elektrischen Leitfähigkeit der Komposit-Bipolarplatte.

### 2.3 Elektrische Leitfähigkeit von Komposit-Bipolarplatten

Der Arbeitsbereich in dem PEM-Brennstoffzellen typischerweise betrieben werden, wird von ohmschen Widerständen beeinflusst. Ein großer Teil des ohmschen Widerstandes entfällt dabei auf den Widerstand der protonen-leitenden Membran [42]. Die ohmschen Widerstände der weiteren

Komponenten sind jedoch nicht zu vernachlässigen. Der ohmsche Widerstand der BPP setzt sich aus dem Bulkwiderstand und den Kontaktwiderständen zu den angrenzenden Gasdiffusionslagen zusammen. Im Vergleich zu Bipolarplatten aus Metall oder aus reinem Graphit ist die elektrische Leitfähigkeit von Komposit-Materialien deutlich niedriger, sodass der Bulkwiderstand der Komposit-Bipolarplatte für den gesamten ohmschen Widerstand in einer Brennstoffzelle berücksichtigt werden muss.

### 2.3.1 Bulkwiderstand

Als Bulkwiderstand wird der elektrische Widerstand im Inneren eines Körpers definiert. Die metallischen BPP besitzen eine ausreichend hohe elektrische Leitfähigkeit. Die Graphit-Komposit-Bipolarplatten sind ein Verbund aus einem elektrisch leitfähigen Material und einem Polymer, welches nicht leitfähig ist. Die Leitfähigkeit des Komposit-Materials ist abhängig von dem Anteil und der Verteilung des leitfähigen Materials. Die Perkolationstheorie beschreibt den Perkolationsschwellwert als den Wert, ab dem sich ein leitfähiges Netzwerk aus dem leitfähigen Material ausbildet und das gesamte Komposit-Material leitfähig wird. Abbildung 2.4 zeigt die Leitfähigkeit des Komposit-Materials  $\sigma$  in Abhängigkeit des Anteils des leitfähigen Füllmaterials  $\varphi$ .  $\sigma_p$  beschreibt den Leitfähigkeitswert des reinen Polymers,  $\sigma_c$  den Leitfähigkeitswert sobald die Perkolationsschwelle erreicht ist und  $\sigma_m$  beschreibt den maximal erreichbaren Leitfähigkeitswert bei dem maximal möglichen Füllstoffvolumenanteil  $F$ . Steigt der Anteil des leitfähigen Füllmaterials  $\varphi$  über den Perkolationsschwellwert  $\varphi_{c1}$ , steigt die Leitfähigkeit des Kompositmaterials schlagartig stark an, bis eine Sättigung bei hohen Füllstoffanteilen  $\varphi_{c2}$  erreicht wird [43] (vgl. Abbildung 2.4). Um eine möglichst gute elektrische Leitfähigkeit zu erreichen, besitzen Graphit-Komposit-Bipolarplatten einen hohen elektrisch leitfähigen Füllstoffanteil. Typische Werte liegen zwischen 60 Vol.-% und 80 Vol.-% [26, 44].

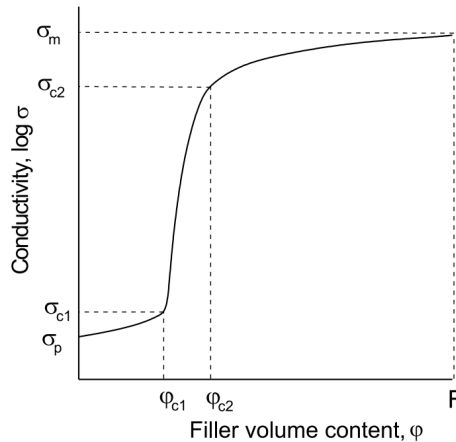


Abbildung 2.4: Leitfähigkeit in Abhängigkeit des Füllstoffanteils [43]<sup>2</sup>

Der ohmsche Widerstand des leitfähigen Netzwerks des Komposit-Materials wird bei niedriger Beladung durch den Elektronentransfer zwischen den einzelnen leitfähigen Partikeln bestimmt. Bei hoher Beladung nimmt der Leitfähigkeitsmechanismus innerhalb der leitfähigen Partikel eine größere Bedeutung an [45]. Neben dem Anteil der elektrisch leitfähigen Graphitpartikel ist ihre Form und ihre Ausrichtung von Bedeutung für den elektrischen Widerstand [46]. Die Struktur von Graphitpartikeln ist schichtförmig. Sie besitzen parallel zur Schicht gute elektrische Leitfähigkeiten, senkrecht zur Schicht jedoch nicht. Durch die Form und die Ausrichtung der Graphitpartikel beim Formpressen besitzen formgepresste Graphit-Komposit-Bipolarplatten starke anisotrope Eigenschaften. Parallel zur Plattenebene (engl.: in-plane) sind die elektrischen Leitfähigkeitswerte bedeutend größer als senkrecht zur Plattenebene (engl.: through-plane) [47]. Eine weitere formbedingte Eigenschaft der leitfähigen Partikel ist die Kontaktbildung zu benachbarten Partikeln. Flockenähnliche Partikel bilden Oberflächen-zu-Oberflächen-Kontakte, während kugelförmige Partikel Punkt-zu-Punkt-Kontakte formen. Bei geringer Kontaktierung schiebt sich die isolierende Polymerschicht zwischen die leitfähigen Partikel. Es kommt zur Bildung von nicht leitfähigen Inseln, die die Verbindung zwischen leitfähigen Partikeln blockieren und den elektrischen Widerstand des gesamten Materials erhöhen [48]. Durch die Kombination mehrerer Füllmaterialien, wie z.B. von Graphitpartikeln mit kleineren Rußpartikeln, kann das primäre leitende Netzwerk unterstützt und die Leitfähigkeit des Komposit-Materials erhöht werden [49]. Die Vorstellung von leitfähigen Netzwerken in Graphit-Komposit-Materialien wird anschaulich in der Arbeit von Kreuz [25] dargestellt. In Abbildung 2.5 sind zur Visualisierung des Leitfähigkeitsnetzwerkes mögliche elektrisch leitende Pfade entlang von Graphitpartikeln in einer Rasterelektronenaufnahme eines Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterials

<sup>2</sup> Nachdruck von European Polymer Journal, 38, Mamunya et al., *Electrical and thermal conductivity of polymers filled with metal powders*, 1887-1897, © 2002, mit Genehmigung von Elsevier

eingezeichnet. Antunes et al. [26] listen die Ergebnisse verschiedener Forschergruppen auf, die eine elektrische Leitfähigkeit über der Zielgröße von 100 S/cm für die Komposit-Bipolarplatte erreicht haben. Die meisten Studien in der Übersicht von Antunes et al. [26] geben jedoch nur die Leitfähigkeit in in-plane Richtung an. Des Weiteren werden die elektrischen Leitfähigkeitswerte mit Proben aus Laborbedingungen und nicht aus einem Massenproduktionsprozess generiert.

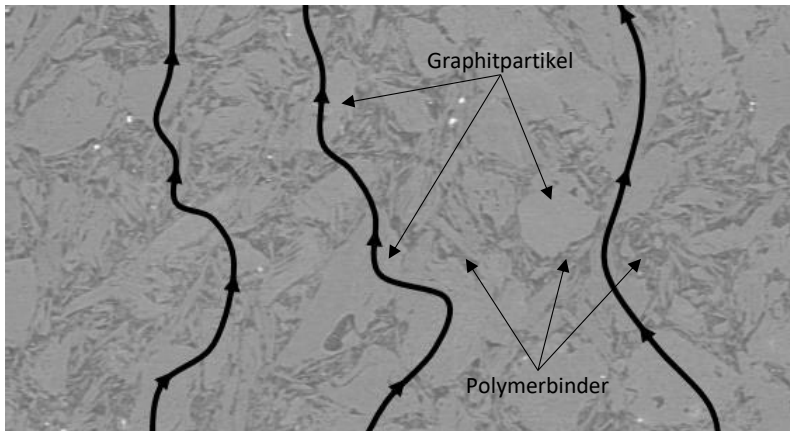


Abbildung 2.5: Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterials mit Graphitpartikeln und Polymerbindermaterial sowie beispielhafter Einzeichnung möglicher Leitfähigkeitspfade entlang eines leitenden Netzwerkes aus Graphitpartikel

### 2.3.2 Kontaktwiderstand

Die elektrischen Kontaktwiderstände zwischen den einzelnen Komponenten (engl.: interfacial contact resistance, kurz ICR) sind neben deren Bulkwiderständen von entscheidender Bedeutung für die ohmschen Widerstände und die Leistung der Brennstoffzelle [50]. Für die Bipolarplatte sind die Kontaktwiderstände zur benachbarten GDL von Interesse. Der Kontaktwiderstand ist abhängig von der Kontaktfläche, dem Anpressdruck der beteiligten Materialien und der Oberflächenbeschaffenheit [51]. Die Ausbildung von passiven Schichten auf den Oberflächen von metallischen BPP hat einen massiven negativen Effekt auf den Kontaktwiderstand. Aus diesem Grund werden Beschichtungen erforscht, mit denen die Bildung der passiven Schicht sowie die Korrosion der metallischen BPP verhindert und zeitgleich der Kontaktwiderstand verringert werden kann [7]. Bei Graphit-Komposit-BPP wirkt sich die polymerreiche Schicht an der Oberfläche negativ auf den Kontaktwiderstand aus [52]. Die polymerreiche Schicht entsteht beim Formpressen und der Spritzguss Herstellung durch Polymerisation der Verbundmischung an den Außenwänden der Gussform [24, 53]. Zur Verbesserung des Kontaktwiderstandes wird die polymerreiche Schicht entweder abgefräst oder durch Abrasivstrahlen [52] oder mit Plasma-Etching [54] entfernt. Jiang et al. [53] versuchen den Kontaktwiderstand zu

verringern, indem Sie kaktusähnliche Formen aus leitfähigen Kohlenstofffasern in die polymerreiche Schicht einbringen.

## 2.4 Fertigungsmängel von Bipolarplatten für PEM-Brennstoffzellen

Eine inhomogene Stromverteilung in der Elektrode oder der Bipolarplatte kann in einer Brennstoffzelle zur Hot-Spot Bildung mit hohen Stromdichten und hohen Temperaturen führen. Diese können die Membran beschädigen und schneller altern lassen, wodurch die Brennstoffzellen- und Systemlebensdauer verkürzt wird [55]. Lokale Defekte müssen von dem Rest der Zelle kompensiert werden, was zur schnelleren Alterung in gut arbeitenden Bereichen der Zelle führen kann [56]. Des Weiteren kann eine Funktionsstörung in einer Zelle eines Brennstoffzellenstacks Einflüsse auf benachbarte Zellen haben [57]. Relevant wird dies, wenn die Bipolarplatten die Defekte nicht durch ihre Querleitfähigkeit ausgleichen können. Im folgenden Kapitel werden mögliche Fertigungsmängel von metallischen und Graphit-Komposit-Bipolarplatten vorgestellt, die einen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung haben können.

### 2.4.1 Metallische BPP

Fertigungsmängel bei der Produktion von metallischen Platten beinhalten unter anderem die Formtoleranz und Dickenvariation der BPP. Die Formvariation der BPP kann zu Bereichen mit verschlechterter Kontaktierung zwischen BPP und GDL führen und die Leistung der Brennstoffzelle reduzieren [58]. Dünnere GDLs stellen dabei höhere Anforderungen an die Formtoleranzen der BPP. Geometrische Vermessungen zur Formtoleranz können mit einem Laserinterferometrie-Messsystem, einem hochauflösenden Oberflächenerfassungssystem im Mikrometerbereich, durchgeführt werden. Formfehler von dünnen metallischen BPP sind nicht vermeidbar, da sie flexibel sind und im Prägeprozess zurückspringen können und sich wegen der thermischen Spannungen während des Schweißprozesses verformen können [59]. Von Bedeutung für die Qualität einer metallischen BPP ist die Qualität der Beschichtung. Beschädigungen der Beschichtung im Herstellungsprozess oder Rissbildung in der Beschichtung während des Brennstoffzellenbetriebes kann zu Korrosion führen. Darauf folgend kann es durch Lochbildung, durch Elektrokatalysatorvergiftung, durch Membranionenaustausch und durch Passivierungsbildung zu Korrosionsversagen kommen [14]. Durch Korrosionstest mit anschließender Rasterelektronenmikroskopie-Untersuchung (kurz REM) können Beschädigungen an der Beschichtung und Bereiche in denen Korrosion auftritt aufgezeigt werden [60]. Für PEM-BZ Anwendungen, speziell langlebige Anwendungen, wie die häusliche Wärmeerzeugung



bleibt das Korrosionsproblem ungelöst, sodass für diese Anwendung graphit-basierte Materialien Stand der Technik sind [61].

### 2.4.2 Graphit-Komposit BPP

Bei Komposit-Bipolarplatten können herstellungsbedingt Inhomogenitäten auftreten. Bei formgepressten Proben ist der Flussweg der Formmasse kritisch, da sich über die Fließdistanz das Graphit und der Binder entmischen. Durch die Polymerisation des Binders an der Form ändert sich die Zusammensetzung der fließenden Masse. Eine direkte Folge ist die Bildung einer dünnen Schicht mit erhöhtem Polymeranteil an der Oberfläche der Bipolarplatte [24]. Eine kontinuierliche Verteilung von Füllmaterial über die Querschnittsfläche und Dicke der BPP kann durch Adhäsionsversagen von Füllmaterial und Kunststoffbinder sowie Agglomerationen von Füllmaterial beeinträchtigt werden. Die Zugabe von Haftvermittler kann dem entgegenwirken und eine bessere Verteilung von Binder und Füllmaterial bewirken [36]. Suherman et al. [62] untersuchen die Prozessparameter des Formpressens auf die Leitfähigkeit von Komposit-Bipolarplattenmaterialien. Die hohe Viskosität von Bindermischung und Füllmaterial kann zu Schwierigkeiten in der Herstellung und zur Bildung von Luftblasen im finalen Komposit-Material führen. Eine Erhöhung des Druckes beim Aushärtungsprozess presst die verwendeten Materialien enger zusammen und kann dem Effekt der Luftblasenbildung entgegenwirken [62]. Simaafrookhteh et al. [63] stellen heraus, dass es während des Aushärtungsprozesses zu Ausgasungen kommen kann. Falls diese Gase nicht aus dem Material ausweichen können, führt dies zu Porositäten innerhalb der BPP. Ein weiterer Produktionsmangel, den Simaafrookhteh et al. [63] bei schlechten Prozessparametern beobachten, ist das Anhaften von BPP-Resten an der Gussform wegen ungenügender Gussformtemperatur, Aushärtungszeit oder falscher Gussformoberflächenstruktur. Delaminationen in Materialquerschnitten werden ebenfalls beobachtet und können aufgrund von unvollständiger Benetzung durch den Binder oder das Vorhandensein von Restspannungen wegen einer ungleichmäßigen Temperaturverteilung auftreten. Bei unzureichender Materialzufuhr kann es außerdem zu verfrühter Aushärtung des Verbundmaterials kommen. Boyacı San und Okur [64] kommen zu dem Schluss, dass die Leitfähigkeit der Bipolarplatte in Abhängigkeit der Prozessparameter steht und ermitteln Verbesserungspotentiale. Eine Qualitätskontrolle ist notwendig, um Prozessparameter nicht nur von der gesamten Bipolarplatte, sondern auch lokal bewerten zu können. Kürzere Prozesszeiten und geringere Prozesstemperaturen, die erstrebenswert sind, um die Kosten für den Produktionsprozess zu senken, führen zu mehr Blasen, Poren und Fehlstellen in den Bipolarplatten. Eine Einordnung von akzeptablen Mängeln und funktionskritischen Mängeln ist nötig, um kürzere Prozesszeiten zu ermöglichen. Hickmann und Zielinski [61] stellen

heraus, dass Ex-situ Charakterisierungsmöglichkeiten für die Materialentwicklung und Qualitätskontrolle von Komposit-Bipolarplatten benötigt werden. Die Compoundierung und das Schmelzen der Komposit-Materialien sind hochsensitive Prozesse und inhomogene Strukturen können an der Oberfläche und im Bulkmaterial hervorgerufen werden. Heinzel et al. [27] beschreiben in ihrer Studie den Spritzgussprozess von Bipolarplatten und stellen in Bezug auf die Qualität der Bipolarplatten heraus, dass die Markteinführung von Brennstoffzellen stabile, serientaugliche Fertigungsprozesse erfordert, die eine hohe Qualität sicherstellen. Diese Anforderungen könne nur durch automatisierte Prozesse gelöst werden. Daher sei neben dem Wissen über den Fertigungsprozess der Bipolarplatten ein fundiertes Wissen über eine automatisierte Qualitätssicherung für graphitische Bipolarplatten notwendig.

Die vorliegende Arbeit versucht die Lücke der fehlenden Ex-Situ Charakterisierungsmethoden für Graphit-Komposit-Bipolarplatten zu schließen. Dafür werden gängige Qualitätskontrollmessverfahren hinsichtlich ihrer Eignung für die Anwendung auf Graphit-Komposit-Bipolarplatten bewertet und eigene Methoden zur Qualitätskontrolle entwickelt.

## 2.5 Messmethoden zur Charakterisierung und zur Erkennung von Defekten in Graphit-Komposit-Materialien

Messmethoden zur Charakterisierung von Materialproben lassen sich in zerstörende und zerstörungsfreie Prüfverfahren unterteilen. Mit zerstörenden Prüfverfahren werden häufig die Belastungsgrenzen eines Materials bestimmt. Die zerstörenden Prüfverfahren finden in der Materialentwicklung Anwendung und können als Stichproben-Messungen in einem Qualitätssicherungsprozess eingesetzt werden. Im Anschluss an ein zerstörendes Prüfverfahren können die untersuchten Materialproben jedoch nicht mehr für den eigentlichen Zweck verwendet werden, sodass sich die zerstörungsfreien Prüfverfahren als Messmethoden für den Qualitätssicherungsprozess besser eignen. Die Massenproduktion von Bipolarplatten stellt Anforderungen an die Messdauer und den Qualitätssicherungsprozess für eine einzelne Bipolarplatte. Das zeigt folgendes Rechenbeispiel: Für eine Zielgröße von 50000 gefertigten Brennstoffzellenstacks pro Jahr mit 200 in Reihe geschalteten Brennstoffzellen werden ca. 10 Millionen Bipolarplatten benötigt. Für eine 100 prozentige Überprüfung aller Bipolarplatten ergibt sich eine theoretische Messzeit von 3,15 Sekunden pro Bipolarplatte. Viele zerstörungsfreie Prüfverfahren benötigen eine Kontaktierung zwischen Sensor und der Messprobe für die Generierung zuverlässiger Messdaten. Kontaktfreie Messmethoden können durch Verhinderung des physischen Kontaktes geringere Messzeiten ermöglichen. Zu den auf Komposit-Materialien angewendeten zerstörungsfreien

Prüfmethoden zählen unter anderem die Ultraschallmessung, die Wirbelstrommessung, elektromagnetische Prüfverfahren, Eindringprüfungen, die Röntgenprüfverfahren, die Thermographie, die Shearographie und die visuelle Prüfung [65]. Diese Liste kann um akustische Emissionsmessverfahren, Magnetresonanz oder Terahertz-Untersuchungen erweitert werden [66, 67]. Im folgenden Kapitel wird eine Auswahl an vielversprechenden zerstörungsfreien Prüfverfahren zur Untersuchung von Graphit-Komposit-Bipolarplatten kurz vorgestellt und deren Anwendungen aus der Literatur zusammengetragen. Die Graphit-Komposit-Bipolarplatte ist ein besonderer Anwendungsfall von Kohlenstoffverbundmaterialien, daher werden für einige Prüfverfahren Literaturquellen von Kohlenstofffaserverbundwerkstoffen als Ergänzung herangezogen.

Abschließend werden in diesem Kapitel die Methoden ausgewählt, die sich am ehesten für eine Überprüfung der charakteristischen Eigenschaften der Bipolarplatte sowie die gleichzeitige Erkennung von Mängeln eignen. Auf Basis dieser Auswahl wird in der vorliegenden Arbeit ein Messinstrument entwickelt und dessen Eignung für den Qualitätssicherungsprozess von Bipolarplatten evaluiert.

### 2.5.1 Visuelle Prüfung

Für die Qualitätskontrolle der Bipolarplatten aus ihrem Spritzgussprozess verwenden Heinzl et al. [27] eine Kombination verschiedener Belichtungs- und Aufhellungstechniken, der Hell- und Dunkelfeldbeleuchtung sowie Laser. Mit dem Einsatz digitaler Bildverarbeitung werden die Bipolarplatten auf verschiedene Fertigungsfehler, wie Fließfeldstruktur, Biegung oder Kapillarrisse, geprüft. Die Kapillarrisse stellen hohe Anforderungen an die technische Ausstattung. Die durchschnittliche Größe von Kapillarrissen detektieren Heinzl et al. [27] mit 50  $\mu\text{m}$ , so dass zwei 10 Megapixel-Kameras mit einer Auflösung von 3840 x 2748 Pixel notwendig sind, um eine laterale Auflösung von 17  $\mu\text{m}/\text{Pixel}$  bei einer Objektivabdeckung von 65,3 x 46,7  $\text{mm}^2$  zu erreichen. Die visuelle Prüfung ist eine schnelle und einfache Art der Überprüfung. Es können jedoch nur Defekte an der Oberfläche bzw. Defekte, die Veränderungen an der Oberfläche hervorrufen, detektiert werden. Eine besondere Form der visuellen Prüfung ist die Shearographie, die im Folgenden vorgestellt wird.

### 2.5.2 Shearographie

Die Shearographie wird auch als Laser-Speckle-Shearing-Interferometrie bezeichnet und ist ein optisches Oberflächenmessverfahren [68]. Das Messverfahren beruht auf der Speckle-Messtechnik und nutzt die Erscheinung von Flecken, den sogenannten Speckles, die bei Beleuchtung mit

kohärentem Laserlicht auf einer optisch rauen Oberfläche entstehen. Bei der Shearographie handelt es sich um eine relative Messtechnik. Mit dem Verfahren können minimale Oberflächendeformationen zwischen unterschiedlichen Belastungszuständen der Probe erfasst werden, indem Speckle-Muster vor und während der Belastung miteinander verglichen werden. Durch eine Analyse von lokalen Deformationsanomalien kann auf Volumendefekte im Inneren der Probe geschlossen werden, die einen Einfluss auf die Oberfläche haben [69]. Eingesetzt wird diese Technologie um Mängel wie Delaminationen, Risse, Fehlstellen in Flugzeugkomponenten, Komposit-Materialien und Wabenstrukturen zu detektieren [68]. Spezielle Anwendungen für Bipolarplatten sind bisher nicht bekannt. Die benötigte Anregung der Probe und das geringe Auflösungsvermögen von tieferliegenden Defekten [68, 70] erscheinen unattraktiv für eine Qualitätssicherung und Defekterkennung in der Massenfertigung von Graphit-Komposit- Bipolarplatten.

### 2.5.3 Wirbelstrommessung

Ein Wirbelstromsensor besteht aus einem offenen magnetischen Kern, auf den eine Anregungsspule ein sinusförmiges Signal legt und das primäre magnetische Feld erzeugt [71]. Nähert sich das primäre magnetische Feld einer elektrisch leitfähigen Testprobe, durchdringt es diese und erzeugt in der Testprobe einen Wirbelstrom (engl.: Eddy current). Der Wirbelstrom in der Testprobe erzeugt wiederum ein sekundäres Magnetfeld, welches dem primären Magnetfeld entgegenwirkt. Dieser Einfluss kann an der Spule gemessen werden und lässt Rückschlüsse auf das getestete Material zu [72]. Defekte in der elektrisch leitenden Probe beeinflussen die Bildung des Wirbelstroms und resultieren in Änderungen der Magnetfelder, die mit der Spule detektiert werden können [73]. Das Wirbelstrommessverfahren eignet sich für gut elektrisch leitende Materialien, wie Metalle. Komposit-Materialien mit elektrisch leitfähigen Füllmaterialien und nicht leitfähiger Matrix können untersucht werden, da sich zwischen den Füllmaterialien ein elektrisch leitfähiges Netzwerk bildet, welches den Wirbelstrom leiten kann (vgl. 2.3.1). Wenn der Abstand zwischen benachbarten leitenden Partikeln klein genug ist, können die vorhandenen Elektronen die isolierende Potentialbarriere der Matrix durchqueren. Durch diesen Elektronentunneleffekt kann der Wirbelstrom auch über die Matrix fließen [74]. Basierend auf speziellen Proben zeigen Mook et al. [75], dass ein Wirbelstromscannersystem die Faserorientierung und lokale Mängel wie Faseranteilschwankungen, harzreiche Zonen, Delaminationen und Schäden infolge von Einschlägen in Kohlenstoffaserverbundwerkstoffen visualisieren können. Schmidt et al. [76] untersuchen die Einsatzmöglichkeit des Wirbelstrommessverfahrens zur Qualitätssicherung von Kohlenstoffaserverbundwerkstoffen unter Berücksichtigung der Erkennung der Faserorientierung und Defekterkennung. Als Probe dient ein

mehrschichtiger Faserverbundwerkstoff mit künstlich eingebrachten Defekten aus Stahl und PTFE, die in unterschiedlichen Schichten eingearbeitet werden. Mittels Wirbelstrommessverfahren kann die Faserorientierung der obersten Schichten erkannt werden. Defekte aus Stahl sind bis zu einer minimalen Größe von 6 mm x 6 mm erkennbar. Bei Defekten aus PTFE ist die Auflösung der Defekte schlechter. Des Weiteren besteht eine Limitierung in der Erkennung von tieferliegenden Defekten. Weitere Limitierungen des Wirbelstrommessverfahrens sind Randeffekte. Durch Randeffekte wird der Wirbelstromfluss in einer Probe verzerrt, da am Rand keine Ströme fließen können. Bei umlaufenden Sonden beträgt der Abstand, in dem der Randeffekt auftritt, etwa das Ein- bis Dreifache des Durchmessers der Prüfspule. Durch eine Verkleinerung der Spulengröße kann der Randeffekt reduziert werden [72]. Für die Anwendung bei einer Bipolarplatte mit einer feinen Strömungsfeldstruktur und Kantenabständen im Millimeterbereich ergeben sich durch Randeffekte technische Schwierigkeiten für die Größe des Sensors.

#### 2.5.4 Ultraschall

Die Ultraschallprüfung beruht auf dem Prinzip der unterschiedlich schnellen Ausbreitung von Schallwellen in verschiedenen Medien. Defekte in Materialproben können detektiert werden, da die Schallwellen an ihren Oberflächen reflektiert oder transmittiert werden [77]. Ein Messsystem zur Ultraschallmessung besteht aus einer Sender und Empfängerschaltung, einem Wandler und Anzeigegegeräten. Zwei Ansätze in der Ultraschallmesstechnik sind das Pulsechoverfahren und das Transmissionsverfahren. Typische Verfahren nutzen Schallwellen im Frequenzbereich von 1 MHz bis 50 MHz um Defekte im Inneren von Komposit-Materialien zu detektieren [65]. Das Puls-Echo Verfahren nutzt reflektierende Schallwellen und die Lage eines Defektes kann über die Zeit zwischen Impuls des Senders und Signal am Empfänger ermittelt werden [77]. Eine hohe Auflösung erreicht die Ultraschallmikroskopie. Die Auflösung  $R_A$  des Ultraschallmikroskops ist abhängig von der Schallwellenlänge im Medium  $\lambda_W$  und der numerischen Apertur der Linse  $N_{Apertur}$  im Mikroskop [78]:

$$R_A = 0,5 \cdot \frac{\lambda_W}{N_{Apertur}} \quad (2.7)$$

Die Schallwellenlänge in einem Medium hängt wiederum von der Schallgeschwindigkeit in dem verwendeten Medium und der Frequenz ab:

$$\lambda_W = \frac{v_W}{f} \quad (2.8)$$

Mit einer Anregungsfrequenz von 2 GHz und einer numerischen Apertur von 1 könnte so theoretisch in Wasser eine Auflösung  $R_A$  von 0,4  $\mu\text{m}$  erreicht werden. Zur Übertragung der Schallwellen von der

akustischen Mikroskoplinsen in die zu untersuchende Probe wird ein Kopplungsfluid benötigt, damit die Ultraschallwellen in die Probe eingeleitet werden können und nicht zu stark an der Oberfläche reflektiert werden [78]. Häufig wird Wasser als Kopplungsfluid eingesetzt. Mit Hilfe der Ultraschallmikroskopie bzw. der Rasterultraschallmikroskopie untersuchen Lin et al. [79] die Faserorientierung in Bipolarplatten mit Kohlenstofffasern. Jiang et al. [80] nutzen die Ultraschallprüfmethode, um Fehlstellen in unstrukturierten Bipolarplattenmaterialien zu erkennen. Dafür wird die Bipolarplatte mit dem Ultraschallprüfsystem USPC 3040 DAC mäanderförmig abgerastert. Mit diesem Ultraschallprüfsystem können Auflösungen im Submillimeterbereich erreicht werden [81]. Es können sogenannte B-Scans und C-Scans erstellt werden. B-Scans zeigen die Ultraschallergebnisse auf einer Schnittebene und können die Tiefe eines Defektes anzeigen. C-Scans zeigen die Verteilung der Ultraschallsignale auf der Abrasterungsebene. Für die Ankopplung des Ultraschallprüfsystems wird ein Kopplungsfluid benötigt und die Verfahrensgeschwindigkeit des Prüfkopfes bestimmt die Messdauer, sodass eine Anwendung für die Qualitätskontrolle in der Massenfertigung von Bipolarplatten erschwert wird. Durch Ultraschallarrays, individuelle zusammengeslossene Prüfköpfe in einem Wandler, können Messdauer und Messgenauigkeit gesteigert werden. Flexible Ultraschallarrays ermöglichen auch die Untersuchung von komplexen Geometrien [82]. Aus der Literatur sind nach Kenntnis des Autors bisher keine Untersuchungen von Bipolarplatten mit komplexen Strömungsfeldstrukturen mittels Ultraschallverfahren bekannt. Malkin et al. [83] zeigen anhand einer Untersuchung von Acrylkörpern mit sinusförmigen Oberflächenprofilen den Einfluss der Oberflächenstruktur auf die Ultraschalluntersuchung. Die sinusförmigen Oberflächenprofile variieren in Amplitude und Wellenlänge. Als Kupplungsagent zwischen Ultraschallarray und Probenkörper wird Wasser eingesetzt. Sobald die Änderung des Oberflächenprofils über 45 Grad liegt, steigt der Rekonstruktionsfehler bei der Ultraschalluntersuchung der Oberfläche exponentiell an. Gleichzeitig zeigt die Studie von Malkin et al. [83], dass mit steigendem Gradienten des Oberflächenprofils die Genauigkeit der Erkennung für Defekte im Inneren der Probe sinkt und die Unschärfe zunimmt, bis Defekte nicht mehr erkannt werden können. Die kleinsten untersuchten Strukturen haben Abmessungen von 2 mm und liegen damit über den zu erwarteten Strömungsfeldstrukturen und Fehlerdimensionen in den Graphit-Komposit-Bipolarplatten für PEM-Brennstoffzellen.

### 2.5.5 Thermographie

Die Infrarot-Thermographie basiert auf lokalen Infrarot-Emissionen von einer Oberfläche nach dem Stefan-Boltzmann Gesetz. Die von einem Infrarot-Detektor aufgezeichneten Emissionen einer Probe

geben Informationen über die innere Struktur, die thermischen Eigenschaften und mögliche Defekte im Inneren der zu untersuchenden Probe [84]. In der Literatur wird zwischen passiver und aktiver Thermographie unterschieden. Die Anregungsmethoden der aktiven Thermographie können optische, mechanische oder elektromagnetische Anregungen sein. Bei optischen Anregungen wird die Wärme über die Oberfläche in die Probe eingebracht und die Defekterkennung basiert auf der thermischen Leitfähigkeit der Probe und der Reflexion der thermischen Welle an dem Defekt. Bei elektrischen oder mechanischen Anregungen generieren defekte Stellen in dem Material Wärmesignale, die an der Oberfläche beobachtet werden können [85]. Ein verbreitetes thermisches Anregungsverfahren ist die Puls-Thermographie mittels Blitzlampe. Mit der Blitzlampe wird ein Energieimpuls auf die Probe gegeben. Dies führt zu einer thermischen Front, die sich in der Probe gemäß der Fourier-Diffusionsgleichung ausbreitet. Sowohl Transmission als auch Reflexion der thermischen Welle können untersucht werden. Der Unterschied in der Wärmeausbreitung innerhalb der Probe aufgrund eines Defektes kann durch eine Änderung der Oberflächentemperatur beobachtet werden. Zur Bestimmung der Tiefenlage  $z$  von Defekten in der Probe kann die Beziehung zwischen der thermischen Ausbreitungszeit  $t$  und der thermischen Diffusivität  $\alpha$  des Materials genutzt werden [84]:

$$t \sim \frac{z^2}{\alpha} \quad (2.9)$$

Die Vorteile des Puls-Thermographie-Verfahrens sind ein simpler Messaufbau und die Geschwindigkeit des Messverfahrens. Durch ein System mit flächendeckender Impulserwärmung und Infrarot-Kamera kann eine große Fläche gleichzeitig analysiert werden [84]. Die Infrarotkamera nimmt für jeden Pixel des Detektors ein zeitabhängiges Temperatursignal auf. Dies ermöglicht eine Analyse des Infrarotbildes zu einem bestimmten Zeitpunkt. Eine Weiterentwicklung der Puls-Thermographie im Bereich der Nachbearbeitung ist die Puls-Phasen-Thermographie [86], welche eine Analyse des zeitabhängigen Verlaufs der Temperatur ermöglicht. Mit der diskreten Fourier Transformation (kurz DFT) wird das zeitabhängige Temperatursignal jedes Pixels in ein frequenzabhängiges Signal umgewandelt. Das frequenzabhängige Signal kann in Amplituden und Phasen unterteilt werden. Damit ist es möglich sowohl einen Amplitudenkontrast, als auch einen Phasenkontrast für einen Bildbereich zu bestimmen und schärfere Kontraste für defekte Stellen zu generieren. Popow und Gurka [86] untersuchen die mittels Puls-Thermographie-Verfahren erreichbare Genauigkeit zur Defekterkennung in Kohlenstoffaserverbundwerkstoffen. Die untersuchten Defekte haben einen minimalen Durchmesser von 6 mm und durch einen optimierten Auswertalgorithmus können alle Defekte in der untersuchten Probe erkannt werden. Fischlschweiger et al. [87] untersuchen Defekte mit einer Größe von 2 mm x 2 mm bis 7 mm x 7 mm in Verbundmaterialienplatten aus Kohlenstofffasern und den thermoplastischen Polymeren Polypropylen und Polyamid. Polypropylen und Kohlenstofffasern sind Materialien, die auch in Komposit-Bipolarplatten für Brennstoffzellen Anwendung finden [6, 27]. Als

künstlich eingebrachte Defekte werden in das Verbundmaterial eingearbeitete PTFE-Folienausschnitte genutzt. Mit der Puls-Phasen-Thermographie gelingt es Fischlschweiger et al. [87] Defekte mit minimalen Abmaßen von 3 mm x 3 mm im Inneren der untersuchten Probe zu detektieren und sie schlussfolgern, dass sich die Puls-Phasen-Thermographie aufgrund der hohen Testgeschwindigkeit zur online Qualitätskontrolle eignet.

Komplexe Geometrien erschweren die Lokalisierung von Defekten in Materialproben mittels Thermographie, da es in Ecken und Kanten zu lokalen Temperaturerhöhungen kommen kann. Die Emissivität und die Reflektivität der Probenoberfläche spielen ebenfalls eine bedeutende Rolle in der Puls-Thermographie, die eine Analyse der Defekte in der Probe erschweren [88]. Krishnapillai et al. [89] merken an, dass das Verständnis für die Interpretation des Messergebnisses einer Thermographieuntersuchung von komplexen Geometrien fehlt. Eine Auswertung kann nur qualitativ im Vergleich zu zuvor empirisch gewonnenen Daten erfolgen. Eine Möglichkeit dieses Verständnis zu entwickeln ist die numerische Simulation der Thermographieuntersuchung, die sich jedoch wie die experimentellen Untersuchungen hauptsächlich auf dünne ebene Platten bezieht [89]. Eine spezielle Anwendung der Thermographie auf Komposit-Bipolarplatten und im Besonderen auf strukturierte Bipolarplatten mit Strömungsfeldstruktur ist aus der Literatur nicht bekannt. Im Bereich der Brennstoffzelle kommt häufig die passive Thermographie zum Einsatz, um Temperaturverteilungen im Stack oder der Einzelzelle zu untersuchen. Der Fokus dieser Untersuchungen liegt dabei auf Fluidströmungen und dem Erkennen aktiver Zonen in den Brennstoffzellen. Gould et al. [90] untersuchen unterschiedliche Geometrien von Kühlstromfeldplatten für PEM-Brennstoffzellen mit Hilfe der passiven Infrarot-Thermographie. Die Infrarot-Thermographie macht die In-Plane Temperaturverteilung der Kühlmittelströmung sichtbar und erkennt lokale Hot-Spots, die aufgrund von Luftblasen in der Strömung entstehen. Die Strömungsfeldplatten werden aus einer Titanlegierung gefertigt und haben in den Experimenten von Gould et al. [90] keinen sichtbaren Einfluss auf die Temperaturverteilung.

### 2.5.6 Radiographie und Röntgentomographie

Die Röntgenmikrotomographie ermöglicht die zerstörungsfreie Abbildung der inneren Mikrostruktur von Materialien mit einer der Auflösung eines optischen Mikroskops vergleichbaren Auflösung [91]. Die Röntgentomographie beruht wie die Radiographie auf dem Prinzip der Transmission und teilweisen Absorption von Röntgenstrahlen in einer Materialprobe. Die Abschwächung von Röntgenstrahlung in homogenen Objekten bei einer konstanten Wellenlänge  $\lambda$  kann in Abhängigkeit der Wegstrecke  $x$  durch Gleichung 2.9 beschrieben werden [91]:



$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu \cdot x} \quad (2.10)$$

Dabei ist  $I$  die Intensität nachdem die Röntgenstrahlung eine Wegstrecke  $x$  in dem Material durchlaufen hat.  $I_0$  ist die Röntgenstrahlintensität vor Abschwächung und  $\mu$  beschreibt den linearen Abschwächungskoeffizienten. Der Abschwächungskoeffizient  $\mu$  ist materialabhängig und wird dominiert von dem photoelektrischen Effekt. Für einen spezifischen Punkt  $(x,y,z)$  im Material kann der Abschwächungskoeffizient  $\mu$  laut Garcea et al. [92] in Abhängigkeit der Dichte  $\rho$ , der Ordnungszahl  $Z$  sowie der Energie der Photonen  $E$  der Röntgenstrahlung und einer Konstanten  $K$  beschrieben werden:

$$\mu(x, y, z) = K\rho \frac{Z^4}{E^3} \quad (2.11)$$

Aus diesem Zusammenhang lässt sich ableiten, dass Materialien mit niedriger Ordnungszahl weniger Röntgenstrahlung absorbieren. Dies wirkt sich für Komposit-Materialien vorteilhaft aus, da die Röntgenstrahlung gut durch Komposit-Materialien, deren Elemente eine vergleichsweise niedrige Ordnungszahl haben, transmittieren können. Für den Kontrast zwischen den Kohlenstoff-Füllmaterialien und der Polymermatrix von Kohlenstoffverbundmaterialien mit ähnlicher stofflicher Zusammensetzung ist es hingegen nachteilig [92].

In der Radiographie werden 2D-Röntgenbilder einer Probe untersucht. In der Röntgentomographie setzt ein Computer basierend auf Bildrekonstruktionsalgorithmen aus mehreren 2D-Röntgenintensitätsbildern ein Tomogramm zusammen, daher wird in der Literatur häufig der Begriff Computertomographie (kurz: CT) verwendet. Ein geeigneter experimenteller Aufbau zur volumetrischen Computertomographie ist die Kegelstrahlgeometrie. Bei diesem Aufbau rotiert eine Materialprobe zwischen einer punktförmigen Röntgenquelle und einem flächigem Detektor [91].

Die Auflösung der kommerziell erhältlichen Röntgencomputertomographie liegt im Nanometerbereich [93]. Aufgrund der Scanzeiten von mehreren Stunden für hochaufgelöste Tomogramme [92] und hohen Investitionskosten sind Röntgentomographieuntersuchungen für Inline-Qualitätskontrollen nicht geeignet. Vorteile bietet die Computertomographie bei der Entwicklung von neuen Produkten, der Prozesskontrolle, der nicht-invasiven Metrologie, der Vorhersage von Materialverhalten und der Fehleranalyse. Durch den Einsatz der Computertomographie kann der Entwicklungsprozess eines neuen Produktes somit verkürzt werden [91]. Des Weiteren können die Röntgenuntersuchungen genutzt werden, um andere zerstörungsfreie Prüfverfahren zu bewerten und zu validieren. Fischlschweiger et al. [87] bewerten anhand von Radiographiedaten die Eignung von Thermographieverfahren zur Erkennung von künstlich eingebrachten Defekten in Komposit-Materialien mit einer Polypropylen- und Polyamidmatrix und Kohlenstofffasern. Mit Hilfe der Radiographie können, im Gegensatz zur Thermographiemessung, die kleinsten eingebrachten PTFE-Fremdkörper mit einer Größe von 2 mm x 2 mm erkannt werden. Bei den Untersuchungen von

Fischlschweiger et al. [87] zu Delaminierungen im Komposit-Material zeigt hingegen die Thermographie bessere Ergebnisse. Katunin et al. [94] nutzen die Röntgencomputertomographie als Referenzmessung für die Evaluierung von Fehleinschätzungen von Defekten mittels B- und C-Scan-Ultraschalluntersuchungen. Die Röntgen-CT-Scans haben eine deutlich höhere Auflösung und Sensitivität für Defekte in Komposit-Materialien im Gegensatz zu Ultraschallprüfmethoden. Laut Katunin et al. [94] eignen sich die CT-Untersuchungen jedoch nur als Referenzmessungen für praktikablere Anwendungen, wie die Ultraschallprüfung, da die Größe der untersuchbaren Proben auf die Größe des Röntgentomographen limitiert ist und die Untersuchungskosten bei Ultraschallverfahren signifikant niedriger sind. Die dreidimensionale Visualisierung von Fehlstellen, Rissen in der Matrix, Faserbrüchen oder Delamination in Röntgentomogrammen beugt der Fehlinterpretation dieser Effekte in zweidimensionalen Charakterisierungsmethoden vor [92]. Die Verwendung der Röntgentomographie zur Fehlstellen- und Defekterkennung sowie Abbildung der inneren Mikrostruktur von Kohlenstoff-Faserverbundwerkstoffen ist durch kommerziell erhältliche Mikrotomographiesysteme weit verbreitet [95, 96]. Baranowski et al. [97] zeigen die anisotrope Orientierung von Glasfasern in spritzgegossenen Komposit-Materialien mit Polypropylenmatrix mit einer minimalen Auflösung von  $3\ \mu\text{m}$  und validieren mit der Röntgentomographie die Daten aus Simulationen des Spritzgussprozesses des Verbundwerkstoffs. Neben der Validierung von Simulationen findet die numerische Rekonstruktion der Röntgentomographiedaten selbst verstärkt Anwendungen in unterschiedlichen Simulationen von faserverstärkten Komposit-Materialien [92, 98, 99].

Die spezielle Anwendung der Röntgentomographie auf Materialien für Komposit-Bipolarplatten ist in der Literatur wenig beschrieben. In einer Studie zur Alterung von Komposit-Bipolarplatten nutzen Pilinski et al. [100] die Röntgentomographie, um Veränderungen auf der Oberfläche von zwei unterschiedlichen Komposit-Bipolarplatten unter Brennstoffzellenbedingungen zu zeigen. Eine besondere Analyse der inneren Struktur oder Mängel im Inneren der Bipolarplatte wird nicht durchgeführt. Eine Studie von Satola et al. [101] untersucht mittels Röntgencomputertomographie die Bildung von Poren und Fehlstellen in Alterungsversuchen von Graphit-Polypropylen-Platten. Sie verwenden 3D-morphometrische Analysen der CT-Röntgenaufnahmen, um die Volumina von offenen und geschlossenen Poren in der Oberflächenschicht und im Bulkmaterial nahe der Oberfläche zu evaluieren. Bei einem Betrachtungsvolumen von  $1000\ \mu\text{m} \times 1000\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$  beträgt die Auflösung  $1,44\ \mu\text{m}$  pro Pixel. Weitere Anwendungen der Röntgentomographie mit Bezug auf Brennstoffzellenkomponenten beziehen sich hauptsächlich auf Komponenten wie der GDL oder der MEA. Kulkarni et al. [102] untersuchen die uneinheitliche Kompression der MEA zwischen zwei Strömungsverteilerplatten auf inhomogene Transportmechanismen. Die Bipolarplatte wird jedoch für die Tomographieuntersuchungen durch eine Struktur aus Kapton substituiert. In der vorliegenden

Arbeit wird daher die innere Struktur einer Graphit-Komposit-Bipolarplatte mittels Röntgencomputertomographie untersucht. Teilergebnisse dieser Studie werden in einer der Dissertation vorangegangenen Veröffentlichung präsentiert [103] und im Ergebniskapitel dieser Arbeit wieder aufgegriffen.

### 2.5.7 Elektrische Widerstandsmessungen

Die Leitung des elektrischen Stromes ist eine wichtige Aufgabe der Bipolarplatte in einem Brennstoffzellenstack. Für eine möglichst gute Leistung der Brennstoffzelle muss der elektrische Widerstand der Bipolarplatte möglichst gering sein. Für die Qualität einer Bipolarplatte ist der spezifische ohmsche Widerstand von großer Bedeutung. Der ohmsche Widerstand  $R$  ist definiert über das ohmsche Gesetz und wird aus der Spannung  $U$  ermittelt, die über einem mit dem Strom  $I$  durchflossenen Leiter abfällt:

$$R = \frac{U}{I} \quad (2.12)$$

Der spezifische Widerstand  $\rho_{spez.}$  bezieht den Abstand  $L$  zwischen den Messpunkten und die Querschnittsfläche  $A$  des elektrischen Leiters mit ein:

$$\rho_{spez.} = \frac{U \cdot A}{I \cdot L} \quad (2.13)$$

Die spezifische Leitfähigkeit  $\sigma_{spez.}$  ist der Kehrwert des spezifischen Widerstandes und wird neben dem spezifischen Widerstand in der Literatur zur Beschreibung der elektrischen Eigenschaften von Bipolarplatten genutzt.

$$\sigma_{spez.} = \frac{1}{\rho_{spez.}} \quad (2.14)$$

Während metallische Bipolarplatten eine sehr hohe spezifische Leitfähigkeit besitzen, ist die Graphit-Komposit-Bipolarplatte ein Verbund aus einem leitfähigen Material und einem isolierenden Material. Die Leitfähigkeit dieser Graphit-Komposit-Bipolarplatte hängt von vielen Faktoren, wie der Zusammensetzung der Materialien, der Herstellungsmethode und der Fertigungsqualität ab. Die Messung des ohmschen Widerstandes ist daher eine wichtige Charakterisierungsmethode für diese Art der Bipolarplatten. Der elektrische Widerstand der Komposit-Bipolarplatte ist anisotrop, mit unterschiedlich starker Ausprägung in der Plattenebene und senkrecht zur Plattenebene. Die Anisotropie der Graphit-Komposit-Bipolarplatte beruht auf der Anisotropie der leitenden Graphit-Füllmaterialien.

Für die Messung des elektrischen Widerstandes werden in in-plane Richtung und in through-plane Richtung unterschiedliche Verfahren angewendet. Allen Messverfahren ist gemein, dass sie eine elektrische Kontaktierung für die Einleitung des Stromes und die Messung der Spannung benötigen. Die Bildung des physischen Kontaktes der Messapparatur zur Bipolarplatte ist im Vergleich zu den bereits vorgestellten kontaktfreien Messmethoden und im Sinne eines Qualitätssicherungsprozesses von hohen Bipolarplattenstückzahlen zeitintensiv. Die Messung der elektrischen Eigenschaften ist jedoch kritisch für die Qualitätsbewertung von Graphit-Komposit-Bipolarplatten.

Die Messung der in-plane Leitfähigkeit basiert auf der Vier-Leiter-Messmethode. Bei diesem Messaufbau fließt kein Strom durch die elektrischen Messgeräte für die Spannung. Die Spannung zwischen zwei Messelektroden kann unabhängig von Kontaktwiderständen gemessen werden. In der standardisierten Vier-Elektroden-Messanordnung wird der Strom über die Stirnflächen in die Materialprobe eingeleitet (vgl. [104], [105]). Die Spannung wird mittels zweier Messspitzen mit dem Abstand  $L$  und auf einer gedachten Linie senkrecht zu den Stirnflächen gemessen (siehe Abbildung 2.6) Der spezifische Widerstand ergibt sich nach der Gleichung (2.13). In vielen Fällen ist die Stirnfläche des zu messenden Objektes nicht zugänglich oder eine dünne Probengeometrie erschwert die Kontaktierung über die Stirnflächen. Für die zerstörungsfreie elektrische Prüfung von Halbleiterschichten und dünnen Filmen wird die Vier-Punkt-Messmethode angewandt [106].

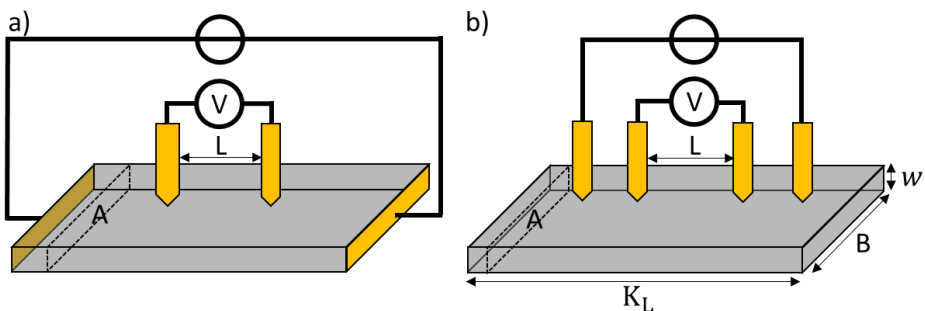


Abbildung 2.6: In-Plane Messaufbauten für einen rechteckigen Querschnitt. a) klassischer Aufbau mit Kontaktierung über die Bauteilseitenflächen, b) Vier-Punkt-Messmethode mit Punktkontaktierung an vier linear angeordneten Punkten

Der spezifische Widerstand der Vier-Punkt-Messmethode  $\rho_{spez}$  für eine Materialprobe mit rechteckigem Querschnitt, einer endlichen Dicke  $w$  und der Annahme, dass der Abstand zwischen allen Punktkontakten identisch ist, errechnet sich nach folgender Formel [107]:

$$\rho_{spez} = \frac{\pi}{\ln(2)} \cdot w \cdot \left(\frac{U}{I}\right) \cdot F_1 \cdot F_2 \quad (2.15)$$

$F_1$  ist der geometrische Korrekturfaktor für eine rechteckige Probe der Dicke  $w$  und  $F_2$  ist der geometrische Korrekturfaktor für eine rechteckige Probe der Kantenlänge  $K_L$  und der Breite  $B$ .

Die Vier-Punkt-Messmethode wird auch für elektrisch leitfähige Komposit-Platten, wie den Bipolarplatten verwendet, da diese Messmethode einfach automatisiert werden kann und eine schnelle Vermessung der Bipolarplatte ermöglicht. Mironov et al. [108] vergleichen die Messmethoden Vier-Elektroden-Messung und Vier-Punkt-Messung miteinander bezüglich der gemessenen spezifischen volumetrischen Leitfähigkeit von graphitbasierten Polymerkompositen und stellen signifikante Unterschiede mit einem Abweichungsfaktor von bis zu 3,5 fest. Mironov et al. [108] begründen diesen Unterschied mit der nicht einheitlichen Struktur und lokalen Inhomogenitäten in Komposit-Materialien mit Graphitfüllstoffen, die einen großen Einfluss auf die Messung der Vier-Punkt-Messmethode haben können. Die Begrifflichkeiten Vier-Elektroden-Messung und Vier-Punkt-Messung sind in der Literatur nicht eindeutig definiert und werden unterschiedlich verwendet, sodass ein Vergleich zwischen einzelnen Literaturquellen erschwert wird, wenn eine exakte Beschreibung des Versuchsaufbaus nicht vorhanden ist. Die Vier-Punkt-Messmethode wird häufig zur Charakterisierung der elektrischen in-plane Leitfähigkeit von Bipolarplatten genutzt, wobei meistens nur das Messgerät und keine Korrekturfaktoren für die Geometrie benannt werden [44, 62, 100, 109, 110]. Hickmann und Zielinski [61] implementieren ein automatisiertes Messsystem zum in-plane Leitfähigkeitsmapping einer ganzen Bipolarplattenmaterialprobe. Mit der Messung und der Abbildung der in-plane Leitfähigkeit über die Fläche der Probe können Hickmann und Zielinski [61] die Homogenität einer auf PPS basierenden Bipolarplattenmaterialprobe zeigen. Ein analytisches Modell zur Leitfähigkeitsverteilung in hochgefüllten Polymeren wird von Planes [111] entwickelt und am Beispiel einer strukturierten Bipolarplatte demonstriert. Für das Modell der Vier-Punkt-Messmethode bestimmt Planes [111] Korrekturfaktoren für die lokale Dicke und für lokale Kanteneffekte. Planes [111] bemerkt, dass die Streuung der Leitfähigkeit innerhalb einer bestimmten Probe groß ist und sogar viel größer als die Streuung, die zwischen zwei Proben beobachtet wird. Planes [111] schlussfolgert daher, dass die Verarbeitung von sehr leitfähigen Verbundwerkstoffen die Eigenschaften für den Endgebrauch stark verändern kann. Die Struktur-Eigenschafts-Beziehung, die üblicherweise in der Materialwissenschaft untersucht wird, sollte daher auf die Verarbeitung der Materialien und sogar auf die Form der Endprodukte selbst ausgeweitet werden.

Im Vergleich zur in-plane Leitfähigkeitsmessung ist es bei der through-plane Leitfähigkeitsmessung von dünnen Bipolarplatten schwerer einen Vier-Leiter-Messaufbau zu realisieren. Die Kontaktierung der Stirnflächen mithilfe von zwei Messnadeln mit einem bestimmten Abstand ist technisch anspruchsvoll. Kakati et al. [112] wenden die Vier-Elektroden-Methode auch auf die through-plane Messung an. In vielen Literaturquellen wird bei der through-plane Leitfähigkeitsmessung der Kontaktwiderstand zwischen den Elektroden mitgemessen. In diesen Versuchsaufbauten wird die Bipolarplattenprobe von oben und von unten mit einer Elektrode kontaktiert. Zur besseren Kontaktierung wird zwischen der Bipolarplattenprobe und der Elektrode häufig ein GDL-Material gelegt und der Aufbau in einer Presse

zusammen gepresst (vgl. Abbildung 2.7 a)). Ohne weitere Optimierungen des Versuchsaufbaus ist eine exakte Bestimmung des spezifischen Widerstandes in through-plane Richtung unabhängig des Kontaktwiderstandes nicht möglich. Dieser Versuchsaufbau eignet sich, um qualitative Vergleiche des through-plane Widerstandes von unterschiedlichen Materialzusammensetzungen von BPP zu zeigen [113]. Durch eine zusätzliche Dickenvariation der Materialprobe kann der spezifische elektrische Widerstand eines Bipolarplattenmaterials bestimmt werden, wie Cunningham et al. [114] und Sadeghifar [115] zeigen. Der gemessene Widerstand ist linear abhängig zur Dicke der Materialprobe und der Annahme, dass die Kontaktbedingungen, wie die Kontaktwiderstände und die Bulkmaterialwiderstände des GDL-Materials, für alle gemessenen Proben gleich sind. Für eine Qualitätskontrolle und zur Charakterisierung von strukturierten Bipolarplatten ist die through-plane Messmethode mit einer Dickenvariation der Bipolarplatten nicht geeignet. Des Weiteren ist die lokale through-plane Leitfähigkeitsverteilung mit den genannten Methoden nicht zugänglich. Heinzl et al. [38] nutzen einen Aufbau mit einer Messnadel durch den Kontaktstempel zur through-plane Leitfähigkeitsbestimmung (vgl. Abbildung 2.7 b)). Dieser Vier-Elektroden-Aufbau ermöglicht eine Bestimmung des spezifischen Widerstandes unabhängig des Kontaktwiderstandes zwischen BPP und GDL und wird auch in anderen Literaturquellen genutzt [62].

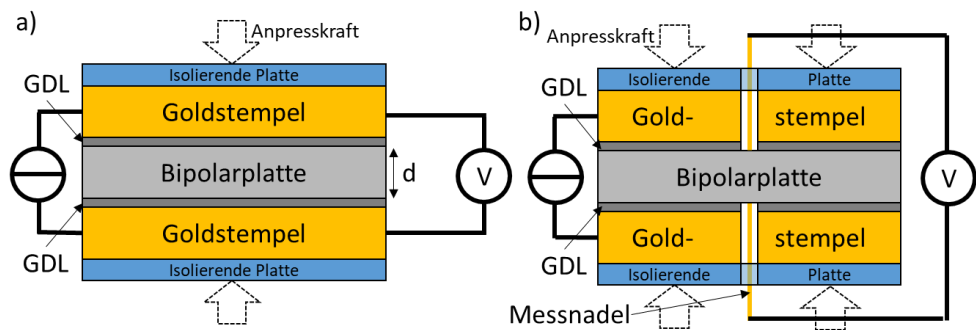


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung unterschiedlicher through-plane Bestimmungsmethoden a) through-plane Leitfähigkeitsmessung mit vollständiger Kontaktierung und Variation der Probendicke, b) through-plane Leitfähigkeitsmessung mit Messnadel, adaptiert nach [38]

In der through-plane Messmethode mit der Messnadel ist die elektrische Potentialfeldausbreitung aufgrund der Kontaktierung für die Bestimmung des spezifischen Widerstandes zu berücksichtigen. Sow et al. [116] zeigen an einem ähnlichen Aufbau wie Heinzl et al. [38] in einer Finite-Elemente-Simulation (FEM) für die through-plane Leitfähigkeitsbestimmung einer GDL die Krümmung der Potentialfeldlinien in der GDL an den Innenkanten einer Bohrung durch die kontaktierende Bipolarplatte (vgl. Abbildung 2.8). Für eine möglichst exakte Bestimmung des spezifischen Widerstandes schlussfolgern Sow et al. [116], dass der Abstand zwischen Messnadel und Innenkante des kontaktierenden Körpers möglichst gering sein sollte.

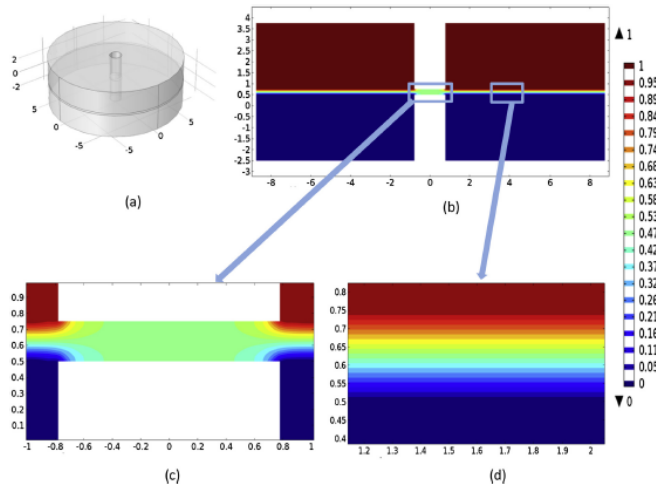


Abbildung 2.8: FEM-Simulation des relativen elektrischen Potentialfeldes in einem Messaufbau mit Messnadel (geometrische Abmaße in Millimeter). a) Geometrie für die Simulation, b) Simulationsergebnisse für den Messaufbau, c) vergrößertes Bild zeigt die Verteilung der Äquipotentialebenen nahe der Bohrung, d) vergrößertes Bild zeigt die Verteilung der Äquipotentialebenen unter der BPP [116]<sup>3</sup>

Die Messung des elektrischen in-plane und through-plane Widerstandes kann neben der Bestimmung der generellen Leitfähigkeiten auch zur Detektion von Defekten in der Brennstoffzelle und in der Bipolarplatte selbst verwendet werden. Baumann et al. [117] untersuchen mit segmentierten Stromkontakten und einer segmentierten Messplatine die Stromverteilung innerhalb von Graphit-Komposit-Materialien für Bipolarplatten. Defekte werden durch lokal fehlerbehaftete Kontaktierungen zwischen den Stromkontakten und der Bipolarplatte simuliert. Eine signifikante Reduktion der Stromdichte an defekten Stellen konnte mit dem Messaufbau von Baumann et al. [117] nur bei sehr großen Defekten, wie sie in Brennstoffzellen nicht vorkommen, gemessen werden. Weitere Anwendungen lassen sich aus Kohlenstofffaserverbundwerkstoffen ableiten, deren Leitfähigkeit ähnlich wie bei Bipolarplattenmaterialien auf elektrisch leitfähige Netzwerke des Füllmaterials beruht. Shen et al. [118] modellieren die elektrische Feldverteilung in Kohlenstofffaserverbundstoffen von Vier-Punkt-Messaufbauten unterschiedlicher Elektrodenkombinationen  $A_0 - B_6$  (siehe Abbildung 2.9) für Proben mit Delaminationsdefekten und ideale Proben. Defekte können über die Veränderungen in den simulierten Potentialdifferenzen der einzelnen Elektrodenkombinationen zwischen idealen und defekten Proben ermittelt werden. Kovalovs et al. [119] führen die Simulationen von Shen et al. [118] in einer Parameterstudie weiter aus. In der Parameterstudie variieren sie die Leitfähigkeit in through-plane Richtung sowie den Ort und die Größe der Störstelle. Die gewählten Leitfähigkeiten liegen dabei teilweise in der Größenordnung, wie sie in

<sup>3</sup> Nachdruck von International Journal of Hydrogen Energy, 40, Sow et al., Deconvolution of electrical contact and bulk resistance of gas diffusion layers for fuel cell applications, 2850-2861, © 2015, mit Genehmigung von Elsevier

Bipolarplattenmaterialien erwartet werden. Mit ihren Simulationen können Kovalovs et al. [119] zeigen, dass Störstellen mit einer Länge von 20 mm detektiert und lokalisiert werden können.

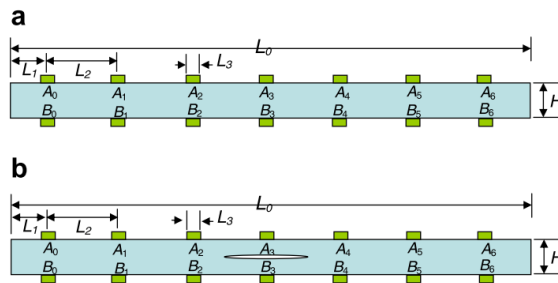


Abbildung 2.9: 2-D Probe und Elektrodenplatzierung a) ideale Probe, b) Probe mit Delaminationsdefekt mit  $L_0 = 200$  mm,  $L_1 = 10$  mm,  $L_2 = 30$  mm,  $L_3 = 2$  mm,  $H = 3,2$  mm [118]<sup>4</sup>

Erste experimentelle Studien zur Defekterkennung mit der elektrischen Widerstandstomographie von Kohlenstofffaserverbundwerkstoffen präsentieren Baltopoulos et al. [120]. Über eine Anordnung von 20 Elektroden um eine Faserverbundplatte können unterschiedliche Kombinationen an Stromflüssen in der Platte realisiert und Spannungsinformationen abgegriffen werden. In einer Simulation können Leitfähigkeitskarten der Platte erstellt und mit den Experimenten verglichen werden. Baltopoulos et al. [120] schlussfolgern, dass die elektrische Widerstandstomographie sensitiv für relativ kleine Defekte, mit Abmaßen von weniger als 0,1 % der untersuchten Fläche, ist. Klare Defekte aus elektrischer Sicht, wie z.B. Löcher in der Platte, führen zu klareren elektrischen Feldern und elektrischen Messungen und somit zu stabileren Fehlervorhersagen. Gallo und Thostenson [121] demonstrieren die Lokalisierung von Löchern mit einem Durchmesser von 1,27 cm in einer ca. 100 cm<sup>2</sup> großen Kompositplatte mittels elektrischer Widerstandstomographie. Nonn et al. [122] wenden detaillierte 3D-Simulationen auf die Rekonstruktion der elektrischen Leitfähigkeit in Kohlenstofffaserverbundwerkstoffen an und zeigen wie inhomogene Faserkontakte in realen Kompositmaterialien die Rekonstruktionsergebnisse beeinflussen und so die Lokalisierung von Defekten erschweren.

Allen Quellen zur Tomographie des elektrischen Widerstandes ist gemein, dass die Auflösung dieses Verfahrens im Bereich mehrerer Millimeter liegt und im Vergleich zu anderen zerstörungsfreien Prüfmethoden, wie beispielsweise der Röntgencomputertomographie, sehr gering ist.

<sup>4</sup> Nachdruck von Composites Science and Technology, 67, Shen et al., *Modeling and analysis of the electrical resistance measurement of carbon fiber polymer-matrix composites*, 2513-2520, © 2007, mit Genehmigung von Elsevier



Die Simulation der elektrischen Leitfähigkeit basiert auf den Maxwell Gleichungen, mit denen die Wechselwirkungen von elektromagnetischen Feldern beschrieben werden. Die Maxwell'schen Gleichungen lauten:

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \cdot \epsilon_0 \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \cdot \vec{j} \quad (2.16)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.17)$$

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.18)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (2.19)$$

Mit

$\vec{B}$	Magnetische Flussdichte	(T)
$\mu_0$	Magnetische Feldkonstante	$\left(\frac{V \cdot s}{A \cdot m}\right)$
$\epsilon_0$	Elektrische Feldkonstante	$\left(\frac{A \cdot s}{V \cdot m}\right)$
$\vec{E}$	Elektrische Feldstärke	$\left(\frac{V}{m}\right)$
$\vec{j}$	Stromdichte	$\left(\frac{A}{cm^2}\right)$
$\rho$	Raumladungsdichte	$\left(\frac{A \cdot s}{cm^3}\right)$

Für Kontinuitätsgleichung der Elektrodynamik gilt zwischen der zeitlichen Änderung der Raumladung und der Stromdichte folgender Zusammenhang:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \vec{j} = 0 \quad (2.20)$$

Die Kontinuitätsgleichung kann durch Bildung der Divergenz der erstgenannten Maxwell'schen Gleichung (Gleichung 2.16) und der Umstellung der dritten Maxwell'schen Gleichung (Gleichung 2.18) nach  $\rho$  hergeleitet werden:

$$\nabla \cdot \left( \vec{j} + \epsilon_0 \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right) = 0 \quad (2.21)$$

Die Stromdichte kann als eine Funktion der Leitfähigkeit  $\sigma$  und der elektrischen Feldstärke ausgedrückt werden:

$$\vec{j} = \sigma \cdot \vec{E} \quad (2.22)$$

Bei Annahme eines quasistationären Zustandes ohne zeitliche Änderung des Magnetfeldes kann die Gleichung 2.17 vereinfacht werden zu:

$$\nabla \times \vec{E} = 0 \quad (2.23)$$

Das elektrische Feld ist nach der Gleichung 2.23 irrational und kann mithilfe des elektrischen Potentials  $V$  beschrieben werden:

$$\vec{E} = -\nabla V \quad (2.24)$$

Durch Einsetzen von Gleichung 2.24 in Gleichung 2.22 und das weitere Einsetzen in Gleichung 2.21 sowie das Einsetzen von Gleichung 2.24 in Gleichung 2.21 ergibt sich die Differentialgleichung für das elektrische skalare Potential:

$$-\nabla \cdot (\sigma \nabla V) - \nabla \cdot \left( \epsilon_0 \nabla \frac{\partial V}{\partial t} \right) = 0 \quad (2.25)$$

Für eine quasistationäre Betrachtung vereinfacht sich die Gleichung 2.25 zu:

$$-\nabla \cdot (\sigma \nabla V) = 0 \quad (2.26)$$

Gleichung 2.26 kann für eine Simulation der Potentialausbreitung in einem elektrisch leitenden Körper für einen statischen, stationären Fall verwendet werden, unter der Vorgabe eines Gleichstroms und gegebenen Leitfähigkeiten.

## 2.6 Zusammenfassung und Auswahl der Messmethoden für die Untersuchung an Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterialien

In diesem Kapitel werden zunächst die Grundlagen einer PEM-Brennstoffzelle vorgestellt. Die Bipolarplatte nimmt mit ihren Aufgaben der Fluidversorgung und Verteilung, der Separation von benachbarten Zellen in Brennstoffzellenstacks, der mechanischen Stabilisierung und der elektrischen Leitung zwischen einzelnen Brennstoffzellen eine herausragende Rolle in Brennstoffzellensystemen ein. Aufgrund ihrer Aufgaben leiten sich Ansprüche an das Bipolarplattenmaterial ab. In der Literatur werden metallische Bipolarplatten sowie Graphit-Komposit-Materialien als geeignete Materialien identifiziert. Die metallischen Bipolarplatten sind anfällig für Korrosion, sodass für Anwendungen mit hohen Ansprüchen an die Lebensdauer Bipolarplatten aus Graphit-Komposit-Materialien favorisiert werden. Die Herausforderung für Graphit-Komposit-Bipolarplatten liegt in der Bereitstellung hinreichender elektrischer Eigenschaften bei gleichzeitig günstigen Herstellungskosten. Die am häufigsten angewendeten Herstellungsmethoden für die Graphit-Komposit-Bipolarplatte sind das Formpressen und das Spritzgussverfahren. Bei diesen Herstellungsmethoden kann es zu Mängeln, wie Rissen, Lunkern und Materialentmischungen kommen, die die Qualität der Bipolarplatte und damit die Leistung und Lebensdauer einer Brennstoffzelle beeinflussen können. Gleichzeitig gibt es keine standardisierten Charakterisierungsmethoden für die Qualität einer Graphit-Komposit-Bipolarplatte im Sinne einer Qualitätskontrolle. Für die Qualitätskontrolle eignen sich zerstörungsfreie Messverfahren. Die visuelle Prüfung, die Shearographie, die Wirbelstrommessung, der Ultraschall, die

Thermographie, die Röntgentomographie sowie die elektrischen Messverfahren werden als vielversprechende Messverfahren für die Qualitätskontrolle von Graphit-Komposit-Bipolarplatten vorgestellt. Die visuelle Prüfung ist eine geeignete Methode um die äußere Erscheinung einer Bipolarplatte zu bewerten. Für die Analyse von innenliegenden Defekten muss jedoch eine ergänzende Untersuchungsmethode herangezogen werden. Die Shearographie eignet sich nur bedingt als ergänzende Untersuchungsmethode, da das Auflösungsvermögen von tiefer liegenden Defekten begrenzt ist. Für die vorgestellten Messverfahren Wirbelstrommessung, Ultraschall und Thermographie bringt die Strömungsfeldstruktur der Bipolarplatte Herausforderungen mit sich. Durch die entstehenden Randeffekte an den Kanten des Strömungsfeldes werden die Messergebnisse der Wirbelstrommessung verzerrt. Des Weiteren ist diese Methode in der Detektion von tieferliegenden Defekten limitiert. Neben möglichen Rekonstruktionsfehlern an strukturierten Oberflächen wird für die Ultraschallprüfung häufig ein Kopplungsfluid benötigt und für eine hohe Auflösung müsste mit einem Ultraschallmikroskop die Bipolarplattenprobe zeitintensiv abgerastert werden. Die aktive Thermographie eignet sich für eine Inline-Qualitätsprüfung von ebenen Platten, wobei das Auflösungsvermögen begrenzt ist. Des Weiteren erschweren bei strukturierten Bipolarplattenoberflächen die Emission und Reflexion der Wärmestrahlung die Defekterkennung im Inneren der Probe. Von besonderer Bedeutung für die Graphit-Komposit-Bipolarplatten sind ihre elektrischen Eigenschaften. Die Lokalisierung von Defekten und Inhomogenitäten sowie das Leitfähigkeitsmapping von Bipolarplatten mittels elektrischer Prüfmethode geben direkte Informationen über das Verhalten der Bipolarplatte im Betrieb der Brennstoffzelle. Die Auflösung der elektrischen Widerstandstomographie ist im Vergleich zu anderen zerstörungsfreien Prüfmethode bislang sehr gering. In der vorliegenden Arbeit werden die Fragen studiert, wie ein elektrisches Prüfverfahren zu einem Qualitätsmessinstrument für Graphit-Komposit-Bipolarplatten weiterentwickelt werden kann und welche Defekte im Inneren der Bipolarplatte mit diesem Prüfinstrument detektiert werden können. Als Referenz wird die Röntgentomographie-Untersuchung herangezogen, da dieses zerstörungsfreie Messverfahren die höchste Auflösung der inneren Struktur der Graphit-Komposit-Bipolarplatte verspricht. In einem weiteren Schritt wird der Einfluss der detektierten Mängel auf die elektrische Leitfähigkeit der Bipolarplatte und der Einfluss der Mängel auf die Brennstoffzellenleistung bewertet.

### 3 Methodenentwicklung und verwendete Materialien

Im folgenden Kapitel werden die Methoden zur Bestimmung des elektrischen Potentialfeldes in Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterialien erläutert. Zunächst werden die verwendeten Materialproben vorgestellt. Darauf folgend wird das angewandte Messprinzip anhand von Simulationsergebnissen erläutert. Anschließend wird auf Basis des grundsätzlichen Messprinzips ein komplexer Teststand spezifiziert und entworfen. Der Teststandeigenbau wird in Kombination mit elektrischen Potentialfeldsimulationen genutzt, um eine neue Bestimmungsmethode des elektrischen through-plane Widerstandes von Bipolarplattenmaterialien zu entwickeln. Schließlich wird die verwendete Röntgentomographieinfrastruktur vorgestellt. Mit den Simulationen des Potentialfeldes sowie den angewendeten Messmethoden kann die Änderung des Potentialfeldes ermittelt und auf Defekte im Inneren der Bipolarplatte geschlossen werden.

#### 3.1 Untersuchte Materialproben

Für die vorliegende Arbeit werden Materialproben der Firma Eisenhuth GmbH & Co.KG verwendet. Die Materialproben werden durch ein Formpressverfahren mit anschließendem Fräsen der Kanalstruktur und Abfräsen der äußeren polymerreichen Schicht gefertigt. Es werden Bipolarplatten ohne Strömungsfeldstruktur, sogenannte blanke Bipolarplatten, und Bipolarplatten mit Strömungsfeldstruktur auf einer Seite der Bipolarplatte untersucht. Diese Proben werden im Rahmen der Arbeit ausschließlich in Brennstoffeinzellern eingesetzt und sind entweder der Anode oder der Kathode der Brennstoffzelle zugewandt. In dieser Arbeit werden diese Platten daher als Monopolarplatten bezeichnet. Für die blanken Bipolarplatten werden in dieser Arbeit drei unterschiedliche Graphit-Komposit-Materialien mit der Materialbezeichnung BMA5, PPS und PPG86 untersucht, die sich vor allem im verwendeten Polymer unterscheiden. In Tabelle 3.1 sind typische spezifische elektrische Widerstandswerte der Materialien aufgeführt.

Tabelle 3.1: Materialproben der Firma Eisenhuth GmbH & Co.KG, typische Materialkennwerte

Materialbezeichnung	BMA 5 [123]	PPS [124]	PPG86 [125]
<b>Kunststoffkomponente</b>	Polyvinylidenfluorid	Polyphenylensulfid	Polypropylen
<b>Spez. In-plane Widerstand [<math>\Omega\text{cm}</math>]</b>	0,005	0,008	0,01
<b>Spez. Through-plane Widerstand [<math>\Omega\text{cm}</math>]</b>	0,05	0,06	0,24

Da keine detaillierten Angaben zu den Messmethoden für den spezifischen elektrischen Widerstand und zur genauen Zusammensetzung der Materialproben gemacht werden, können diese Daten nur als grobe Orientierung für einen Vergleich mit den in dieser Arbeit entwickelten Messmethoden dienen.

Für die Charakterisierung von Defekten werden Graphit-Komposit-Monopolarplatten mit PPS als Kunststoffkomponente und einer Dicke von 4 mm angefertigt. In den Monopolarplatten werden in einem vordefinierten Bereich künstliche Mängel eingebracht (vgl. Abbildung 3.1a). Die künstlich hinzugefügten Mängel umfassen Holzspäne, Stahlpartikel oder die zusätzliche Beimischung eines Kunststoffs. Die Holzpartikel liegen als vereinzelte Fremdkörper in dem Komposit-Material vor und sollen nichtleitfähige Störstellen wie Risse und Fehlstellen in dem Bipolarplattenmaterial simulieren. Die Stahlpartikel werden als zusätzlich leitende Partikel hinzugefügt, um eine eventuelle Verbesserung der Leitfähigkeit der Bipolarplatte untersuchen zu können. Die zusätzliche Beimischung eines Kunststoffs soll eine mangelhafte Vermischung und Entmischung von Polymermatrix und Füllstoff abbilden. Für den Vergleich mit fehlerfreien Platten werden mehrere Referenzplatten angefertigt. Für das Design der Monopolarplatte wird das Design einer 100 mm x 100 mm großen Standardtestzellenströmungsverteilerplatte des Forschungszentrum Jülichs mit einer aktiven Zellfläche von 42 mm x 42 mm gewählt. Das Strömungsverteilerfeld besitzt einen Dreifachmäander mit 1 mm breiten und 1 mm tiefen Kanälen sowie 1 mm breiten Stegen. Abbildung 3.1 zeigt die Draufsicht auf eine schematische Darstellung der Monopolarplatte und eine Auswahl der verwendeten Monopolarplatten mit und ohne Defekten. Die Mängel sind vorrangig nur in einem kleinen Bereich der Monopolarplatte eingebracht.

Insgesamt werden vier Referenzplatten, sechs Monopolarplatten mit Holzspänen, vier Platten mit Stahlpartikeln und sechs Monopolarplatten mit Kunststoffbeimischung angefertigt. Die Platten werden durch Buchstaben gekennzeichnet. Die Hälfte der Monopolarplatten ist spiegelverkehrt aufgebaut, damit mit den Monopolarplatten eine einzellige Brennstoffzelle aufgebaut werden kann. Die Abbildungen der weiteren Monopolarplatten sind im Anhang A1 dargestellt. Die visuelle Darstellung der Monopolarplatten zeigt, dass Mängel im Inneren der Graphit-Komposit-Bipolarplatten von außen nicht zwangsläufig ersichtlich sind. Für die Detektion dieser Mängel sind spezielle Messverfahren nötig. In den folgenden Kapiteln wird die Möglichkeit der Defekterkennung durch die Vermessung des elektrischen Potentialfeldes untersucht.

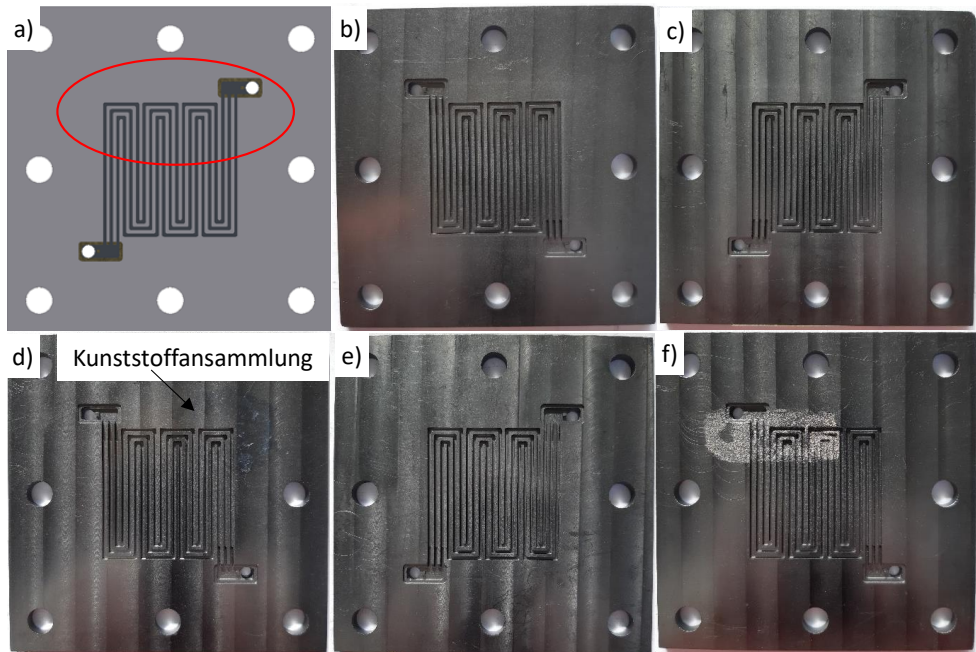


Abbildung 3.1: Bipolarplatten a) Schematische Darstellung mit Abbildung des vorrangigen Mängelbereiches, b) Referenzplatte (Referenzprobe A), c) Monopolarplatte mit Holzspänen (Probe Holzpartikel A), d) Monopolarplatten mit sichtbarer Beimischung von Kunststoff (Probe Kunststoff C), e) Monopolarplatte mit unsichtbarer Beimischung von Kunststoff (Probe Kunststoff B), f) Monopolarplatte mit Beimischung von Stahlpartikeln (Probe Stahlpartikel A)

## 3.2 Simulation des elektrischen Potentialfeldes in einem homogenen Bipolarplattenmaterial

### 3.2.1 Punktkontaktierung

Für die Simulation des elektrischen Potentialfeldes wird das Analysesystem „elektrisches Strömungsfeld“ aus der Simulationssoftware ANSYS Mechanical Release 19.1 verwendet. In diesem Analysesystem wird das elektrische Potential  $V$  in einer Finiten-Elemente-Simulation für einen stationären Anwendungsfall nach der in Kapitel 2.5.7 hergeleiteten Gleichung bestimmt [126]:

$$-\nabla \cdot ([\sigma] \nabla V) = 0 \quad (3.1)$$

Dabei ist  $[\sigma]$  die Schreibweise von ANSYS für die Leitfähigkeitsmatrix mit den Leitfähigkeitswerten für die jeweilige Raumrichtung in dem Material. Als Ausgangsmaterial für die Simulationen wird ein Graphit-Komposit-Material mit einer Kunststoffkomponente aus Polyphenylensulfid (kurz: PPS) der Firma Eisenhuth verwendet. Der spezifische elektrische in-plane Widerstand dieses Materials beträgt  $0,008 \Omega\text{cm}$  und der spezifische elektrische through-plane Widerstand beträgt  $0,060 \Omega\text{cm}$  [124]. Für das

Simulationsmodell dieser Arbeit wird der Aufbau von Shen et al. [118] adaptiert und weiterentwickelt. Die Kontaktierung einer 3 mm dicken, 3 mm breiten und 100 mm langen Materialprobe des PPS-Materials der Eisenhuth GmbH wird durch Kontaktstifte mit einem Durchmesser von 0,1 mm und einer für das Simulationsmodell gewählten Höhe von 0,1 mm modelliert. Als Material für die Kontaktstifte wird ein von ANSYS vordefinierter Edelstahl mit einem isotropen spezifischen elektrischen Widerstand von  $1,7E-5 \Omega\text{cm}$  festgelegt. Der spezifische elektrische Widerstand der Kontaktstifte liegt mehrere Größenordnungen unter den spezifischen elektrischen Widerstandswerten der untersuchten Bipolarplatten-Materialprobe. Die Stromeinleitung und Ausleitung aus dem Modell erfolgt über die freien Stirnflächen der Kontaktstifte an Ober- und Unterseite der Materialprobe. Für die Untersuchungen am Materialstreifen wird ein Strom von 0,1 A vorgegeben. Das Potential wird ebenfalls an den Stirnflächen der Kontaktstifte abgegriffen. Zwei Potentiale ergeben eine messbare Potentialdifferenz, die in einem Experiment validiert werden kann. Für den Aufbau der Kontaktstifte wird ein Vierpunkt-Messaufbau gewählt, mit zwei stromleitenden Kontaktstiften, welche jeweils zwei Potentialmessstiften auf jeder Seite haben. Wegen des Vierpunkt-Messaufbaus können die Kontaktwiderstände zwischen den Kontaktstiften und der Materialprobe vernachlässigt werden (vgl. 2.5.7). Die Komponenten Materialprobe und Kontaktstifte werden mit der Einstellung „gemeinsame Topologie“ simuliert, sodass sich an den Kontaktflächen ein konformes Rechenetz ergibt. An den Kontaktflächen werden keine Kontaktwiderstände für den elektrischen Strom definiert. Die Mittelpunkte der Kontaktflächen haben einen Abstand von 2 mm zueinander. Das beschriebene Simulationsmodell ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Den Potentialmessstiften werden die Bezeichnungen P1, P2, P3 und P4 zugeordnet.

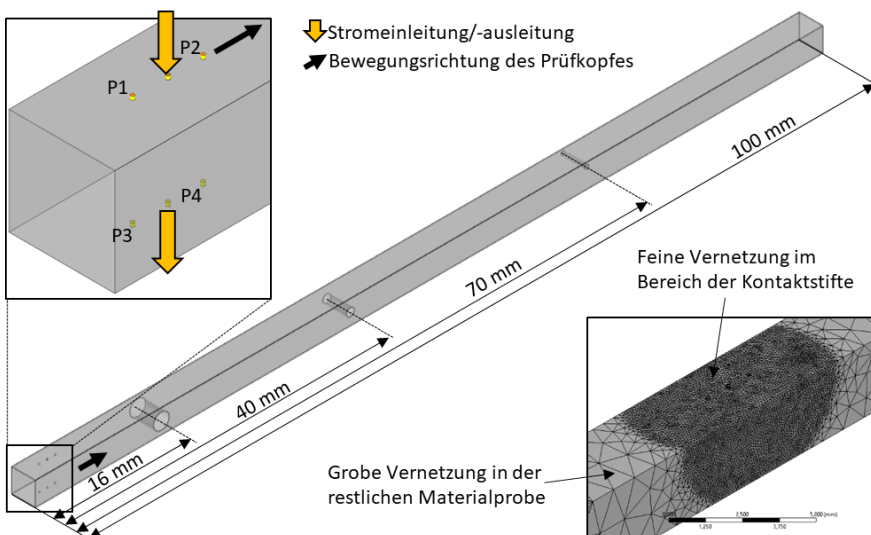


Abbildung 3.2: Simulationsmodell und Vernetzung

In einem automatisierten Simulationsablauf wird der Aufbau der Kontaktstifte in 1 mm Abständen über die Materialprobe bewegt. Bei jedem Schritt wird das Modell neu vernetzt. Die Vernetzung besitzt im Bereich der Kontaktstifte eine feine Struktur mit einer Elementgröße von 0,1 mm. In der restlichen Materialprobe wird ein gröberes Netz gewählt, um die Rechenzeit niedrig zu halten. Insgesamt besitzt das Netz des Modells ca. 500.000 Elemente. Veränderungen in den Potentialen während der Bewegung der Kontaktstifte über die Materialprobe geben Rückschlüsse auf Defekte im Inneren der Materialprobe. Deutlich gemacht wird dies durch die Darstellung des Potentialfeldes in einem Ausschnitt auf einer Schnittebene durch das Simulationsmodell (vgl. Abbildung 3.3). Befinden sich die Kontaktstifte über einem idealen Bereich der Materialprobe, bildet sich ein symmetrisches Potentialfeld in dem Probenkörper aus. In der Nähe des stromeinleitenden Stiftes kann eine Potentialdifferenz zwischen den oberen und unteren Potentialmessstiften gemessen werden. Die Potentialdifferenz zwischen P1 und P3 links des stromleitenden Stiftes und die Potentialdifferenz zwischen P2 und P4 rechts des stromleitenden Stiftes sind aufgrund der Symmetriebedingung gleich groß. Bewegt sich der Kontaktaufbau über einen Defekt, wird die Potentialverteilung im Inneren der Materialprobe durch den Defekt beeinflusst. Im dargestellten Fall wird der Defekt durch eine seitliche Durchgangsbohrung mit einem Durchmesser von 0,5 mm modelliert. Die messbaren Potentialdifferenzen steigen und die Potentialdifferenzen links und rechts des stromleitenden Stiftes unterscheiden sich.

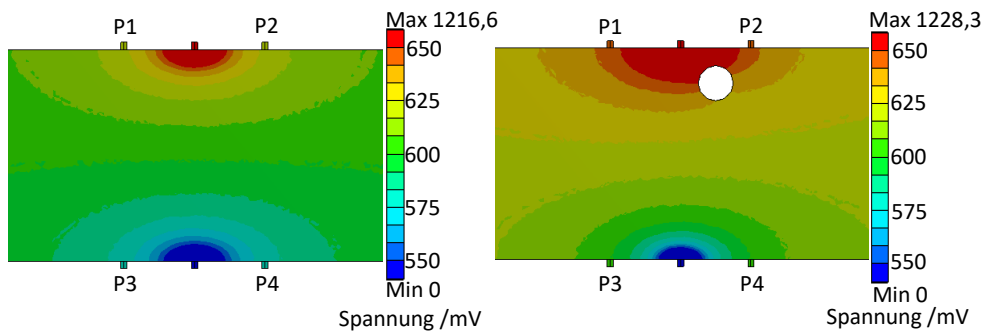


Abbildung 3.3: Potentialfeldverteilung innerhalb einer idealen Probe (links) und einer Probe mit Defekt (rechts)

Abbildung 3.4 zeigt die Verläufe für die Potentialdifferenzen P1 - P3 und P2 - P4 bei Bewegung des Prüfkopfes über das Simulationsmodell hinweg. Die Position auf der X-Achse bezieht sich jeweils auf die Position des stromeinleitenden Kontaktpins relativ zum Materialprobenrand. Eine starke Änderung des Potentialfeldes ist an den Kanten der Materialprobe zu sehen. Erkennbar ist dies an den stark ansteigenden Potentialdifferenzen zwischen den links angeordneten Kontaktstiften für den linken Rand und den der rechts angeordneten Kontaktstiften für den rechten Rand. Die Defekte in der Materialprobe sorgen ebenfalls für einen Ausschlag in den dargestellten positionenabhängigen



Potentialdifferenzen. Durch die geometrischen Gegebenheiten läuft die Potentialdifferenz P2 - P4 der Potentialdifferenz P1 - P3 voraus. Mit dem Nulldurchgang der Differenz der beiden Potentialdifferenzen lassen sich im Simulationsmodell die Defekte exakt lokalisieren. Abhängig von der Größe und der Lage der Defekte beeinflussen diese das elektrische Potentialfeld im Inneren der Materialprobe unterschiedlich stark. Der Defekt mit 2 mm Durchmesser zeigt den stärksten Ausschlag. Die Ausschläge der 1 mm Durchgangsbohrung und der 0,5 mm Durchgangsbohrung sind vergleichbar hoch. Dies ist durch die Lage der 0,5 mm Durchgangsbohrung zu erklären, die zum oberen Rand der Probe verschoben ist.

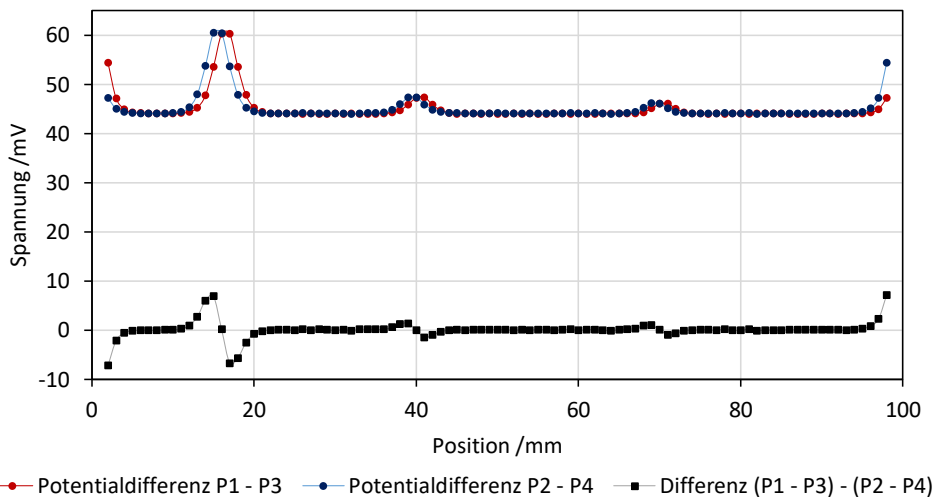


Abbildung 3.4: simulierte Potentialdifferenzen entlang der Materialprobe

### 3.2.2 Flächige Kontaktierung

Die Methode der Vier-Punkt-Kontaktierung ermöglicht die Detektion und Lokalisierung von Mängeln und Defekten in Bipolarplattenmaterialien. Eine Interpretation und Analyse bezüglich des Einflusses der detektierten Mängel mit der beschriebenen Vier-Punkt-Kontaktierung ist jedoch schwierig, da in einer Brennstoffzelle die Bipolarplatte flächig von der GDL kontaktiert wird. Für die Simulation der Potentialmessung einer Bipolarplatte mit flächiger Kontaktierung wird ein weiteres Simulationsmodell benötigt. In diesem Simulationsmodell werden die Kontaktstifte durch eine 150 µm dicke GDL und einen Kontaktstempel mit einer Dicke von 200 µm an der Ober- und Unterseite der Bipolarplatte ersetzt. Die GDL wird in diesem Simulationsmodell vereinfacht als Vollmaterial simuliert. Im Gegensatz zu dem Vier-Punkt-Aufbau müssen bei der flächigen Kontaktierung die Kontaktwiderstände zwischen den einzelnen Komponenten berücksichtigt werden. Den Potentialabfall  $\Delta V$  an einer Kontaktfläche

berechnet ANSYS über die Stromdichte  $j$  und einen vorgegebenen flächenspezifischen Leitfähigkeitswert an der Kontaktfläche (engl.: electric contact conductivity)  $ecc$  [126]:

$$\Delta V = \frac{j}{ecc} \quad (3.2)$$

Abbildung 3.5 zeigt einen Schnitt durch das Simulationsmodell der flächigen Kontaktierung. Der Strom wird auf die gesamte obere Oberfläche des Kontaktstempels aufgebracht. Die simulierte Stromdichte beträgt  $1 \text{ A/cm}^2$ . Als zweite Randbedingung wird ein Nullpotential an der Unterseite des unteren Kontaktstempels festgelegt. Bei der Auswertung können die Potentiale an der Oberfläche jedes Simulationskörpers ermittelt werden. Zusätzlich wird das elektrische Potential auf einer Linie durch das Simulationsmodell evaluiert. In dem verwendeten Simulationspaket unterstützt ANSYS keine linearen oder 2D-Körper zur Auswertung innerhalb des Modells. Für die Auswertung der Simulation entlang einer Linie werden daher künstlich kleine Quader in das Simulationsmodell eingefügt. Die Quader besitzen die gleichen Eigenschaften wie die umgebenden Körper für das Bipolarplattenmaterial bzw. GDL-Material und den Goldstempel. Zwischen den Quadern im Gebiet desselben umgebenden Körpers werden keine Kontaktwiderstände definiert. Durch die Quader werden Oberflächen definiert, die vernetzt werden und für die ANSYS ein Potential berechnen kann.

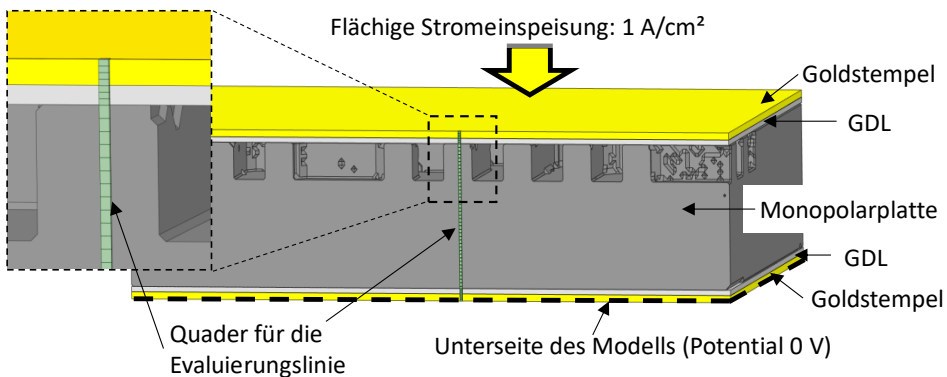


Abbildung 3.5: Simulationsmodell für eine flächige Kontaktierung

### 3.3 Entwicklung eines Messaufbaus zur automatisierten Potentialmessung

#### 3.3.1 Hardwareentwicklung

Der Aufbau des Vier-Punkt-Kontakt-Simulationsmodells aus Kapitel 3.2 wird mit einigen Erweiterungen in einen experimentellen Aufbau überführt. Die Kontaktstifte werden in einem  $5 \times 5$  Raster auf einem Prüfkopf angeordnet und die lineare Anordnung des Prüfkopfes im Simulationsmodell erweitert. Die

Kontaktstifte werden durch vergoldete Messspitzen mit einem Federmechanismus realisiert. Der Federmechanismus kann Oberflächenunebenheiten ausgleichen und sorgt für eine gleichzeitige Kontaktierung aller Messspitzen des Prüfkopfes mit der Probe. Es werden zwei Ausführungen des Prüfkopfes verwendet. Die erste Ausführung besitzt ein 2 mm Raster. Die Kontaktstifte des Prüfkopfes mit 2 mm Raster haben abgerundete Spitzen, um einen Punktkontakt zu realisieren und das Bipolarplattenmaterial während der Prüfung nicht zu beschädigen. Mit dem 2 mm Prüfkopfraster können die Stege des Strömungsverteilerfeldes der verwendeten Monopolarplatten kontaktiert werden. Die zweite Ausführung hat ein Raster von 1 mm. Abgerundete Messspitzen sind bei diesem Raster aus technischen Gründen nicht möglich, sodass kegelförmige Spitzen verwendet werden. Durch eine engere Positionierung der Messspitzen zueinander, kann der Abstand zwischen Messpunkt und Stromeinleitungspunkt verkleinert werden. Mit den enger stehenden Messspitzen des 1 mm Prüfkopfrasters können aufgrund der Ausbreitung des Potentialfeldes in der Probe (vgl. Abbildung 3.3) zwischen den Messspitzen P1 - P3 und P2 - P4 höhere Potentialdifferenzen gemessen werden. Abbildung 3.6 zeigt die Prüfköpfe mit einem 5 x 5 Raster von 2 mm und 1 mm. Für eine Zuordnung werden den Messspitzen Nummern von 1 bis 50 zugeordnet, beginnend mit der vorderen linken Messspitze des oberen Prüfkopfes (vgl. Abbildung 3.6d und Abbildung 3.6e). Das Potential wird jeweils zwischen zwei exakt gegenüberliegenden Messspitzen gemessen, so zum Beispiel zwischen Kontaktstift 1 und Kontaktstift 26.

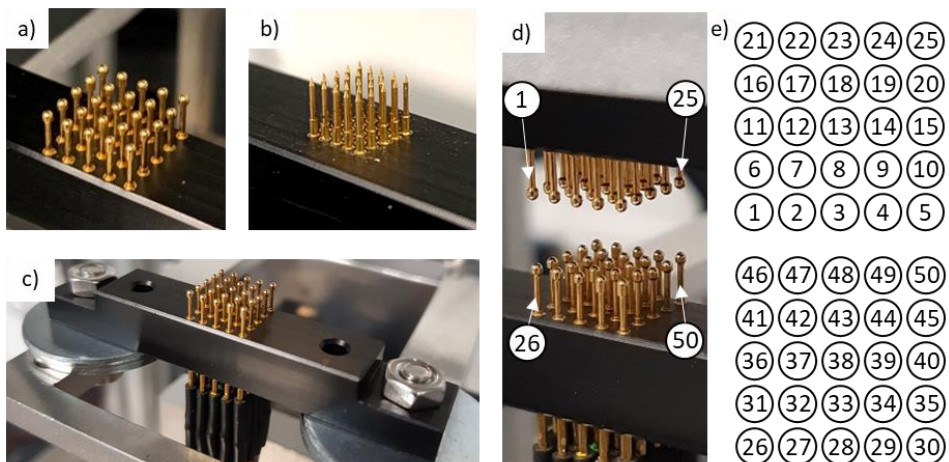


Abbildung 3.6: a) Prüfkopf mit einem 2mm Raster, b) Prüfkopf mit einem 1mm Raster, c) Bild des gesamten eingebauten Prüfkopfes, d) Bild des oberen und unteren Prüfkopfes mit Messspitzenzuordnung e) Schema der Messspitzenzuordnung

Für die Positionierung der Bipolarplattenproben zu den Prüfköpfen wird ein Positionierungssystem mit motorisierten Präzisionslineartischen und Hochpräzisionslineartischen der Firma OWIS GmbH entwickelt. Der Probentisch mit einer Aussparung für die Materialprobenhalterung ist in X- und Y-

Richtung bewegbar. Er bewegt sich zwischen zwei Z-Achsen, an denen die Prüfköpfe montiert werden. Die Materialprobenhalterung besteht aus einer Platte mit einer Aussparung in der Mitte für die untersuchten Monopolarplatten. Die Materialprobenhalterung kann für die Montage der Prüfköpfe und das Einlegen einer neuen Materialprobe herausgenommen werden. Die Bewegung in X- und Y-Richtung für die genaue Platzierung der Bipolarplattenmaterialprobe wird durch die Hochpräzisionslineartische LIMES 84N realisiert. Dieser Lineartisch besitzt einen Stellweg von 270 mm, wobei er Positionen mit einem Positionierfehler von weniger als 16  $\mu\text{m}$  auf 100 mm und einer Geschwindigkeit von maximal 25 mm/s anfahren kann [127]. Für die Bewegungen in Z-Richtung und die Kontaktierung der Prüfköpfe mit der Materialprobe von oben und unten werden die Präzisionslineartische LTM60P verwendet, die sich durch einen geringen Bauraumbedarf auszeichnen. Die eingesetzten LTM60P-Lineartische besitzen einen Stellweg von 25 mm und fahren Positionen mit einer Geschwindigkeit von maximal 10 mm/s und einem Positionierfehler von weniger als 35  $\mu\text{m}$  auf 100 mm an [128]. Die Lineartische werden an ein Gestell aus Aluminiumprofilen geschraubt. Abbildung 3.7 zeigt Bilder des Teststands mit der Positionierung der Lineartische.

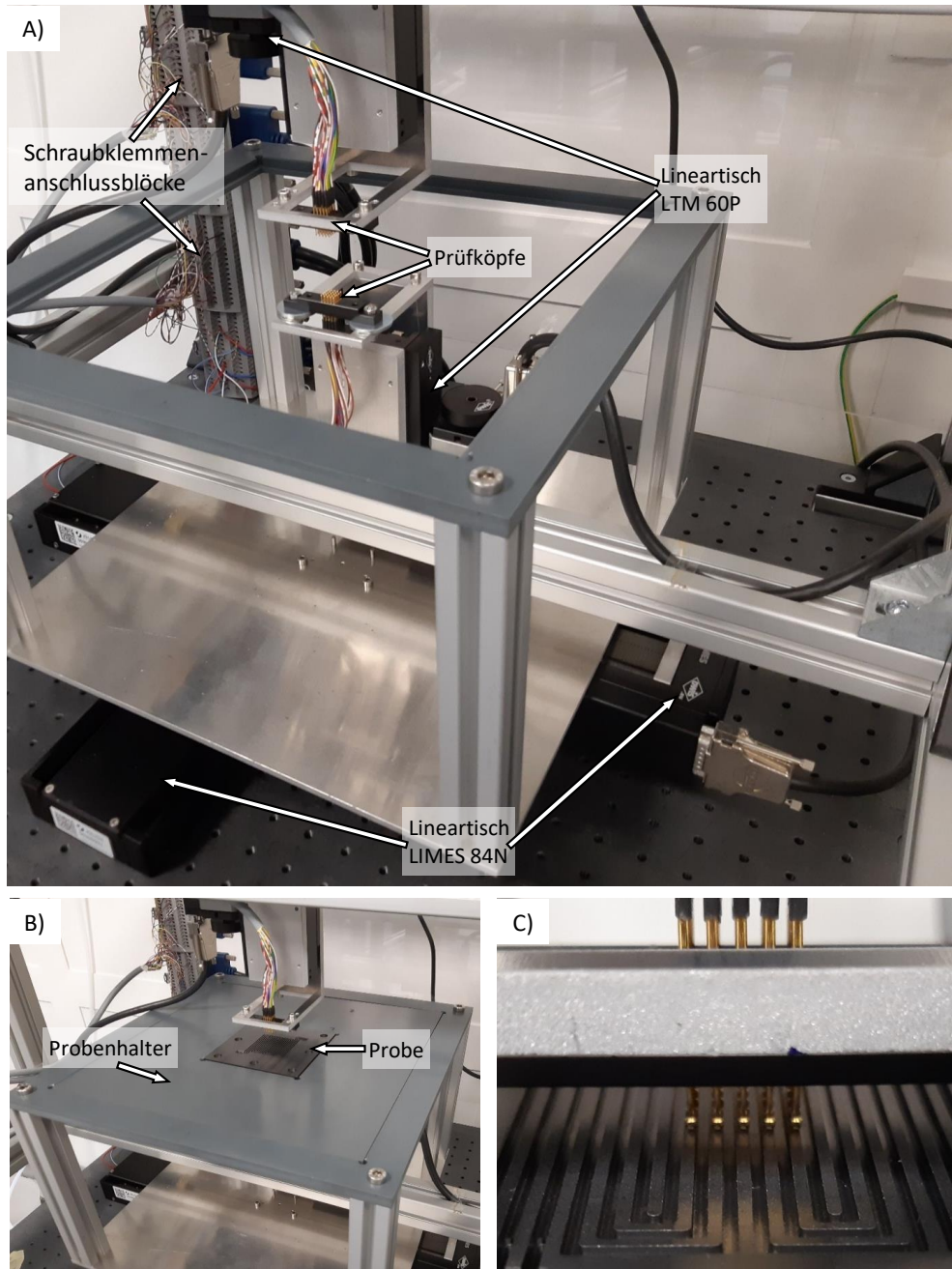


Abbildung 3.7: a) Teststandaufbau, b) Teststand mit Probenhalter und eingelegter Probe, c) Mit dem Prüfkopf kontaktiertes Strömungsfeld der Probe

Der Probenhalter ist auf dem Lineartisch mit einer Ausrichtung in Y-Richtung befestigt, welcher wiederum auf dem Lineartisch mit einer Ausrichtung in X-Richtung befestigt ist. Der Probenhalter besitzt

vertikale Aluminiumprofile, die eine Platzierung der unteren Z-Achsenkonfiguration unter der Aussparung für die Materialprobenhalterung ermöglicht. Die Präzisionslineartische der Z-Achsenkonfiguration werden so positioniert, dass die an ihnen befestigten Prüfköpfe aufeinander zeigen und exakt übereinander positioniert sind.

Passbohrungen für Zylinderstifte in den Prüfköpfen ermöglichen eine genaue Ausrichtung der Prüfköpfe. Für die Ansteuerung der Motoren der Lineartische wird eine Kombination von vier Positionssteuerungen PS 10 der Firma OWIS GmbH eingesetzt. Die Lineartische lassen sich manuell mit der mitgelieferten Steuerungssoftware OWISoft 3.0 ansteuern und kalibrieren. Eine Einbindung der Positionssteuerung an das Steuerungssystem des gesamten Teststands ist durch eine LabVIEW-Schnittstelle vorbereitet.

Die zentralen Komponenten des Teststandes sind die elektrischen Komponenten der Firma National Instruments. Die einzelnen Module sind in einem PXI-Chassis PXIe-1082 zusammengefasst und werden im Folgenden vorgestellt sowie ihre Funktionsweise für den Teststand erläutert. Über NI TBX 50B Schraubklemmen-Anschlussblöcke sind die 50 vergoldeten Messspitzen der Prüfköpfe einzeln mit dem Schaltmodul PXIe-2737 verbunden. Dieses Schaltmodul besitzt eine Matrixschaltung und ermöglicht die individuelle Kombination von vier-Eingangskanälen mit bis zu 64 Ausgangskanälen [129]. Die Prüfköpfe werden an die Ausgangskanäle angeschlossen. Zwei der Eingangskanäle sind durch die Stromquelle des Teststandes besetzt. Als Stromquelle wird eine Source-Measure-Unit (kurz: SMU) mit der Bezeichnung PXI-4130 verwendet. Ohne zusätzliche Hilfsstromversorgung besitzt dieses SMU-Modul eine maximale Spannung von 6 V bei einer Genauigkeit von  $\pm 0,05\%$  bezogen auf den Messwert und kann maximal 1 A bei einer Genauigkeit von  $\pm 0,15\%$  bezogen auf den Messwert bereitstellen [130]. Die SMU versorgt die stromeinleitende Messspitze mit einem definierten Strom und misst gleichzeitig die über die Materialprobe und durch die stromleitenden Messspitzen abfallende Spannung. Die zwei weiteren Eingangskanäle der Matrixschaltung sind mit dem Digitalmultimeter PXI-4065 verbunden. Das Digitalmultimeter (kurz: DMM) besitzt eine Auflösung von 100 nV bei einer Messung von Spannungen bis zu 100 mV [131]. Die durch die Verkabelung und Kontaktierung des Prüfkopfes mit der Materialprobe entstehenden Strom- bzw. Messkreise entsprechen einem Vier-Punkt-Messaufbau. Ein programmierbares Umschalten der Verbindungen zwischen Eingangs- und Ausgangskontakten im Matrixschalter ermöglicht die Messung von unterschiedlichen Vier-Punkt-Messaufbau-Konfigurationen nacheinander. Abbildung 3.8 zeigt schematisch den Aufbau der elektrischen Schaltkreise mit dem Matrixschalter, bei dem die Kreise für die möglichen Verbindungen der Eingänge mit den Ausgängen stehen. Beispielhaft ist eine Verbindung in Rot in das Schaltschema eingezeichnet.

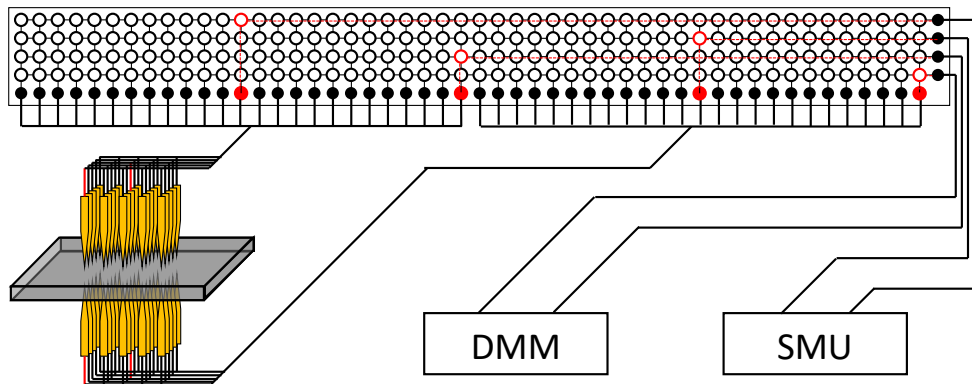


Abbildung 3.8: Schaltschema des Versuchsaufbaus mit in Rot markierter Beispielverbindung

Die elektrischen Komponenten können ebenso wie die Positionssteuerung mit der Systementwicklungssoftware LabVIEW von National Instruments angesteuert werden. In einem für diese Arbeit selbstentwickelten LabVIEW-Skript, basierend auf der LabVIEW Version 2018 SP1, werden die Positionsteuerung der Lineartische und die elektrischen Schaltungen sowie Messungen aufeinander abgestimmt.

### 3.3.2 Messprinzip und Auswertungsschema

In Vorbereitung auf die Potentialfeldmessungen an den Monopolarplatten wird das Messprinzip der Punktkontaktierung, wie es in Kapitel 3.2.1 anhand eines Simulationsmodells erläutert wird, in dem Messstand mit Hilfe des Prüfkopfes mit dem 2 mm Raster experimentell verifiziert. In dem Teststand wird eine Schrittweite des Prüfkopfes von 1 mm für die Verschiebung eingestellt und eine Stromstärke von 0,1 A für alle Versuchsreihen an einem Teststreifen vorgegeben. Als Referenzprobe dient ein Materialstreifen aus PPS Material, in den seitlich drei Durchgangsbohrungen gebohrt werden. Die Durchgangsbohrungen befinden sich an der Position 22 mm, 47 mm und 71 mm und haben einen Durchmesser von 1 mm, 1,5 mm und 1,5 mm. Die Bohrung an der Position 71 mm ist von der Mitte in Richtung Probenrand versetzt (vgl. Abbildung 3.9).

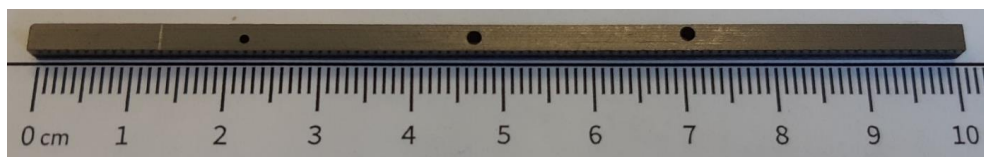


Abbildung 3.9: Seitenansicht des PPS-Materialstreifens mit Durchgangslöchern

Die Positionen der Ergebnisdarstellungen im Ergebniskapitel beziehen sich jeweils auf die Position des mittleren Kontaktstiftes einer Reihe. In der Referenzmessung des Teststreifens kontaktiert nur die mittlere Reihe des Prüfkopfes die Probe, das heißt die Messspitzen mit den Nummern 3, 8, 13, 18, 23 von oben und 28, 33, 38, 43, 48 von unten (vgl. Kapitel 3.3.2). Der Strom wird durch die mittleren Kontaktstifte mit den Nummern 13 und 38 geleitet.

Da der Teststreifen an den Seitenenden in dem Probenhalter aufliegt und die Abmaße des Prüfkopfes berücksichtigt werden müssen, beginnt die Vermessung des Potentialfeldes an der Position 10 mm und endet bei der Position 90 mm. Durch die geometrischen Einschränkungen können Randeffekte, wie sie in der Simulation zu beobachten waren, nicht gemessen werden. In Anlehnung an die Bezeichnungen in dem Simulationsmodell (vgl. Kapitel 3.2.1) bilden die Messspitzen 8 und 33 die Potentiale P1 und P3 ab. Die Messspitzen 18 und 43 bilden die Potentiale P2 und P4 ab.

Die Vier-Punkt-Messaufbau-Konfiguration an der Monopolarplatte wird nach dem Schema durchgeführt, bei dem durch das mittlere Pin-Paar der Strom geleitet wird und mit den umgebenden Pin-Paaren das sich in dem Bipolarplattenmaterial entwickelnde Potentialfeld gemessen wird.

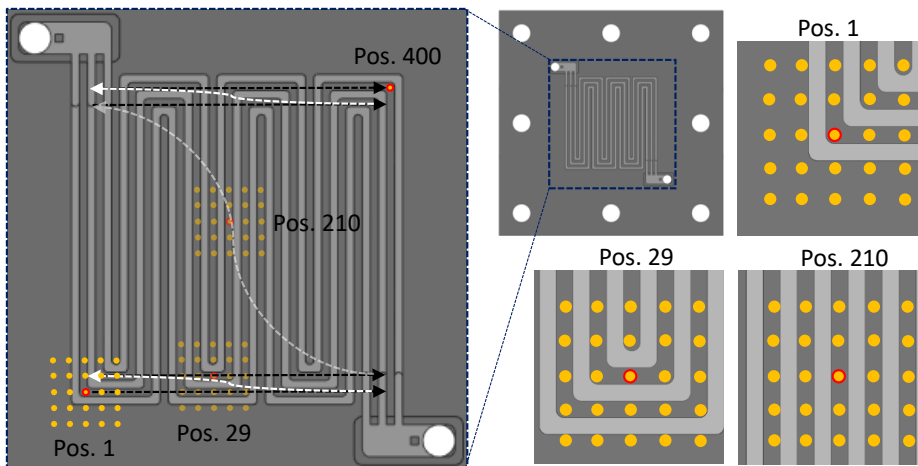


Abbildung 3.10: Bezeichnung der Positionen auf der Monopolarplatte und des Abtastmusters des Prüfkopfes mit detaillierter Darstellung der Messstiftplatzierung an den Positionen 1, 29 und 210

Insgesamt werden 24 Potentialmesswerte an einer Position des Prüfkopfes aufgenommen. Für die Vermessung der Monopolarplatte zur Defekterkennung wird nur die aktive Zellfläche, beziehungsweise das Strömungsverteilerfeld der Brennstoffzelle, betrachtet, da in diesem Bereich ein Defekt am kritischsten anzusehen ist. Die Abrasterung des Strömungsverteilerfeldes erfolgt in 2 mm Schritten, wobei der aktive Zellbereich Reihe für Reihe abgefahren wird. Dies führt zu 400 Messposition mit insgesamt 9600 Potentialmesswerten. Abbildung 3.10 zeigt die Positionierung des Prüfkopfes mit einem 2 mm Raster anhand des oberen Prüfkopfes in der Ecke des Strömungsverteilerfeldes der



Monopolarplatte. Der stromleitende Kontaktstift in der Mitte des Messspitzenrasters ist rot umrandet dargestellt. Die Positionen der Prüfköpfe, auf die im Verlaufe der Arbeit weiter eingegangen wird, sind in der Abbildung hervorgehoben.

In dem Strömungsverteilerfeld ergibt sich aufgrund der Steg-Kanal-Struktur eine komplexe Potentialfeldverteilung. Bei bekannter Geometrie kann die komplexe Potentialfeldverteilung, wie in Kapitel 3.2 gezeigt, simuliert werden. Ein Vergleich zwischen Messwerten und Simulationswerten ermöglicht Rückschlüsse auf Defekte in der Monopolarplatte. Dabei wird für jeden der 24 Messpunkte an den 400 Messpositionen der Multiplikationsfaktor zwischen Messwert und Vergleichswert der Simulation bestimmt. Bei der Verschiebung des Prüfkopfes wird eine Stelle auf der Monopolarplatte aus verschiedenen Perspektiven gemessen. Für die Darstellung der örtlichen Verteilung der Multiplikationsfaktoren auf der Monopolarplatte werden die Multiplikationsfaktoren mit identischem Betrachtungspunkt auf der Monopolarplatte in einem Mittelwert zusammengefasst. Neben der Simulation als Referenz kann auch eine Messung an einer Referenzplatte für den Vergleich genutzt werden. Des Weiteren können aufgrund der Symmetrie der untersuchten Monopolarplatten die Messwerte in der unteren Hälfte der Probe mit den Messwerten der oberen Hälfte der Probe verglichen werden.

Ein hoher Multiplikationsfaktor, also eine starke Abweichung von dem Vergleichswert, deutet auf eine Störung in der Potentialverteilung und somit auf einen Defekt im Bipolarplattenmaterial an der entsprechenden Position hin. Für den Vergleich zwischen Messwerten an fehlerfreien und mangelhaften Stellen innerhalb einer Probe werden die künstlichen Mängel in einigen untersuchten Monopolarplatten nur in einem bestimmten Bereich der Platte eingefügt (vgl. Abbildung 3.1a). Die gemessenen Potentialwerte werden in einer CSV-Datei zwischengespeichert und nach dem beschriebenen Messschema durch einen Auswertalgorithmus mit der Software Python Version 3.8 evaluiert.

Für die Prüfung der Monopolarplatten wird ein Strom von 1 A eingestellt. Schwankungen des Eingangssignal werden von der SMU mitgemessen. Die gemessenen Spannungen liegen im Millivoltbereich. Zum Ausgleich von Schwankungen des Eingangssignals werden die gemessenen Spannungen auf das Eingangssignal normiert. Die Verfahrensgeschwindigkeit der Positioniereinheiten in X- und Y-Richtung der Plattenebene beträgt 6,5 mm/s. Die Prüfköpfe fahren mit einer Geschwindigkeit von 2 mm/s zu. Um Unebenheiten in der untersuchten Probe und Toleranzen der Prüfköpfe auszugleichen wird für eine gute Kontaktierung darauf geachtet, dass der Federmechanismus bei allen Federkontaktstiften auslöst wird.

### 3.4 Alternative through-plane Widerstandsbestimmung durch Punktkontaktierung

Die von Cunningham et al. [114] beschriebene und in dieser Arbeit angewandten Methode zur Bestimmung des spezifischen elektrischen through-plane Widerstandes über unterschiedliche Dicken des Bipolarplattenmaterials lässt sich in der Qualitätskontrolle von Bipolarplatten nur eingeschränkt anwenden. Des Weiteren wird bei dieser Methode die komplette Bipolarplatte kontaktiert und es lassen sich keine Aussagen über lokal variierende through-plane Widerstände in der Bipolarplatte treffen. Mit einem Kontaktstempel, der nur einen Ausschnitt der Bipolarplatte von oben und unten kontaktiert, lässt sich ein through-plane Widerstand lokal bestimmen. Dabei muss berücksichtigt werden, dass sich durch die in-plane Leitfähigkeit des Bipolarplattenmaterials ein Potentialfeld innerhalb der Bipolarplatte ausbreitet und aus dem gemessenen Widerstandswert nicht ohne weiteres der spezifische through-plane Widerstand berechnet werden kann. Des Weiteren ist der gemessene Widerstand abhängig von den Kontaktierungsbedingungen. Bei gleichen Kontaktierungsbedingungen kann der gemessene Widerstand als relativer Vergleichswert zwischen zwei Proben verwendet werden.

Eine im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Möglichkeit den spezifischen elektrischen through-plane Widerstand zu bestimmen, ohne die Bipolarplattenmaterialprobe zu beschädigen, nutzt die Ausbreitung des elektrischen Potentials in den Proben. Bei bekannter Potentialausbreitung in einem Bipolarplattenmaterial kann der spezifische through-plane Widerstand über eine Vermessung des Potentialfeldes bestimmt werden. Eine Voraussetzung zur Bestimmung des Potentialfeldes eines unbekanntes Bipolarplattenmaterials mittels Simulation ist die Kenntnis des spezifischen in-plane Widerstandes. Zur Messung des in-plane Widerstandes wird der in Kapitel 3.3 beschriebene Teststand verwendet. Dieser wird um einen Materialprobenhalter mit der Möglichkeit der Kontaktierung der Stirnflächen der Bipolarplattenmaterialien ergänzt. Die Probe liegt auf Schiebern, die auf einem Langlochblechstreifen fixiert werden können. Die Probe wird zwischen zwei Edelstahlkontakten, von denen das Hintere lose auf dem Schieber liegt, durch einen O-Ring eingespannt. Zur Verbesserung der Kontaktierung befindet sich eine Einkerbung vor den Edelstahlkontakten, sodass eine GDL zwischen der Probe und dem Edelstahlkontakt platziert werden kann. Abbildung 3.11 zeigt den in den Teststand eingebauten Materialprobenhalter. Der spezifische in-plane Widerstand der Materialprobe wird über die Potentialdifferenz berechnet, die zwischen Kontaktstiften parallel zur Stromflussrichtung gemessen wird.

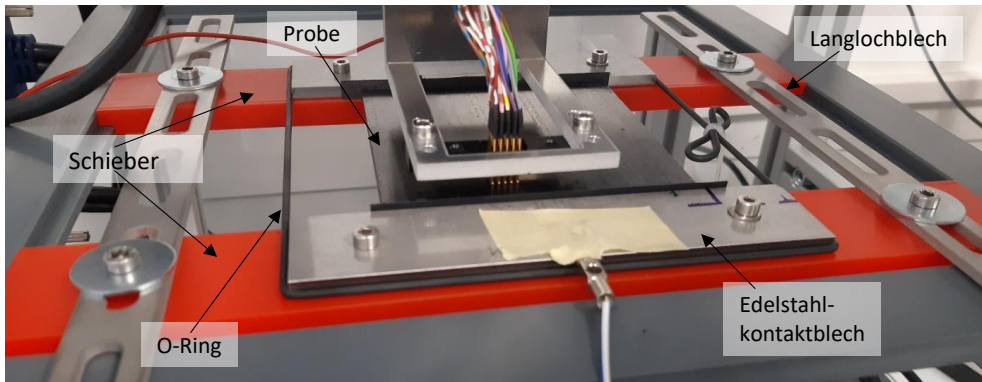


Abbildung 3.11: Materialprobenhalter mit Möglichkeit zur in-plane Messung

Mit einer bekannten Geometrie, dem spezifischen in-plane Widerstand und einem Parameter für den spezifischen through-plane Widerstand kann für die Simulation der elektrischen Potentialverteilung innerhalb des Bipolarplattenmaterials ein Modell aufgebaut werden. Ausgehend von der Annahme, dass sich bei einem bestimmten spezifischen in-plane Widerstandswert und einem bestimmten spezifischen through-plane Widerstandswert von einer Punktquelle und einer Punktsenke ausgehend eine bestimmte Potentialverteilung in der Materialprobe ausbildet, kann zwischen zwei Messpunkten in festgelegten Abständen zur Punktquelle eine Potentialdifferenz berechnet werden. Abbildung 3.12 zeigt das sich ausbreitende Potentialfeld in einem Bipolarplattenmaterial mit einem spezifischen in-plane Widerstand, der deutlich kleiner ist als der spezifische through-plane Widerstand, und schematisch die Position der Messpunkte. Die im Simulationsmodell verwendeten Abstände stimmen mit den Abständen der Kontaktstifte des Prüfkopfes aus dem Teststand überein, sodass Messwerte mit Simulationswerten verglichen werden können.

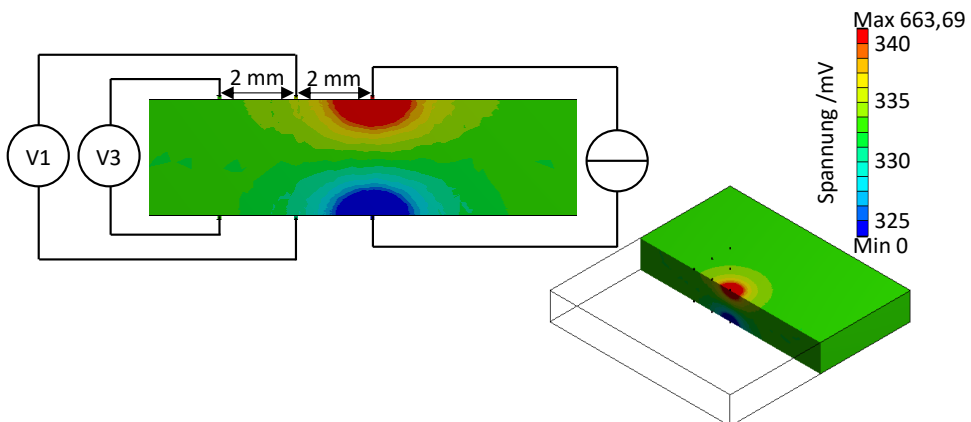


Abbildung 3.12: Simulierte Potentialverteilung in einem Bipolarplattenmaterial

Die Simulationen werden mit einer Parametervariation für den spezifischen through-plane Widerstand von  $0,001 \Omega\text{cm}$  bis  $0,05 \Omega\text{cm}$  mit einer Schrittweite von  $0,001 \Omega\text{cm}$  durchgeführt. Durch den Vergleich der simulierten Potentiale an den Messpunkten und den gemessenen Potentialen lässt sich der spezifische through-plane Widerstand bestimmen. Abbildung 3.13 zeigt dies anhand eines Diagrammes für die Messpunkte V1 und V3. Auf der X-Achse ist der spezifische through-plane Widerstand aufgetragen und auf der Y-Achse ist das simulierte Potential an den Messpunkten abgebildet. Eine übertragene Linie des tatsächlich gemessenen Potentialwertes schneidet die simulierte Potentialkurve. Der X-Wert des Schnittpunktes ist der spezifische through-plane Widerstand. Der mit den Potentialen V1 und V3 ermittelte spezifische Widerstandswert sollte identisch sein. Messunsicherheiten bei der in-plane Widerstandsmessung und den Vergleichspotentialmessungen sowie Berechnungsfehler in der Simulation und der Interpolation zwischen zwei simulierten Punkten können leichte Abweichungen für den spezifischen through-plane Widerstandswert verursachen.

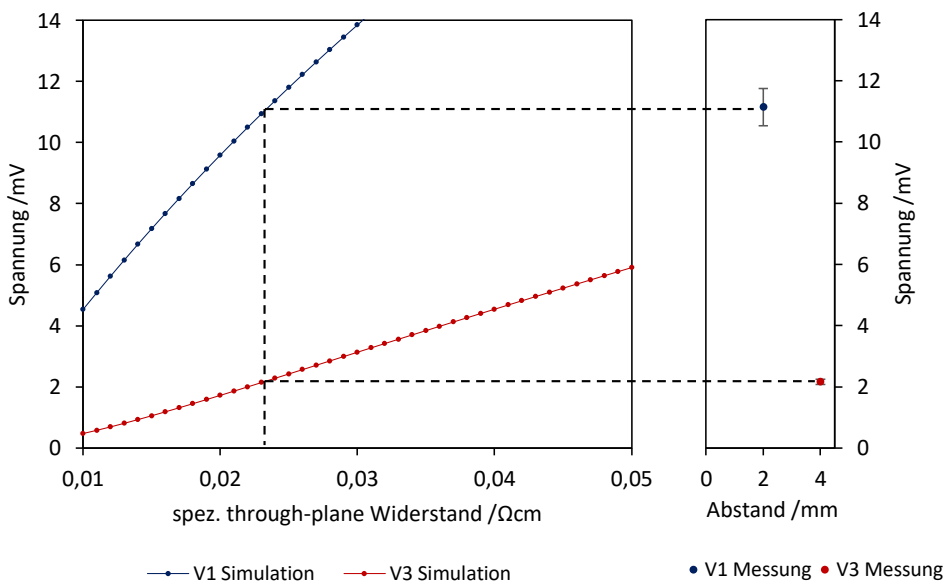


Abbildung 3.13: linkes Diagramm zeigt Potentiale V1 und V3 simuliert für variierende spezifische through-plane Widerstände, rechtes Diagramm zeigt die tatsächlich gemessenen Potentiale V1 und V3

Die Simulation der Potentiale an den Messpunkten kann vor der Messung erfolgen und um Simulationen mit einem variierenden in-plane Widerstandsparameter erweitert werden. Die Simulationsergebnisse werden in einem Datensatz gespeichert. Ein automatisierter Vergleich zwischen dem Datensatz und den gemessenen Potentialen liefert den spezifischen through-plane Widerstandswert.

Eine Limitierung der through-plane Widerstandsbestimmungsmethode ist, dass diese Methode nur bei Bipolarplattenmaterialien angewendet werden kann, in denen sich ein homogenes und berechenbares Potentialfeld ausbreitet. Anett und Ferenc [39] zeigen, dass formgepresste Bipolarplatten konstante elektrische Eigenschaften in through-plane Richtung besitzen. Spritzgegossene Bipolarplatten haben hingegen variierende elektrische Eigenschaften in through-plane Richtung. Daraus ergibt sich ein komplexes Potentialfeld im Inneren von spritzgegossenen Bipolarplatten, welches ohne exakte Kenntnisse über die innere Struktur nicht vorherbestimmt werden kann. Ein sinnvoller Einsatz der through-plane Widerstandsbestimmung über die Vermessung des Potentialfeldes ergibt sich daher nur für formgepresste Bipolarplattenmaterialien.

Hickmann und Zielinski [61] bestimmen die Homogenität von formgepressten Bipolarplattenmaterialien anhand einer automatisierten in-plane Widerstandsmessung. Diese kann mit der gezeigten Methode durch einen through-plane Vergleich erweitert werden. Zur Vermessung der Homogenität und Untersuchung von Anisotropien in der Materialprobe wird die Bipolarplattenmaterialprobe in quadratzentimeter-große Abschnitte unterteilt. In diesen Abschnitten wird jeweils in fünf benachbarten Reihen der in-plane Widerstand für vier Längen gemessen. Der für die fünf Reihen errechnete spezifische in-plane Widerstand wird zu einem Mittelwert zusammengefasst. Der spezifische through-plane Widerstandswert wird ausgehend von einer Punktquelle in der Mitte des Abschnittes (rot markiert, vgl. Abbildung 3.14) über die Simulation des Potentialfeldes bestimmt. Für die through-plane Bestimmung werden die Potentialmesssstifte entsprechend ihrem Abstand zum stromführenden Stift den Gruppen V1 bis V5 zugeordnet, wie in Abbildung 3.14 angedeutet.

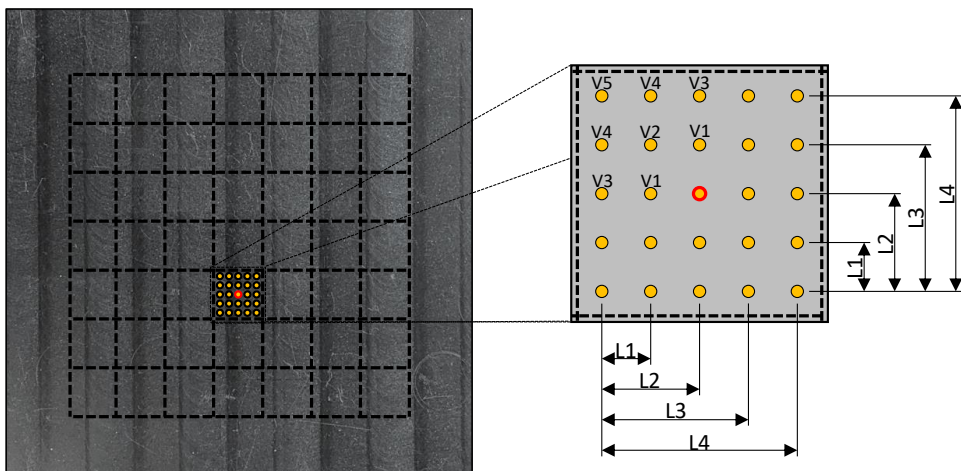


Abbildung 3.14: Unterteilung der Bipolarplattenmaterialprobe in Abschnitte und Bestimmung der in-plane Messpositionen

### 3.5 Bewertung des Einflusses von Mängeln in Bipolarplatten auf die Brennstoffzellenleistung

Zur Bewertung der in den Monopolarplatten detektierten Mängel werden Einzelzellen mit unterschiedlichen Kombinationen von zwei Monopolarplatten aufgebaut und in einem kommerziellen Brennstoffzellen-Teststand getestet. Des Weiteren werden ohmsche Widerstandsmessungen mit einer Kontaktierung der kompletten aktiven Zellfläche und mit Ausschnitten aus einer Monopolarplatte durchgeführt. Der Aufbau dieser Experimente wird im Folgenden näher erläutert.

#### 3.5.1 Einzelzellenmessungen

Die Einzelzellen sind wie in Kapitel 2.1 beschrieben aufgebaut. Für den Aufbau der Einzelzelle werden 1,5 cm dicke Endplatten aus Edelstahl mit Bohrungen für Heizelemente verwendet. Zur Abdichtung zwischen Monopolarplatte und Endplatte wird eine Sigrافلexdichtung eingesetzt. Die Abdichtung in der Zelle wird durch eine PFA-Folie realisiert, welche in der Mitte einen Ausschnitt für die GDL hat. Als GDL-Material wird eine Freudenberg H23C2 mit MPL verwendet. Die eingesetzte MEA ist eine GORE PRIMEA GFCG0063. Der Aufbau der Einzelzelle wird durch acht Schrauben verspannt, die als Zuganker dienen. Die Zuganker sind gleichmäßig am Rand der Einzelzelle platziert (vgl. mit den Bohrungen für die Zuganker in den Monopolarplatten in Abbildung 3.1). Die Schrauben werden mit einem Drehmomentschlüssel in 2 Nm-Schritten auf ein Drehmoment von 6 Nm angezogen. Bei einem Drehmoment von 6 Nm ist die verwendete Einzelzelle gasdicht. Die Einzelzelle wird zur Untersuchung an einen kommerziellen Teststand der Firma Greenlight Innovation mit dem Modellnamen G40 angeschlossen. Dort wird für einen reibungslosen Betrieb der Brennstoffzelle ein vierfacher Überschuss gegenüber der stöchiometrischen Gaszufuhr auf der Kathodenseite und ein zweifacher Überschuss gegenüber der stöchiometrischen Gaszufuhr auf der Anodenseite eingestellt. Die Betriebstemperatur beträgt 70 °C und die Reaktionsgase Luft und reiner Wasserstoff werden mit einer relativen Feuchte von jeweils 70 % bei 70 °C vorkonditioniert. Die Polarisationskurven zur Bewertung der eingesetzten Monopolarplatten werden im Anschluss an eine Einfahrprozedur zur Aktivierung der Membran der Einzelzelle durchgeführt. Die Einzelzellenmessungen werden für unterschiedliche Kombinationen von Monopolarplatten mit Mängeln durchgeführt und zur Bewertung mit Polarisationskurven aus Einzelzellmessungen mit zwei Referenzmonopolarplatten verglichen.

Ergänzt wird die Auswertung der Polarisationskurven durch die Aufzeichnung von Impedanzspektren. Die elektrochemische Impedanzspektroskopie (kurz: EIS) wird mit dem Potentiostaten mit der Bezeichnung HCP-1005 der Firma Bio-Logic SAS durchgeführt [132]. Für die Aufnahme der

Impedanzspektren werden die gleichen Einstellungen für die Brennstoffzelle gewählt, wie für die Aufnahme der Polarisationskurven. Mit dem Potentiostaten wird die Brennstoffzelle mit einer Wechselspannung von 0,67 V und einer Amplitude von 10 mV in einem Frequenzbereich von 100 mHz bis 10 kHz angeregt. Für die Ermittlung des ohmschen Widerstandes und das Fitten der Impedanzmessdaten wird die Software ZView verwendet. Als Ersatzschaltbild wird das in Abbildung 3.15 gezeigte Ersatzschaltbild mit den Widerständen R1 und R2 sowie der Kapazität CPE angewendet. Dabei entspricht R1 dem ohmschen Vorwiderstand der Brennstoffzelle, welcher sich aus den ohmschen Widerständen der einzelnen Komponenten und den Kontaktwiderständen zusammensetzt. R2 behandelt den elektrochemischen Widerstand, vorwiegend von der Sauerstoffreduktionsreaktion an der Kathode der Zelle und CPE beschreibt eine nicht-ideale Kapazität, die einer Doppelschichtkapazität in der Grenzfläche zwischen Katalysator und der protonenleitenden Membran zuzuordnen ist [133].

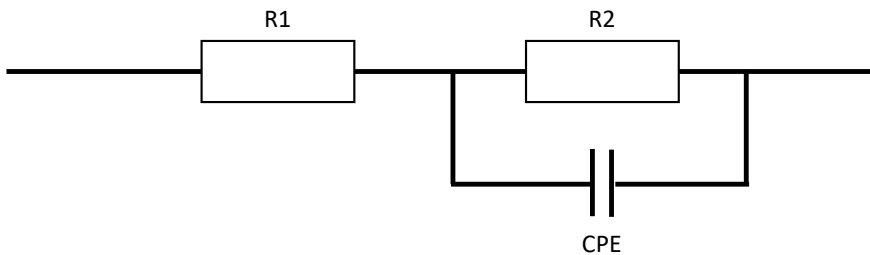


Abbildung 3.15: Ersatzschaltbild für die Impedanzspektroskopie

### 3.5.2 Ohmsche Widerstandsmessungen

Neben den Einzelzellversuchen, die Informationen über das veränderte Betriebsverhalten mit mangelhaften Monopolarplatten geben, werden ohmsche through-plane Widerstandsmessungen mit einer flächigen Kontaktierung an den Monopolarplatten durchgeführt. Da nur der ohmsche Widerstand betrachtet wird, ist ein vereinfachter Versuchsaufbau möglich. Zunächst wird wieder die komplette aktive Zellfläche betrachtet. Die Monopolarplatte wird im Bereich der aktiven Zellfläche von oben und unten mit einem GDL Material H23 (früher H2315) von Freudenberg kontaktiert, welches in einen PFA-Rahmen eingelegt ist. Anschließend an die GDL befinden sich vergoldete Stempelplatten, an die eine Stromquelle und ein Digitalmultimeter in einer Vier-Leiter-Schaltung angeschlossen sind. Für die ohmschen Widerstandsversuche wird eine GDL ohne MPL verwendet. Der PFA-Rahmen dient als Hard-Stop für die Verpressung der GDL und als Isolation zwischen Goldstempel und der übrigen Monopolarplatte. Die Verpressung der GDL ist für die ohmsche Widerstandsbestimmung von entscheidender Bedeutung, wie auch die am IEK-14 durchgeführten Arbeiten zeigen [134, 135]. Qiu et

al. [135] zeigen, dass sich der elektrische Widerstand der Freudenberg-GDL H2315 nicht nur mit steigendem Anpressdruck, sondern auch mit zunehmender Zahl von Anpresszyklen verändert. Um einen relativen Vergleich zwischen den Monopolarplatten zu gewährleisten, wird für jede Messung eine neue GDL verwendet. Der Anpressdruck wird in 0,15 MPa Schritten bis auf einen Anpressdruck von 1,5 MPa bezogen auf die Fläche des Goldstempels angehoben, wobei der jeweilige Anpressdruck für 10 Sekunden gehalten wird. Als Stromquelle wird ein Netzteil des Typs 1112-16 der Firma HEIDEN Electronics GmbH genutzt, dessen Signal mit einem in Reihe angeschlossenen Digitalmultimeter UNITEST Hexagon 320 der BEHA GmbH überwacht wird. Für die Widerstandsmessungen am kompletten Strömungsfeld wird eine Stromstärke von 8,82 A eingestellt. Dies entspricht bei einer aktiven Zellfläche von 17,64 cm<sup>2</sup> einer Stromdichte von 0,5 A/cm<sup>2</sup>. Das verwendete Digitalmultimeter besitzt bei einem Strom in der Größenordnung von 10 A eine Messgenauigkeit von +0,2 %. Für die Spannungsmessung wird das Digitalmultimeter Modul PXIe-4500 aus dem in Kapitel 3.3 beschriebenen Teststand genutzt. Abgeschlossen wird der Sandwichaufbau zur Widerstandsbestimmung mit Isolierplatten. Zur Simulation des Anpressdruckes in einer Brennstoffzelle wird der Sandwichaufbau in einer Kühl-Pressen Type PWV 2 EH-Servo der Paul-Otto Weber Maschinen und Apparatebau GmbH verpresst. In Abbildung 3.16 ist der schematische Aufbau des Versuchs abgebildet.

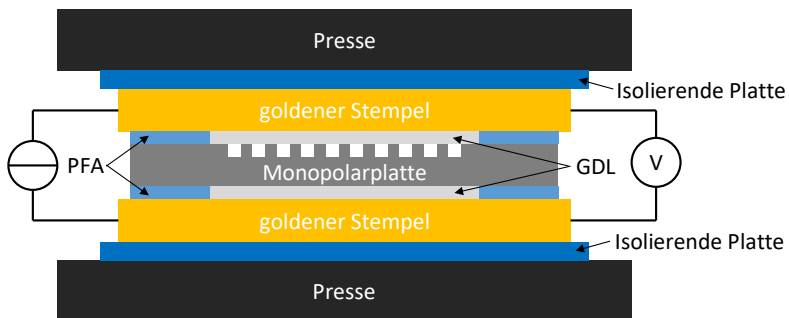


Abbildung 3.16: Versuchsschema der Widerstandsmessung mit Kontaktierung der gesamten aktiven Zellfläche

Für eine detaillierte Untersuchung und Simulation des ohmschen Widerstandes in einem Ausschnitt der mangelhaften Monopolarplatten wird eine der Monopolarplatten in 20 mm x 20 mm große Teilstücke gefräst. Bei diesen Proben wird für die Widerstandsmessungen ein Strom von 4 A angelegt. Die in dieser Arbeit vorgestellten Methoden und Ergebnisse der detaillierten Untersuchung eines Monopolarplattenteilstückes werden zusätzlich in einem Journal veröffentlicht [103]. Zur Bestimmung des in-plane Bulk-Widerstandes des Monopolarplattenmaterials wird die Materialprobe an gegenüberliegenden Seiten kontaktiert. Der in-plane Widerstand wird mit Messspitzen in variierendem Abstand  $L$  auf einer Linie senkrecht zu den kontaktierten Flächen auf der Oberfläche der Materialprobe gemessen. Für die Ermittlung des through-plane Bulk-Widerstands werden jeweils ein Millimeter beziehungsweise zwei Millimeter von Teilstücken der Monopolarplatte abgefräst und der



through-plane Widerstand des Bipolarplattenmaterials wie beschrieben ermittelt. Der gemessene Widerstand setzt sich immer aus Bulk-Widerständen und Kontaktwiderständen zusammen. Zur Differenzierung zwischen den Kontaktwiderständen und Bulk-Widerständen werden die Kontaktwiderstände und der Widerstand der GDL in zwei weiteren Experimenten untersucht. In dem einen Experiment wird nur eine GDL zwischen die zwei Goldstempel gelegt und der Widerstand gemessen. In dem anderen Experiment wird der Versuchsaufbau von Sow et al. [116] adaptiert. Abgetrennt durch eine dünne Isolationsfolie wird zwischen zwei Teilstücken eine Kupferfolie gespannt, die so platziert wird, dass ihre Kante auf gleicher Höhe liegt, wie die Oberfläche des Teilstücks und die GDL kontaktiert. In diesem Experiment bleibt der Kontaktwiderstand zwischen Monopolarplattenmaterial und GDL unberücksichtigt. Abgeschlossen wird die Reihe der Experimentaufbauten durch die Messung des ohmschen Widerstandes der Teilstücke der Monopolarplatte. Die Experimentaufbauten sind in Abbildung 3.17 schematisch dargestellt.

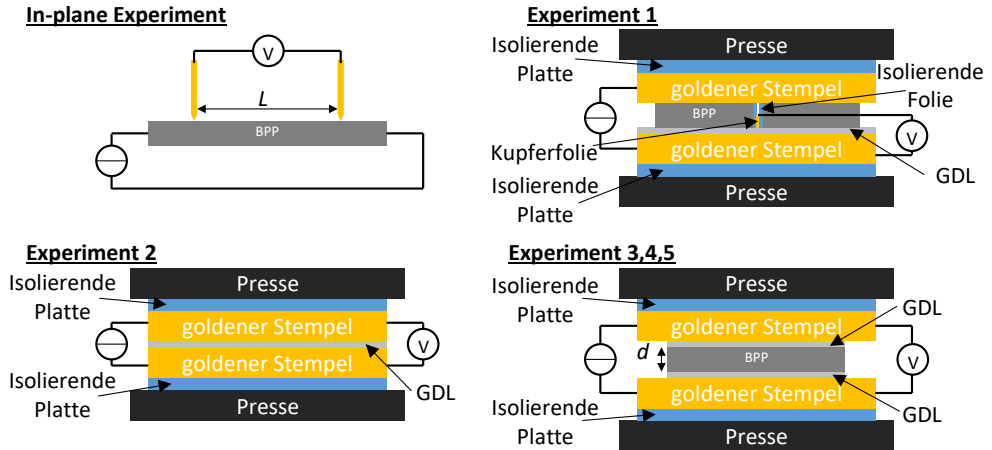


Abbildung 3.17: Schematischer Experimentaufbau, adaptiert nach [103]

Mit den fünf through-plane Experimenten lässt sich ein lineares Gleichungssystem aufstellen und der in den einzelnen Komponenten, beziehungsweise Kontakten auftretenden Spannungsabfälle berechnen. Sortiert nach der Nummerierung der Experimente in Abbildung 3.17 ergeben sich folgende Gleichungen für den elektrischen Spannungsabfall.

$$\text{Exp. 1: } U_1 = 1 \cdot U_{GDL} + 1 \cdot U_{GDL-Gold} + 0 \cdot U_{GDL-BPP} + 0 \cdot U_{BPP} \quad (3.3)$$

$$\text{Exp. 2: } U_2 = 1 \cdot U_{GDL} + 2 \cdot U_{GDL-Gold} + 0 \cdot U_{GDL-BPP} + 0 \cdot U_{BPP} \quad (3.4)$$

$$\text{Exp. 3: } U_3 = 2 \cdot U_{GDL} + 2 \cdot U_{GDL-Gold} + 2 \cdot U_{GDL-BPP} + 1 \cdot U_{BPP,2mm} \quad (3.5)$$

$$\text{Exp. 4: } U_4 = 2 \cdot U_{GDL} + 2 \cdot U_{GDL-Gold} + 2 \cdot U_{GDL-BPP} + 1 \cdot U_{BPP,3mm} \quad (3.6)$$

$$\text{Exp. 5: } U_5 = 2 \cdot U_{GDL} + 2 \cdot U_{GDL-Gold} + 2 \cdot U_{GDL-BPP} + 1 \cdot U_{BPP,Teilstück} \quad (3.7)$$

Die Spannungen  $U_1$  bis  $U_5$  beschreiben in dem Gleichungssystem die messbaren Spannungsabfälle über den gesamten Experimentaufbau. Die Spannungen  $U_{GDL}$  und  $U_{BPP}$  stehen für den Spannungsabfall in der GDL und in dem Monopolarplattenmaterialteilstück. Der Spannungsabfall aufgrund des Kontaktes zwischen dem vergoldeten Stempel und der GDL wird durch  $U_{GDL-Gold}$  gekennzeichnet und der Spannungsabfall am Kontakt zwischen der GDL und dem Monopolarplattenteilstück wird durch  $U_{GDL-BPP}$  gekennzeichnet.

### 3.6 Röntgentomographieuntersuchungen zur Morphologie von Bipolarplattenmaterialien

Für die Validierung der elektrischen Methoden zur Mängelerkennung wird die Röntgentomographie verwendet. Mit der Röntgentomographie können detaillierte Tomogramme der inneren Struktur der Bipolarplattenmaterialien erstellt werden. Für diese Arbeit wird der Computertomograph (kurz: CT) Xradia 410 Versa der Firma Carl Zeiss Microscopy GmbH genutzt.

In dem CT rotiert die in einem Probenhalter montierte Monopolarplatte zwischen einer Röntgenquelle und einem Röntgenstrahlendetektor  $360^\circ$  um die vertikale Y-Achse. In dieser Arbeit werden auf den  $360^\circ$  verteilt 1601 2D-Projektionen aufgenommen. Ein hoher Phasenkontrast, der für die Unterscheidung zwischen Polymermatrix, Graphitfüllmaterial, Poren, Risse und den künstlich eingebrachten Mängeln Holz und Kunststoff nötig ist, wird über die Wahl einer möglichst niedrigen Beschleunigungsspannung erreicht. Die Röntgenquelle des verwendeten Xradia 410 Versa kann im Bereich von 40-150 kV eingestellt werden, sodass eine Beschleunigungsspannung von 40 kV gewählt wird. Mit einer niedrigen Beschleunigungsspannung sinkt auch die Intensität der Röntgenstrahlen. Für einen guten Kontrast in dem Tomogramm wird jedoch auch eine gewisse Intensität der Röntgenstrahlen am Detektor benötigt. Durch eine Erhöhung der Belichtungszeit kann die Intensität wieder erhöht werden. Für die Untersuchung der Monopolarplatten wird eine Belichtungszeit von 9 s gewählt. Mit einem verwendeten Binning von 2 wird einer Empfehlung des Herstellers gefolgt. Als Binning wird die Zusammenfassung von benachbarten Pixeln verstanden, sodass  $2 \times 2$  Pixel für ein Binning von 2 zu einem Bildpunkt zusammengefasst werden. Mit einem Binning von 2 besitzt der Detektor eine Auflösung von ca.  $1000 \times 1000$  Pixel. Der CT Xradia 410 Versa besitzt eine zweifache Vergrößerungsarchitektur, eine geometrische und eine optische Vergrößerung. Die geometrische Vergrößerung kann analog zum Strahlensatz über die Positionierung von Quelle und Detektor in Bezug auf die Probe erreicht werden. Für die optische Vergrößerung stehen die Objektive 0,4X mit einer minimal erreichbaren Voxelgröße von  $6 \mu\text{m}$ , 4X mit  $6-3 \mu\text{m}$ , 10X mit  $2,4$  bis  $1,8 \mu\text{m}$  bis hin zu 40X mit

einer minimalen Voxelgröße von 0,5  $\mu\text{m}$ , zur Verfügung [136]. In dieser Arbeit wird die minimale Voxelgröße jedoch durch die Größe des Betrachtungsfeldes (engl.: field of view, FOV) und der Auflösung des Detektors bestimmt. Für die Aufnahme des gesamten Strömungsfeldes der Monopolarplatten wird Objektiv 0,4X verwendet und ein FOV von 50 mm x 50 mm gewählt. Die minimale Voxelgröße beträgt somit ca. 50  $\mu\text{m}$ . Die Objektive 4X und 10X werden für Detailansichten der Monopolarplatte und Untersuchungen von weiteren Materialproben verwendet. Tabelle 3.2 fasst die Einstellungen des CT zur Untersuchung der Monopolarplatten zusammen und listet ergänzend die Einstellungen für die Detailuntersuchungen an den Monopolarplatten und die Untersuchungen an weiteren Materialproben auf.

Tabelle 3.2: Einstellungen für die Aufnahmen im Nano-CT für die unterschiedlichen Untersuchungen.

Parameter	Gesamtes Flowfield	Detailansicht
Beschleunigungsspannung	40 kV	40 kV
Leistung	7 W	7 W
Belichtungszeit	9 s	1 s
Belichtungszeitfaktor seitlich	20 X	-
Distanz Quelle-Probe	300 mm	32 mm
Distanz Detektor-Probe	62 mm	10 mm
Anzahl Projektionen	1601	1601
Rotation	360°	360°
Filter	-	-
Optische Vergrößerung	0,4X	4X
Binning	2	2
Voxelgröße	56,71 $\mu\text{m}$	5,12 $\mu\text{m}$

Für die Monopolarplatte mit den äußeren Abmessungen von 100 mm x 100 mm x 4 mm ergeben sich bei der CT-Untersuchung im XRadia 410 Versa einige Besonderheiten. Die Probe wird so eingespannt, dass die Oberseite mit dem Strömungsfeld in Richtung der Quelle zeigt. Aufgrund des starken Seitenverhältnisses und der dadurch größeren zu durchstrahlenden Materialmenge wird eine erhöhte Belichtungszeit für die Seitenansicht der Monopolarplatte benötigt. Es wird der höchstmögliche Belichtungszeitmultiplikationsfaktor von 20 gewählt. Des Weiteren bestimmen die Maße der Monopolarplatte den minimalen Abstand von Röntgenquelle und Röntgendetektor zur Rotationsachse in der Mitte der Monopolarplatte. Bei der Auswertung der Tomographie-Daten ist zu berücksichtigen, dass es aufgrund der Größe der Monopolarplatte und der einseitigen Einspannung am unteren Ende der Probe zu einer minimalen Neigung in Richtung der senkrechten Ebene kommt.

Für die Rekonstruktion des Tomogramms aus den 2D-Bildern wird die zu dem CT der Firma Zeiss gehörige Rekonstruktionssoftware XMReconstructor genutzt. Die Auswertung der 3D-Tomogramme erfolgt mit der Software Dragon Fly Pro von Object Research System (ORS) Inc. Die 3D-Tomogrammdaten werden in Graustufenbildern dargestellt. Dabei wird jedem Pixel ein Grauwert zugeordnet. Je heller ein Pixel dargestellt wird, desto stärker ist die Absorption der Röntgenstrahlung durch das Material an diesem Punkt. Auf Basis der Graustufenbilder wird die untersuchte Probe segmentiert und einzelne Grauwertbereiche einem Material zugeordnet. An dieser Stelle sei erwähnt, dass die Segmentierung eine ungenaue Vorgehensweise und subjektive Zuordnung ist. Des Weiteren kann die Segmentierung durch Artefakte aus der Röntgenmessung beeinflusst werden. Für die Monopolarplatten zeigt sich dies im Besonderen im Bereich der Stege, die heller dargestellt werden als der Rest der Platte, obwohl in der gesamten Platte das gleiche Material vorliegt (vgl. Abbildung 3.18a). Abbildung 3.18 zeigt einen Ausschnitt einer Schnittansicht durch das Tomogramm eines Monopolarplattenteilstückes mit künstlichen Holzpartikeln. Die Grauwerte werden markiert und in blau dargestellt. Mit der Software DragonFly Pro kann um die segmentierten Körper ein Oberflächennetz generiert werden. Dieses Oberflächennetz kann exportiert, in einen CAD-Datensatz umgewandelt und in ein Simulationsmodell integriert werden. Mit den in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Simulationsmodell kann ein originalgetreues Monopolarplattenteilstück mit der inneren Struktur simuliert werden.

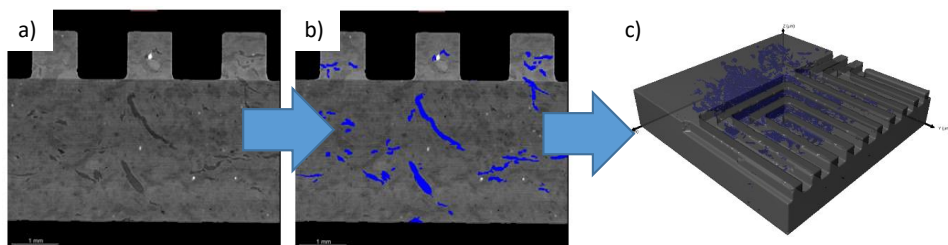


Abbildung 3.18: a) Schnitt durch ein Tomogramm b) Schnitt durch ein Tomogramm mit markierten Holzpartikeln c) Modell erstellt aus CT-Daten, adaptiert nach [103]

## 4 Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse unter Anwendung der in Kapitel 3 vorgestellten und entwickelten Messmethoden vorgestellt. Die Röntgentomographie eignet sich dabei als Vergleichsmessmethode für die Potentialfeldanalyse, wie Abbildungen von Beispielmängeln und ein Vergleich zu REM-Aufnahmen von Bipolarplattenmaterialproben zeigen. Darauffolgend werden zunächst die Messergebnisse der Potentialfeldmessung an einem Testmaterialstreifen vorgestellt und mit Ergebnissen aus der Simulation des Teststreifens verglichen. Dabei wird auf die Wiederholbarkeit der Messergebnisse und auf Schwierigkeiten bei der Messung des elektrischen Potentialfeldes in realen, nicht idealisierten Bipolarplattenmaterialien eingegangen. Schlussfolgernd wird auf die Erfolgsaussicht, mit dieser Messmethode Mängel in den Monopolarplatten zu detektieren, eingegangen. Die Vorstellung der Ergebnisse der Potentialfeldmessungen an Monopolarplatten mit künstlichen Mängeln überträgt die Ergebnisse der Teststreifen auf die komplexen Strukturen einer Bipolarplatte. Die Potentialfeldmessungen der Monopolarplatten werden zur Validierung mit Aufnahmen aus der Röntgentomographie und mit Simulationen verglichen. Aus diesen Vergleichen leitet sich eine Genauigkeit der Messmethode der elektrischen Potentialfeldverteilung ab. Abschließend wird mit den Ergebnissen der ohmschen Widerstandsmessungen und Brennstoffzellentest bewertet, inwiefern mit der vorgestellten Methode der Potentialfeldmessung die relevanten Mängel in den Monopolarplatten detektiert werden können. Des Weiteren lässt sich mit diesen Experimenten der Einfluss der detektierten Mängel auf die Brennstoffzellenleistung bewerten.

### 4.1 Röntgentomographie von Bipolarplatten

#### 4.1.1 Detektierte Beispielmängel

Wie von Simaafrookhteh et al. [63] beschrieben, können bei der Herstellung von Verbundwerkstoffen für Bipolarplatten unterschiedliche Mängel, wie z.B. Delamination oder eingeschlossene Gase, auftreten. Mit der Röntgentomographie können auch Mängelerscheinungen, die nicht direkt an der Oberfläche erkennbar sind, sichtbar gemacht werden. Die Schnittbilder von Röntgentomographieuntersuchungen in Abbildung 4.1 zeigen Beispiele von in dieser Arbeit detektierten Mängeln in unterschiedlichen Bipolarplattenmaterialproben. In Abbildung 4.1a und Abbildung 4.1b sind spritzgegossene Materialproben dargestellt. Diese werden von dem Zentrum für BrennstoffzellenTechnik GmbH (ZBT) zur Verfügung gestellt. Bei Material A handelt es sich um einen spritzgegossenen Verbundstoff mit 82 Gew.-% Graphit und einem Polymer mit der Bezeichnung

Polyamid 6 als Bindermaterial. Material B ist ein Verbundstoff aus 30 Gew.-% Graphit mit einer Polymermatrix aus Polyamid 6. Bei Material C handelt es sich um formgepresste Probe des in Kapitel 3.1 vorgestellten Materials PPG86 der Firma Eisenhuth GmbH. Die drei Materialproben zeigen unterschiedliche Mängelerscheinungen, wie sie in Graphit-Komposit-Bipolarplatten auftreten können. Ein direkter Vergleich der Aufnahmen in Abbildung 4.1 ist schwierig, da aufgrund von unterschiedlichen Probengrößen, Materialien und Nachbearbeitungen der Aufnahmen die Grauwerte in den Abbildungen schwanken. Die Umrisse der Materialproben sind deutlich an den helleren Grautönen im Vergleich zu der umgebenden Luft zu erkennen. In allen Materialproben sind Fremdpartikel als weiße Punkte sichtbar. Diese Fremdpartikel bestehen aus Materialien, welche die Röntgenstrahlung stärker absorbieren als das Graphit oder das Bindermaterial des Verbundwerkstoffes. Material A zeigt einen großen Riss in der Mitte der Probe. Der Riss wird dunkler dargestellt, da er weniger Röntgenstrahlen als die umgebenden auf Kohlenstoff basierten Materialien absorbiert.

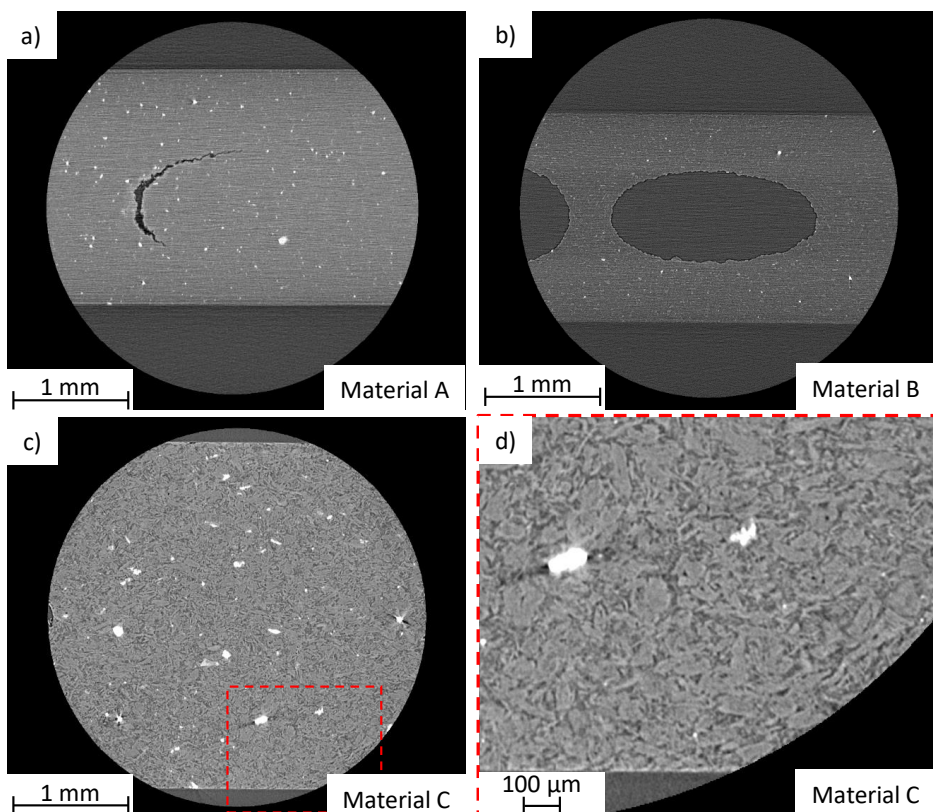


Abbildung 4.1: Röntgentomographie von verschiedenen Bipolarplattenmaterialien, adaptiert nach [103]

Material B zeigt einen Schnitt durch eine Luftblase im Inneren der Bipolarplattenprobe. Die Luftblase besitzt einen Durchmesser von mehr als 1 mm. Dies entspricht mehr als einem Drittel der Dicke des Bipolarplattenmaterials. Material C besteht aus größeren Graphitpartikeln, die bereits bei einer Abbildung der Bipolarplattenmaterialprobe über die gesamte Dicke sichtbar gemacht werden können. In Abbildung 4.1d ist zudem ein vergrößerter Ausschnitt aus Material C dargestellt. Die Graphitpartikel werden in einem helleren Grauton, als die sie umgebende Polymermatrix abgebildet. Teilweise absorbieren die in weiß dargestellten Fremdpartikel die Röntgenstrahlung so stark im Vergleich zum Rest der Materialprobe, sodass es zur Artefaktbildung um die Fremdpartikel kommt. Die Messartefakte werden durch schwarze Strahlen an den Fremdpartikeln sichtbar. Auffällig ist die Anzahl an Fremdpartikeln, welche die Berührungspunkte und Verbindungen zwischen den Graphitpartikeln stören. Dies reduziert die Anzahl der möglichen Leitfähigkeitspfade in dem Material und führt zu einem erhöhten elektrischen Widerstand.

Eine EDX-Analyse der verschiedenen Proben zeigt, dass es sich bei den Fremdpartikeln hauptsächlich um Aluminiumsilikate und Calciumsilikate handelt. Dies legt die Vermutung nahe, dass die Partikel mit den Rohstoffen in den Herstellungsprozess gelangen. In einigen Materialproben konnten auch Fremdpartikel mit einem hohen Eisenanteil beobachtet werden. Insgesamt zeigen die Darstellungen der Tomographieaufnahmen, dass die Bipolarplattenmaterialien nicht ideal sind und auch größere Mängel, wie Risse oder Luftblasen, auftreten können.

Der Absorptionskoeffizient von Röntgenstrahlen ist proportional zur Dichte des durchstrahlten Materials und zur vierten Potenz der Ordnungszahl der Elemente des Materials (vgl. Gleichung 2.11). Die vom Detektor aufgenommenen Intensitätswerte der Röntgenstrahlung werden in Graustufenwerte umgewandelt. Dies kann zur Unterscheidung von Materialien innerhalb der Bipolarplattenmaterialprobe verwendet werden. Graphit besteht ausschließlich aus Kohlenstoffatomen und das in Bipolarplatten verwendete Polymerbindemittel besteht ebenfalls zu einem großen Teil aus Kohlenstoffatomen. Dies erschwert eine Unterscheidung der beiden Materialien anhand des Absorptionskoeffizienten. Bei den untersuchten Bipolarplattenmaterialproben werden unterschiedliche Polymerbindemittel, wie beispielsweise Polypropylen (PP), Polyvinylidenfluorid (PVDF) oder Polyphenylsulfid (PPS) verwendet. Der Unterschied in der Dichte von PPS-Bindermaterialien mit  $1,34 - 1,36 \text{ g/cm}^3$  [137, 138] und Graphit mit  $2,26 \text{ g/cm}^3$  [139] reicht aus, um einen leichten Unterschied im Graustufenbild eines Tomogramms zu sehen und den Bereichen des Tomogramms die entsprechenden Materialien zuzuweisen. Abbildung 4.2 zeigt einen Ausschnitt aus einem Graustufenbild einer Probe mit einer bekannten Materialzusammensetzung. Als Kontrast zu den Komponenten der Bipolarplatte für das Röntgentomographiebild und zur Darstellung der Fremdpartikel bei der Materialsegmentierung ist die Probe zusätzlich mit 10 Vol.-%

Magnesiumoxidpartikeln versehen. Anhand von Graustufen-Schwellwerten wird die Probe in Bereiche segmentiert, die den Materialien Graphitpartikel, Polymer-Bindermaterial, Fremdpartikel und Hohlräume zugeordnet sind. Die Schwellenwerte werden durch den Vergleich der Graustufenwerte verschiedener Partikel an unterschiedlichen Stellen im Tomogramm festgelegt. Die Graustufenwerte in der dargestellten Tomographieaufnahme reichen von einem Minimum von 1563 bis zu einem Maximum von 65314, wobei schwarz den niedrigen Werten zugeordnet wird und weiß den hohen Werten. Den Hohlräumen bzw. den Luftblasen wird ein Graustufenbereich vom Minimum 1563 bis zu einem Wert von 4500 zugeordnet, da sie die Röntgenstrahlen am wenigsten absorbieren. Das in grün markierte Polymermaterial absorbiert etwas weniger Röntgenstrahlen als die in rot markierten Graphitpartikel, daher werden diese Materialien durch die Graustufenwerte von 4501 bis 8000 beziehungsweise 8001 bis 11.000 abgebildet. Die in blau dargestellten Fremdpartikel absorbieren die Röntgenstrahlen am besten, was zu ihrer Zuordnung zu den Graustufenwerten von 11.001 bis zum Maximum von 65.314 führt.

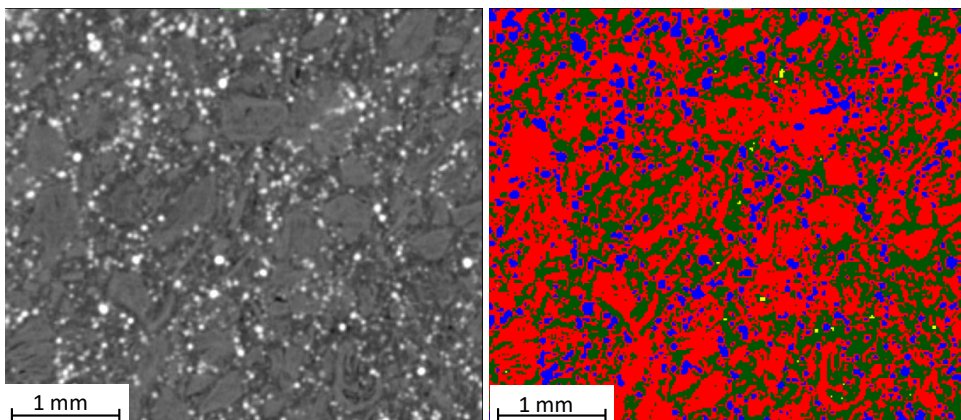


Abbildung 4.2: Materialsegmentierung der Graphitpartikel (rot), Polymerbinder (grün), Magnesiumoxidpartikel (blau) und Fehlstellen (gelb) basierend auf deren Graustufenwerten. Adaptiert nach [103].

Tabelle 4.1 listet die zugeordneten Graustufenbereiche der Komponenten auf und zeigt den Vergleich zwischen den Volumenanteilen der Materialzusammensetzung nach Herstellerangaben und der Materialzusammensetzung basierend auf der Graustufeninterpretation. Durch eine subjektive Einstellung der Schwellenwerte zur Segmentierung und der Analyse eines Ausschnitts der Probe weichen die Anteile der CT-basierten Interpretation etwas von der ursprünglichen Materialzusammensetzung der gesamten Probe ab. Die Segmentierung der Bipolarplattenmaterialien eignet sich lediglich um Tendenzen und grobe Zusammenhänge abzubilden, da sie stark von einer subjektiven Bewertung abhängig ist. Dennoch kann die Methode auf Bipolarplattenmaterialien angewendet werden, um die Anteile von Graphitpartikeln und Polymerbindematerial lokal näherungsweise zu bestimmen.



Tabelle 4.1: Zuordnung der Volumenanteile, adaptiert nach [103]

Segment	Graustufenwerte	Volumenanteile	
		Computertomographie in %	Herstellerangaben in %
<b>Fehlstellen</b>	1563 (min) – 4501	0,1	0,0
<b>Polymerbinder</b>	4501 – 8000	32,7	30,0
<b>Graphit</b>	8001 – 11000	57,7	60,0
<b>Magnesiumoxid (Fremdpartikel)</b>	11000 – 65314 (max)	9,5	10,0

#### 4.1.2 Vergleich zwischen Röntgentomographie und Rasterelektronenmikroskopie

Bei starker Vergrößerung, mit einer Voxelgröße von 2 µm bis 3 µm, können die Graphitpartikel, der Polymerbinder und die Fremdpartikel mit Hilfe der Röntgencomputertomographie sichtbar gemacht werden. Die Graphitpartikel haben eine höhere Dichte als das umgebende Polymerbindematerial und werden von der Auswertesoftware in helleren Graustufen dargestellt. Des Weiteren sind die Fremdpartikel bei starker Vergrößerung deutlich zu erkennen. In Abbildung 4.3 ist der Vergleich zwischen einer Aufnahme eines Rasterelektronenmikroskops und einer 2D-Schnittansicht eines Röntgentomogramms dargestellt. Hinsichtlich des Informationsgehaltes sind die beiden Aufnahmen miteinander vergleichbar. Das REM kann jedoch eine vergleichsweise deutlich höhere Auflösung erreichen als der verwendete Computertomograph und als in Abbildung 4.3 dargestellt.

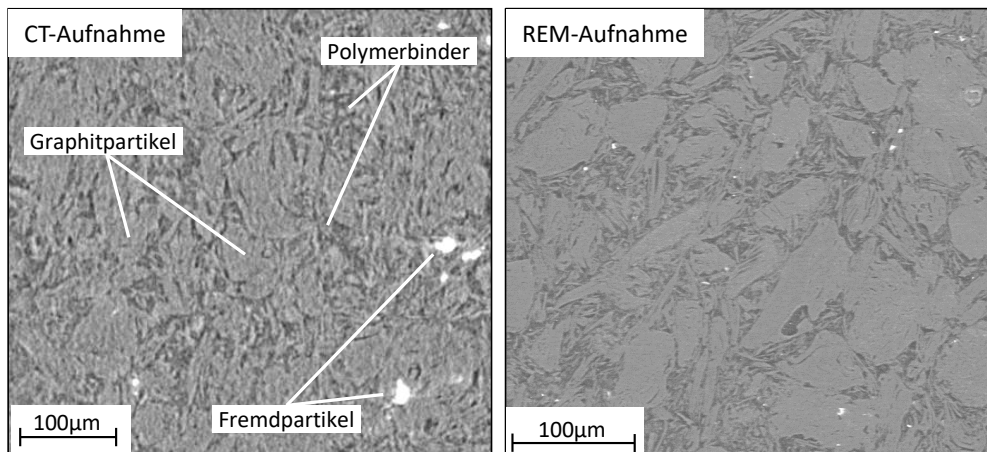


Abbildung 4.3: Vergleich Computertomographieaufnahme (links) und Rasterelektronenmikroskopie (rechts), adaptiert nach [103]

Ein Vorteil der Röntgentomographie ist die kurze Präparationszeit im Vergleich zur teilweise aufwendigen Präparation für die REM-Bildgebung. Für eine Röntgenuntersuchung muss die Probe

nicht zerstört werden und kann anschließend für ihren ursprünglichen Zweck verwendet werden. Abhängig von der Größe und dem Material des untersuchten Objekts können die Scans der graphitischen Bipolarplatten bis zu einigen Stunden dauern. In vergleichbarer Zeit, unter Berücksichtigung der Vorbereitungszeit für die Rasterelektronenmikroskopie, steht ein durch das Röntgentomogramm erzeugter 3D-Datensatz im Vergleich zu einem 2D-Datensatz eines REM zur Verfügung. Des Weiteren zeigt das REM-Bild, wie auch Baumann et al. [117] herausstellen, nur den Querschnitt eines bestimmten Schnitts durch die Probe und viele Defekte, wie Brüche oder Luftporenschlüsse, bleiben in einer REM-Aufnahme unerkannt. Abbildung 4.4 zeigt auf der linken Seite einen weiteren 2D-Schnitt aus dem Tomogramm des spritzgegossenen Bipolarplattenmaterials A aus Abbildung 4.1. Die Materialprobe hat eine Breite von 3 mm. In diesem 2D-Schnitt sind drei durch die Ebene verlaufende Risse mit einer Länge von bis zu 1 mm und einer Breite von einigen Mikrometern sichtbar. In Anbetracht der Form, Position und Orientierung der Risse ist davon auszugehen, dass diese Risse durch den Spritzgussprozess der Probe entstanden sind. REM-Aufnahmen derselben Probe bekräftigen diese Annahme. Für die Aufnahme der REM-Bilder muss die Probe in der Mitte durchgebrochen werden. Abbildung 4.4 zeigt auf der rechten Seite eine REM-Aufnahme einer gebrochenen Materialprobe mit Blick auf die Bruchkante. In dieser Aufnahme ist die Orientierung der Graphitpartikel im Kernbereich der spritzgegossenen BPP-Materialien zu erkennen. Der Riss im Röntgentomogramm folgt der Orientierung des Graphits im Kernbereich des BPP-Materials und kann als Delamination der Graphitschichten interpretiert werden. Während das REM-Bild die Orientierung der einzelnen Graphitstrukturen zeigt, können die Risse nur in dem Röntgentomogramm sichtbar gemacht werden, da der Riss entlang der inneren Strukturen entsteht. In dem Röntgentomogramm hingegen ist nur der Riss und nicht die innere Struktur erkennbar.

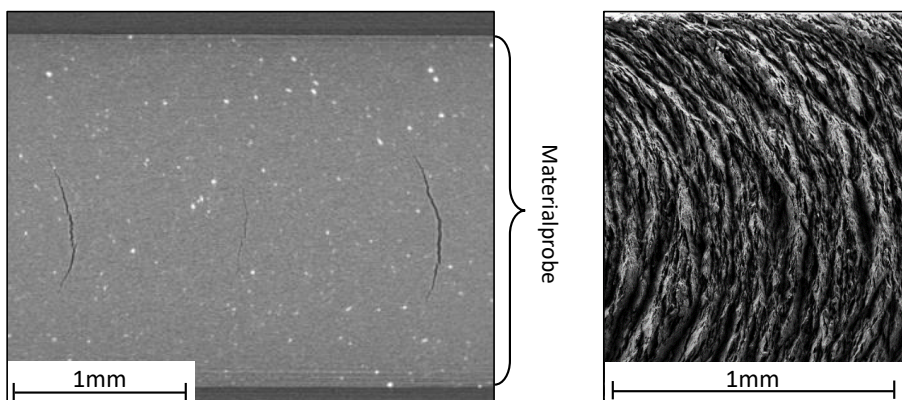


Abbildung 4.4: Vergleich Risse in Röntgentomographie (links) mit REM-Aufnahmen (rechts)

#### 4.1.3 Tomographie des gesamten Strömungsverteilerfeldes

Mit den in Kapitel 3.6 genannten Einstellungen ist es mit dem Röntgencomputertomographen nicht nur möglich kleine Ausschnitte aus einer Bipolarplatte zu untersuchen, sondern auch das gesamte Strömungsverteilerfeld mit einer Ausbreitung von ca. 17,64 cm<sup>2</sup> in einer Aufnahme abzubilden. In Abbildung 4.5 ist die Aufnahme einer Referenzmonopolarplatte mit zunehmender Transparenz dargestellt. An den Abbildungen der transparenten Monopolarplatte ist zu erkennen, dass auch in einer idealen Referenzplatte ohne zusätzlich eingebrachte Fremdkörper einige Fremdpartikel enthalten sind. Diese Fremdpartikel sind zufällig über die gesamte Fläche des Strömungsverteilerfeldes verteilt. Bei der Auswertung der Tomogramme sind die Messartefakte am oberen und unteren Rand der Aufnahme zu berücksichtigen, die aufgrund der kegelförmigen Ausbreitung des Röntgenstrahls in dem Tomographen entstehen. Durch die Messartefakte erscheint dieser Bereich dunkler.

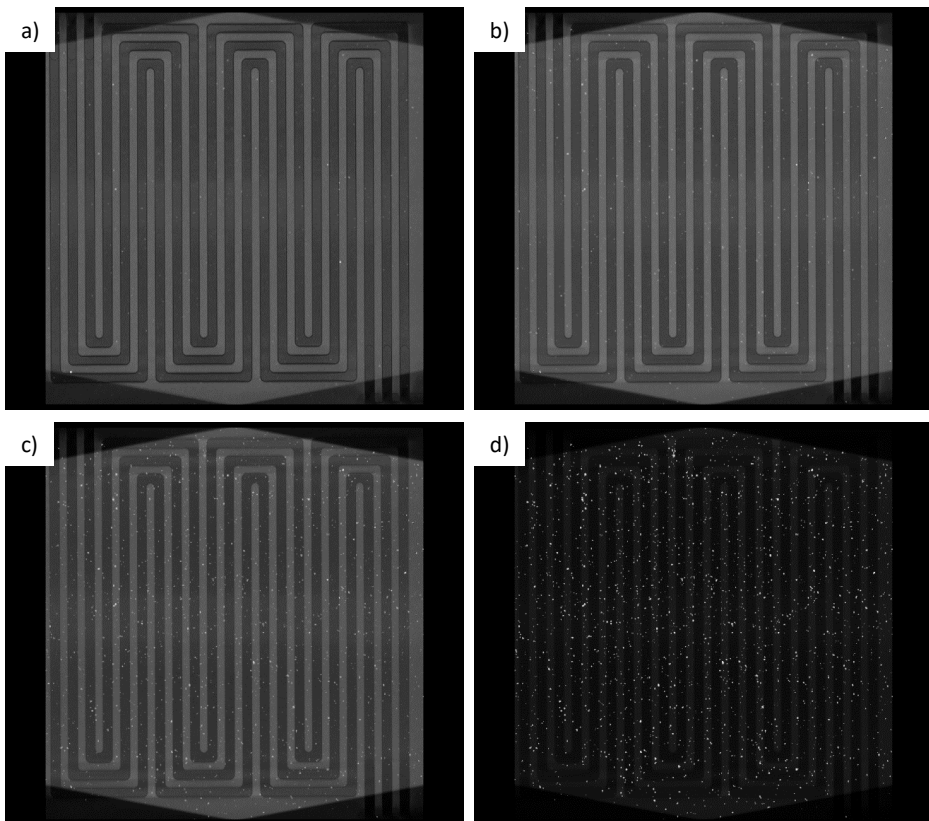


Abbildung 4.5: Tomogramm des gesamten Strömungsfeldes A) 0% Transparenz, B) ca. 50% Transparenz, C) ca. 75% Transparenz, D) ca. 95% Transparenz

Neben den extrem langen Laufzeiten der Röntgentomographie für die Bipolarplattenmaterialien ist die Auswertung der Röntgentomogramme sehr zeitintensiv bzw. abhängig von der auswertenden Person

und nur schwer automatisierbar. Das Auffinden der in Abbildung 4.1 gezeigten Mängel geschieht an zufälligen Stichprobenmessungen und bei hoher Auflösung kann mit der Röntgentomographie nur ein kleiner Teilausschnitt der Bipolarplatte untersucht werden. Eine systematische Untersuchung der gesamten Bipolarplatte mit hoher Auflösung ist zeitlich nicht realisierbar und die Aufnahme des gesamten Strömungsfelds benötigt ebenfalls mehrere Stunden. Daher eignet sich die Röntgentomographie nicht für die Qualitätskontrolle in industriellem Maßstab, sondern nur als begleitendes Instrument für Stichprobenuntersuchungen. Gleichzeitig liefern die Röntgentomographiebilder keine Aussage über den Einfluss der detektierten Mängel auf die Eigenschaften der Bipolarplattenmaterialien. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Messungen mit dem in dieser Arbeit entwickelten Potentialfeldmessgerätes als mögliche Alternative für die Detektion von Mängeln in Bipolarplatten vorgestellt.

## 4.2 Defekterkennung in einem Materialteststreifen und Bestimmung von Einflussgrößen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse zu den Potentialfeldmessungen an dem Teststreifen aus PPS-Material vorgestellt, mit Werten aus der Simulation verglichen, die generelle Eignung des Messprinzips zur Defekterkennung in Bipolarplattenmaterialien analysiert und Einflussgrößen auf die Messergebnisse untersucht.

### 4.2.1 Potentialdifferenzverläufe entlang des Teststreifens und Reproduzierbarkeit der Messergebnisse

Zur Darstellung der Ergebnisse der Potentialfeldmessungen mit dem entwickelten Teststand an dem PPS-Teststreifen wird in Abbildung 4.6 die Potentialdifferenz zwischen den Messspitzen P1 und P3, die Potentialdifferenz zwischen P2 und P4 sowie die Differenz der beiden Potentialdifferenzen abgebildet. Die Positionen der Durchgangsbohrungen in dem Teststreifen bei 22 mm, 47 mm und 71 mm (vgl. Abbildung 3.9) sind durch rote Kreise auf der X-Achse gekennzeichnet. An den Positionen der Bohrungen ist ein klarer Peak in den Kurven der Potentiale erkennbar. Die Ergebnisse sind auf die Position des stromführenden Kontaktstiftpaares, welcher sich zwischen den Messspitzenpaaren befindet, bezogen. Der Peak für die Potentialdifferenz zwischen P1 und P3 befindet sich daher leicht rechts der Markierung der Durchgangsbohrungen und der Peak für die Potentialdifferenz P2 - P4 befindet sich leicht links der Markierung. Die Differenz zwischen den Potentialdifferenzen zeigt durch den Nulldurchgang die exakten Positionen der Bohrungen an.

Die Erkenntnisse aus der Modellentwicklung können dahingehend bestätigt werden, als dass die Durchgangsbohrungen erkannt werden und das Messprinzip prinzipiell zur Erkennung von Defekten in Bipolarplattenmaterialien geeignet ist. In der Abbildung 4.6 zeigt sich ein stark schwankender Verlauf für die Ergebnisse der Potentialmessung. Dieser Effekt kann durch die Bildung eines leitfähigen Netzwerkes in Abhängigkeit von leitfähigen Partikeln im Inneren der Bipolarplattenmaterialprobe erklärt werden. Das Netzwerk unterliegt Schwankungen und ist nicht überall gleich ausgeprägt. Insgesamt handelt es sich bei der untersuchten Probe um ein technisches Material, in dem es durchaus zufällige Mängel geben könnte, und nicht um ein ideales, homogenes Material, wie in den Simulationen der Modellentwicklung angenommen.

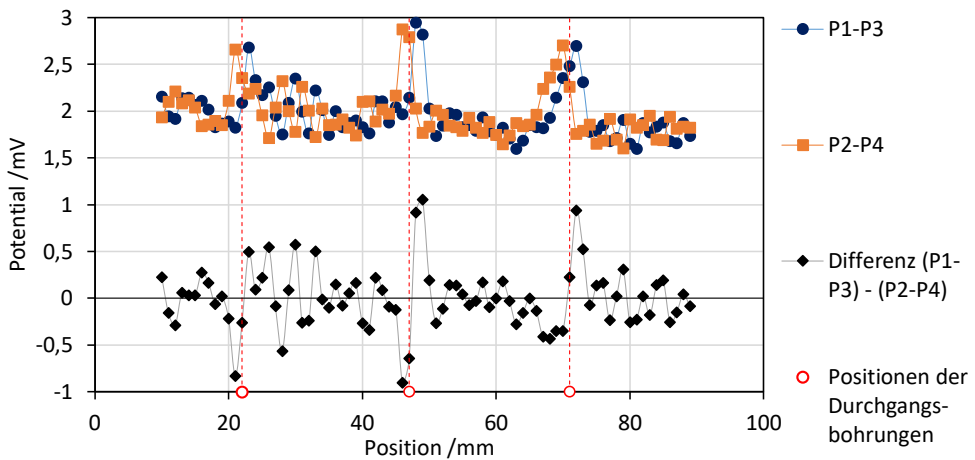


Abbildung 4.6: Vergleich der Potentialdifferenzen P1-P3 und P2-P4 und Bildung der Differenz der beiden Potentialdifferenzen. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte

Der stark schwankende Verlauf der Potentialkurven entlang der Probe erschwert die Auswertung der Potentialfeldmessungen bezüglich Interpretation von Mängeln in den Proben. Kleinere Mängel, wie die Durchgangsbohrung mit einem Durchmesser von 1 mm an der Position 22 mm, sind somit in den Bipolarplattenmaterialien schwerer zu detektieren. Ein Vergleich zwischen der Probe ohne Durchgangslöcher mit der Probe mit Durchgangslöchern zeigt, dass auch bei diesem Vergleich ein leichtes Rauschen in einem Bereich von 0,2 bis 0,4 mV (vgl. Abbildung 4.7) vorliegt. Die Peaks für die Durchgangslöcher in der blauen Kurve sind klar erkennbar. Darüber hinaus fallen zwei weitere Peaks an Position 30 mm auf. Für eine bessere Übersicht ist in Abbildung 4.7 nur der Verlauf der Potentialdifferenz zwischen P1 und P3 für die Materialprobe mit und ohne Durchgangsbohrungen sowie deren Differenz abgebildet.

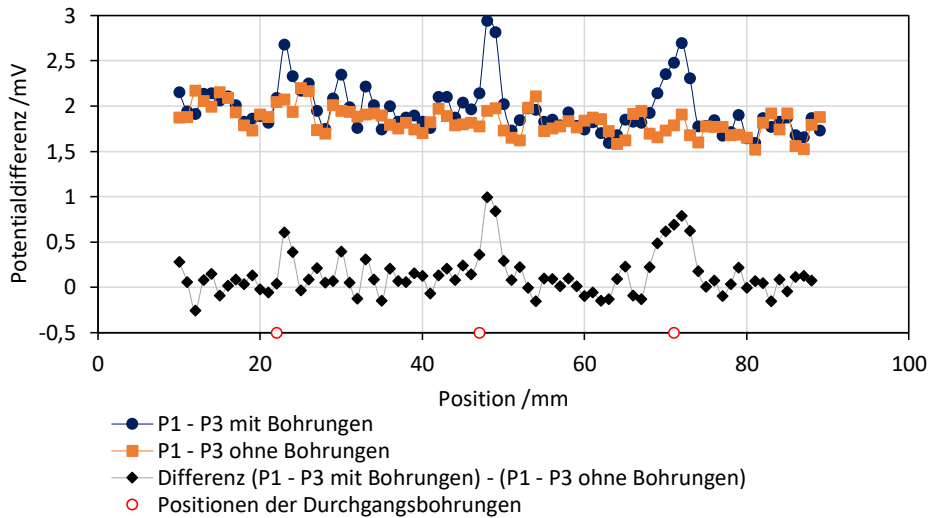


Abbildung 4.7: Vergleich der Potentialdifferenzen P1-P3 für die Probe ohne Bohrungen (orange) und die Probe mit Bohrungen (blau). Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte.

Das Messrauschen bei den Vergleichen der Potentialkurven für die unbehandelte Materialprobe und die Probe mit Durchgangsbohrungen wirft die Frage nach der Wiederholbarkeit der Potentialfeldmessungen und nach der Eignung des Messverfahrens auf. Durch wiederholte Messungen sowie einer Variation der Messspitzen des Prüfkopfes soll die Wiederholbarkeit der Messungen gezeigt werden. In Abbildung 4.8 sind diese Messungen für die Potentialdifferenz P1 - P3 zusammengefasst. Wird die Probe automatisiert dreimal nacheinander abgefahren, zeigen sich nur minimalste Abweichungen zwischen den Messwerten, wie die Potential-Kurven in Abbildung 4.8a zeigen. Die Messelektronik ist für diesen Versuch also hinreichend genau. Für die weiteren Wiederholungsmessungen werden jeweils die Mittelwerte aus drei automatisiert nacheinander gemessenen Potentialkurven verglichen. Für eine bessere Übersichtlichkeit in den Diagrammen wird auf die Darstellung der Abweichung bei der Mittelwertbildung der einzelnen Potentialkurven im weiteren Verlauf verzichtet. Die mittlere Reihe an Messspitzen auf dem Prüfkopf misst die Messwerte der Referenzmessung. Für die Variation der Messspitzen wird der Prüfkopf verschoben, sodass die Reihen links und rechts der mittleren Linie die Materialprobe kontaktieren. Die Messspitzenreihe, bestehend aus den Messspitzen mit den Nummern 1, 6, 11, 16 und 21, wird als Reihe „links außen“ bezeichnet und die weiteren Messspitzenreihen analog „links Mitte“, „Mitte“, „rechts Mitte“ und „rechts außen“ benannt. Der Vergleich der Potentialdifferenz P1 - P3 in Abbildung 4.8b zeigt leichte Abweichungen bei einigen Potentialwerten. Der Verlauf der Potentialkurven von allen Kurven ist jedoch vergleichbar. Die maximale Standardabweichung bei einem Vergleich der einzelnen Mittelwerte an den Positionen beträgt 0,058 mV. Den unterschiedlichen Messspitzenkontakten kann

somit ein leichter Einfluss auf das Messergebnis zugesprochen werden, jedoch ist dieser vernachlässigbar klein.

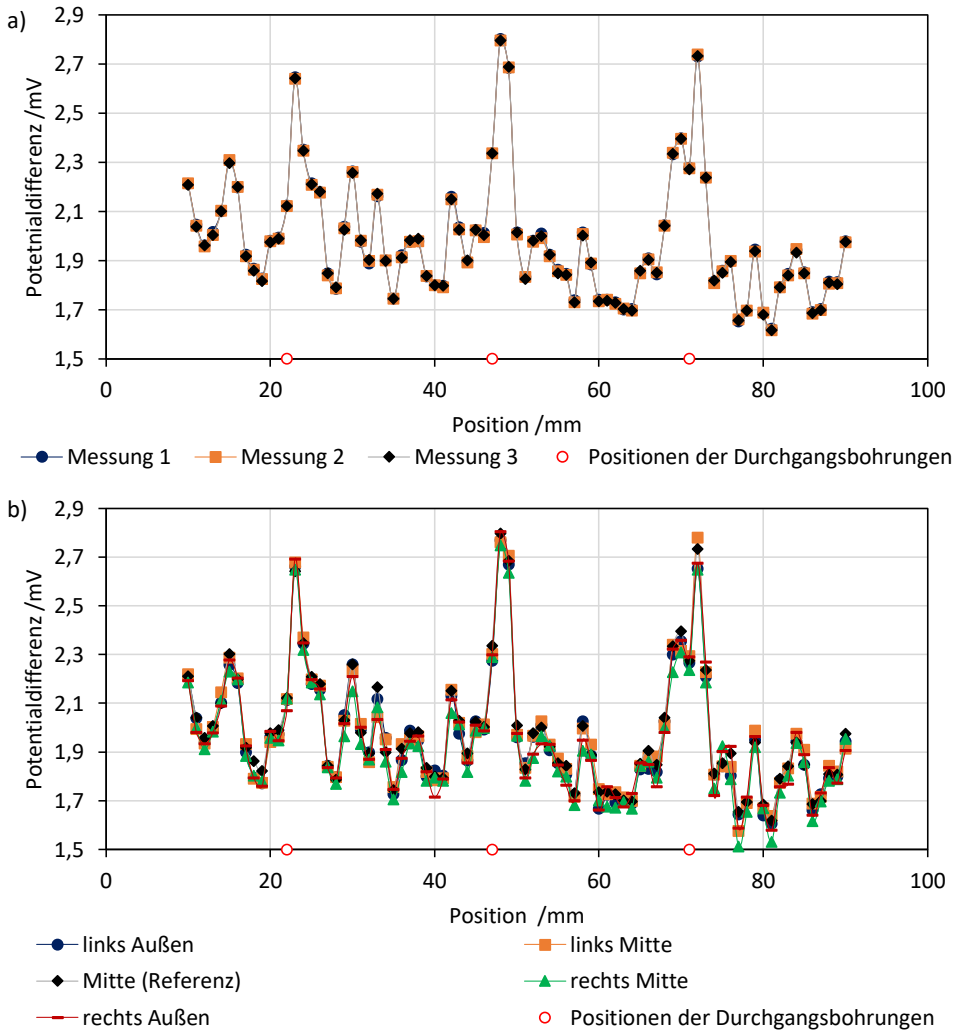


Abbildung 4.8: Reproduzierbarkeit der Messergebnisse, dargestellt für die Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte. a) Messreihe automatisiert wiederholt mit der mittleren Messspitzenreihe, b) Messreihe wiederholt mit unterschiedlichen Messspitzenreihen

Die Messungen an dem PPS-Teststreifen zeigen, dass mit der Analyse der Potentialdifferenzen eines sich ausbreitenden Potentialfeldes Defekte in Bipolarplattenmaterialien detektiert und lokalisiert werden können. Die generellen Tendenzen aus dem Simulationsmodell aus Kapitel 3.2.1 können bestätigt werden. Die gute Wiederholbarkeit der Messungen zeigt, dass das Messverfahren eine verlässliche Methode ist, um Defekte in graphitischen Bipolarplattenmaterialien zu untersuchen. Das

Messsignal und einzelne Ausprägungen des Signals unterliegen jedoch einem starken Messrauschen aufgrund verschiedener Einflussgrößen, die im Folgenden untersucht werden.

#### 4.2.2 Einfluss der Positionierung des Prüfkopfes

Neben den unterschiedlichen Messspitzen besteht die Möglichkeit, dass eine leicht verschobene Positionierung der Messspitzenreihen einen Einfluss auf die gemessenen Potentialdifferenzkurven besitzt und so die leicht abweichenden Daten in Abbildung 4.8 zu erklären sind. Daher wird eine systematische Untersuchung bezüglich der Verschiebung des Prüfkopfes in Längs- und Querrichtung durchgeführt. Mit dieser Untersuchung wird versucht die Frage zu beantworten, inwiefern die Messmethode von dem ausgebildeten leitfähigen Netzwerk in dem Bipolarplattenmaterial und im Besonderen den offenen Enden des Netzwerks an der Bipolarplattenoberfläche abhängig ist. Wie in Kapitel 2.3 vorgestellt fließt der elektrische Strom in graphitischen Bipolarplatten entlang leitfähiger Graphitpartikel. Auch die oberste Schicht des untersuchten Bipolarplattenmaterials besteht aus leitfähigen und mit dem Netzwerk verbundenen Partikeln und einer nichtleitenden Polymermatrix. Für die Messmethode stellt sich nun die Frage, ob die Kontaktfläche zwischen Messspitze und Materialprobe hinreichend groß ist, damit das leitfähige Netzwerk immer kontaktiert wird oder ob eine Verschiebung um wenige Mikrometer und die Kontaktierung anderer Partikel an der Oberfläche einen gravierenden Einfluss auf das Messergebnis hat. Für die Untersuchung der Längsverschiebung wird die Probe um 10  $\mu\text{m}$ , 50  $\mu\text{m}$ , 100  $\mu\text{m}$  und 500  $\mu\text{m}$  verschoben. In Abbildung 4.9 sind die Mittelwerte von drei Potentialverläufen für die Verschiebungen zwischen den Positionen 45 mm und 65 mm für die die Potentialdifferenz P1 - P3 dargestellt. Aufgrund des Bezugs der Auswerteposition auf die stromführenden Messspitzen liegt der Peak der Potentialdifferenzkurve für die Durchgangsbohrung auch in der Darstellung des Ausschnittes der Potentialkurven nicht exakt über der Markierung der Durchgangsbohrung. Die Potentialdifferenzen über die gesamte Länge sind im Anhang A2 abgebildet. Der Potentialdifferenzverlauf für eine 10  $\mu\text{m}$  Verschiebung liegt fast exakt über dem Verlauf der Referenzmessung. Eine Erklärung für die geringen Abweichungen an den 20 dargestellten Positionen zwischen den beiden Potentialdifferenzverläufen wäre, dass es gelingt überall das leitfähige Netzwerk zu kontaktieren.



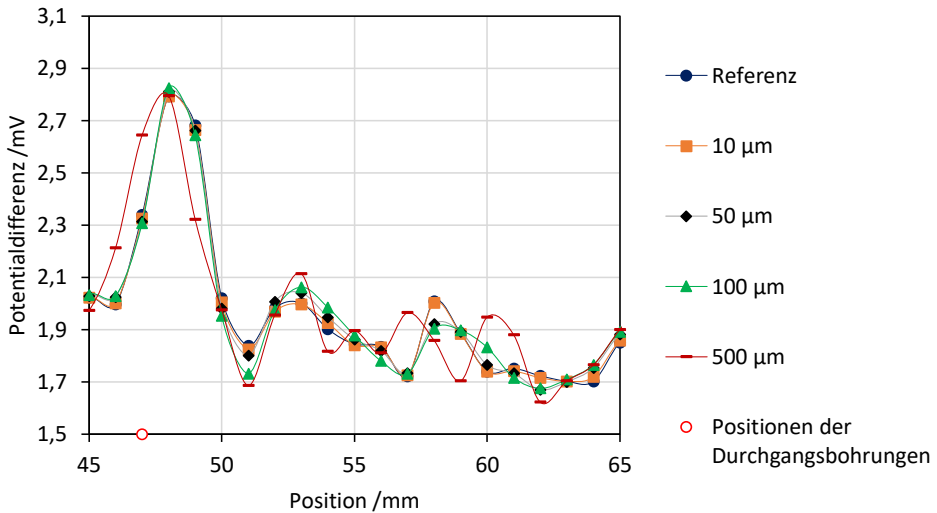


Abbildung 4.9: Verschiebung des Prüfkopfes entlang des Teststreifens, Darstellung eines Ausschnittes aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve für Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte.

Die Potentialdifferenzverläufe mit Verschiebungen um 50 µm und 100 µm zeigen größere Abweichungen von der Referenzkurve, sind sich gegenseitig aber sehr ähnlich. Dies deutet daraufhin, dass sich das elektrisch leitende Netzwerk und der elektrische Widerstand im Allgemeinen in Längsrichtung der Probe im Vergleich zur originalen Position verändern. Die Kurven zeigen jedoch einen mit der originalen Potentialdifferenzkurve vergleichbaren Verlauf, sodass bei einer Auswertung der gesamten Materialprobe eine Verschiebung um 100 µm zu den gleichen Ergebnissen führt. Der Verlauf bei Verschiebung um 500 µm zeigt bereits eine so starke Abweichung von der originalen Potentialdifferenzkurve, dass die Interpretation der gesamten Materialprobe beeinträchtigt werden kann. Die Positionierung der Materialprobe ist somit für die Wiederholbarkeit der Messungen von Bedeutung.

Für die Verschiebung des Prüfkopfes in Querrichtung zur Materialprobe zeigt sich ein ähnlicher Effekt. Die Kurven bei verschobenen Prüfköpfen weisen tendenziell höhere Potentialdifferenzen auf als die Referenzkurve ohne Verschiebung, da die Reihe der Messspitzen näher an den Rand der Probe verschoben ist (vgl. Abbildung 4.10). Da die Durchgangsbohrungen in Richtung dieser Verschiebung ausgerichtet sind, zeigt sich hier keine Veränderung bei dem Peak für die Durchgangsbohrungen. Die Darstellung der Potentialdifferenzverläufe über die gesamte Probe sind in Anhang A3 abgebildet.

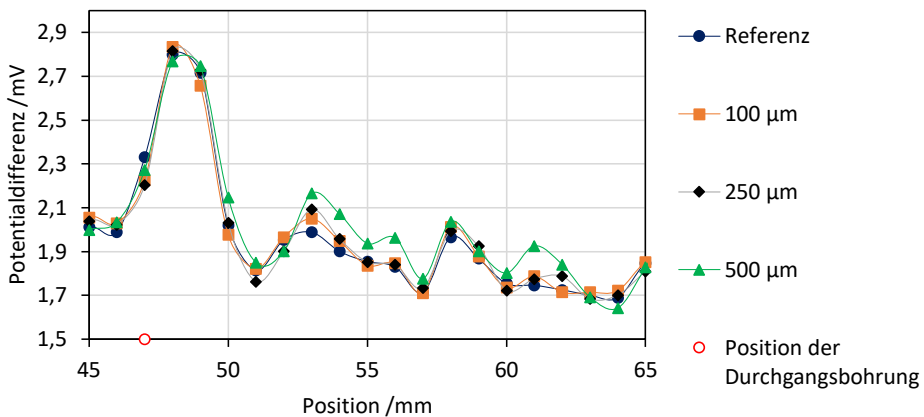


Abbildung 4.10: Verschiebung des Prüfkopfes quer zum Teststreifen, Darstellung eines Ausschnittes aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve für P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte.

Die Verschiebungen des Prüfkopfes zeigen, dass es keine Probleme bei der Kontaktierung des leitfähigen Netzwerkes des Bipolarplattenmaterials gibt. Die Ergebnisse deuten jedoch auch daraufhin, dass sich das leitfähige Netzwerk über die Probe verändert und dadurch Einfluss auf das Messsignal und die Detektion von Defekten nimmt. Im nächsten Kapitel wird das Material selbst daher näher untersucht.

#### 4.2.3 Röntgentomographie des Teststreifens

Auffallend an den in diesem Kapitel gezeigten Potentialverläufen entlang der Probe sind die starken Schwankungen in dem Messsignal, die allen Potentialkurven gemein sind. Eine mögliche Erklärung für diese Schwankungen ist die Inhomogenität des Bipolarplattenmaterials. Röntgentomographie-Aufnahmen des PPS-Materialstreifens zeigen eine Vielzahl an kleinen Fehlstellen und Fremdpartikeln in dem Material. Abbildung 4.11 zeigt die Röntgentomographieaufnahme einer Hälfte des PPS-Materialstreifens. Die Darstellung besteht aus mehreren Röntgentomographieaufnahmen, die mit dem Auswerteprogramm DragonFly Pro zu einem Tomogramm zusammengesetzt werden. Die einzelnen Röntgentomographieaufnahmen werden mit den Einstellungen für die in Kapitel 3.6 beschriebene Detailaufnahme erstellt. In Abbildung 4.11 ist eine dreidimensionale Übersicht der Probe mit farbig markierten Auswertungsebenen dargestellt. In der Übersicht sind bereits die über die gesamte Probe verteilten Fremdpartikel erkennbar. Diese Fremdpartikel können unterschiedliche Größen haben, wie der Querschnitt auf der blau markierten Ebene in Abbildung 4.11 zeigt. Die Querschnitte bilden nur die Informationen der Pixel auf der Schnittebene ab und besitzen keine Tiefenschärfe. Das große Fremdpartikel in diesem Querschnitt besitzt eine Höhe von ca. 0,42 mm, was

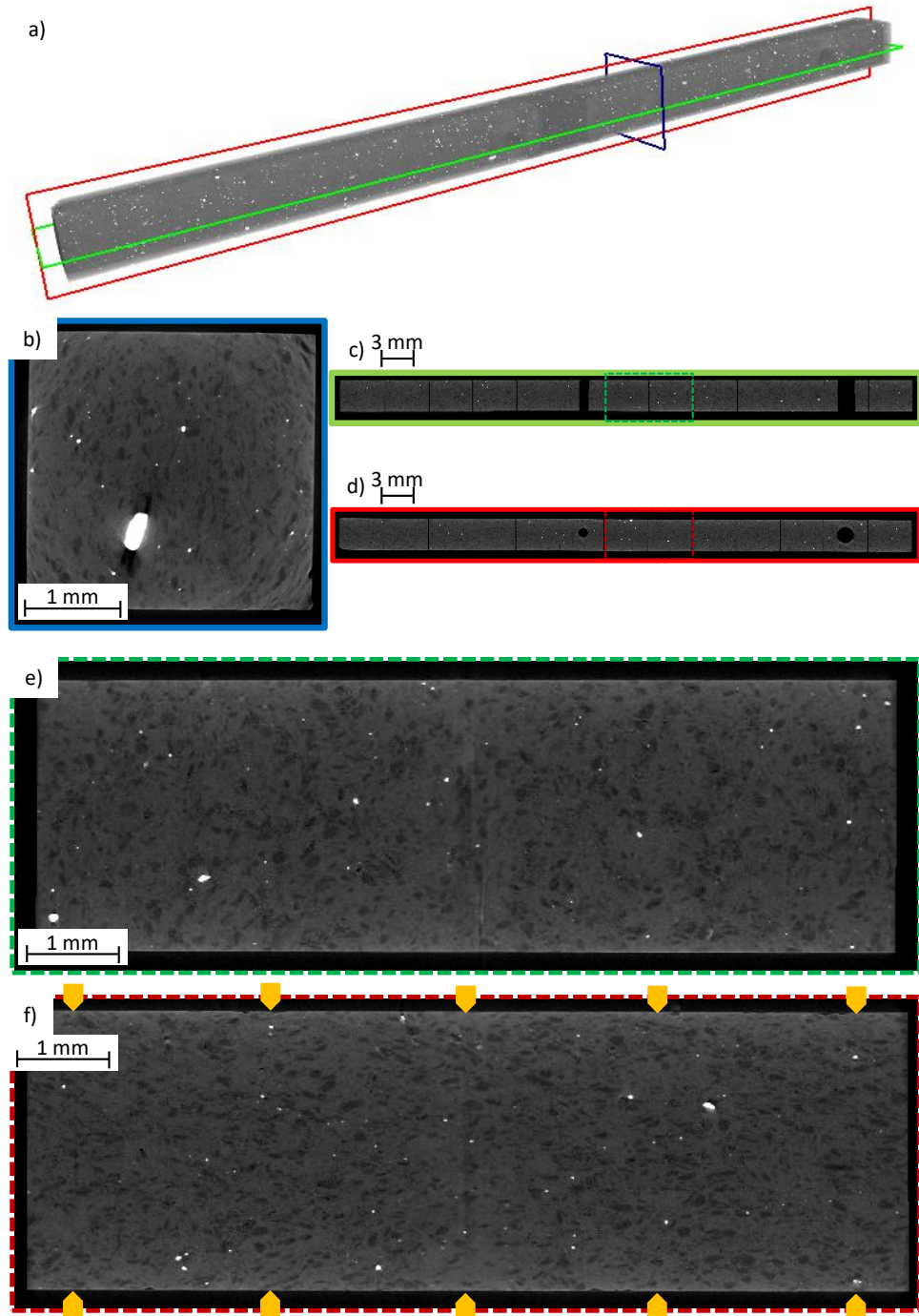


Abbildung 4.11: CT-Aufnahmen einer Hälfte des PPS-Materialstreifens a) Übersichtsbild mit Konturen für die Querschnittsebenen, b) Querschnitt auf der XY-Ebene, c) Querschnitt XZ-Ebene, d) Querschnitt YZ-Ebene, e) Detail aus der XZ-Querschnittsebene, f) Detail aus der YZ-Querschnittsebene mit schematisch eingezeichneten Positionierung der Messspitzen für einen Prüfkopf mit 2 mm Raster

ca. 14,1 % der Probenhöhe von 3 mm entspricht. Längsschnitte entlang der Probe sind in Abbildung 4.11c und Abbildung 4.11d dargestellt. Die Längsschnitte führen durch die in der Mitte der Probe platzierten Durchgangsbohrungen. Bei der Zusammensetzung mehrerer Tomographiedatensätze kann es zur Bildung von Artefakten kommen. In den dargestellten Längsschnitten werden die Artefakte als dünne schwarze senkrechte Linien sichtbar, an denen zwei Tomographiedatensätze aneinandergrenzen. Abbildung 4.11e und f zeigen Detailansichten der durch gestrichelte Linien eingerahmten Stellen in den Längsquerschnittsebenen. Zur besseren Vergleichbarkeit der Dimensionen der inneren Struktur des Bipolarplattenmaterials mit den Dimensionen des Teststandes und der Abstände der Messspitzen zur Potentialfeldmessung sind die Messspitzen des 2mm Raster Prüfkopfes schematisch in Abbildung 4.11f eingezeichnet.

Die detaillierteren Darstellungen in Abbildung 4.11e und f sowie der Querschnitt in Abbildung 4.11b offenbaren eine Vielzahl an dunkleren Stellen. Durch die geringere Röntgenstrahlenabsorption des PPS-Materials im Vergleich zu Graphit können die dunkleren Stellen einer Ansammlung des Bindermaterials zugeordnet werden (vgl. Kapitel 4.1.1). Die Ansammlungen des Bindermaterials unterbrechen das leitfähige Netzwerk der Graphitpartikel des Bipolarplattenmaterials. Die ungeordnete Verteilung der Bindermaterialansammlungen führt zu den Schwankungen in dem Messsignal bei der Potentialfeldmessung. Ein Messrauschen ist somit nicht vermeidbar und ist bei der Interpretation des Messsignals zu berücksichtigen. Das Messsignal kann jedoch durch weitere Parameter des Teststandes beeinflusst werden, wie die folgenden Kapitel zeigen.

#### 4.2.4 Einfluss des Abstandes zwischen den Messspitzen und der Abrasterungsschrittweite

Durch die Wahl des Prüfkopfes kann der Abstand zwischen stromleitender Kontaktspitze und Messspitze variiert werden. Der Prüfkopf mit dem 1 mm Raster ermöglicht durch die zusätzlichen Positionen der Messspitzen eine detailliertere Vermessung des sich ausbreitenden elektrischen Potentialfeldes in der Bipolarplattenprobe. Bei einem Abstand von 1 mm zwischen der stromleitenden Kontaktspitze und der Messspitze kann im Vergleich zu einem Abstand von 2 mm zwischen stromleitender Kontaktspitze und Messspitze ein deutlich höheres Spannungsniveau gemessen werden. Gleichzeitig nimmt jedoch auch das Rauschen des Messsignals zu. Die Durchgangsbohrungen sind bei einem Abstand von 1 mm zwischen Stromkontakt und Messspitze insgesamt schwerer zu detektieren und deren exakte Position schwerer zu bestimmen, wie die beiden Potentialkurven für die Potentialdifferenzen P1 - P3 und P2 - P4 sowie deren Differenz in Abbildung 4.12 zeigen.

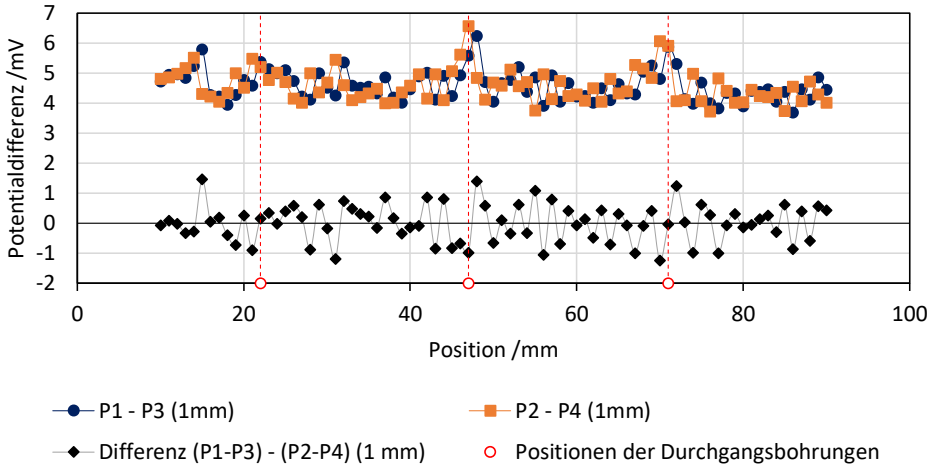


Abbildung 4.12: Potentialdifferenzen bei einem Abstand der Messspitzen zum stromleitenden Kontaktstift von 1 mm. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte.

Im Gegensatz zu einem Abstand von 1 mm zwischen Kontaktspitze und Messspitze ist das gemessene Spannungsniveau bei einem Abstand von 4 mm deutlich niedriger. Das Spannungsniveau bei den 4 mm Abständen liegt bei einer Stromeinspeisung von 0,1 A im Bereich ohne Durchgangsbohrungen bei ca. 0,5 mV (siehe Abbildung 4.13) und somit eine Größenordnung niedriger als bei einem 1 mm-Abstand. Gleichzeitig verringert sich auch das Rauschen des Messsignals, sodass die Durchgangsbohrungen in den Verläufen für die Potentialdifferenzen P1 - P3 und P2 - P4 durch klare Peaks erkennbar sind. Die Differenz der beiden Potentialdifferenzkurven zeigt ebenfalls einen klar erkennbaren Nulldurchgang an den Positionen der Durchgangsbohrungen.

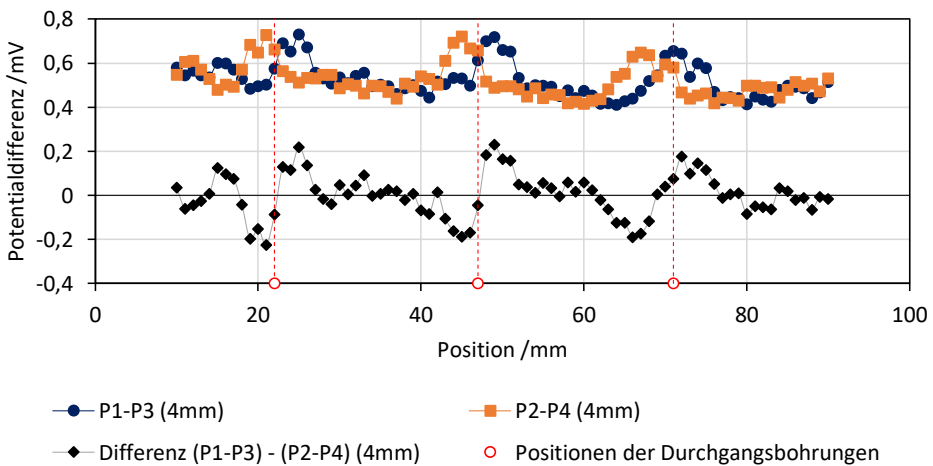


Abbildung 4.13: Potentialdifferenzen bei einem Abstand der Messspitzen zum stromleitenden Kontaktstift von 4 mm. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte.

Die unterschiedlichen Spannungsniveaus lassen sich durch ein schwächer werdendes Potentialfeld bei wachsendem Abstand zum stromführenden Kontaktstift erklären und in einer Simulation des Teststreifens abbilden. Für die Simulation des Teststreifens werden für das PPS-Material ein spezifischer in-plane Widerstand von  $0,0095 \Omega\text{cm}$  und ein spezifischer through-plane Widerstand von  $0,025 \Omega\text{cm}$  vorgegeben. Die Ergebnisse des simulierten Potentialfeldes werden für die Potentialdifferenz P1 - P3 im Abstand von 1 mm, 2 mm und 4 mm zum Stromeinleitungspunkt analog zu den Messungen ausgewertet. Mit den verwendeten Materialparametern kann die Ausbreitung des Potentialfeldes in der Bipolarplattenprobe mit dem Simulationsmodell gut vorherbestimmt werden. Ein Vergleich der Messung und Simulation in Abbildung 4.14 zeigt, dass für die genannten Abstände zwischen den Messspitzen das Spannungsniveau simuliert werden kann.

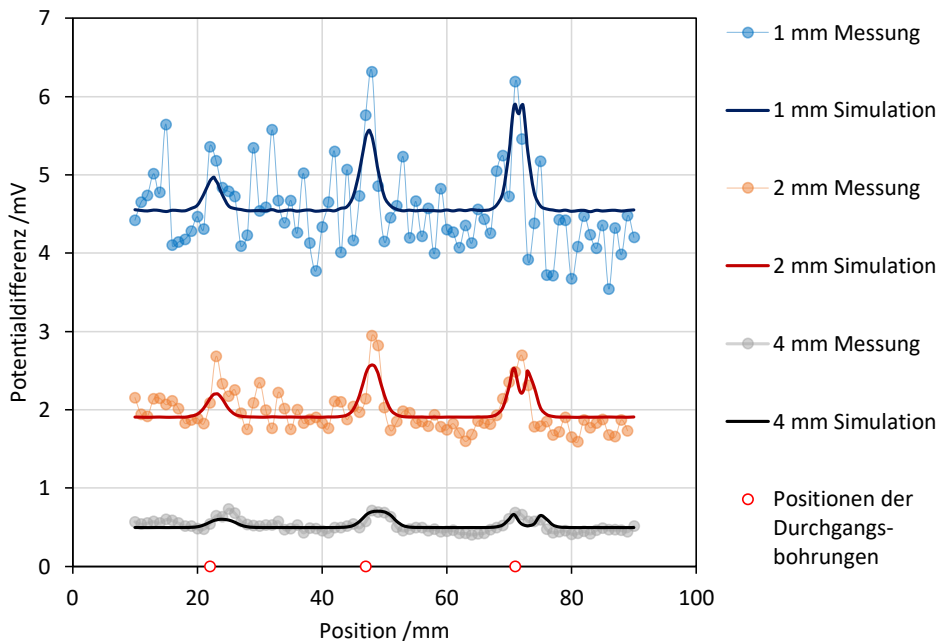


Abbildung 4.14: Vergleich von Simulation und Messung für unterschiedliche Abstände zwischen stromführenden Spitzen und Messspitzen für die Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte.

Die Peaks für die Durchgangsbohrungen in der Simulation unterschätzen die tatsächlich gemessenen Werte. Des Weiteren ist bei der Simulation der in Richtung Rand verschobenen Durchgangsbohrung an der Position 71 mm auffällig, dass sich zwei Peaks ausbilden. Diese beiden Peaks sind in den Messergebnissen nicht zu erkennen. Die Annahme, dass die zum Rand verschobene Durchgangsbohrung das Potentialfeld stärker beeinflusst und durch einen stärkeren Ausschlag als die in der Mitte liegenden Durchgangsbohrungen charakterisiert werden kann, bestätigt sich nicht.

Eine Serie von simulierten Potentialfeldern in Abbildung 4.15 zeigt von links nach rechts den ersten Peak, das lokale Minimum und den zweiten Peak an der Durchgangsbohrung bei 71 mm. Für eine bessere Übersichtlichkeit sind die Positionen der Potentiale nur in der linken Abbildung dargestellt. Durch die Durchgangsbohrung bildet sich ein komplexes Potentialfeld in dem Bipolarplattenmaterial. An der Position des lokalen Minimums wird auch das Potentialfeld in der unteren Hälfte des Teststreifens stark beeinflusst, sodass die ermittelte Potentialdifferenz P1 - P3 niedriger ist als an den Vergleichspositionen.

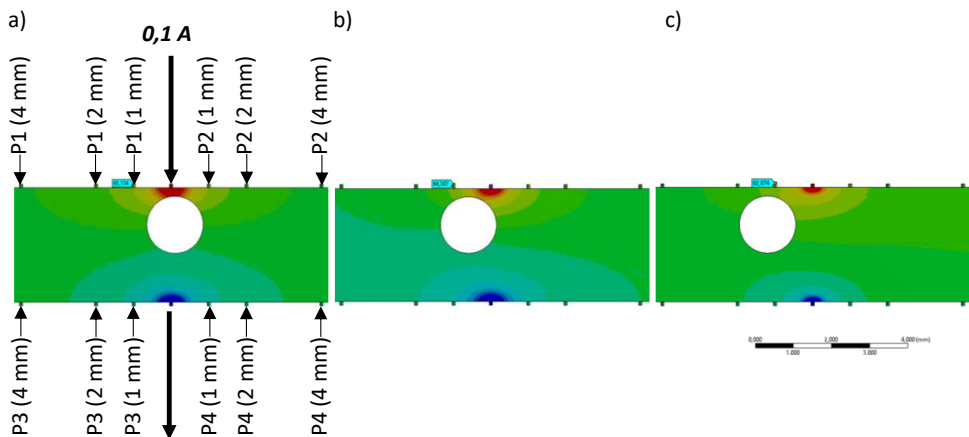


Abbildung 4.15: Serie von Potentialfeldern a) Position erster Peak, b) Position lokales Minimum, c) Position zweiter Peak

Der experimentelle Nachweis des lokalen Minimums der Potentialdifferenz P1 – P3 kann über eine Abrasterung der Materialprobe in feineren Schritten und einer besseren Auflösung der Ergebnisse um die Durchgangsbohrung bei Position 71 mm erreicht werden. Für die Parameterstudie wird die Abrasterungsschrittweite des 2 mm-Raster-Prüfkopfes von 2 mm bis 0,1 mm variiert. Die Potentialdifferenzen P1 - P3 der Parameterstudie sind in Abbildung 4.16 für den Bereich um die Durchgangsbohrung bei Position 71 mm dargestellt, die Ergebnisse der gesamten Probe sind im Anhang A4 abgebildet. Die Messpunkte bei einer Abrasterungsschrittweite von 2 mm sind so grob verteilt, dass der Peak an der Durchgangsbohrung als einzelner Peak gemessen wird. Bei einer Abrasterungsschrittweite von 1 mm und der detaillierten Darstellung um die Position 71 mm ist eine Andeutung des ersten Peaks erkennbar. Die Abrasterungsschrittweiten 0,5 mm und 0,1 mm zeigen einen ausgeprägten ersten und zweiten Peak. Im Gegensatz zur Simulation mit zwei gleich hohen Peaks fällt der erste Peak in der Messung etwas kleiner aus. Dies lässt sich dadurch erklären, dass in der Simulation ein idealisiertes Modell des Bipolarplattenmaterials simuliert wird und die exakte innere Struktur des Bipolarplattenmaterials unberücksichtigt bleibt.

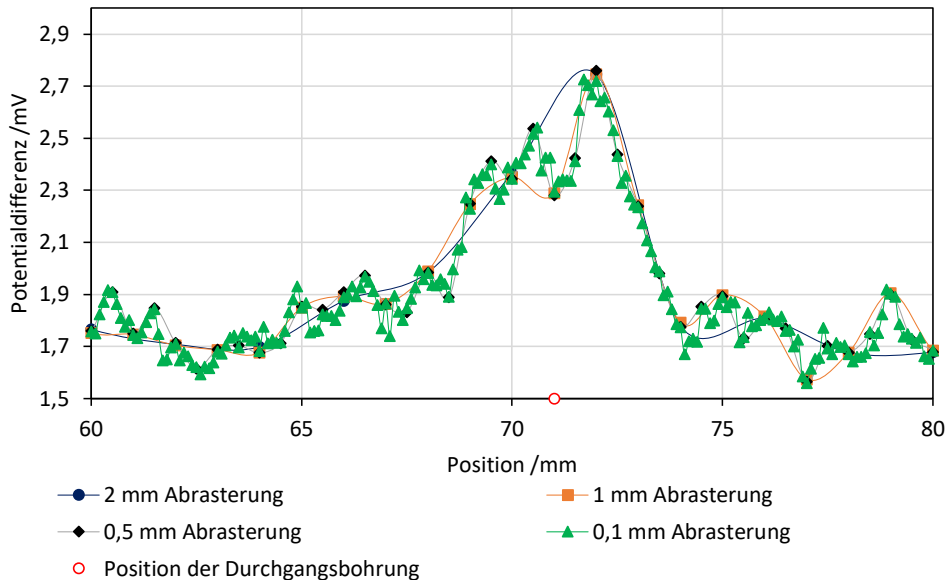


Abbildung 4.16: Potentialdifferenz P1-P3 in Abhängigkeit der Abrasterungsschrittweite. Darstellung eines Ausschnitts aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte.

Die Simulationen und die Messungen der Potentialdifferenz P1 – P3 stimmen gut überein. Dies gilt sowohl für den generellen Verlauf der Potentialdifferenzkurven als auch für Details, die mit einer feineren Abrasterung der Probe aufgenommen werden können. Die Potentialfeldausbreitung in dem Bipolarplattenmaterial und der Einfluss von Defekten kann berechnet und das Simulationsmodell validiert werden. Durch eine Variation der Messspitzenabstände kann Einfluss auf die Höhe der Potentialdifferenz und das Messrauschen genommen werden. Im Folgenden wird weiterhin der mittlere Messspitzenabstand von 2 mm verwendet, da in dessen Verlauf die eingebrachten Defekte in der Probe gut erkannt werden können. Die Möglichkeit mit weiteren Messspitzenanordnungen Einfluss auf das Messsignal zu nehmen werden im nächsten Kapitel untersucht.

#### 4.2.5 Unterschiedliche Messspitzenkombinationen

Die Bildung und Interpretation von komplexen Potentialfeldern zur Defekterkennung kann durch die Verwendung von unterschiedlichen Messspitzenkombinationen weiter ausgenutzt werden. Eine Auswahl an Kombinationen ist durch die Simulationen an einem Referenzstück des Teststreifens in Abbildung 4.17 abgebildet. Der Stromfluss durch die Probe ist durch die ausgefüllten Pfeile und die im Folgenden ausgewertete Potentialdifferenz ist durch die ausgehöhlten Pfeile markiert. Für die Auswertung werden die Potentialdifferenzen ausgewählt, welche die höchste messbare



Potentialdifferenz in dem jeweiligen Beispiel bilden. Das Potentialfeld ist für alle Messspitzenkombinationen auf die Legende der Abbildung normiert. Die Bilder der Simulation zeigen die komplexe Ausbreitung des Potentialfeldes. Für die simulierten Werte der Potentialdifferenzen ergibt sich für Messspitzenkombination a) aus Abbildung 4.17, der direkt gegenüberliegenden Strom- und Messspitzen, eine Potentialdifferenz von 1,952 mV bei einem angelegten Strom von 0,1 A. Diese Messspitzenkombination entspricht den Werten für die Potentialdifferenz P1 - P3 bei einem Abstand von 2 mm zur stromführenden Messspitze. Bei der Messspitzenkombination b) sind die stromführenden Messspitzen um 2 mm verschoben. Bei einem äußeren Spannungsabgriff ergibt sich eine Potentialdifferenz von 3,535 mV. Die Messspitzenkombination c) hat um 8 mm verschobene stromführende Messspitzen. Der innenliegende Spannungsabgriff ergibt eine Potentialdifferenz von 5,464 mV zwischen den Potentialmesspunkten.

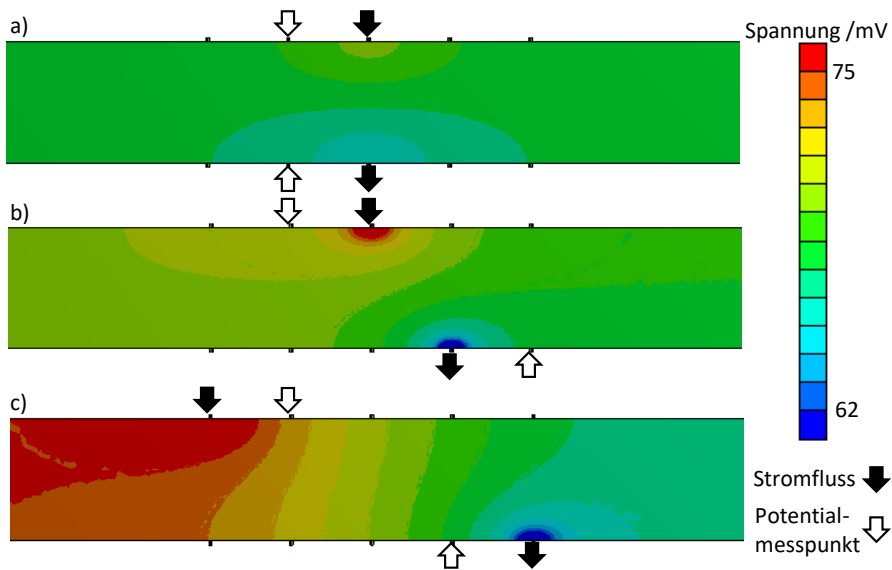


Abbildung 4.17: Potentialfeldverteilung für unterschiedliche Messspitzenkombinationen

Nach einer Übertragung der unterschiedlichen Messspitzenkombinationen auf die gesamte PPS-Materialprobe ergeben sich die in Abbildung 4.18 dargestellten Verläufe für die Potentialdifferenzen. Der Vergleich der Messergebnisse mit den simulierten Spannungsniveaus einer idealen Probe für die jeweiligen Messspitzenkombinationen zeigt eine gute Übereinstimmung. Die Durchgangsbohrungen mit 1,5 mm Durchmesser sind in allen Potentialverläufen durch Peaks an den entsprechenden Positionen erkennbar. Bei der Messspitzenkombination c) ragt der Peak an der Position 71 mm mit einem Unterschied von ungefähr 2 mV aus dem Verlauf des Potentials entlang der Probe heraus und damit höher als bei den anderen Messspitzenkombinationen. Die Durchgangsbohrung von 1 mm ist in diesem Potentialverlauf nicht eindeutig einem einzelnen Peak zuzuordnen.

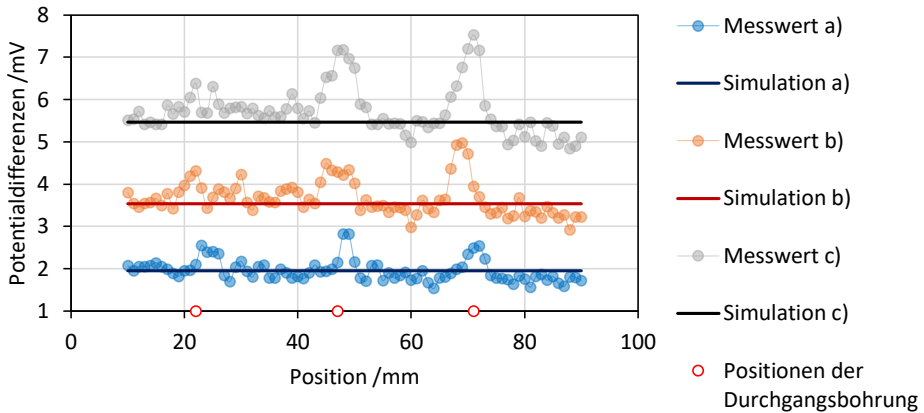


Abbildung 4.18: Messspitzenkombinationen an der gesamten PPS-Materialprobe im Vergleich zum simulierten Spannungsniveau. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf das mittlere Kontaktstiftpaar.

In Messspitzenkombination b) ist die Durchgangsbohrung von 1 mm ebenfalls keinem Peak eindeutig zuzuordnen. Insgesamt besitzt die Messspitzenkombination b) ein mittleres Spannungsniveau im Vergleich zu Messspitzenkombinationen a) und c). In Bezug auf das simulierte Spannungsniveau einer defektfreien Probe zeigt sich für alle gezeigten Messspitzenkombinationen ein ähnliches Abweichungsbild (vgl. Abbildung 4.19). Die Messwerte an den Durchgangsbohrungen weichen für alle Messspitzenkombinationen zwischen 30 % und über 40 % im Vergleich zu dem simulierten Spannungsniveau einer Probe ohne Defekte ab. Relativ gesehen liefern die Messspitzenkombinationen b) und c) somit keine weiteren Erkenntnisse zu den Erkenntnissen aus Messspitzenkombination a). Für diese Arbeit wird zur Bestimmung des elektrischen Potentialfeldes in Bipolarplattenmaterialien weiterhin die Messspitzenkombination a) mit senkrechter Stromführung durch die Probe verwendet.

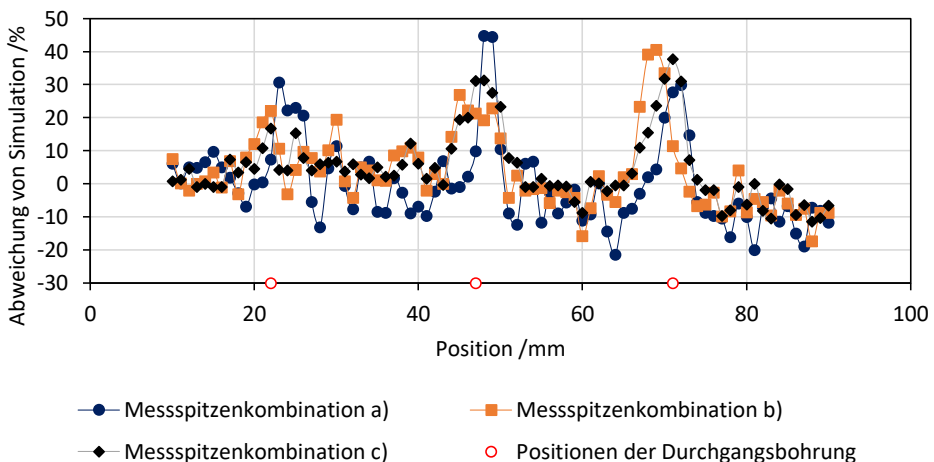


Abbildung 4.19: Prozentuale Abweichung der Messung vom simulierten Referenzwert. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf das mittlere Kontaktstiftpaar.

Des Weiteren ist die Messspitzenkombination a) gegenüber einer Verschiebung des oberen und unteren Prüfkopfes robuster. Durch die manuelle Installation der Prüfköpfe an dem Teststand können Verschiebungen von wenigen Zehntelmillimetern entstehen. Abbildung 4.20 zeigt rechts schematisch eingezeichnet die Verschiebung des unteren Prüfkopfes im Vergleich zum oberen Prüfkopf. Eine positive Verschiebung bedeutet in diesem Sinne, dass die stromführenden Messspitzen aus Messspitzenkombination c) weiter voneinander entfernt werden. Umgekehrt verringert sich bei Verschiebung in negativer Richtung der Abstand zwischen den äußeren stromführenden Messspitzen. Die Ergebnisse einer Simulation der Potentialdifferenzen dieser beiden Verschiebungsfälle für die Messspitzenkombinationen a) und c) ist in dem Diagramm in Abbildung 4.20 dargestellt. Während die Verschiebung um wenige Zehntelmillimeter keinen erkennbaren Einfluss auf die Messspitzenkombination a) hat, zeigt sich für die Messspitzenkombination c) ein eindeutiger linearer Verlauf. Je geringer der Abstand zwischen den stromführenden Messspitzen ist, desto höher ist die zwischen den Messpunkten gemessene Spannung. Bei einer Annäherung der äußeren Messspitzen um 0,5 mm erhöht sich die gemessene Spannung für die Messspitzenkombination c) um ca. 9,3 % im Vergleich zu einer idealen Positionierung. Für die Verschiebung um 0,5 mm in umgekehrter Richtung ergibt sich eine um ca. 8,4 % niedrigere Spannung im Vergleich zu einer idealen Positionierung.

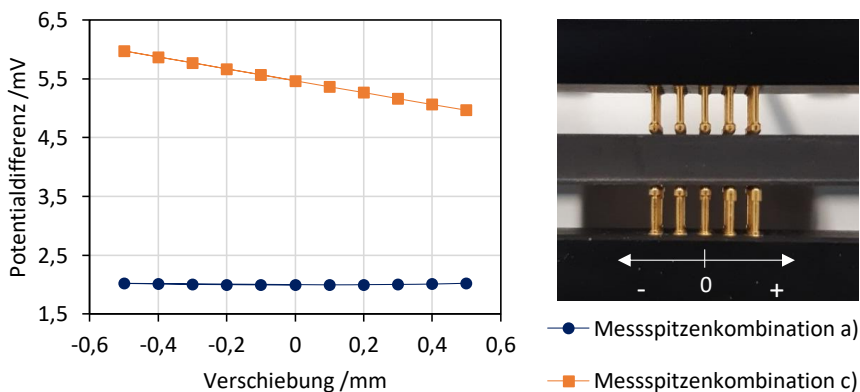


Abbildung 4.20: Auswirkung der Verschiebung der Prüfköpfe gegeneinander für die Messspitzenkombination a) und c)

Für die Anwendung von unterschiedlichen Messspitzenkombinationen ist neben der Stromführung auch die Positionierung der Prüfköpfe gegeneinander bedeutend für die Potentialdifferenzmessung. Bei diagonaler Stromführung durch die Probe können höhere Potentialdifferenzen gemessen werden. Diese Messspitzenkombinationen besitzen hinsichtlich der Interpretation von Mängeln in der Probe jedoch keinen Vorteil gegenüber einer senkrechten Stromführung durch die Probe, sodass weiterhin diese Stromführung angewendet wird. Die Messung bei diagonaler Stromführung ist dazu anfälliger für systematische Messfehler, wie bei einer Verschiebung der Prüfköpfe.

#### 4.2.6 Materialeigenschaftsänderung in Teststreifen und in einer blanken Bipolarplatte

Neben Schwankungen im Messsignal durch Mängel, wie Ansammlungen von nichtleitenden Komponenten, zeigt sich im Messsignal ein klarer Trend hin zu einem niedrigen Spannungsniveau, ausgenommen der Messdaten an den Durchgangsbohrungen. Von einem Spannungsniveau von 2,07 mV an Position 10 mm sinkt das Spannungsniveau auf 1,72 mV an Position 90 mm für den Teststreifen des PPS-Materials. Für die untersuchten Teststreifen aus einem BMA5 Bipolarplattenmaterial und einem PPG86 Bipolarplattenmaterial fallen die Trends noch stärker aus, wie an deren Verläufe in Abbildung 4.21 zu erkennen ist. Die Verläufe für das BMA5-Material und das PPG86-Material liegen über der Potentialkurve des PPS-Materials. Dies deutet auf einen höheren spezifischen elektrischen through-plane Widerstand dieser beiden Materialien hin. Die Verläufe der Potentialdifferenzen P1 – P3 deuten des Weiteren auf eine generelle Veränderung des Bipolarplattenmaterials entlang des Teststreifens hin. Es scheint, dass das BMA5-Material an dem einen Ende des Teststreifens den höchsten spezifischen elektrischen through-plane Widerstand aller Teststreifen besitzt und an dem anderen Ende der through-plane Widerstand des BMA5-Materials niedriger ist, als der Widerstand des PPG86-Materials. Insgesamt sinkt das Spannungsniveau der BMA5-Materialprobe um ca. 30 % von 3,08 mV auf 2,16 mV bei einem Vergleich der Position 10 mm mit der Position 90 mm. Des Weiteren fällt in dem Teststreifen des BMA5-Materials ein Peak auf, der auf einen ausgeprägten lokalen Mangel hindeutet.

Der Teststand bzw. die Messmethode hat einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Messung des Trends, wie der Potentialverlauf einer umgekehrt eingespannten PPS-Materialprobe in Abbildung 4.21 zeigt. Die Messergebnisse der einzelnen Positionen der umgekehrten Einspannung werden für Abbildung 4.21 zur besseren Vergleichbarkeit wieder auf die Positionen der ursprünglichen Ausrichtung bezogen. Die Verläufe der beiden Orientierungen für das PPS-Material unterscheiden sich leicht. Dies ist auf die nicht exakt gleiche Positionierung und die benutzten Messspitzen für die Vermessung der Probe zurückzuführen. Der generelle Trend von einem sich verändernden Spannungsniveau bleibt bestehen.

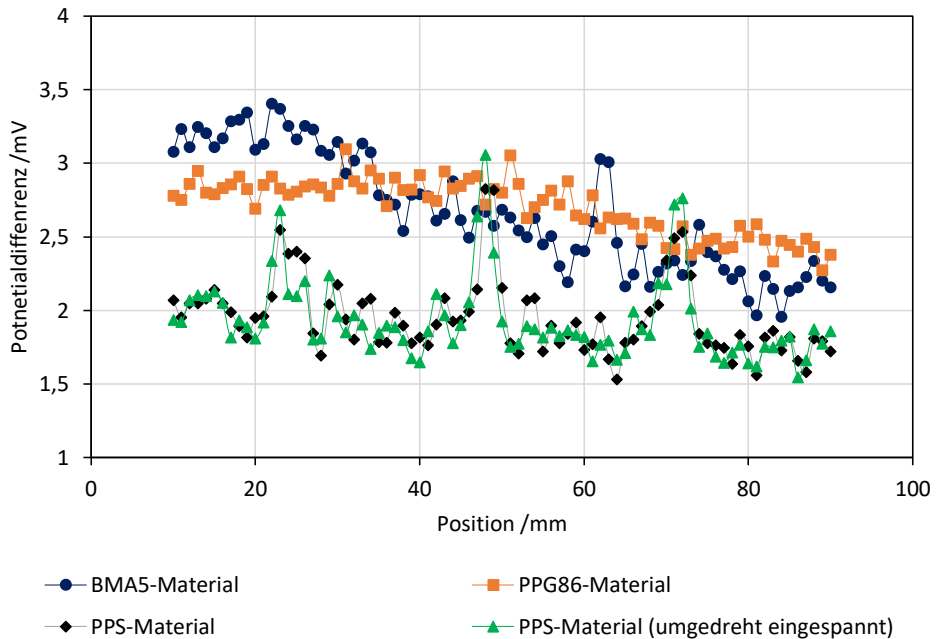


Abbildung 4.21: Vergleich der Trends der Potentialverläufe in Materialstreifen aus BMA5, PPG86 und PPS Material

Der an den Materialteststreifen beobachtete Trend sich verändernder Materialeigenschaften lässt sich auf eine blanke Bipolarplatte übertragen. An der Platte kann die eindimensionale Messung der Potentialfeldausbreitung in den Teststreifen auf eine zweidimensionale Messung erweitert werden und die Potentialfeldausbreitung in der Ebene gezeigt werden. Für die Untersuchungen an der Platte wird die angelegte Stromstärke zur Erzeugung des Potentialfeldes auf 1 A erhöht. Der Strom fließt durch die Messspitzen in der Mitte des Prüfkopfes und das Potentialfeld wird mit den 24 umgebenden Messspitzenpaaren gemessen. Das Potentialfeld breitet sich ausgehend von der Stromquelle konzentrisch in der blanken Bipolarplattenprobe aus. Abbildung 4.22 bildet die gemessenen Potentialdifferenzen der 24 Messspitzenpaare auf einer 100 mm x 100 mm großen und 3 mm dicken PPS-Materialprobe an fünf Positionen, bezogen auf die Mitte der Probe, ab. Die Positionen sind jeweils um 30 mm in horizontaler und vertikaler Richtung auf der Plattenebene von der Mitte verschoben. Die Messergebnisse sind entsprechend der Position der Messspitzenpaare um die stromleitende Messspitze platziert, an dessen Stelle die jeweilige Position eingetragen ist. Weiterhin sind die Messergebnisse bezogen auf das Maximum von 15,71 mV bei Position 2 und das Minimum von 0,56 mV bei Position 1 mit einer Farbskala von Rot nach Grün entsprechend ihrem Potentialwert eingefärbt. An den Ergebnissen innerhalb einer Position ist zu erkennen, dass sich das Potentialfeld nicht perfekt symmetrisch ausbreitet. Die Abweichungen zwischen Potentialdifferenzen an Messspitzenpaaren mit gleichem Abstand zur stromführenden Messspitze innerhalb einer Position

können mehr als 10 % betragen. Ein systematischer Messfehler aufgrund von fehlerbehafteten Messspitzen ist an dieser Stelle auszuschließen, da die Abweichungen an den einzelnen Positionen in unterschiedliche Richtungen tendieren. Die Beeinträchtigung der symmetrischen Potentialfeldausbreitung ist bedingt durch ein inhomogenes Bipolarplattenmaterial. Der Vergleich zwischen den einzelnen Positionen bestärkt diese Aussage, da die Abweichung der Messwerte zwischen den einzelnen Positionen teilweise noch größer ausfällt. So sind die mit den gleichen Messspitzenpaaren gemessenen Potentialdifferenzen von Position 2 im Vergleich zur mittleren Position im Mittel um 19,4 % größer.

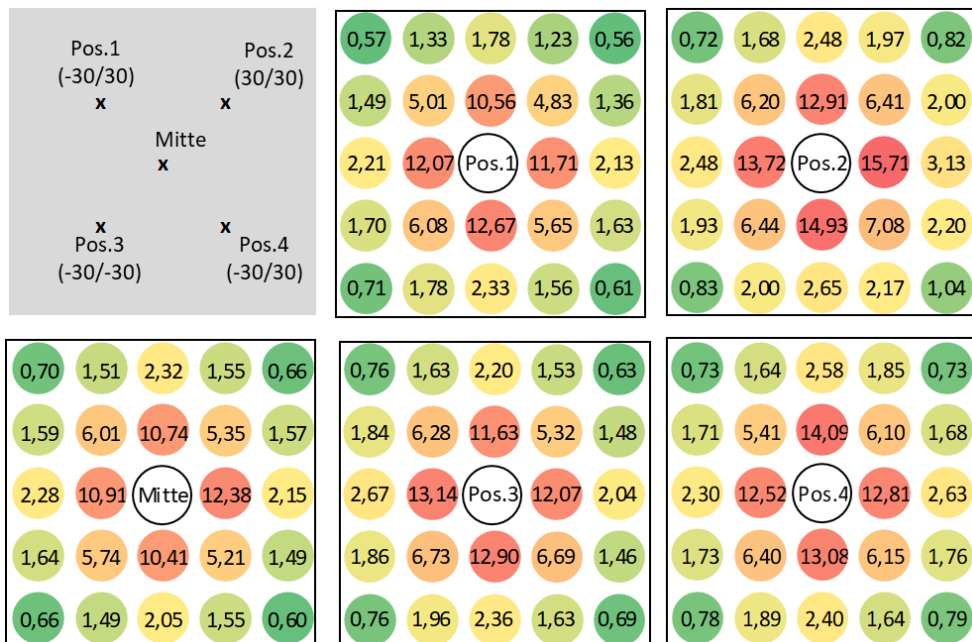


Abbildung 4.22: Potentialfeldausbreitung (in mV) in einer blanken PPS-Bipolarplatte (100mm x100mm) für fünf Positionen bezogen auf die Mitte der Platte. Verschiebung der Positionen bezüglich der Mitte in mm.

#### 4.2.7 Zusammenfassung der Untersuchungen an den Teststreifen

Mit den in diesem Kapitel beschriebenen Messergebnissen kann die Methode zur Erkennung von Mängeln durch die Interpretation von Potentialfeldern in Bipolarplattenmaterialien generell bestätigt werden. Ebenfalls können die Messergebnisse aus dem selbstentwickelten Teststand durch Simulationen validiert werden. Der Einfluss von möglichen systematischen Messfehlern auf die Messung wird analysiert und es wird eine gute Wiederholbarkeit der Messung der Potentialfeldverteilung festgestellt. Ein Vergleich unterschiedlicher Messspitzenkombinationen zeigt,

dass mit einem Stromfluss durch diagonal gegenüberliegende Messspitzen höhere Spannungsniveaus mit höheren absoluten Peaks für Mängel in dem untersuchten Materialstreifen erreicht werden können. Für die Interpretation hinsichtlich kleinerer Mängel in der Probe und der Robustheit des Messsignals gegenüber Messfehlern besitzen diese Messspitzenkombinationen jedoch keinen Vorteil gegenüber einer senkrechten Stromführung durch die Probe. Die in Röntgentomographieaufnahmen detektierten Ansammlungen von Polymerbindermaterial liefern eine Erklärung für das Rauschen im Messsignal. Ein genereller Trend zu veränderten Spannungsniveaus in den Messsignalen deutet auf lokal variierende Materialeigenschaften der Bipolarplattenproben hin. Dies ist nach einer Übertragung der entlang einer Linie gemessenen Potentialdifferenzen auf in der Ebene verteilt gemessene Potentialdifferenzen auch auf einer PPS-Platte zu beobachten. Die lokalen spezifischen elektrischen Widerstände werden daher im folgenden Kapitel an blanken Bipolarplattenproben genauer untersucht.

### 4.3 Spezifische lokale Widerstandsbestimmung von blanken Bipolarplatten

Die exakte lokale Bestimmung des spezifischen through-plane Widerstandes einer graphitischen Bipolarplatte ist allein mit einer flächigen Kontaktierung nicht möglich, da sich in der Bipolarplatte ein Potentialfeld in Abhängigkeit der spezifischen in-plane und through-plane Leitfähigkeiten des Materials ausbildet. Mit der in Kapitel 3.4 beschriebenen through-plane Widerstandsbestimmung durch Punktkontaktierung der Probe und Auswertung des Potentialfeldes ist eine lokale Bestimmung des spezifischen through-plane Widerstandes hingegen möglich. In diesem Kapitel wird zunächst die Genauigkeit der through-plane Widerstandsbestimmungsmethode über die Auswertung des Potentialfeldes im Vergleich zur through-plane Widerstandsmessung mit flächiger Kontaktierung für die vier in dieser Arbeit verwendeten Materialien, PPS, PPG86, BMA5 und das Material der Monopolarplatten, bewertet. Anschließend werden die Ergebnisse von örtlich aufgelösten in-plane und through-plane Widerstandsmessungen über das neu entwickelte Verfahren präsentiert und diskutiert.

#### 4.3.1 Vergleich zwischen flächiger Kontaktierung und Punktkontaktierung für die through-plane Widerstandsbestimmung

Bei der Messung des through-plane Widerstandes mit einer flächigen Kontaktierung und einem Sandwich-Aufbau einer Materialprobe zwischen zwei GDL-Materialien und Goldstempeln besteht ein Zusammenhang zwischen dem Anpressdruck und dem gemessenen through-plane Widerstand. Für

eine  $4\text{cm}^2$  große Materialprobe ergeben sich bei einer angelegten Stromdichte von  $1\text{ A/cm}^2$  die in Abbildung 4.23 dargestellten elektrischen Spannungen für das Gesamtsystem in Abhängigkeit des Anpressdrucks und der Dicken der Materialproben. Aus den Mittelwerten der Spannungen für die einzelnen Druckstufen werden die spezifischen through-plane Widerstände nach Gleichung 2.13 berechnet. Dabei wird die Potentialdifferenz zwischen zwei unterschiedlichen Dicken eines Materials als Spannung  $U$  eingesetzt und der Dickenunterschied selbst als Abstand  $L$ . Der spezifische through-plane Wert für die Monopolarplatten wird aus den in Kapitel 4.5.2 der Arbeit vorgestellten Messergebnissen ermittelt.

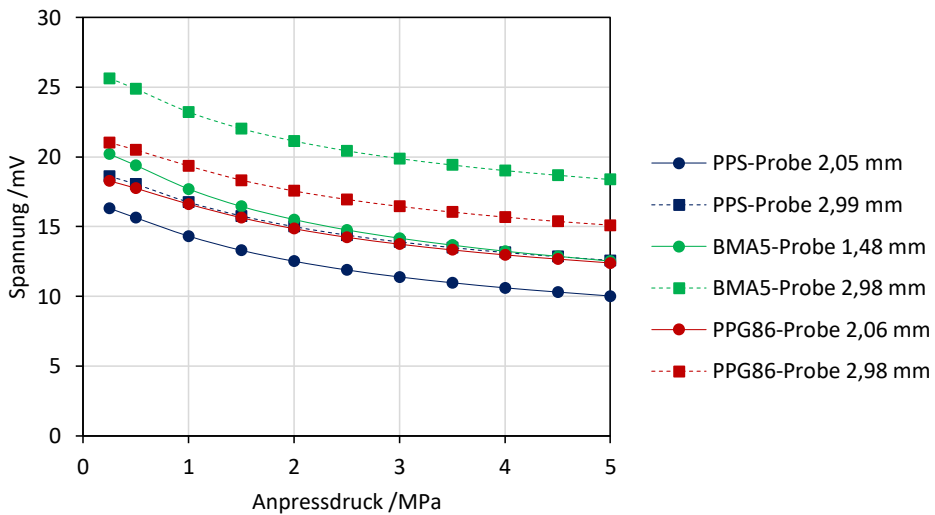


Abbildung 4.23: Gemessene Spannung des Gesamtaufbaus für unterschiedlich dicke BPP bei einer Stromdichte von  $1\text{ A/cm}^2$  in Abhängigkeit des Anpressdrucks

Bei einem Anpressdruck von 5 MPa und einer Kontaktierung der gesamten Oberfläche der Bipolarplattenmaterialprobe wird für das PPS-Material ein spezifischer through-plane Widerstand von  $26,98\text{ m}\Omega\text{cm}$ , für das BMA5-Material von  $39,38\text{ m}\Omega\text{cm}$ , für das PPG86-Material von  $29,36\text{ m}\Omega\text{cm}$  und für das Material der Monopolarplatten von  $22,17\text{ m}\Omega\text{cm}$  berechnet. Die through-plane Widerstände unterscheiden sich deutlich von den Beispielangaben des Herstellers für das PPS-Material, das PPG86-Material und das BMA5-Material (vgl. Tabelle 4.2). Bis auf einen Anpressdruck von  $0,025\text{ MPa}$  werden keine weiteren Angaben zur Bestimmungsmethode des spezifischen through-plane Widerstandes durch den Hersteller gemacht. Aufgrund der verwendeten Presse und der Probengröße liegt der minimal einstellbare Anpressdruck in dieser Arbeit bei  $0,25\text{ MPa}$ . Bei niedrigeren Anpressdrücken steigt die Messunsicherheit stark an, wie an den Angaben des Größtfehlers in Tabelle 4.2 zu erkennen ist. Für die Berechnung des Abweichungsfaktors zwischen Herstellerangaben und Messung werden daher die Werte bei 5 MPa verwendet. Die stark schwankenden Abweichungsfaktoren kommen zum



einen durch nicht identische und nicht näher spezifizierte Bestimmungsmethoden zustande, zum anderen werden vom Hersteller nur typische Beispielangaben für die Materialklassen angegeben. Exakte Werte des spezifischen Widerstandes für die gelieferten Proben seitens des Herstellers liegen nicht vor, sodass die Angaben des Herstellers lediglich als erster Anhaltspunkt, jedoch nicht als Validierungsdaten für die gemessenen Materialkennwerte dieser Arbeit genutzt werden können.

*Tabelle 4.2: Vergleich zwischen Messwerten und Herstellerangaben für den spezifischen through-plane Widerstand der untersuchten Materialien*

<b>Material</b>	<b>Messung</b> through-plane Widerstand (Größtfehler) bei 5 MPa	<b>Messung</b> through-plane Widerstand (Größtfehler) bei 0,25 MPa	<b>Herstellerangaben</b> through-plane Widerstand bei 0,025 MPa	<b>Abweichungsfaktor</b> zwischen Herstellerangaben und Messwerten (bei 5 MPa)
<b>PPS</b>	26,98 mΩcm (1,72 mΩcm)	25,11 mΩcm (4,33 mΩcm)	60 mΩcm [124]	2,22
<b>BMA5</b>	39,38 mΩcm (2,09 mΩcm)	36,34 mΩcm (4,92 mΩcm)	50 mΩcm [123]	1,27
<b>PPG86</b>	29,36 mΩcm (1,82 mΩcm)	29,74 mΩcm (5,90 mΩcm)	240 mΩcm [125]	8,17
<b>Monopolar- platte</b>	22,17 mΩcm (2,00 mΩcm)	26,84 mΩcm (5,87 mΩcm)	Keine Angabe	Keine Angabe

Die Ermittlung der spezifischen ohmschen Widerstände unterliegt großen Messunsicherheiten. Diese entstehen auch dadurch, dass die für die Untersuchung hergestellten Proben fertigungsbedingt nicht exakt planparallel sind und leichte Schwankungen in der Höhe aufweisen. Beim Herstellen der unterschiedlich dicken Messproben aus einer 3 mm dicken Materialplatte kann während des schichtweisen Abfräsen der Oberfläche nicht verhindert werden, dass einzelne Körner aus Graphit oder Polymermaterial aus dem Komposit-Material herausbrechen, sodass ein manuelles Nachschleifen der Oberfläche der Proben nötig ist. Des Weiteren werden aufgrund des instabilen Materialgefüges nur Proben mit einer minimalen Dicke von 2 mm gefertigt, sodass zwischen den einzelnen Proben nur ein sehr geringer Unterschied in der Dicke besteht. Für zusätzliche Messunsicherheiten sorgen die sich ändernden Eigenschaften der GDL bei Kompression. Diese werden in anderen Arbeiten detailliert untersucht (vgl. [134, 135]). In dieser Arbeit werden die Messunsicherheiten durch die Kompression der GDL durch die statistischen Schwankungen in den gemessenen Potentialen berücksichtigt. Der Fehler in der Dicke D der Proben wird mit +/-0,01 mm gemessen. Für den Unterschied in der Fläche

der beiden Vergleichsproben wird ein Fehler von 1 % angenommen. Das Multimeter zum Nachmessen des Stromes besitzt bei einer Stromstärke von 4 A einen Fehler von 0,8 %.

Mit den genannten Abschätzungen lassen sich die Messunsicherheit mit dem absoluten Größtfehler nach Gleichung 4.1 abschätzen. Dabei steht  $A$  für die Fläche der Proben in  $\text{cm}^2$ ,  $I$  für den Messstrom in A,  $V_1$  und  $V_2$  für die gemessenen Potentiale bei den Proben mit der Dicke  $D_1$  und  $D_2$ .

$$\Delta\rho_{\text{Spez}} = \left| \frac{A}{I \cdot (D_1 - D_2)} \cdot \Delta V_1 \right| + \left| \frac{-A}{I \cdot (D_1 - D_2)} \cdot \Delta V_2 \right| + \left| -\frac{(V_1 - V_2) \cdot A}{I \cdot (D_1 - D_2)^2} \cdot \Delta D_1 \right| + \left| \frac{(V_1 - V_2) \cdot A}{I \cdot (D_1 - D_2)^2} \cdot \Delta D_2 \right| + \left| -\frac{A}{I^2} \cdot \frac{(V_1 - V_2)}{(D_1 - D_2)} \cdot \Delta I \right| + \left| \frac{(V_1 - V_2)}{I \cdot (D_1 - D_2)} \cdot \Delta A \right| \quad (4.1)$$

Am Beispiel der Messergebnisse für die PPS-Proben zeigt sich, dass die Messunsicherheiten aufgrund der Kompression der GDL den größten Anteil an den Messunsicherheiten ausmachen. Der relative Größtfehler der Widerstandsbestimmung am PPS-Material liegt bei 6,4 % und ist bei einem Vergleich der beiden Widerstandsbestimmungsmethoden nicht zu vernachlässigen.

$$\Delta\rho_{\text{Spez}} = 0,634 \text{ m}\Omega\text{cm} + 0,401 \text{ m}\Omega\text{cm} + 0,284 \text{ m}\Omega\text{cm} + 0,284 \text{ m}\Omega\text{cm} + 0,054 \text{ m}\Omega\text{cm} + 0,067 \text{ m}\Omega\text{cm} = 1,724 \text{ m}\Omega\text{cm} \quad (4.2)$$

Die Bestimmung des spezifischen through-plane Widerstandes über die Punktkontaktierung, wie sie in Kapitel 3.4 beschrieben wird, nutzt die experimentell bestimmte Potentialfeldausbreitung und vergleicht diese mit einer Datenbank aus simulierten Potentialfeldausbreitungen. Bei der Potentialfeldausbreitung werden die Potentiale von Messspitzen mit gleichem Abstand zur mittleren stromführenden Messspitze in einem Mittelwert zusammengefasst. Insgesamt ergeben sich für eine blanke Bipolarplattenmaterialprobe fünf Vergleichswerte für den Abgleich zwischen Messung und Simulation.

Messunsicherheiten bei der in-plane Widerstandsmessung und den Vergleichspotentialmessungen sowie Berechnungsfehler in der Simulation und der Interpolation zwischen zwei simulierten Punkten können Abweichungen für den berechneten spezifischen through-plane Widerstandswert verursachen. Abbildung 4.24 zeigt graphisch die Messunsicherheiten und die daraus folgende Fehlerfortpflanzung am Beispiel der Vermessungen des PPS-Materials. Der spezifische Widerstandswert wird durch den Schnittpunkt des simulierten Potentialwertes mit dem tatsächlich gemessenen Potentialwert ermittelt. Die in blau dargestellten simulierten Vergleichskurven werden jeweils bei dem gemessenen Mittelwert (durchgezogene Linie) und um die Standardabweichung reduzierten (gestrichelte Linie) bzw. erhöhten (gepunktete Linie) spezifischen in-plane

Widerstandswerten simuliert. Eine Variation des spezifischen in-plane Widerstandes sorgt für eine minimale Verschiebung des Schnittpunktes und besitzt somit einen geringen Einfluss auf die Bestimmung des elektrischen through-plane Widerstands. Die Vergleichspotentiale an einer Position weichen, wie in Abbildung 4.22 bereits angedeutet, teilweise stark voneinander ab. In Abbildung 4.24 sind jeweils der gemessene Mittelwert sowie der um die Standardabweichung erhöhte und reduzierte Potentialwert durch schwarze horizontale gestrichelte Linien für die Vergleichspositionen gekennzeichnet (vgl. V1 – V5 Kapitel 3.4).

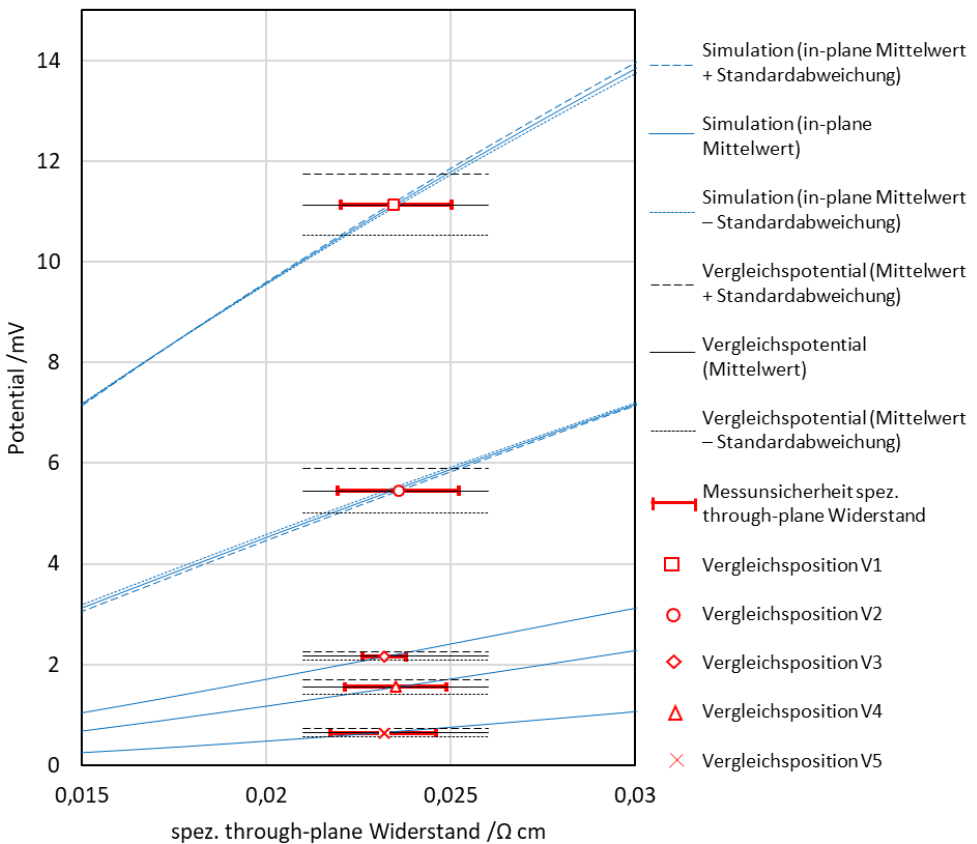


Abbildung 4.24: Ermittlung des spezifischen through-plane Widerstandes für eine PPS-Materialprobe mit Fehlerbetrachtung

Die Messunsicherheit bei der Vergleichspotentialmessung sorgt für eine vergleichsweise große Verschiebung des Schnittpunktes. Die Messunsicherheit bei den Vergleichspotentialen hat somit einen großen Einfluss auf den berechneten through-plane Widerstand. Insgesamt schwankt die Messunsicherheit bei den Vergleichspotentialen zwischen ca. 3,9 % und ca. 12,5 %. Für den berechneten spezifischen through-plane Widerstand des PPS-Materials resultiert daraus eine

maximale Abweichung von ca. 7 %. Damit besitzen die beiden vorgestellten Bestimmungsmethoden für den spezifischen through-plane Widerstand eine vergleichbare Messunsicherheit.

Der Vergleich der absoluten spezifischen through-plane Widerstandswerte der beiden vorgestellten Messmethoden ist in Abbildung 4.25 dargestellt. Die über die Punktkontaktierung ermittelten through-plane Widerstandswerte für die vier untersuchten Materialien PPS, BMA5, PPG86 und dem Monopolarplattenmaterial zeigen insgesamt eine gute Übereinstimmung mit den über eine flächige Kontaktierung ermittelten through-plane Widerstandswerten. Die Methode der Punktkontaktierung kann somit genutzt werden, um die spezifischen through-plane Widerstände der formgepressten Bipolarplattenmaterialien zu bestimmen.

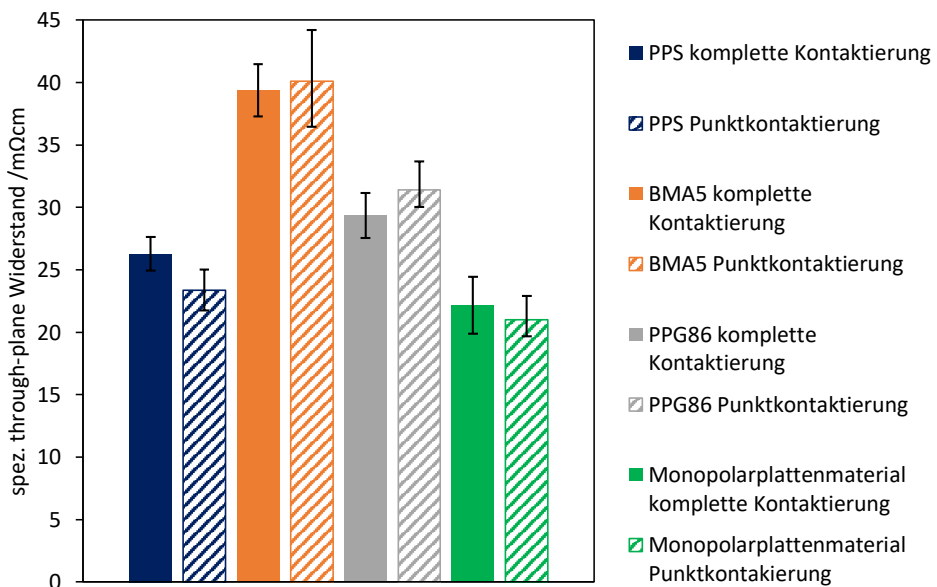


Abbildung 4.25: Vergleich der beiden Bestimmungsmethoden für den through-plane Widerstand

#### 4.3.2 Widerstandsmapping

Die örtlich aufgelöste Messung des spezifischen in-plane Widerstandes nach Kapitel 3.4 auf einer Fläche von 70 mm x 70 mm zentral auf einer 100 mm x 100 mm großen PPS-Materialprobe zeigt einen ansteigenden Verlauf des spezifischen Widerstandes von der linken unteren Ecke in Richtung der rechten oberen Ecke der Probe (vgl. Abbildung 4.26a). Der Mittelwert des in-plane Widerstandes dieser Materialprobe über alle gemessenen Positionen liegt bei 9,1 mΩcm und die Standardabweichung beträgt 0,26 mΩcm. Bei den through-plane Widerstandswerten (vgl. Abbildung

4.26b) befinden sich die höchsten Werte oben rechts und links in der Mitte am Rand des gemessenen Feldes. Der Mittelwert aller through-plane Werte auf der Platte beträgt  $24,87 \text{ m}\Omega\text{cm}$  und die Standardabweichung liegt bei  $0,236 \text{ m}\Omega\text{cm}$ . Dies entspricht weniger als 1 % des Mittelwertes und deutet auf eine homogene Platte hin.

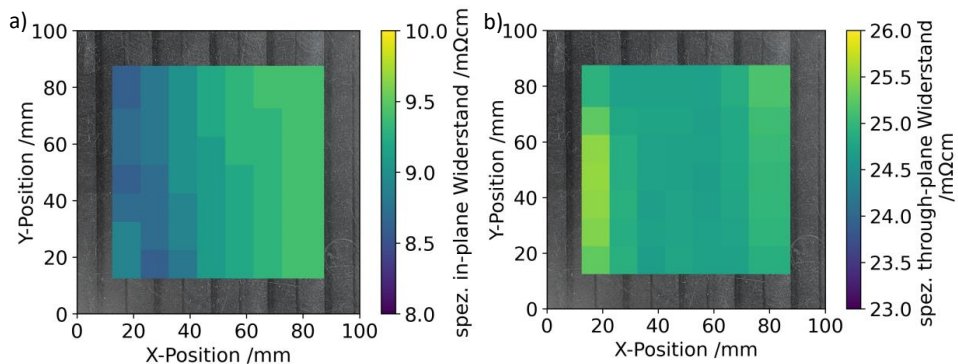


Abbildung 4.26: a) in-plane Mapping auf PPS-Materialprobe, b) through-plane Mapping auf PPS-Materialprobe

Wiederholungsmessungen des in-plane und through-plane Mapping zeigen, dass vor allem die Messung der spezifischen in-plane Widerstände von der Einspannung und der elektrischen Kontaktierung der Proben abhängig sind. Die Realisierung eines reproduzierbaren, gleichmäßigen Anpressdruckes und damit konstanten Kontaktierung über die beiden kontaktierten Stirnflächen der Materialprobe mit einer Länge von 100 mm und einer Höhe von 3 mm erweist sich als schwierig. In den Wiederholungsmessungen können die Verteilung und die groben Trends der ersten Messung reproduziert werden, jedoch verschieben sich die absolut gemessenen Werte (vgl. Abbildung 4.27). Des Weiteren sind in Abbildung 4.27c und f Werte für das through-plane Mapping angegeben, die bei konstantem in-plane Wert für die gesamte Platte ermittelt werden. Der qualitative Vergleich mit den Abbildungen b und e, bei denen der through-plane Widerstand über den lokal varriierenden in-plane Widerstand berechnet wird, zeigt den geringen Einfluss der in-plane Widerstandsänderung auf den through-plane Widerstand für die PPS-Materialprobe.

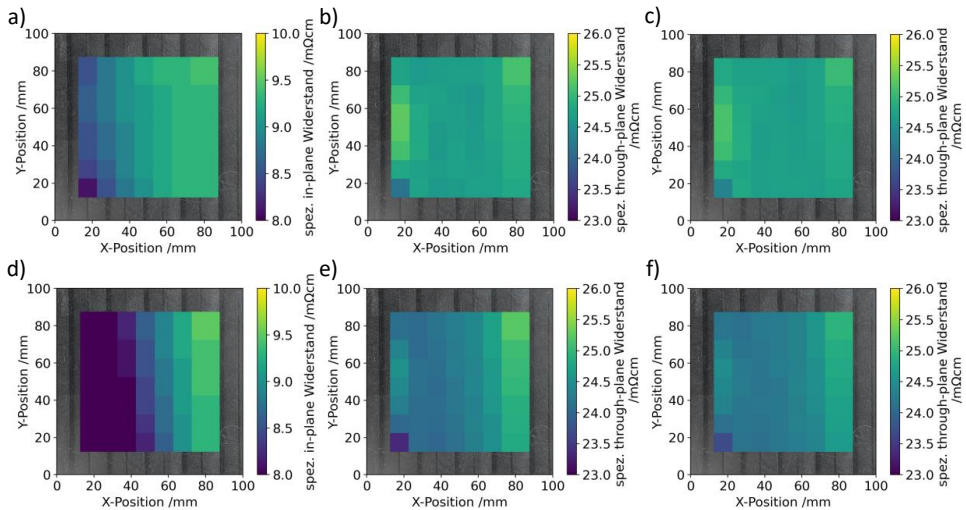


Abbildung 4.27: Wiederholungsmessungen des in-plane und through-plane Mappings. a) 2. Messung des in-plane Mapping, b) Wiederholungsmessung des through-plane Mapping, berechnet mit lokalen in-plane Widerstandswerten, c) through-plane Mapping, berechnet mit konstantem in-plane Widerstandswert, d) Wiederholungsmessung des in-plane Mapping, e) Wiederholungsmessung des through-plane Mapping, berechnet mit lokalen in-plane Widerstandswerten, f) through-plane Mapping, berechnet mit konstantem in-plane Widerstandswert, Wiederholungsmessung

Neben den Messungen der spezifischen elektrischen Widerstände kann die Homogenität eines Bipolarplattenmaterials mit dem in Kapitel 3.3.2 beschriebenen Messschema über die Multiplikationsfaktoren eines Vergleichsminimums untersucht werden. Abbildung 4.28 zeigt die Multiplikationsfaktoren für die PPS-Materialplatte im mittleren Bereich an 1225 Positionen mit einem Abstand von 2 mm zur nächsten Position. Ein Wert von 1 für den Multiplikationsfaktor beschreibt das Vergleichsminimum. Je höher der Wert, desto stärker weichen die elektrischen Eigenschaften an dieser Stelle von der Stelle mit dem Vergleichsminimum ab. Die Positionen werden dabei häufiger und mit unterschiedlichen Pinpaarkontaktierungen gemessen, sodass Messfehler eines einzelnen Pinpaares reduziert werden können. Der Multiplikationsfaktor auf der PPS-Probe liegt im Mittel bei 1,3 und maximal bei 1,84. Die Verteilung der Multiplikationsfaktoren deutet auf eine leichte Variation der Materialeigenschaften in dieser Probe hin. Die Ansammlung von erhöhten Multiplikationsfaktoren in der rechten oberen Ecke sowie am linken Rand und niedrigeren Werten in der Mitte stimmen qualitativ mit der Verteilung der through-plane Widerstandswerte aus Abbildung 4.26 und Abbildung 4.27 überein. Bei der Auswertung der Multiplikationsfaktoren nur mit Daten der Auswertungsprobe kann ein sehr niedrig gemessenes Minimum einer Vergleichsgruppe die Multiplikationsfaktoren stark beeinflussen und Verzerrungen in der Ergebnisdarstellung zur Folge haben. Die Berechnung der Multiplikationsfaktoren der untersuchten Probe in Bezug auf eine Simulation für eine ideale Materialprobe zeigt ein gleichmäßigeres Ergebnis für die PPS-Materialprobe. Die Erwartungswerte aus der Simulation werden mit einem spezifischen in-plane Widerstand von 9,5 mΩcm und einem

spezifischen through-plane Widerstand von 25 mΩcm berechnet. Multiplikationsfaktoren unter 1, wie in der Mitte der Probe, deuten auf eine bessere Leitfähigkeit des Materials hin. Multiplikationsfaktoren größer als 1 deuten auf eine schlechtere Leitfähigkeit hin. Insgesamt zeigen die Multiplikationsfaktoren nahe 1 die Homogenität der Probe und die gute Übereinstimmung von Simulation und Messung. Die Ausprägungen der Auswertemethode der Multiplikationsfaktoren mit simulierten Werten stimmen qualitativ gut mit den ermittelten Ausprägungen für den through-plane Widerstand überein. Die Methode der Multiplikationsfaktoren wird somit im Folgenden für die Bewertung von Monopolarplatten mit Strömungsfeld verwendet. Aus den ermittelten Multiplikationsfaktoren lassen sich Tendenzen für die Leitfähigkeit der Probe ableiten.

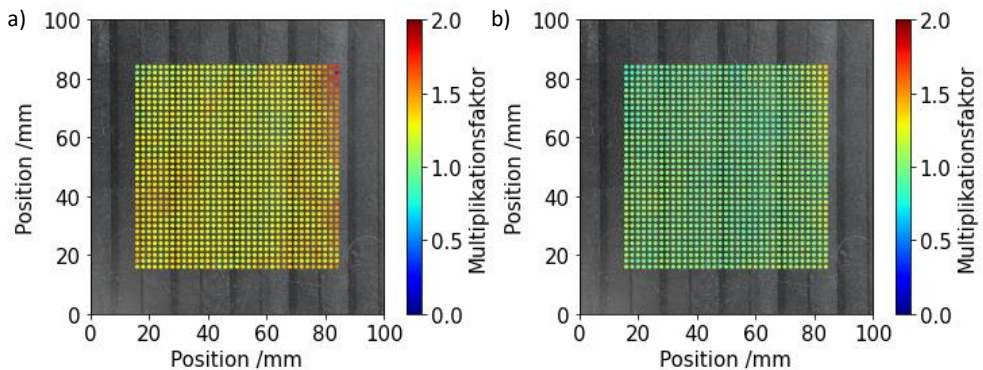


Abbildung 4.28: a) Mapping Multiplikationsfaktoren auf Basis der Bildung von Vergleichsgruppen b) Mapping Multiplikationsfaktoren auf Basis eines Vergleichs mit der Simulation einer idealen Probe

#### 4.4 Messungen an Platten mit Strömungsfeldstruktur

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Potentialfeldmessungen zur Detektion von Mängeln in Graphit-Komposit-Monopolarplatten mit Strömungsfeldstruktur vorgestellt. An Referenzplatten wird zunächst die Auswertung und Bewertung der Multiplikationsfaktoren für Monopolarplatten mit Strömungsfeld beschrieben. Anschließend werden die Ergebnisse der Potentialfeldmessungen an Monopolarplatten mit vereinzelt verteilten Mängeln, flächigen zusammenhängenden Mängeln sowie Monopolarplatten mit beschädigtem Strömungsfeld präsentiert.

##### 4.4.1 Referenzplatten

Für die Vergleichsstudie von Monopolarplatten mit Strömungsfeld und künstlichen Mängeln werden zunächst die Ergebnisse der Referenzplatten ohne künstliche Mängel präsentiert. Abbildung 4.29 zeigt

die Ergebnisse der Potentialfelduntersuchung im Bereich der aktiven Zellfläche der Monopolarplatte. Zur Auswertung werden die in Kapitel 3.3.2 beschriebenen Multiplikationsfaktoren für die einzelnen Messpositionen herangezogen. Als Referenz wird die gegenüberliegende Plattenhälfte verwendet. Die Darstellung der Multiplikationsfaktoren für die Referenzprobe A zeigt eine homogene Verteilung der Multiplikationsfaktoren. Die Ergebnisse in Abbildung 4.29 enthalten keine starken Ausreißer, die auf einen Mangel in der Monopolarplatte hindeuten. Der Mittelwert aller Multiplikationsfaktoren liegt bei 1,06 und das Maximum der Multiplikationsfaktoren liegt bei ca. 1,45. Die Schwankungen der Multiplikationsfaktoren und die Abweichung von einem idealen Multiplikationsfaktor von 1 in diesem Bereich ist auf die generellen Schwankungen bei der Potentialfeldmessung eines technischen Materials, wie sie im Kapitel 4.3 beschrieben wird, zurückzuführen. Vereinzelt Multiplikationsfaktoren am oder nahe des Maximums fallen als orange Punkte auf und sind zusätzlich durch Pfeile gekennzeichnet. Ein Vergleich mit den in Abbildung 4.5 für die Referenzprobe A dargestellten Röntgentomographieaufnahmen deutet jedoch nicht auf einen erkennbaren Mangel an den markierten Stellen hin, sodass die Punkte auf ein Messartefakt hindeuten.

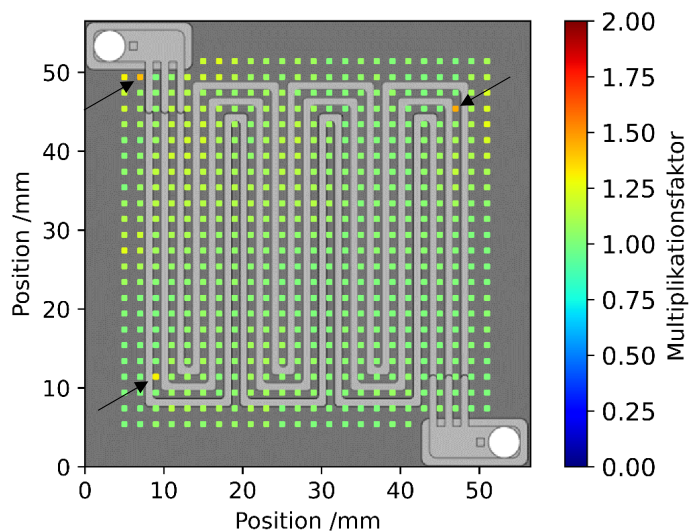


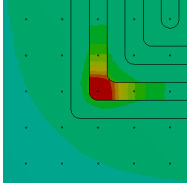
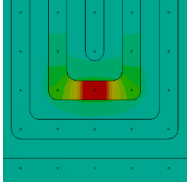
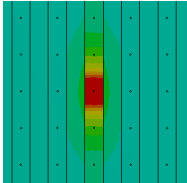
Abbildung 4.29: Multiplikationsfaktoren aus den Potentialfeldmessungen der Referenzprobe A mit der gegenüberliegenden Plattenhälfte als Referenz

Für die Vergleichssimulationen werden die in Kapitel 4.5.2 ermittelten spezifischen Widerstände der Monopolarplattenprobe auf alle Monopolarplatten übertragen. Tabelle 4.3 präsentiert den Vergleich zwischen Messung und Simulation beispielhaft für die drei in Abbildung 3.10 hervorgehobenen Positionen innerhalb der aktiven Zellfläche für die Referenzprobe A. Die Darstellung des elektrischen Potentials verdeutlicht die komplexe Verteilung des Potentialfeldes aufgrund der Struktur des Strömungsfeldes der Monopolarplatte. Die Ergebnisse in Tabelle 4.3 zeigen, dass die generelle



Ausbreitung des Potentialfeldes in der Messung und in der Simulation ähnlich abgebildet wird. In der Simulation wird von einem idealen homogenen Material und einer idealen Platzierung der Messspitzen in der Mitte der Stege ausgegangen. Aufgrund von Toleranzen bei der Herstellung der Monopolarplatte und der Ausrichtung der Prüfköpfe zur Monopolarplatte ist eine ideale Platzierung der Messspitzen bei den Messungen jedoch nicht immer möglich. Des Weiteren können die Materialeigenschaften innerhalb der realen Probe variieren und die spezifischen elektrischen Widerstände der realen Probe entsprechen an den einzelnen dargestellten Positionen nicht exakt den spezifischen elektrischen Widerständen der Simulation. Insgesamt liegen die Werte der Simulation unter den Messwerten, teilweise mit mehr als 20 % in Bezug auf den Messwert sehr deutlich. Gleichzeitig gibt es Bereiche in denen die Simulationswerte über den Messwerten liegen.

Tabelle 4.3: Vergleich von Simulation und Messung für die in Abbildung 3.10 gezeigten Positionen

Position	Bild Simulation	Werte Simulation /mV	Werte Messung /mV
1		0,60 1,18 6,41 1,80 0,53	0,54 1,13 7,51 1,94 0,57
		1,25 3,49 26,0 4,30 1,79	1,09 3,18 32,0 4,45 2,00
		1,64 6,35 25,9 6,38	1,43 5,32 34,6 8,75
		1,20 3,44 6,34 3,50 1,17	1,06 2,98 6,17 3,87 1,42
		0,58 1,20 1,64 1,24 0,61	0,53 1,09 1,58 1,20 0,67
29		0,73 2,80 2,16 2,80 0,73	0,80 3,88 2,22 3,40 0,87
		1,50 9,75 7,33 9,76 1,50	1,65 13,4 7,00 10,8 1,64
		2,01 25,8 25,9 2,02	2,12 32,6 29,7 2,11
		1,79 4,23 7,35 4,23 1,79	1,98 4,09 7,11 4,19 1,84
		0,42 0,94 1,30 0,94 0,42	0,47 0,94 1,23 0,94 0,44
210		0,52 1,69 6,34 1,69 0,52	0,61 1,85 7,60 1,79 0,61
		1,08 4,37 25,9 4,37 1,08	1,31 4,72 31,8 4,77 1,27
		1,47 7,51 7,51 1,47	1,73 8,16 8,59 1,79
		1,09 4,38 25,9 4,38 1,09	1,34 4,93 30,6 5,15 1,36
		0,52 1,69 6,34 1,69 0,52	0,67 2,06 6,63 1,95 0,69

Eine Erklärung für den Unterschied zwischen Messung und Simulation an der „Referenzprobe A“ ist, dass sich die an einer Monopolarplattenprobe ermittelten Materialkennwerte nicht exakt auf andere Monopolarplatten übertragen lassen. Die Untersuchung der Position 1 an den vier Referenzplatten zeigt, dass die gemessenen Spannungen für die Proben an dieser Position variieren (vgl. Abbildung 4.30). Dies deutet darauf hin, dass sich die Materialeigenschaften von Monopolarplatten innerhalb einer Produktionscharge unterscheiden. Besonders an den höchsten gemessenen Spannungen für die Messspitzenpaare mit den Nummern 14 und 18 wird der Unterschied zwischen den Monopolarplatten

deutlich (vgl. Abbildung 4.30). Die Nummern der Messspitzenpaare beziehen sich dabei auf die dem oberen Prüfkopf zugeordneten Nummern der Messspitzen (vgl. Abbildung 3.6). Während die Höhe der Spannung für diese Messspitzenpaare bei den „Referenzproben B und D“ mit der Simulation gut übereinstimmen, weichen die Spannungen bei den „Referenzproben A und C“ um mehrere Millivolt von der Simulation ab.

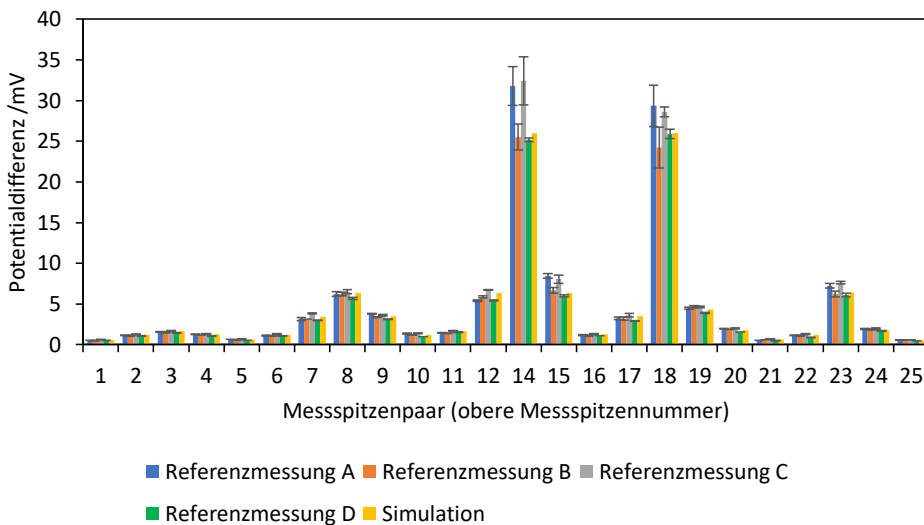
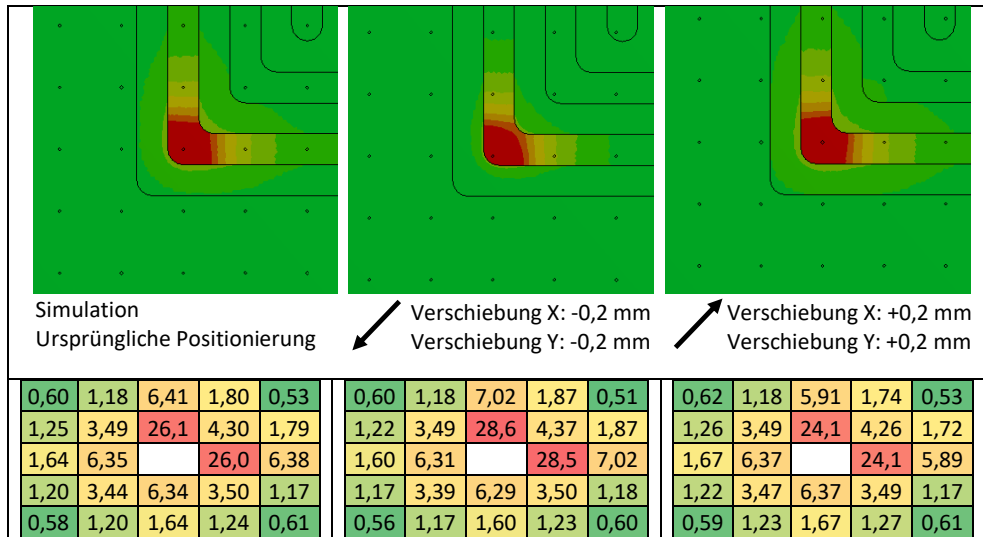


Abbildung 4.30: Vergleich der Messwerte für die Messspitzenpaare bei Position 1 für die Referenzmessung und Simulation

Des Weiteren fallen die großen Fehlerbalken an den Messspitzenpaaren mit der Nummer 14 und 18 auf. Die Fehlerbalken repräsentieren an dieser Stelle die Standardabweichungen von drei Wiederholungsmessungen. Die Wiederholungsmessungen der einzelnen Referenzmessungen unterscheiden sich in diesem Punkt teilweise deutlich. Die Ursache der großen Fehler liegt zum Teil in einer nicht exakt identischen Positionierung der einzelnen Proben. Die Positionierfehler können durch eine fehlerhafte Ausrichtung der Probe im Probenhalter, durch Verrutschen der Probe während Anfahrt und Abbremsbewegung der Positioniereinheiten sowie durch die Positioniergenauigkeit der Positioniereinheiten selbst bedingt sein. Des Weiteren unterliegt die Produktion der Monopolarplatten Fertigungstoleranzen, sodass es zwischen den einzelnen Referenzproben Formabweichungen gibt. Diese bewirken, dass es an der Position 1 ebenfalls eine leichte Verschiebung der geometrischen Strukturen der Probe zu den Prüfköpfen gibt. Die Tabelle 4.4 zeigt am Beispiel einer Simulation, dass eine Verschiebung von wenigen Zehntelmillimetern einen großen Einfluss auf die simulierten Spannungen der Messspitzenpaare in direkter Nachbarschaft zum Stromeinleitungspunkt besitzt. Im Fall von Position 1 führt eine Verschiebung des Prüfkopfes nach unten links zu einer erhöhten Spannung in den Messspitzenpaaren 14 und 18. Die Spannungen an diesen Messspitzen werden im

Vergleich zur ursprünglichen Ausrichtung in der Simulation um 2,5 mV erhöht. Dies entspricht einer Erhöhung um ca. 9,6%. Eine Verschiebung des Prüfkopfes nach oben rechts führt zu einer um 1,9 mV bzw. um ca. 7,3 % verringerten Spannung in den Messspitzenpaaren 14 und 18. Dies unterstreicht die Wichtigkeit einer exakten Ausrichtung der Proben in dem Teststand.

Tabelle 4.4: Simulation der Verschiebungen des Prüfkopfes um wenige Zehntelmillimeter



Obwohl die Simulation die diskutierten Abweichungen von den realen Messwerten besitzt, lässt sich auf Basis der Simulation für jeden der 9600 gemessenen Potentialwerte ein Vergleichswert ermitteln. Der Mittelwert aus den Multiplikationsfaktoren zwischen dem Potentialwert und dem simulierten Vergleichswert für jede Messposition auf der Monopolarplatte zeigt eine Tendenz für die Abweichung der Materialeigenschaften der vermessenen Referenzprobe im Vergleich zu einer idealen Monopolarplatte. Der Wert nahe 1 für die gesamte Referenzprobe A in Abbildung 4.31 zeigt, dass die Simulation und die Messung in der gesamten Probe unter Berücksichtigung der genannten Abweichungen gut übereinstimmen und dass die Referenzprobe 1 insgesamt sehr homogen ist.

Die weiteren Referenzproben zeigen im Vergleich zur Simulation einer idealen Monopolarplatte eine ähnliche homogene Verteilung der Multiplikationsfaktoren wie die „Referenzprobe A“. Bei den „Referenzproben B und D“ in Abbildung 4.32 sind Bereiche erkennbar, in denen die gemessenen Potentialwerte unter den Potentialwerten der Simulation liegen. Dies deutet darauf hin, dass sich Eigenschaften der Probe leicht verändern und die elektrische Leitfähigkeit im Vergleich zur Simulation in diesem Bereich leicht verbessert ist. Die „Referenzproben B und C“ sind spiegelverkehrt zu den

„Referenzproben A und D“ aufgebaut, damit aus der Kombination zweier spiegelverkehrter Monopolarplatten eine Brennstoffzelle aufgebaut werden kann.

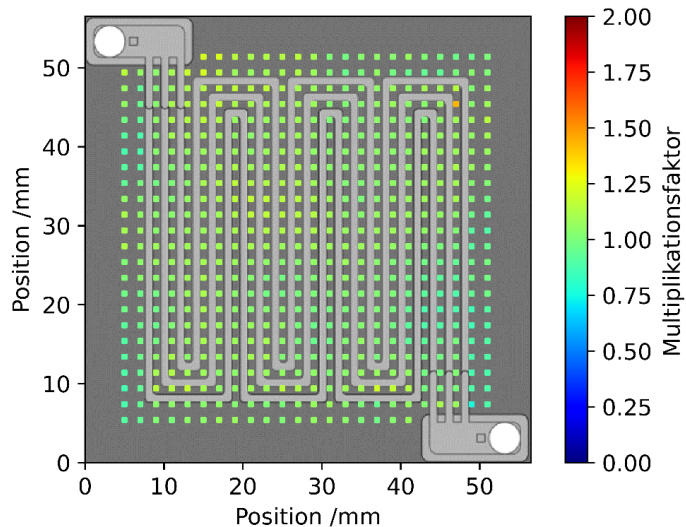


Abbildung 4.31: Multiplikationsfaktoren für die aktive Zellfläche der Referenzprobe A mit simulierten Werte einer idealen Probe als Referenz

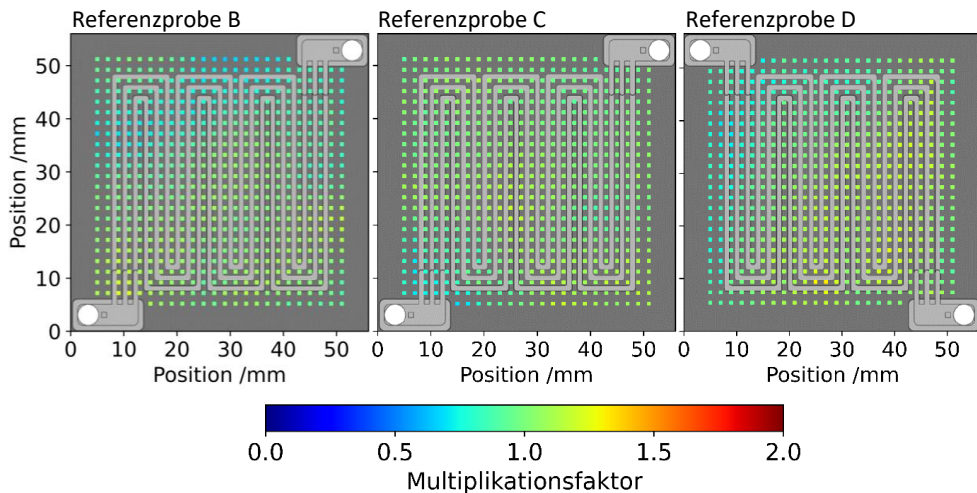


Abbildung 4.32: Multiplikationsfaktoren im Vergleich zur Simulation für die „Referenzprobe B“, die „Referenzprobe C“ und die „Referenzprobe D“

Insgesamt stimmen die Messungen und Simulationen der Potentialfelder in den Referenzplatten gut überein. Die geringen Abweichungen zwischen der Simulation einer idealen Platte und den Messungen der Potentialfeldverteilung in den Referenzplatten, die sich durch erhöhte oder verringerte Multiplikationsfaktoren ausdrücken, können durch nicht vermeidbare Messunsicherheiten erklärt

werden. Diese Messunsicherheiten liegen zum einen auf der Modellierungsseite durch die Annahme, bzw. die Übertragung von spezifischen Materialeigenschaften einer Probe auf sämtliche Proben. Zum anderen ist die Messung der Potentialdifferenzen mit den Messspitzen selbst mit Messunsicherheiten behaftet. Stark überhöhte Messwerte, die weit über die Messunsicherheiten hinausgehen und auf einen Defekt in der Monopolarplatte hindeuten würden, werden in den Referenzplatten nicht detektiert. Die Referenzplatten werden somit als störungsfrei bewertet und die Messungen an den Referenzplatten zeigen, dass die Methode der Defekterkennung mittels Potentialfeldmessung auf Monopolarplatten mit einer komplexen Strömungsfeldgeometrie angewendet werden kann. Für die folgende Bewertung von Mängeln in Monopolarplatten ist die diskutierte Abweichung von Modell und Messung zu berücksichtigen.

#### 4.4.2 Monopolarplatten mit vereinzelt Fremdkörpern

Im Folgenden wird die Zuverlässigkeit des Systems untersucht, definierte Mängel in Bipolarplattenmaterialien zu detektieren. In die Monopolarplatte künstlich eingebrachte Holzpartikel sollen Risse und große, nicht leitfähige Fremdpartikel sowie Fehlstellen und Gaseinschlüsse in der Monopolarplatte imitieren. Abbildung 4.33 zeigt einen Ausschnitt aus einem Röntgentomogramm einer mit Holzpartikeln versetzten Monopolarplatte. Die Holzpartikel werden in der Auswertesoftware DragonFly dunkler als das umgebende Bipolarplattenmaterial dargestellt. Bei der Segmentierung werden die Holzpartikel in blau markiert (vgl. Abbildung 4.33b). Die Segmentierung und Markierung der Fremdkörper bildet die Basis für die folgenden Abschätzungen der Verteilung der künstlich eingebrachten Mängel.

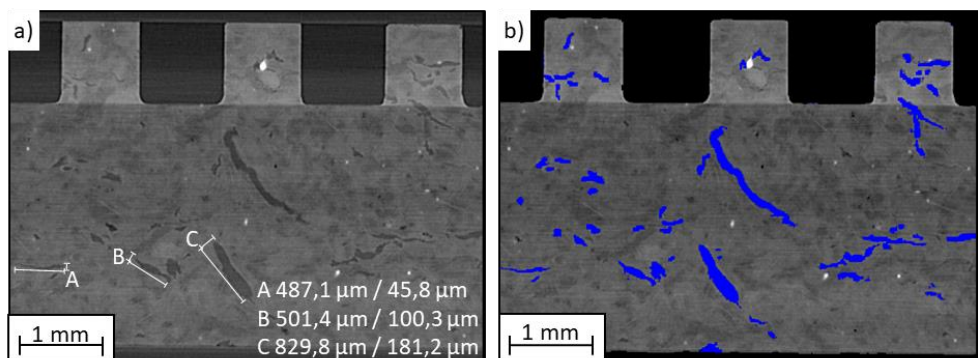


Abbildung 4.33: a) Graustufenbild eines Tomogramms mit Holzpartikel, b) Tomogramm mit Segmentierung der Holzpartikel

Zur Abschätzung der Verteilung und des Anteils der Fremdkörper in der Monopolarplatte werden die Volumenanteile der Holzpartikel in einem Vergleichsausschnitt bestimmt. Die Vergleichsvolumina

besitzen eine Fläche von 100 Pixel x 100 Pixel und erstrecken sich über die gesamte Höhe der untersuchten Probe. Bei einer Voxelgröße mit einer Kantenlänge von 56,7  $\mu\text{m}$  (vgl. Tabelle 3.2) entspricht dies einem Ausschnitt mit einer Kantenlänge von 5,67 mm. Insgesamt werden über das Strömungsfeld verteilt 8 x 8 Vergleichsvolumina analysiert. In Abbildung 4.34b ist die Position und Größe des ersten Vergleichsausschnitts durch ein rotes Quadrat markiert. Da die Bestimmung der Volumenanteile auf der Segmentierung der Tomographiedaten basiert und zugleich abhängig ist von der Größe und der Positionierung der Vergleichsvolumina, ist die Bestimmung der Volumenanteile in Abbildung 4.34e mit Unsicherheiten behaftet und kann nur für eine Abschätzung genutzt werden.

Die künstlich eingebrachten Fremdkörper liegen konzentriert in einem Bereich der Platte vor. In der Probe „Holzpartikel A“ befinden sich die Holzpartikel in der oberen Hälfte der aktiven Zellfläche in der Mitte der Probe, wie die Draufsicht und eine Seitenansicht des Modells der Monopolarplatte sowie die Analyse der Volumenanteile zeigen (vgl. Abbildung 4.34). Von außen ist nicht ersichtlich, ob sich Fremdkörper in dem Material befinden. Die Schnittansicht durch die Mitte des Tomogramms zeigt die Holzpartikel (vgl. Abbildung 4.34b). Der hellere Streifen in der Mitte der Aufnahme, sowie Streifen aufgrund des Strömungsfeldes und die dunkler dargestellten Ecken der Aufnahme sind Messartefakte, die eine Analyse von Fremdkörpern in der Probe durch die Röntgentomographie erschweren. Die Holzpartikel besitzen unterschiedliche Größen mit Maximalabmaßen von mehreren 100  $\mu\text{m}$  bis teilweise mehr als 1 mm, bei Dicken von mehreren 10  $\mu\text{m}$  bis mehreren 100  $\mu\text{m}$  (vgl. Abbildung 4.33 und Abbildung 4.34b). Die systematische Untersuchung der Potentialfelder und die Auswertung der Multiplikationsfaktoren an der Monopolarplatte „Holzpartikel A“ zeigen keine Auffälligkeiten, die auf Mängel in der Monopolarplatte hindeuten. Die verstreuten Fremdpartikel in der oberen Hälfte der Monopolarplatte werden nicht erkannt, da die Querleitfähigkeit des Monopolarplattenmaterials hinreichend groß ist, um die Effekte der nichtleitenden Fremdpartikel auf den Stromfluss durch die Monopolarplatte auszugleichen. Die Multiplikationsfaktoren schwanken wie bei den Referenzplatten um den Wert 1. Vereinzelt, nichtleitende Fremdkörper mit einem Anteil von bis zu 4 Vol.-% im Vergleichsausschnitt können mit der Potentialfeldmessung nicht detektiert werden.

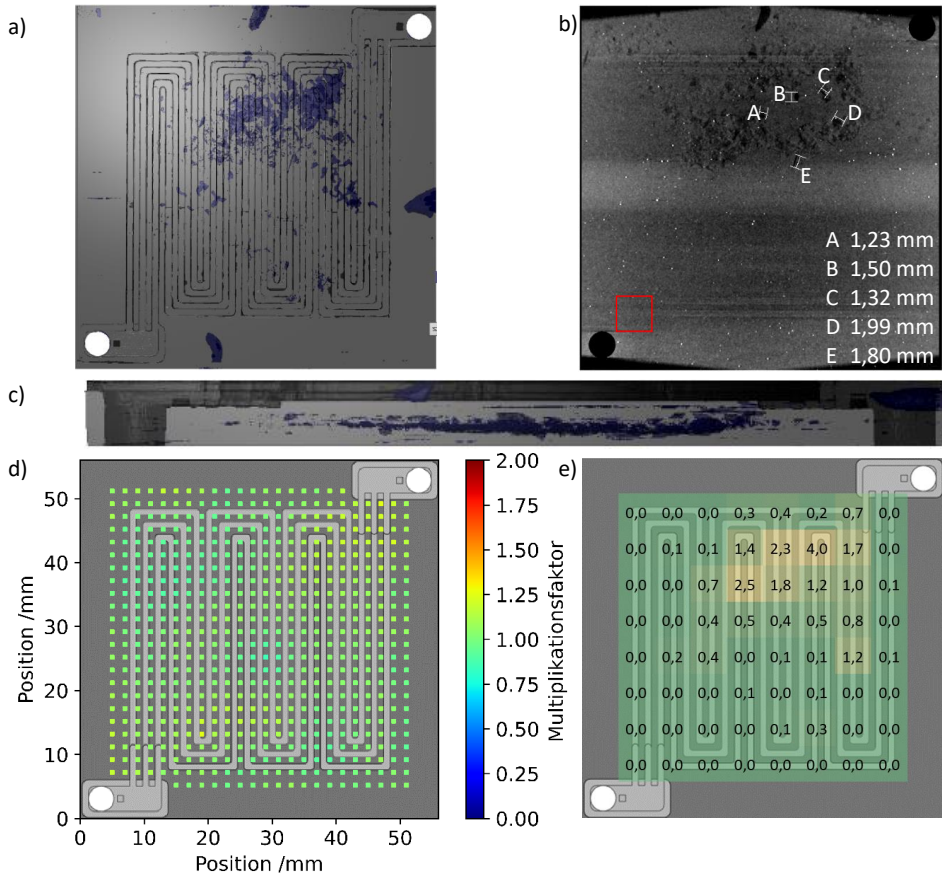


Abbildung 4.34: Auswertung der Probe „Holzpartikel A“. a) Übersichtmodell mit Verteilung der Holzpartikel, b) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe mit angedeutetem Auswerteausschnitt, c) Seitenansicht des Übersichtmodells zeigt Positionierung der Holzpartikel in der Mitte der Monopolarplatte, d) Multiplikationsfaktoren aus der Potentialfeldmessung e) Verteilung der Volumenanteile der Holzpartikel im Bereich der aktiven Zellfläche in Vol.-%

Die Ergebnisse der Untersuchung der verstreuten Mängel der Probe „Holzpartikel A“ können mit Untersuchungen an der Probe „Holzpartikel B“ bestätigt werden. Weitere Proben sind im Anhang A6 dargestellt. In der Probe „Holzpartikel B“ befinden sich die Fremdkörper konzentriert unten links im Strömungsfeld und zu einem großen Teil unterhalb des Strömungsfeldes in der Monopolarplatte, wie das Modell aus den Computertomographiedaten zeigt (vgl. Abbildung 4.35a). Im Gegensatz zur Probe „Holzpartikel A“ liegen zwei Holzpartikel mit Durchmessern von ca. 4 mm an der Oberfläche der Unterseite der Monopolarplatte. In der Modelldarstellung sind sie durch einen helleren Blauton gekennzeichnet (vgl. Abbildung 4.35a). Die Ansicht der untersten Ebene des Tomogramms zeigt die Holzpartikel ebenfalls deutlich in einem dunkleren Grauton (siehe Abbildung 4.35b).

Die gemessenen Spannungen der Potentialfelduntersuchungen und die daraus abgeleiteten Multiplikationsfaktoren sind im Bereich der Holzpartikel nicht erhöht. Die innerhalb der

---

Monopolarplatte „Holzpartikel B“ befindlichen Holzpartikel mit einem Anteil von bis zu 7,7 Vol.-% können mit der Vermessung der Potentialfelder ebenfalls nicht erkannt werden. Eine detaillierte Einordnung der Detektionsschwelle ist aufgrund der Limitierung der Probenanzahl an dieser Stelle nicht möglich. Die zwei erhöhten Multiplikationsfaktoren in Abbildung 4.35d deuten auf die zwei Holzpartikel an der Unterseite der Monopolarplatte hin. Allerdings besitzen die Multiplikationsfaktoren nicht exakt die Position der Holzpartikel. Wiederholungsmessungen der Potentialfelder zeigen eine identische Verteilung der Multiplikationsfaktoren über der Platte und zeigen in dem mit Holzpartikeln versehenen Bereich ebenfalls vereinzelte erhöhte Multiplikationsfaktoren. Diese liegen jedoch leicht verschoben an anderen Messpositionen. Die Messergebnisse lassen sich somit nicht exakt reproduzieren. Auch die an der Oberfläche befindlichen Holzpartikel sind durch die Messmethode der Potentialfeldmessungen nicht eindeutig zu identifizieren bzw. zu lokalisieren.

Die Untersuchungen an den mit Holzpartikeln versehenen Monopolarplatten zeigen, dass einzelne, millimetergroße, in der Monopolarplatte verstreute, nichtleitende Fremdkörper oder Fehlstellen bei Volumenanteilen von bis zu 7,7 Vol.-% im Bereich des Strömungsfeldes der Monopolarplatte mit der Methode der Potentialfeldmessung nicht zu detektieren sind.



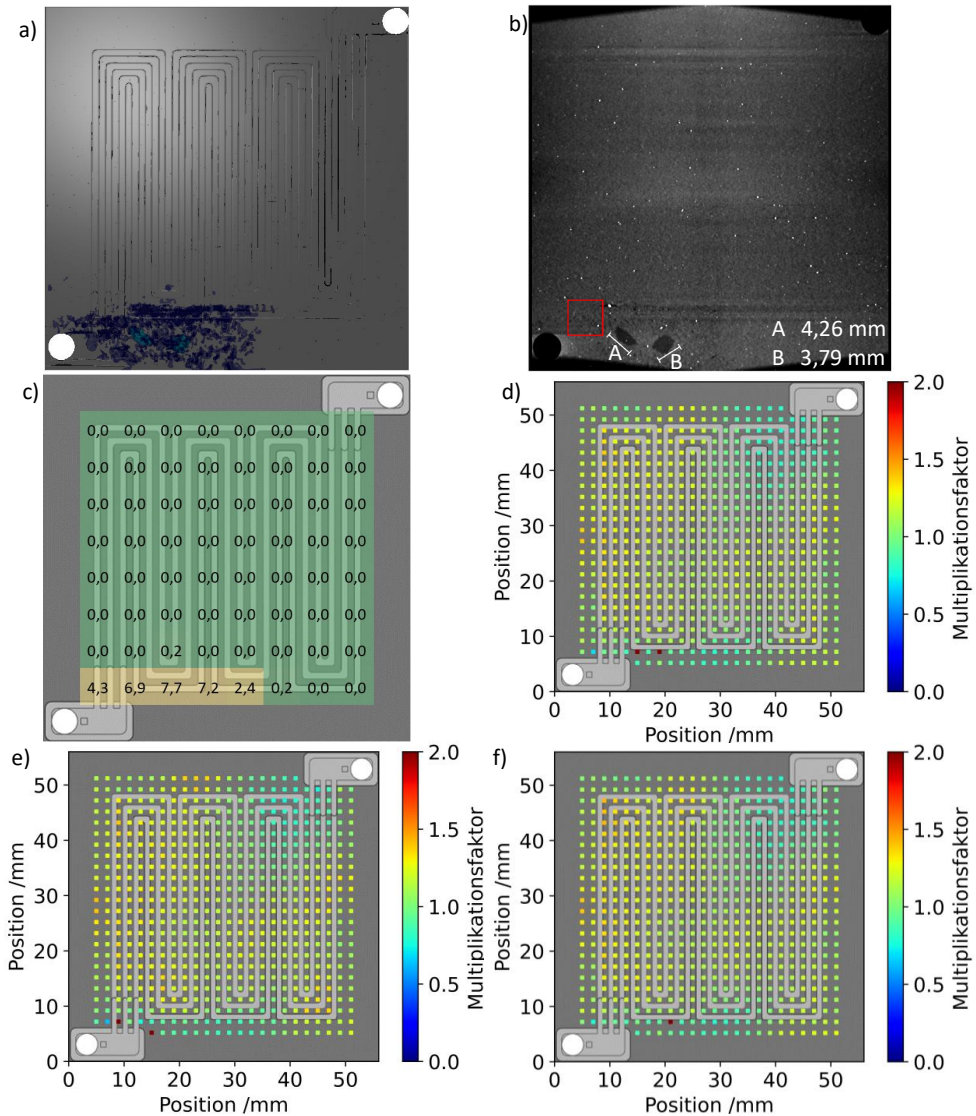


Abbildung 4.35: Auswertung der Probe „Holzpartikel B“. a) Übersichtmodell mit Verteilung der Holzpartikel, b) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe mit angedeutetem Vergleichsschnitt und zwei die Oberfläche berührende Holzpartikel, c) Verteilung der Volumenanteile der Holzpartikel in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren aus der Potentialfeldmessung, e) Multiplikationsfaktoren aus Wiederholungsmessungen der Potentialfeldmessung, f) Multiplikationsfaktoren aus Wiederholungsmessungen der Potentialfeldmessung

#### 4.4.3 Monopolarplatten mit flächigen nicht leitenden Bereichen

Als Beispiel für einen massiven Mangel in der Monopolarplatte, wie einer lokalen Entmischung des Graphit-Komposit-Materials mit hohem Polymeranteil und geringem leitfähigem Füllmaterialanteil wird der Monopolarplatte zusätzlicher Kunststoff beigemischt. Die künstlich eingebrachten Mängel

aus zusätzlichem Kunststoff bilden ein zusammenhängendes Gebilde, wie der Ausschnitt aus einem Röntgentomographiebild in Abbildung 4.36 zeigt. Der 6 mm x 5 mm große Ausschnitt umfasst drei Stege sowie zwei vollständig und zwei abgeschnitten dargestellte Kanäle über die komplette Höhe der Monopolarplattenprobe. Im linken Teil der Abbildung ist das unbearbeitete Graustufenbild der Computertomographie zu sehen. Die Kunststoffansammlungen sind in einem helleren Grauton dargestellt und erstrecken sich von dem linken Drittel aus bis zu dem rechten Rand des Ausschnittes. In einem Segmentierungsprozess können die helleren Grauwerte dem Kunststoffmaterial zugeordnet und markiert werden, wie in der rechten Abbildung in Rot dargestellt. Schwierigkeiten bei der Segmentierung kommen unter anderem durch Messartefakte, wie einer helleren Darstellung der Stege, zustande. In diesem Bereich ist durch die Kanalstruktur insgesamt weniger Material vorhanden, sodass es bei der Röntgentomographie zu dieser Ausprägung kommt. Bei der subjektiven Segmentierung kann es so zu Abweichungen zwischen markierten und tatsächlich vorliegenden Fremdkörpern kommen. Im Gegensatz zu den vereinzelt Fremdkörpern in den mit Holzpartikel versehenen Proben, bilden die Ansammlungen aus Kunststoff großflächige zusammenhängende Mängel in der Monopolarplatte aus.

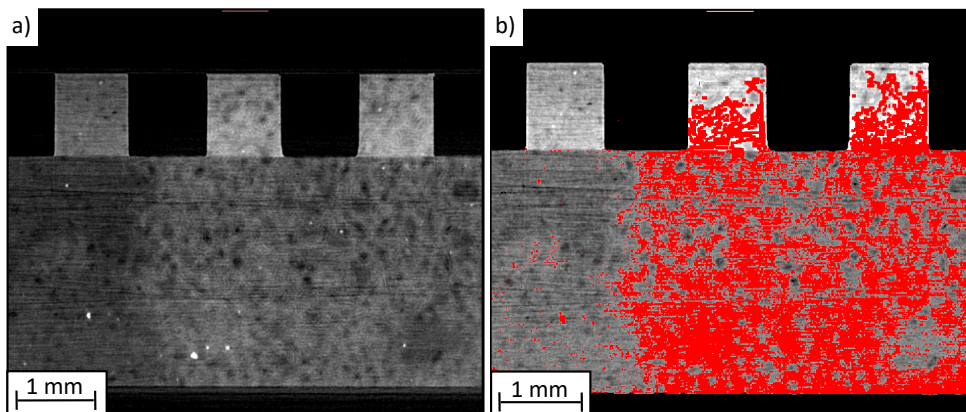


Abbildung 4.36: a) Ausschnitt aus dem Tomogramm einer Monopolarplatte mit Kunststoffansammlung, b) Tomogramm mit Segmentierung des Kunststoffs

Die Monopolarplatte mit der Bezeichnung „Kunststoff A“ besitzt über die gesamte aktive Zellfläche verteilt Kunststoffansammlungen im Inneren der Probe, die teilweise bis an den oberen und unteren Rand der Probe reichen. Ein Übersichtsmodell der Probe mit transparenter Monopolarplatte zeigt die Ausbreitung des Kunststoffs in der Probe (vgl. Abbildung 4.37a). Die von außen sichtbaren Kunststoffansammlungen an der Oberfläche sind für die Oberseite des Strömungsfeldes der Monopolarplatte in leuchtendem Rot und für die Unterseite der Monopolarplatte in dunklem Rot dargestellt. Die an der Oberseite befindliche Kunststoffansammlung befindet sich in der unteren linken Ecke des Strömungsfeldes. Die von der Unterseite einsehbaren Kunststoffansammlungen sind auf

halber Höhe des Strömungsfeldes verteilt (vgl. Abbildung 4.37d). Die Kunststoffansammlungen im Inneren der Probe, markiert durch ein blasses Rot, sind großflächiger verbreitet als die Kunststoffansammlungen an der Oberseite und der Unterseite. Unterstützt wird die Darstellung des Übersichtsmodells durch Schnittansichten durch das Röntgentomogramm der Probe „Kunststoff A“. Die Schnittansichten zeigen jeweils die Graustufenverteilung in der obersten Schicht, in einer Schicht in der Mitte der Monopolarplatte und in der untersten Schicht. Zusätzlich ist der erste Auswertebereich für die Analyse des Volumenanteils der Störkörper eingezeichnet (vgl. Abbildung 4.37b-d).

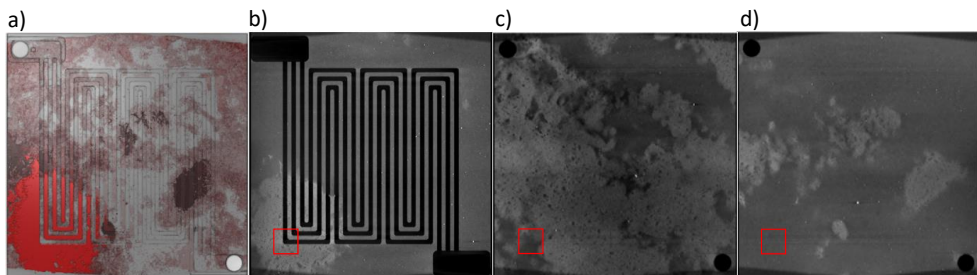


Abbildung 4.37: Computertomographieaufnahmen und Modell für die Probe „Kunststoff A“ als Beispielprobe für eine Monopolarplatte mit massiven Mängeln. a) Übersichtsmodell mit Kunststoffansammlung auf der Oberseite in leuchtendem Rot, im Inneren der Probe in blassem Rot und auf der Unterseite in dunklem Rot, b) Schnittansicht des Tomogramms an der obersten Schicht, c) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe, d) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe, mit jeweils markiertem ersten Vergleichsausschnitt

Die Auswertung der Multiplikationsfaktoren aus der Potentialfeldmessung an der Monopolarplatte „Kunststoff A“ in Bezug auf die Simulation einer idealen Platte liefert qualitativ eine vergleichbare Abbildung der Verteilung der Kunststoffansammlung, wie sie in dem Übersichtsmodell dargestellt ist (vgl. Abbildung 4.38a und Abbildung 4.38b). Im Vergleich zu den Darstellungen der Referenzplatten muss die Skala der Multiplikationsfaktoren angepasst werden. Zur besseren Darstellung der Ergebnisse wird eine logarithmische Skalierung mit einem Minimum von 1 und einem Maximum von 100 gewählt. Die Multiplikationsfaktoren suggerieren, dass eine unbeeinträchtigte Stromleitung in der Monopolarplatte nur in der oberen rechten Ecke der aktiven Zellfläche möglich ist. Mit der Röntgentomographie können in diesem Bereich keine Kunststoffansammlungen detektiert werden. Die farbliche Abstufung der Multiplikationsfaktoren zeigt die Abweichung von der Simulation einer idealen Platte und gibt einen Hinweis darauf, wie stark die Leitfähigkeit der Monopolarplatte durch die Mängel beeinträchtigt wird. Kunststoffansammlungen an der Oberfläche der Probe beeinträchtigen das Ergebnis am stärksten, woraus sich ableiten lässt, dass diese Mängel den ohmschen Widerstand in einer Brennstoffzelle am stärksten negativ beeinflussen. Dies wird bei einer Betrachtung der Volumenanteile der nichtleitenden Kunststoffansammlungen bestätigt (siehe Abbildung 4.38c). Die höchsten Multiplikationsfaktoren befinden sich nicht an Positionen mit den höchsten Volumenanteilen

der Mängel, sondern dort, wo die nichtleitenden Mängel die Oberfläche der Platte berühren. Bei der Kunststoffansammlung unten links ist der ohmsche Widerstand so groß, dass die Leistung der SMU nicht ausreicht, um einen Strom von 1 A in die Probe zu geben. Mängel im Inneren der Probe können bei massiver Verbreitung, wie in der oberen linken Ecke der aktiven Zellfläche ebenfalls einen großen Einfluss auf die Leitfähigkeit der Monopolarplatte nehmen. Im Vergleich zur Simulation einer idealen Monopolarplatte sind die Multiplikationsfaktoren in diesem Bereich um den Faktor 10 bis 60 erhöht. Für weniger massive Störungen in der Mitte der Probe fällt der Multiplikationsfaktor niedriger aus, weicht jedoch auch stark von einem idealen Wert von 1 ab.

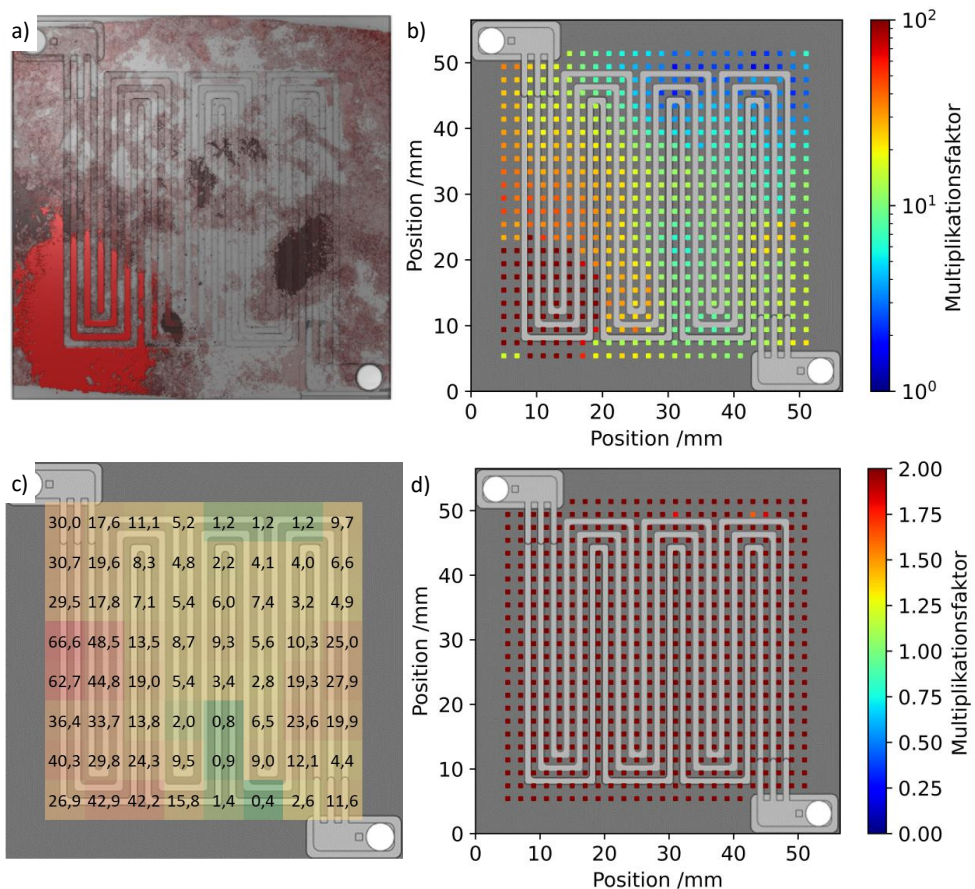


Abbildung 4.38: Vergleich für die Probe "Kunststoff A" zwischen a) Übersichtsmodell aus Tomographiedaten, b) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung mit einer logarithmischen Skala von 1 bis 100, c) Volumenanteile der Kunststoffansammlungen in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 2

Generell kann jedoch keine klare Grenze ermittelt werden, ab dem massive Mängel mit der Methode der Potentialfeldmessung detektiert werden. Bereiche mit Störungen können einen Einfluss auf die Detektion von Bereichen ohne Störung haben. Der Bereich oben rechts in dem Strömungsfeld hat



Mängel mit einem Volumenanteil von unter 2 Vol.-% und wird mit der Potentialfeldmessmethode als mängelfrei erkannt (siehe Abbildung 4.38a). Im Bereich unten in der Mitte des Strömungsfeldes mit Volumenanteilen für die Mängel von teilweise weniger als 1 Vol.-% werden höhere Multiplikationsfaktoren ermittelt und der Bereich wird nicht als mängelfrei erkannt (vgl. Abbildung 4.38d). Bei einer Bewertung eines Mangels ab einem Multiplikationsfaktor von 2, also dem doppelten simulierten Wert einer idealen Probe, wird die gesamte Probe „Kunststoff A“ als mit Störungen versehen bewertet. Dies schließt auch große Bereiche in der Probe mit Volumenanteile von weniger als 10 Vol.-% mit ein. Die Mängel sind hauptsächlich in der Ebene verteilt, wie auch in der Schnittansicht in der Mitte der Probe in Abbildung 4.37c zu erkennen ist. Die zusammenhängenden Mängel blockieren daher den Stromfluss durch die Platte auf einer großen Fläche und werden dem entsprechend mit der Potentialfeldmessmethode erkannt.

Eine genauere Betrachtung von innenliegenden flächig ausgebreiteten Mängeln ermöglicht die Probe „Kunststoff B“. Im Bereich des Strömungsfeldes sind auf der Oberseite dieser Probe im Gegensatz zur Probe „Kunststoff A“ optisch keine Kunststoffansammlungen erkennbar, die auf einen Mangel in der Monopolarplatte hindeuten. Die Kunststoffansammlungen an der Unterseite und im Inneren dieser Probe können durch die Röntgentomographie sichtbar gemacht werden (siehe Abbildung 4.39). Die Kunststoffansammlungen in dieser Probe bestehen aus in der Plattenebene ausgebreiteten Flecken mit Abmaßen von größtenteils mehr als 5 mm und Dicken von mehr als 1 mm, wie vereinzelt Maßangaben in Abbildung 4.39c und e zeigen. Die einzelnen Kunststoffansammlungen schließen sich zu größeren Ansammlungen zusammen, wie in Abbildung 4.39c zu erkennen und durch die Bemaßung D in Abbildung 4.39e angedeutet ist. Insgesamt sind die künstlich eingebrachten Mängel in der Probe „Kunststoff B“ etwas lückenhafter, als die künstlich eingebrachten Mängel in der Probe „Kunststoff A“.

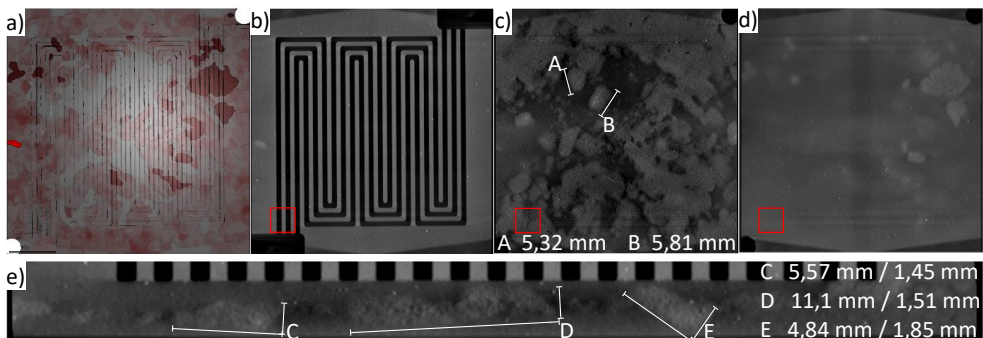


Abbildung 4.39: Computertomographieaufnahmen und Modell für die Probe „Kunststoff B“ a) Übersichtsmittelwertmodell mit Kunststoffansammlung auf der Oberseite in leuchtendem Rot, im Inneren der Probe in blasserem Rot und auf der Unterseite in dunklerem Rot, b) Schnittansicht des Tomogramms an der obersten Schicht, c) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe mit vereinzelt markierten Mängeln, d) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe, mit jeweils markiertem ersten Vergleichsausschnitt, e) Schnitt quer durch das Tomogramm mit vereinzelt markierten Mängelgrößen

Die massiven Mängel in der Probe „Kunststoff B“ beeinflussen die elektrische Leitfähigkeit weniger stark als die Mängel in der Probe „Kunststoff A“, da diese hauptsächlich im Innern der Probe liegen. Dies zeigt sich an den niedrigeren Multiplikationsfaktoren in Abbildung 4.40b, die mit einer Skala von 0 bis 10 erfasst werden können. Die Verteilung der Multiplikationsfaktoren entspricht qualitativ der Verteilung der markierten Mängel in dem aus Tomographiedaten erstellten Modell (Abbildung 4.40a). Ein Vergleich mit der Analyse der Volumenanteile der Kunststoffansammlungen zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Multiplikationsfaktoren.

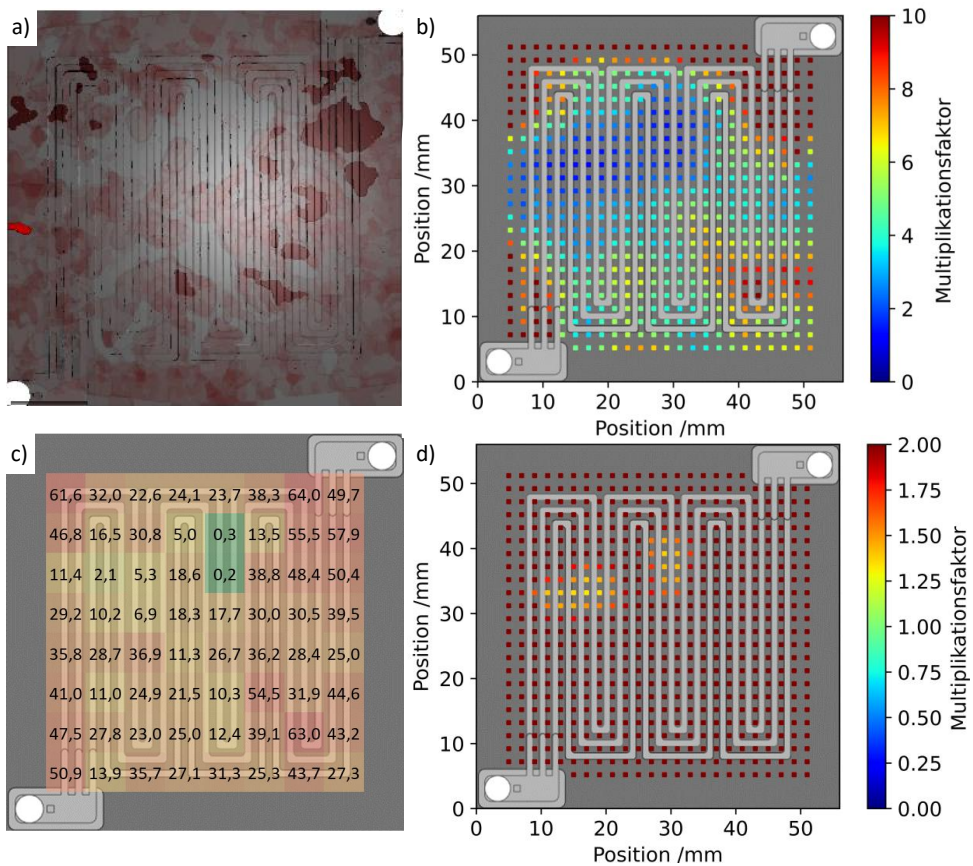


Abbildung 4.40: Vergleich für die Probe "Kunststoff B" zwischen a) Übersichtsmodell aus Tomographiedaten, b) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 10, c) Volumenanteile der Kunststoffansammlungen in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 2

In den Bereichen mit den höchsten Volumenanteilen aus Abbildung 4.40c werden auch die höchsten Multiplikationsfaktoren ermittelt. Bei einem Bewertungskriterium eines Defektes ab einem Multiplikationsfaktor von 2 wird die Probe „Kunststoff B“ bis auf zwei Ausnahmereiche mit geringeren Volumenanteilen der Kunststoffansammlungen als vollständig von Störungen durchzogen bewertet. Ab einem Volumenanteil der flächigen Mängel von über 6,9 Vol.-% wird der Bereich mit der

Methode der Potentialfeldmessungen als Defekt markiert. Dabei ist darauf hinzuweisen, dass es sich bei den 6,9 Vol.-% nicht um einen klaren Schwellwert handelt, ab dem ein Defekt erkannt werden kann. Bei diesem Wert handelt es sich um eine Abschätzung die von weiteren Größen wie der Segmentierung der Röntgendaten, der Verteilung und Ausbreitung der Mängel sowie der Platzierung und Größe der Auswertevolumina abhängig ist.

In den übrigen Monopolarplatten mit massiven Mängeln, eingebracht durch künstliche Kunststoffansammlungen, befinden sich die Mängel konzentriert an einer Stelle und reichen bis an die Oberfläche der Monopolarplatten. Der Vergleich zwischen dem Modell aus Tomographiedaten und den Potentialmessungen für die Probe „Kunststoff C“ belegen, dass die Ausbreitung dieser Ansammlungen gut erkannt werden kann (vgl. Abbildung 4.41). Durch die Lage der Kunststoffansammlungen an den Oberflächen ergeben sich die hohen Multiplikationsfaktoren, die auf einen erhöhten ohmschen Widerstand in diesem Bereich hindeuten. Die Ergebnisse der weiteren Messungen sind im Anhang A7 abgedruckt.

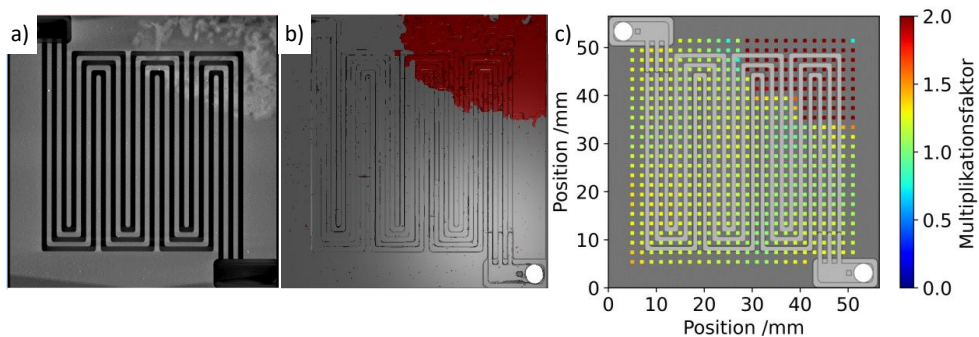


Abbildung 4.41: Analyse der Mängelverteilung in der Probe „Kunststoff C“ mit a) Querschnitt aus Tomogramm, b) Modell aus Tomographiedaten, c) Multiplikationsfaktoren aus Potentialfeldmessungen

Ein weiteres Beispiel für massive Mängel in graphitischen Bipolarplatten sind sich flächig ausbreitende Risse. Diese können in der Probe „Holzpartikel C“ detektiert werden. Die Risse befinden sich hauptsächlich in der rechten Hälfte der Monopolarplatte und reichen bis an das Strömungsfeld heran. Für eine detaillierte Betrachtung der Risse werden Röntgentomographieaufnahmen und Potentialfeldmessungen von der rechten unteren Ecke sowie von der rechten oberen Ecke der Monopolarplatte durchgeführt. Die Röntgentomographiebilder und das aus den Tomographiedaten abgeleitete Modell zeigen die Ausbreitung der Risse (vgl. Abbildung 4.42). Die Risse bilden sich entlang der Holzpartikel in der Probe aus und orientieren sich, wie die Schnittansicht in XZ-Richtung in Abbildung 4.42c und Abbildung 4.42f zeigen, hauptsächlich parallel zur Plattenebene. In den Modellen der Tomographieaufnahmen wird die flächige Ausbreitung des Risses deutlich. Die Risse sind in der Modelldarstellung in Gelb markiert.

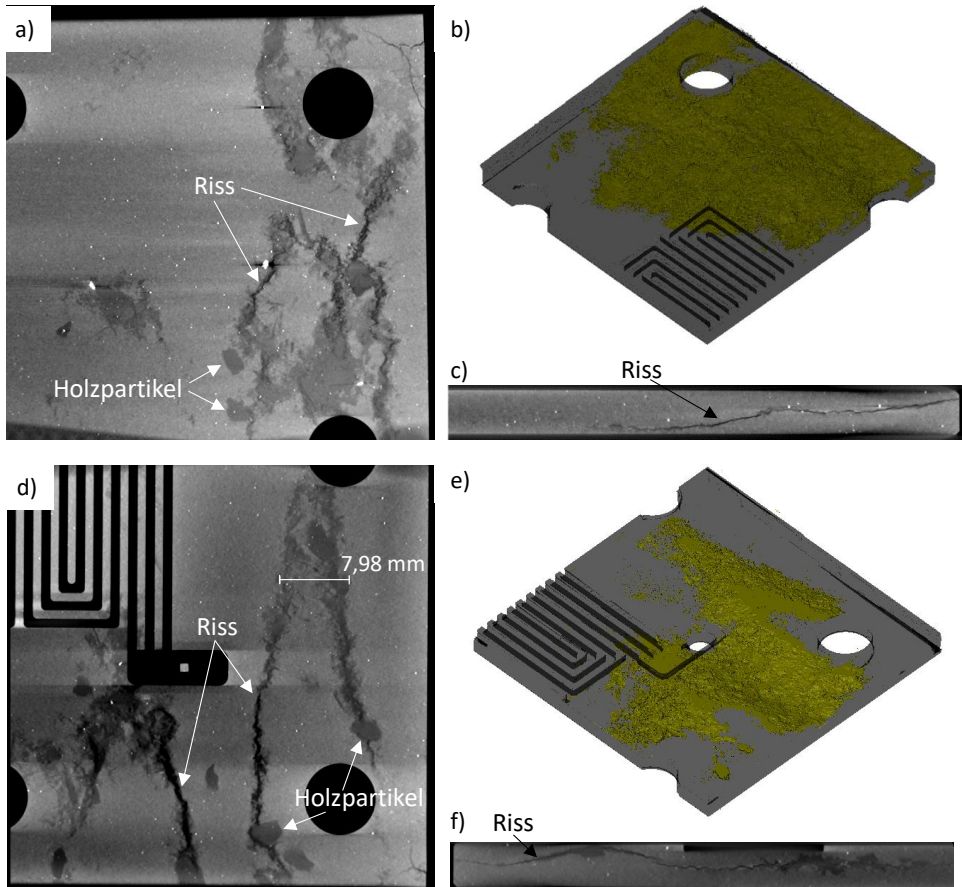


Abbildung 4.42: Röntgentomographieaufnahmen und Modellbildung der Probe „Holzpartikel C“. a) XY-Schnitt durch das Tomogramm an der rechten oberen Ecke, b) Isometrische Ansicht des Modells mit Rissausbreitung an der rechten oberen Ecke, c) XZ-Schnitt durch das Tomogramm der rechten oberen Ecke, d) XY-Schnitt durch das Tomogramm an der rechten unteren Ecke, e) Isometrische Ansicht des Modells mit Rissausbreitung an der rechten unteren Ecke, f) XZ-Schnitt durch das Tomogramm der rechten unteren Ecke

Für die Auswertung der Multiplikationsfaktoren werden die Messungen an der Monopolarplatte „Holzpartikel C“ auf Messungen an einer Probe ohne Risse, der Probe „Referenzplatte D“, bezogen. Ein Vergleich zwischen den Modellen aus der Röntgentomographie und den Multiplikationsfaktoren zeigt, dass die flächigen Risse gut erkannt werden. Sobald die Risse jedoch schmäler werden, in diesem Beispiel bei einer Breite von ca. 8 mm, wird auch deren Detektion durch die Methode mit den Potentialfeldern schwieriger. Dies ist erkennbar an den Multiplikationsfaktoren in Abbildung 4.43d. In diesem Bereich liegt zwar ein Riss vor, die Multiplikationsfaktoren liegen jedoch nur leicht über den typischen Abweichungen innerhalb der Referenzplatten (vgl. Abbildung 4.32). Daraus lässt sich ableiten, dass massive Risse mit Ausrichtung in der Plattenebene erkannt werden, kleine Risse jedoch nicht zweifelsfrei mit dieser Methode erkannt werden können.



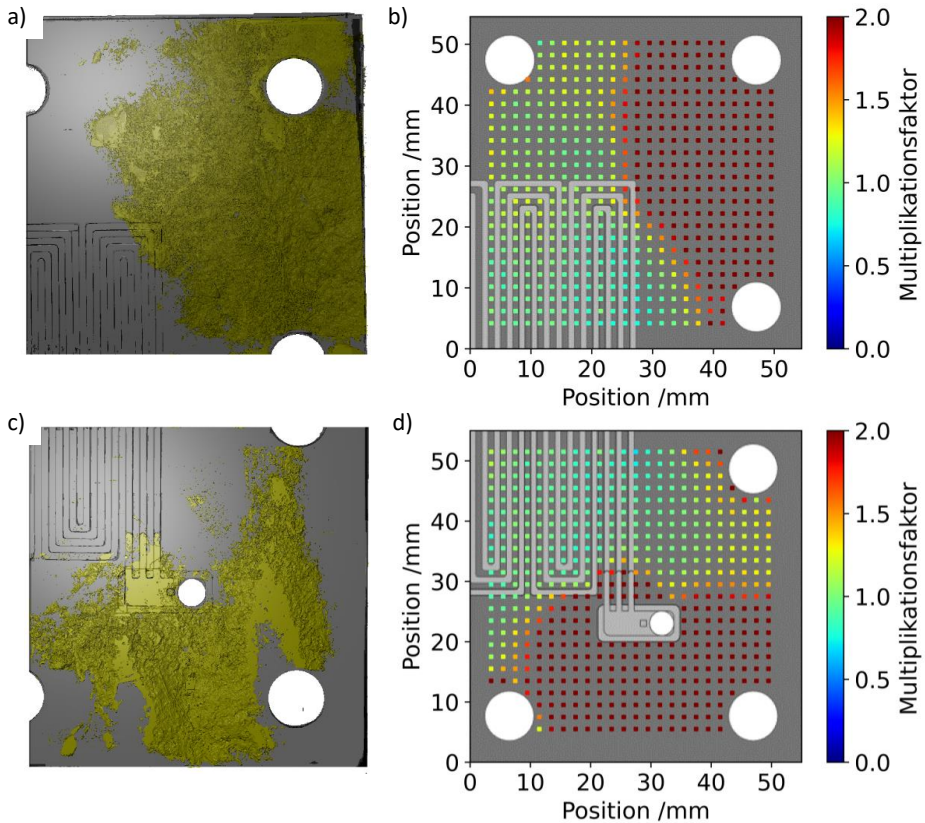


Abbildung 4.43: Vergleich des Modells aus der Röntgentomographie mit den Potentialfeldmessungen zur Detektion der Risse in der Probe „Holzpartikel C“

Aus Sicherheitsgründen wird vor jedem Brennstoffzellentest ein Dichtigkeitstest durchgeführt. Aufgrund der Risse, die von der Gaseinleitung bis an den Rand der Probe reichen, besteht die Monopolarplatte „Holzpartikel C“ diesen Test nicht. Im Folgenden wird diese Platte für die Bewertung des Einflusses der Defekte auf die Brennstoffzellenleistung daher nicht weiter berücksichtigt.

#### 4.4.4 Monopolarplatte mit beschädigtem Strömungsfeld

Eine Möglichkeit die Leitfähigkeit des Monopolarplattenmaterials zu erhöhen ist die Beimischung von zusätzlichen leitfähigen Partikeln. Die Beimischung von zusätzlichen Stahlpartikeln in hoher Konzentration bewirkt jedoch auch eine Versprödung des Materials. Im Falle der für diese Arbeit hergestellten Monopolarplatten sorgt dieser Effekt dafür, dass die Platten den Transport zum Forschungszentrum und das weitere Handling der Proben während der Messungen nicht unbeschadet überstehen. Insbesondere brechen an den Stegen des Strömungsfeldes Stücke aus der

Monopolarplatte heraus. Das Wegbrechen an den Stegen wiederum hat zur Folge, dass die Monopolarplatte in den Potentialfeldmessungen in dem mit Stahlpartikeln versehenen Bereich nicht richtig kontaktiert werden kann. Abbildung 4.44 zeigt ein Bild der Probe „Stahlpartikel A“ mit künstlich hinzugefügten Stahlpartikeln. Der Bereich mit den Stahlpartikeln in der oberen linken Ecke des Strömungsfeldes und den weggebrochenen Stegen ist gut sichtbar. In der Röntgentomographie sticht dieser Bereich ebenfalls heraus, wie eine Schnittansicht durch das Tomogramm zeigt (vgl. Abbildung 4.44b). Die Stahlpartikel absorbieren die Röntgenstrahlen deutlich besser als das Basismaterial der Monopolarplatte. Bei den Einstellungen des Computertomographen, die auf eine Untersuchung des Monopolarplattenmaterials abgestimmt sind, absorbieren die Stahlpartikel die Röntgenstrahlen so gut, dass es zur Bildung eines Messartefaktes kommt. Der Bereich mit Stahlpartikeln wird durch einen großen Block dargestellt, in dem eine detaillierte Analyse der inneren Struktur und des Mischungsverhältnisses von Stahlpartikeln mit dem Monopolarplattenmaterial nicht möglich ist. Die Analyse der Potentialfelder im Vergleich zur Simulation zeigt dort deutlich erhöhte Multiplikationsfaktoren, wo der Prüfkopf die Monopolarplatte nicht ausreichend kontaktieren kann. Am sichtbarsten ist dies bei der oberen mittleren Biegung des Strömungsfeldes, in dem die Stege komplett weggebrochen sind. Der Teststand kann somit genutzt werden, um große Formfehler zu detektieren, die mit dem Federmechanismus in den Messspitzen des Prüfkopfes nicht ausgeglichen werden können. Die Bereiche, die mit dem Prüfkopf des Teststandes nicht kontaktiert werden können, werden in einer Brennstoffzelle durch die GDL ebenfalls nicht kontaktiert und bilden einen Defekt im Brennstoffzellenaufbau.

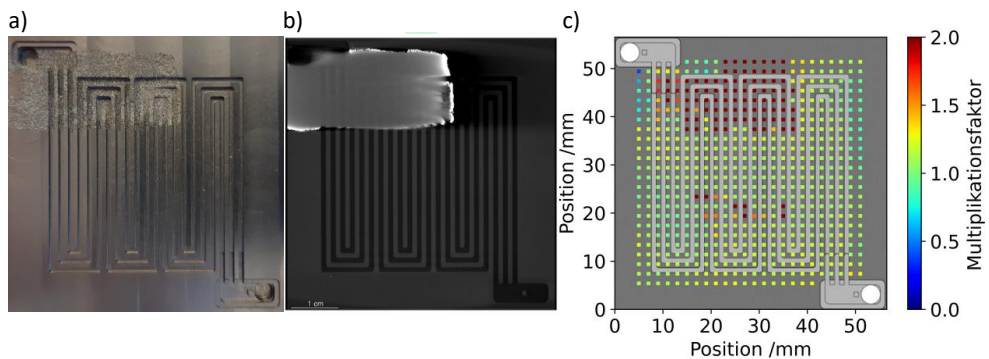


Abbildung 4.44: Auswertung der Probe „Stahlpartikel A“. a) Foto der Probe, b) Schnitt durch das Tomogramm der Probe, c) Multiplikationsfaktoren aus den Potentialfeldmessungen

Oben links neben dem Strömungsfeld scheint das Verbundmaterial aus Stahlpartikel und Graphit-Komposit-Material weitgehend intakt zu sein, sodass die Multiplikationsfaktoren sinken, bis die gemessenen Potentialwerte die simulierten Werte einer idealen Probe deutlich unterschreiten und auf eine bessere Leitfähigkeit in diesem Bereich hindeuten. Des Weiteren sind mehrere Punkte mit

erhöhten Multiplikationsfaktoren in der unteren Hälfte der Probe auffällig, die auf eine Unregelmäßigkeit in der Monopolarplatte hindeuten. Für diese Unregelmäßigkeit lassen sich in einer Untersuchung mittels Röntgentomographie jedoch keine Erklärungspunkte finden.

### 4.5 Einfluss der detektierten Mängel auf die Brennstoffzellenleistung

Das Ergebniskapitel dieser Arbeit schließt mit den Ergebnissen der Untersuchungen zum Einfluss der in den beschriebenen Proben vorliegenden Mängel auf die Brennstoffzellenleistung. Eine wichtige Eigenschaft, die durch die Mängel beeinflusst werden kann und in ex-situ Messungen bestimmt werden kann, ist der ohmsche Widerstand der Monopolarplatte. Dieser wird zunächst für eine Kontaktierung des kompletten aktiven Zellbereichs untersucht. Anschließend wird der ohmsche Widerstand von einem mit Holzpartikeln versehenen Teilstück der Probe „Holzpartikel C“ detaillierter betrachtet. Für eine abschließende Bewertung des Einflusses der Mängel werden Polarisationskurven und Impedanzspektren von Brennstoffzellentests mit Referenzmonopolarplatten und mit Mängeln versehenen Monopolarplatten analysiert.

#### 4.5.1 Bestimmung des ohmschen Widerstandes bei Kontaktierung der aktiven Zellfläche

Mit dem in Kapitel 3.5.2 beschriebenen Versuchsaufbau wird der ohmsche Widerstand der Monopolarplatte über die aktive Zellfläche in Abhängigkeit des Anpressdruckes gemessen. Der Anpressdruck besitzt einen Einfluss auf die Kontaktwiderstände zwischen der Monopolarplatte und der GDL, die Kontaktwiderstände zwischen dem Goldstempel und der GDL und den ohmschen Widerstand der GDL. Auf den ohmschen Widerstand der inkompressiblen Monopolarplatte hat der Anpressdruck keinen Einfluss. Für einen Vergleich des ohmschen Widerstandes in Referenzmonopolarplatten und mit Mängeln versehenen Platten werden daher die Widerstandswerte bei hohen Anpressdrücken herangezogen. Die Messungen der ohmschen Widerstände der untersuchten Monopolarplatten in Abhängigkeit des Anpressdruckes in Abbildung 4.45 zeigen eine exponentielle Verringerung des Widerstands bei zunehmendem Druck. Die einzelnen Kurven laufen asymptotisch gegen einen Widerstandswert, der sich aus den Kontaktwiderständen und Bulkwiderständen der einzelnen Komponenten zusammensetzt. Ab einem Anpressdruck von ca. 0,5 MPa ändern sich die Widerstandswerte kaum noch. Die Kontaktwiderstände der einzelnen Komponenten und der Widerstand der GDL sind ab diesem Anpressdruck nahezu konstant und werden für alle Messungen als gleich angenommen. Für die „Referenzplatte A“ ergibt sich der gemessene Gesamtwiderstand bei der Auswertung bei einem Anpressdruck von 1,5 MPa zu  $17,35 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$  und für

die „Referenzplatten B, C und D“ ergibt sich der gemessene Gesamtwiderstand zu jeweils  $17,37 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ ,  $16,46 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$  und  $16,95 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ . Die mit Holzpartikeln versehenen Monopolarplatten „Holzpartikel A“ und „Holzpartikel B“ besitzen einen ähnlichen Gesamtwiderstand, wie die Referenzplatten mit  $17,34 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$  bzw.  $18,35 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ . Daran zeigt sich, dass die in den untersuchten Monopolarplatten befindlichen Holzpartikel einen nicht messbaren Einfluss auf den elektrischen Widerstand der gesamten Platte haben. Die mit Stahlpartikeln versehene Probe weist bei einem Anpressdruck von  $1,5 \text{ MPa}$  einen leicht höheren Widerstandswert auf. Dies ist auf die fehlende Kontaktierung zwischen der Monopolarplatte und der GDL an den weggebrochenen Stegen zurückzuführen. Die mit Kunststoffansammlungen versehenen Proben haben im Vergleich zu den Referenzproben ebenfalls einen deutlich erhöhten Widerstand. Der höchste Widerstand wird bei der Probe „Kunststoff A“ gemessen. Die Kunststoffansammlung durchdringt in dieser Probe die Oberfläche der Monopolarplatte, sodass nicht nur der Bulkwiderstand der Monopolarplatte, sondern auch der Kontaktwiderstand von der Monopolarplatte und der GDL erhöht wird. In der Probe „Kunststoff B“ befinden sich die Kunststoffansammlung hauptsächlich im Inneren der Monopolarplatte. Bei dieser Platte ist der Unterschied des Widerstands im Vergleich zu den Referenzplatten nicht so ausgeprägt.

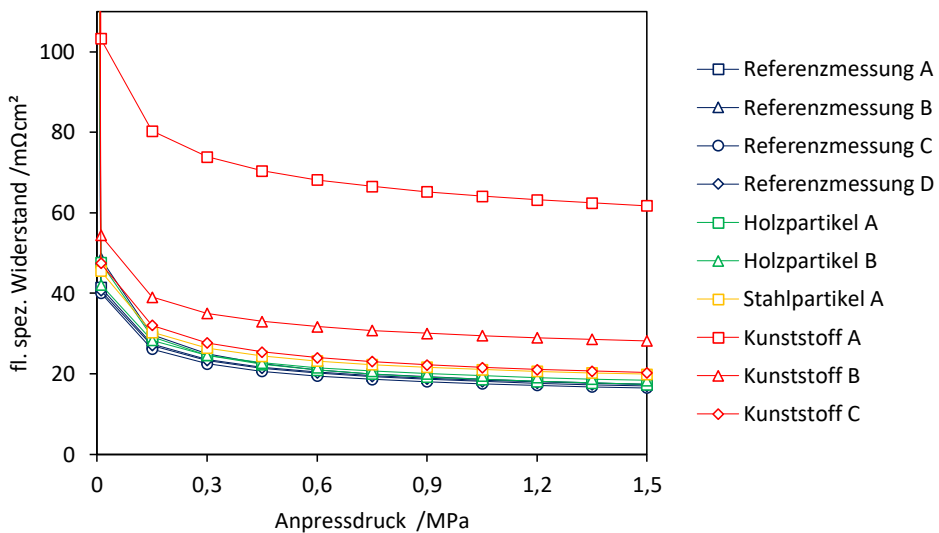


Abbildung 4.45: Gesamtwiderstände des Versuchsaufbaus in Abhängigkeit des Anpressdruckes

#### 4.5.2 Detaillierte Widerstandsbestimmung an einem Monopolarplattenausschnitt

Mit einem den Kontaktierungen in einer Brennstoffzelle nachempfundenen Versuchsaufbau sind erhöhte elektrische Widerstände in den mit Holzpartikeln versehenen Monopolarplatten nicht

messbar. Der mit Holzpartikeln versehene Bereich ist im Vergleich zu dem gesamten Strömungsfeld klein. Messungen und Simulationen an 2 cm x 2 cm großen Ausschnitten aus der Monopolarplatte „Holzpartikel D“ erlauben eine detailliertere Analyse des Einflusses von Holzpartikeln auf den elektrischen Widerstand der Monopolarplatte. Der Anteil der segmentierten Holzpartikel an dem Volumen des untersuchten Monopolarplattenteilstückes aus der Probe „Holzpartikel D“ beträgt ungefähr 1,6 %. Die Holzpartikel befinden sich hauptsächlich in der Grundplatte der Monopolarplatte. Wie in der Modelldarstellung des Details gezeigt, konzentriert sich die Verteilung der Holzpartikel an dem Rand der Umlenkung des Dreifach-Mäanders des Strömungsfeldes (siehe Abbildung 4.46 b-d).

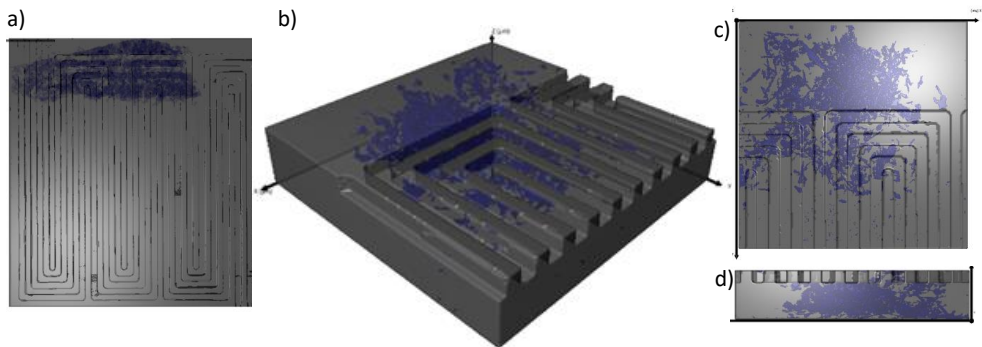


Abbildung 4.46: Modell aus Tomographiedaten für einen Ausschnitt aus der Probe Holzpartikel C, a) Draufsicht auf das gesamte Strömungsfeld mit markierten Holzpartikeln, b) 3-D Übersicht des Teilstückes, b) Draufsicht auf das Detail, c) Seitenansicht des Details

Das Modell des Teilstückes aus dem Computertomographen wird in ein Simulationsmodell zur Berechnung des elektrischen Potentialverlustes über einen Messaufbau eines GDL-Monopolarplatte-GDL-Sandwiches übertragen. Die Materialparameter und Kontaktbedingungen des Teilstückes für das Simulationsmodell werden aus Messungen nach den Aufbauten der Experimentreihe aus Kapitel 3.5.2 bestimmt. Die Ergebnisse der Widerstandsmessung zeigen den flächenspezifischen Widerstand für die in-plane Messungen an der Monopolarplatte und der GDL (vgl. Abbildung 4.47: Messergebnisse des in-plane und through-plane Versuchsaufbau Abbildung 4.47a) sowie die through-plane Messergebnisse der fünf through-plane Versuchsaufbauten in Abhängigkeit des Anpressdruckes (vgl. Abbildung 4.47b). Aus der Steigung der Messergebnisse in Abbildung 4.47a bestimmt sich der spezifische in-plane Widerstand des 150  $\mu\text{m}$  dicken GDL-Materials für das Simulationsmodell zu 9,57  $\text{m}\Omega\text{ cm}$  und der des Monopolarplattenmaterials zu 8,9  $\text{m}\Omega\text{ cm}$ . Die spezifischen through-plane Widerstände berechnen sich nach den Gleichungen 3.3 bis 3.7 mit den Messergebnissen aus Abbildung 4.47b für einen Anpressdruck von 5 MPa zu 57,27  $\text{m}\Omega\text{ cm}$  für das GDL-Material und zu 22,17  $\text{m}\Omega\text{ cm}$  für das Monopolarplattenmaterial. Bei einem Anpressdruck von 2,5 MPa steigt der Wert des through-plane Widerstandes der GDL auf 105,87  $\text{m}\Omega\text{ cm}$ . Die flächenbezogenen Kontaktwiderstände zwischen der

Monopolarplatte und der GDL sowie zwischen der GDL und dem Goldstempel betragen für einen Anpressdruck von 5 MPa  $0,68 \Omega \text{ cm}^2$  bzw.  $0,88 \Omega \text{ cm}^2$ . Bei einem Anpressdruck von 2,5 MPa erhöht sich der flächenspezifische Kontaktwiderstand zwischen der Monopolarplatte und der GDL auf  $0,79 \Omega \text{ cm}^2$  und der flächenspezifische Kontaktwiderstand zwischen der GDL und dem Goldstempel auf  $1,01 \Omega \text{ cm}^2$ .

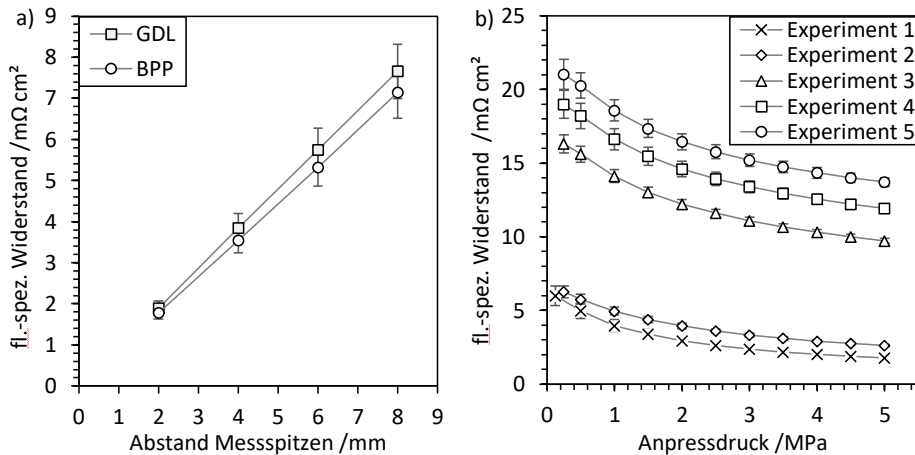


Abbildung 4.47: Messergebnisse des in-plane und through-plane Versuchsaufbau, adaptiert nach [103]

Die Ergebnisse der Simulation für ein Teilstück der Monopolarplatte mit Holzpartikeln und für ein ideales Monopolarplattenteilstück ohne Holzpartikel sind in Abbildung 4.48 für die Anpressdrücke 5 MPa durch die roten Linien und für 2,5 MPa durch die blauen Linien dargestellt. Die Potentialkurven zeigen den Verlauf des Potentialabfalls entlang einer vertikalen Auswertungslinie innerhalb des Modells. Die Verluste durch den Kontaktwiderstand werden durch horizontale Linien in der Potentialkurve dargestellt. Im Goldstempel gibt es aufgrund der hohen elektrischen Leitfähigkeit des Metalls keinen erkennbaren Spannungsverlust. Die obere GDL, die in Kontakt mit der Strömungsfeldstruktur der Monopolarplatte steht, und die Kontaktwiderstände auf dieser Seite sind bei einer Simulation mit einem Anpressdruck von 5 MPa für einen Spannungsverlust von 3,73 mV verantwortlich. Dies entspricht ungefähr 22,6 % des gesamten Spannungsverlustes im Simulationsmodell für die ideale Monopolarplatte. Der Kontaktverlust zwischen der oberen GDL und der Bipolarplatte wird im Simulationsmodell mit dem Strömungsfeld überschätzt, da in dem Modell nur die kleinere Kontaktfläche aufgrund der Strömungsfeldstruktur berücksichtigt wird. Die bessere Leitfähigkeit innerhalb der GDL und an der Kontaktfläche aufgrund des höheren Anpressdrucks an den Strömungsfeldrippen wird nicht berücksichtigt. In Übereinstimmung mit Qiu et al. [132] zeigen die Experimente zur Bestimmung der through-plane Widerstände aus Abbildung 4.47, dass die Änderung des Gesamtwiderstands der GDL und der BPP mit zunehmendem Druck minimal wird, wodurch die

Abweichung in der Simulation für höhere Drücke reduziert wird. Der Kontaktverlust der unteren GDL mit der BPP ist im Simulationsmodell im Vergleich zur oberen Kontaktfläche geringer, was auf eine größere Kontaktfläche zurückzuführen ist. Bei einem Anpressdruck von 5 MPa ist der Hauptanteil des Spannungsverlustes auf die Verluste innerhalb der Monopolarplatte zurückzuführen. Der Spannungsabfall beträgt 10,5 mV, was einen Verlust von 63,6 % des gesamten Spannungsverlustes bedeutet. Die Spannungsverluste innerhalb der Monopolarplatte lassen sich in drei Abschnitte unterteilen (vgl. Abbildung 4.48). Der erste lineare Abschnitt innerhalb der Monopolarplatte repräsentiert den Potenzialverlust im Bereich der Grundplatte der Monopolarplatte, während der zweite lineare Abschnitt den Potenzialverlust in der Strömungsfeldstruktur darstellt. Zwischen diesen beiden Bereichen befindet sich ein Übergangsbereich. Der Einfluss der Holzpartikel auf den Potentialabfall ist durch die gestrichelten Linien sichtbar gemacht. Ab ungefähr der Hälfte der Grundplatte der Monopolarplatte zeigt sich eine Abweichung zwischen der durchgezogenen und der gestrichelten Linie mit erhöhten Spannungswerten in den simulierten Kurven der mit Holzpartikeln versehenen Proben. Für eine ideale Monopolarplatte ohne künstliche Mängel wird bei einer Stromdichte von  $1 \text{ A/cm}^2$  ein Potentialabfall von 16,5 mV über das gesamte Simulationsmodell simuliert. Im Simulationsmodell mit Holzpartikeln in der Monopolarplatte erhöht sich der Spannungsabfall über die Monopolarplatte auf 10,91 mV und über das gesamte Modell auf 16,81 mV. Dies entspricht einem Anstieg von 0,41 mV (+3,9 %) bzw. 0,31 mV (+1,9 %). Die Simulationsergebnisse zeigen, dass auch an einem Teilstück der Einfluss der Holzpartikel und damit der Einfluss von größeren Störkörpern oder Rissen vernachlässigbar klein ist. Dieser liegt in der Größenordnung der Messunsicherheiten. Bei Betrachtung der Abhängigkeit der Kontaktwiderstände spielen die durch Holzpartikel repräsentierten Mängel in den Monopolarplatten eine ungeordnetere Rolle. Bei einem Anpressdruck von 2,5 MPa beträgt der Spannungsverlust durch die GDL und die Kontaktwiderstände auf der Oberseite der Monopolarplatte der mit Holzpartikeln versehenen Probe 4,91 mV. Im Vergleich zur Simulation eines Anpressdruckes von 5 MPa entspricht dies einer Steigerung von 1,18 mV und damit mehr als dem dreifachen der durch die Holzpartikel verursachten Spannungserhöhung.

Als Vergleichswert für die Simulationen kann mit den in Kapitel 3.5.2 beschriebenen Versuchsaufbauten lediglich der Potentialabfall über das gesamte Simulationsmodell gemessen werden. Der Vergleich zwischen der Simulation und der Messung zeigt, dass mit der Simulation die Messergebnisse überschätzt werden. Ursachen hierfür liegen unter anderem in den mit Messunsicherheiten versehenen Materialparametern, die in das Modell einfließen. Des Weiteren berücksichtigt das Modell nicht die Kompression der GDL und stellt diese zudem vereinfacht als soliden Festkörper dar. Die Messungen zeigen weiterhin, dass der Unterschied zwischen dem mit Holzpartikeln versehenen Teilstück und einem idealen Teilstück kleiner ist als die Messunsicherheiten und somit nicht messbar. Der gemessene Spannungsabfall über die mit Holzpartikeln versehene Probe beträgt 15,18 mV bei

5 MPa und 17,63 mV bei 2,5 MPa. Der Spannungsabfall in dem Versuchsaufbau mit der Probe ohne Holzpartikel ist beinahe identisch und beträgt 15,19 mV bei 5 MPa sowie 17,69 mV bei 2,5 MPa.

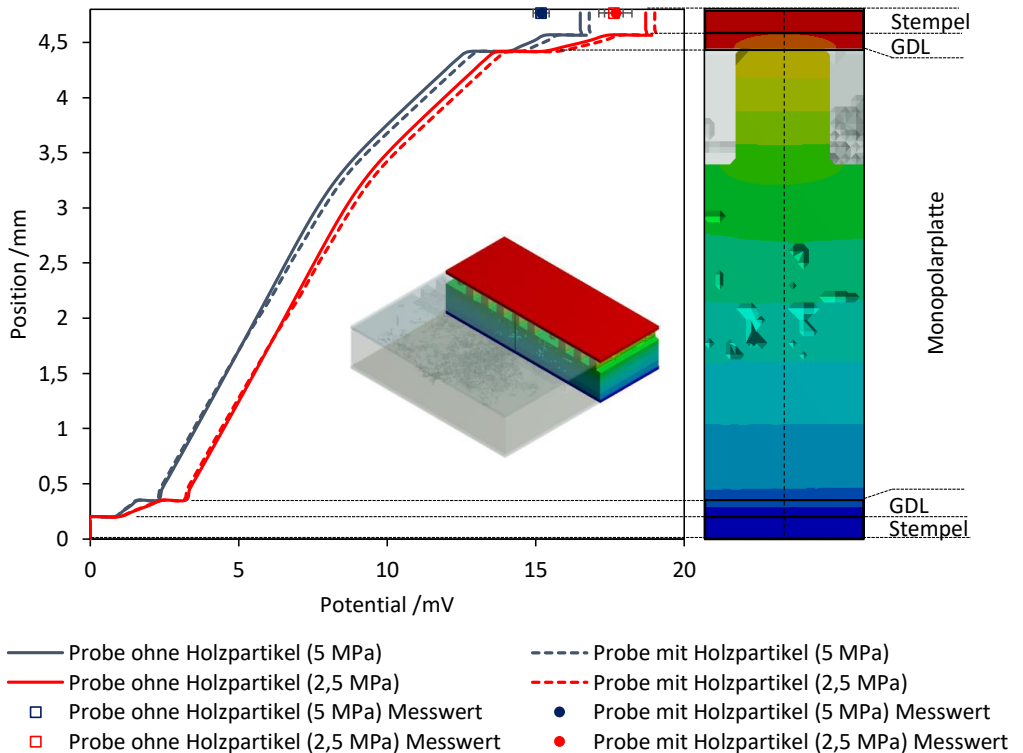


Abbildung 4.48: Simulierter Potentialverlauf innerhalb des Experimentaufbaus abhängig von der Position, adaptiert nach [103]

#### 4.5.3 Brennstoffzellentest zur Bewertung von Mängeln in Monopolarplatten

In Brennstoffzellentests können die Ergebnisse der ohmschen Widerstandsmessung der beiden vorangegangenen Unterkapitel bestätigt werden. Zur Auswertung des Einflusses von künstlichen Mängeln auf die Brennstoffzellenleistung werden Polarisationskurven aus Messungen von Brennstoffzellenaufbauten mit unterschiedlichen Kombinationen von mängelfreien und mit künstlichen Mängeln versehenen Monopolarplatten herangezogen. Die in Abbildung 4.49 dargestellten Polarisationskurven werden jeweils nach einer identischen Einfahrprozedur mit den in Kapitel 3.5.1 genannten Betriebsparametern und Brennstoffzellenkomponenten aufgenommen. Zunächst wird für jeden Brennstoffzellentest eine neue MEA aus der gleichen Produktionscharge und neue GDL verwendet. Als Referenzkurve für den Vergleich der Monopolarplatten dient die mit der „Referenzplatte A“ und der „Referenzplatte B“ (RA + RB) aufgenommene Polarisationskurve. Die



offene Zellspannung liegt für alle untersuchten Kombinationen von Monopolarplatten bei ungefähr 0,95 V. Auch der Bereich der Aktivierungsüberspannungen zeigt keine großen Unterschiede zwischen den einzelnen Brennstoffzellentests. In dem durch ohmsche Verluste dominierten Bereich der Polarisationskurven fallen die in Rot dargestellten Polarisationskurven mit Kombinationen aus idealen und mit Kunststoffansammlungen versehenen Monopolarplatten hingegen ab. Die größere Steigung der Kurve in diesem Bereich deutet auf einen die Leistung der Brennstoffzelle beeinflussenden erhöhten ohmschen Widerstand in der Zelle hin. Dieser ist den Monopolarplatten mit Kunststoffansammlungen zuzuordnen. Messungen mit der Monopolarplatten „Referenzplatte B“ und „Referenzplatte D“ (RB + RD) sowie die Wiederholungsmessung mit den Monopolarplatten „Referenzplatte A“ und „Holzpartikel A“ (RA + HA (2.Messung)) fallen entgegen der Erwartung aus den Referenzmessungen RA + RB, RC + RD sowie RA + HA ebenfalls ab. Dies deutet darauf hin, dass neben der Monopolarplattenkombination die verwendete MEA sowie die GDL einen großen Einfluss auf die Brennstoffzellenperformance haben. Die Ergebnisse in Abbildung 4.49 können somit nur als eine erste Tendenz für den Leistungsverlust der Brennstoffzelle bei einem Einsatz von Monopolarplatten mit Kunststoffansammlungen gesehen werden.

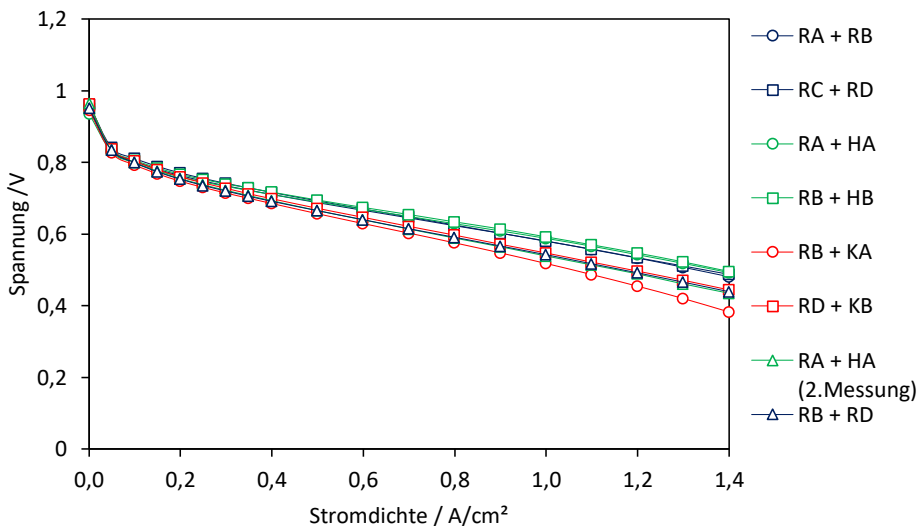


Abbildung 4.49: Polarisationskurven aus Brennstoffzellentest von unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen unter der Verwendung von neuen MEA und GDL.

Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4

Um den Einfluss der Mängel in den Bipolarplatten auf die Brennstoffzellenleistung eindeutig bestimmen zu können wird im Folgenden die gleiche Membran für alle Brennstoffzellen verwendet. Die weiteren Komponenten aus dem Brennstoffzellenaufbau (vgl. Kapitel 3.5.1), mit Ausnahme der Monopolarplatten, werden ebenfalls wiederverwendet. Zwischen zwei Test mit unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen wird die Brennstoffzelle 5 Minuten mit Stickstoff durchgespült. Nach 120

dem Wechsel der Monopolarplatte wird die Brennstoffzelle mit einem verkürzten Einfahrprotokoll mit jeweils für eine halbe Stunde konstant gehaltener Spannung bei 0,6 V und 0,4 V reaktiviert. Die Polarisationskurven dieser Experimente sind in Abbildung 4.50 dargestellt. Die Legende stellt von oben nach unten die chronologische Reihenfolge der durchgeführten Experimente dar. Um eine Alterung oder etwaige Schäden an der Membran während der Demontage und dem Zusammenbau einer neuen Brennstoffzelle zu überprüfen werden die Messungen mit der Kombination „Referenzplatte B“ und „Referenzplatte D“ (RB + RD) nach den ersten fünf Messungen und am Ende der Versuchsreihe wiederholt. Die Potentialkurven der drei Messungen von RB + RD stimmen gut überein und zeigen, dass es nicht zur Schädigung der Membran während der Experimente gekommen ist. Die Polarisationskurven der Brennstoffzellenaufbauten in denen mit Holzpartikeln versehene Monopolarplatten zum Einsatz kommen (RD + HA und RD + HB), zeigen ebenfalls keine erkennbare Abweichung von der Referenzmessung. Die Abweichungen liegen im Bereich der Messunsicherheit der Referenzkurve und bestätigen die Ergebnisse der ohmschen Widerstandsmessungen. Vereinzelt Holzpartikel in den Monopolarplatten haben keinen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung. Die Potentialkurven der Brennstoffzellentest mit den Monopolarplatten „Kunststoff A“, „Kunststoff B“ und „Kunststoff C“ zeigen den negativen Einfluss der Kunststoffansammlungen auf die Leistung der Brennstoffzelle (vgl. Abbildung 4.50).

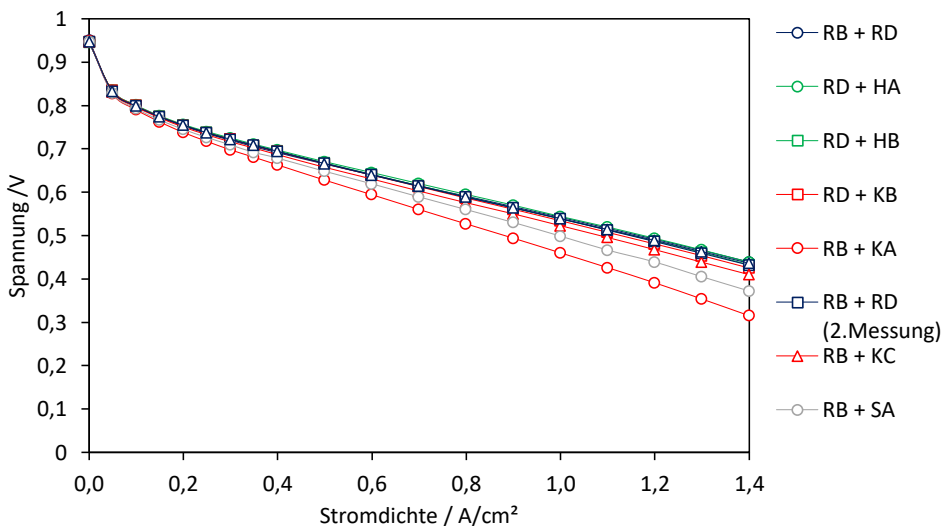


Abbildung 4.50: Polarisationskurven aus Brennstoffzellentest von unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen unter der Verwendung der gleichen MEA und GDL;  
 Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4

Die Potentialkurve mit der Plattenkombination „Kunststoff B“ und „Referenzprobe D“ (RD + KB) liegt nur leicht unter den Potentialkurven der Referenzplatten. In der Monopolarplatte „Kunststoff B“ liegen die Kunststoffansammlung fast ausschließlich im Inneren der Monopolarplatte, es wird kein

Kontaktbereich zu anderen Komponenten blockiert. Obwohl in „Kunststoff C“ die Kunststoffansammlungen flächenmäßig weniger verteilt sind als bei „Kunststoff B“, haben diese einen größeren Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung (vgl. RB + KC in Abbildung 4.50). Bei dieser Probe reichen die Kunststoffansammlungen bis an die Oberfläche der Monopolarplatte, sodass sie den elektrischen Kontakt in einem kleinen Bereich der aktiven Zelloberfläche vollständig blockieren. Untersuchungen der Stromdichteverteilung könnten weitere Erkenntnisse bezüglich des Stromflusses liefern. Die in dieser Arbeit durchgeführten Versuche können jedoch aufgrund von Kontaktierungsproblemen durch Durchbiegung der Stromverteilmessplatte keinen Erkenntnisgewinn bringen. Bei der Probe „Kunststoff A“ befinden sich die Kunststoffansammlungen sowohl an der Oberfläche, als auch massiv in der Platte verteilt. Diese Monopolarplatte besitzt den stärksten negativen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung (vgl. RB + KA in Abbildung 4.50). Bei der mit Stahlpartikel versehenen Probe „Stahlpartikel A“ gibt es ebenfalls Bereiche ohne Kontaktierung aufgrund herausgebrochener Stege, die sich in einem Leistungsabfall der Brennstoffzellenleistung bemerkbar machen (siehe RB + SA in Abbildung 4.50).

Die Aufzeichnung von Impedanzspektren liefert eine weitere Möglichkeit den Einfluss von Mängeln in Bipolarplatten auf die Brennstoffzellenleistung zu bewerten. Die Messdaten sowie die gefitteten Kurven der Impedanzspektren in Abbildung 4.51 bestätigen die Ergebnisse und Interpretationen aus den ohmschen Widerstandsmessungen und den Auswertungen der Polarisationskurven. Die Impedanzspektren der Referenzmessungen von RB + RD in Abbildung 4.51 zeigen einen ähnlichen Verlauf. Die Impedanzspektren der Brennstoffzellentests mit den Proben „Holzpartikel A“ und „Holzpartikel B“ weichen kaum erkennbar von den Impedanzspektren der Referenzmessung ab. Auch für das Impedanzspektrum bei der Probe „Kunststoff B“ lässt sich nur eine minimale Abweichung erkennen. Die Impedanzspektren mit den Proben „Kunststoff A“, „Kunststoff C“ sowie mit „Stahlpartikel A“ sind deutlich nach rechts verschoben, wobei „Kunststoff A“ entsprechend den Ergebnissen aus der Polarisationskurven die größte Abweichung zu den Referenzmessungen aufweist. Die Verschiebung ist durch den erhöhten ohmschen Widerstand der Monopolarplatten zu erklären. Der Hochfrequenzwiderstand, welcher dem ohmschen Widerstand des Systems zuzuordnen ist, lässt sich anhand der Fit-Parameter bestimmen und liegt für die Brennstoffzellen mit Referenzproben und mit Holzpartikel versehenen Proben in einem Bereich von  $0,141 \Omega\text{cm}^2$  bis  $0,147 \Omega\text{cm}^2$ . Das Impedanzspektrum der Brennstoffzelle mit der Platte „Kunststoff B“ besitzt einen Hochfrequenzwiderstand von  $0,149 \Omega\text{cm}^2$  und weicht nur minimal von denen der Referenzmessungen ab. Die Hochfrequenzwiderstände der Impedanzspektren mit den Proben „Kunststoff C“, „Stahlpartikel A“, sowie „Kunststoff A“ weichen mit  $0,164 \Omega\text{cm}^2$ ,  $0,162 \Omega\text{cm}^2$  sowie  $0,213 \Omega\text{cm}^2$  deutlich stärker von den Referenzmessungen ab. Ein Indiz dafür, dass Mängel in der Monopolarplatte, welche den Stromfluss in einem Bereich vollständig blockieren, auch einen negativen Einfluss auf den

elektrochemischen Widerstand der Zelle nehmen kann, liefert der Fit-Parameter R2. Bei den Proben „Kunststoff A“ und „Stahlpartikel A“ ist dieser mit  $0,211 \Omega\text{cm}^2$  sowie  $0,207 \Omega\text{cm}^2$  im Vergleich zu den Referenzmessungen mit  $0,190 \Omega\text{cm}^2$ ,  $0,191 \Omega\text{cm}^2$  und  $0,194 \Omega\text{cm}^2$  deutlich erhöht. Der fast gleichbleibende Abstand der Nulldurchgänge der weiteren Brennstoffzellenmessung deutet darauf hin, dass Mängel im Inneren der Monopolarplatte keinen Einfluss auf die Elektrochemie der Brennstoffzelle nehmen. Eine Auflistung der Fit-Parameter ist im Anhang A9 abgedruckt.

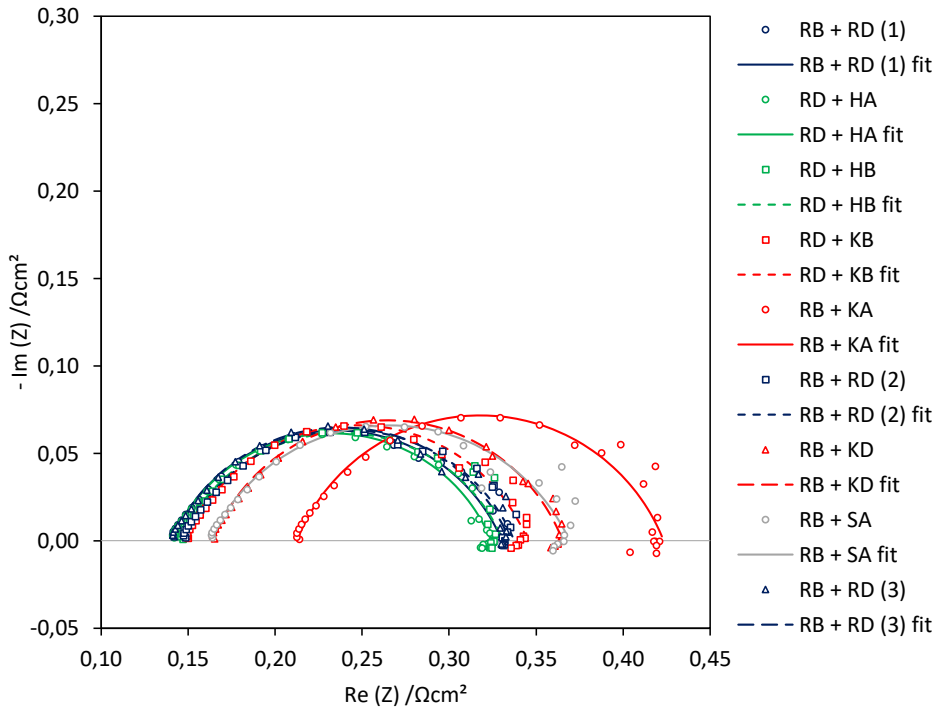


Abbildung 4.51: Impedanzspektren von Brennstoffzellentest mit unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen  
 Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4,  
 Parameter EIS: potentiostatisch 0,67 V, Amplitude 10 mv, Frequenzbereich: 100 mHz – 10 kHz

Insgesamt lassen sich die Ergebnisse aus den vorangegangenen Untersuchungen, den ex-situ ohmschen Widerstandsmessungen und den Polarisationskurven, mit der Impedanzspektroskopie bestätigen. Vereinzelt millimetergroße nichtleitende Fremdkörper innerhalb der Monopolarplatten haben keinen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung. Flächige zusammenhängende nichtleitende Störkörper und im besonderen Störkörper an der Plattenoberfläche zeigen entsprechend ihrer Verteilung und Lage einen negativen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung.

## 5 Diskussion

Die Literaturrecherche dieser Arbeit zeigt, dass es für die Qualitätskontrolle von massenhaft hergestellten graphitischen Bipolarplatten noch kein bekanntes einheitliches Verfahren gibt. Besonders die Anwendung von gängigen Messverfahren zur Defekterkennung aus der Qualitätskontrolle von kohlenstofffaserverstärkten Kunststoffen auf Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterialien ist wenig erforscht. Eine Möglichkeit Mängel in Bipolarplattenmaterialien festzustellen ist die Vermessung elektrischer Potentialfelder, die sich ausgehend von einer Punktkontaktierung in der Probe ausbreiten. Dieses Kapitel diskutiert die Ergebnisse des Ergebniskapitels und erläutert inwiefern der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Messaufbau zur Defekterkennung in graphitischen Bipolarplattenmaterialien eingesetzt werden kann.

Die Ergebnisse am Beispiel eines 3 mm breiten und 3 mm dicken Materialstreifens aus PPS-Material zeigen, dass durch die Vermessung der elektrischen Potentialfelder Durchgangsbohrungen mit einem Durchmesser von 1 mm erkannt werden können. Damit befindet sich das Auflösungsvermögen des Messaufbaus dieser Arbeit in der Größenordnung der Kanal- bzw. Stegbreite einer typischen Bipolarplatte. Durch eine engere Platzierung der Messelektroden kann die Auflösung im Vergleich zu den Arbeiten von Shen et al. [118] und Kovalovs et al. [119], welche Delaminationen in kohlenstofffaserverstärkten Verbundwerkstoffen mit einer Länge von 25 mm bzw. 20 mm bis 40 mm untersuchen, deutlich erhöht werden. Die Ergebnisse dieser Arbeit sind aufgrund von unterschiedlichen Leitfähigkeiten der Materialien jedoch nur bedingt mit den Ergebnissen von Shen et al. [118] vergleichbar. Kovalovs et al. [119] deuten mit ihren Simulationen an, dass durch die Wahl geeigneter Elektrodenpositionen auf der Probe die Defekte in der Probe nicht nur erkannt, sondern auch lokalisiert werden können. Durch eine Weiterentwicklung der Methode von Shen et al. [118] und Kovalovs et al. [119] kann die Position von Durchgangsbohrungen in der Materialprobe mit den Simulationen dieser Arbeit exakt bestimmt werden. Die Weiterentwicklung besteht aus der Bewegung der Elektroden mit einer kleinen Schrittweite über die Probe hinweg sowie der Differenzbildung zwischen Messelektrodenpaaren auf beiden Seiten der stromführenden Messspitzen. Die simulierten Verläufe der Potentialdifferenzen zwischen Messspitzen an der Ober- und Unterseite der Materialprobe zeigen einen glatten Verlauf mit erhöhten Werten im Bereich der Positionen der angebrachten Durchgangsbohrungen. Bei der positionsbezogenen Analyse der Differenzen zwischen den Messelektroden zeigt der Nulldurchgang zwischen einem lokalen Minimum und einem lokalen Maximum die Position des Defektes an. Das Bipolarplattenmaterial wird in den Simulationen als ideales, homogenes Material mit konstanten elektrischen Leitfähigkeiten in in-plane und through-plane Richtung angenommen. Die Messergebnisse der Potentialfeldvermessung zeigen jedoch ein

weniger glattes Ergebnis als die Simulationen. Die Schwankungen in den Messergebnissen gehen über ein Messrauschen, welches mit Messunsicherheiten durch die verwendete Stromquelle oder den Digitalmultimeter zu erklären wäre hinaus. Der Grund für die Schwankungen des Messsignals liegt in der Beschaffenheit des untersuchten Materials. Wie die Arbeiten von [43-46] herausstellen bildet sich in Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterialien ein komplexes Netzwerk aus leitfähigen Graphitpartikeln in einer nichtleitfähigen Polymermatrix aus. Die Graphitpartikel und die Eigenschaften des Netzwerkes besitzen eine starke Ausrichtung in der Plattenebene aus, die in unterschiedlichen Leitfähigkeiten in in-plane und through-plane Richtung resultieren. Da es sich bei dem untersuchten Material um ein technisches Material handelt ist die Ausrichtung und Verteilung der Graphitpartikel jedoch nicht perfekt homogen und unterliegt Schwankungen. Des Weiteren wird das leitfähige Netzwerk durch nichtleitfähige Fehlstellen oder Fremdpartikel gestört [48]. Eine genaue Zuordnung der Schwankungen im Messsignal zu Auffälligkeiten in der Graphitpartikelverteilung oder einzelnen Fremdpartikeln ist nicht möglich. Mit Hilfe der Röntgentomographieuntersuchungen kann jedoch die Anwesenheit von zahlreichen Fremdpartikeln in dem Material bestätigt werden. Detailansichten von Schnittansichten der Bipolarplattenmaterialien aus der Röntgentomographie und Rasterelektronenmikroskopaufnahmen zeigen die unregelmäßige Anordnung von unterschiedlich großen Graphitpartikeln, die auf ein unregelmäßiges Netzwerk hindeuten. Die übergeordnete Ausrichtung der Graphitpartikel kann am Beispiel einer REM-Aufnahmen einer spritzgegossenen Probe gezeigt werden, deren Graphitpartikel sich eindeutig aufgrund der Fließrichtung der Materialschmelze anordnen. Die Wiederholungsmessungen der Potentialfelder in dem Teststreifen mit unterschiedlichen Messspitzen zeigen eine gute Wiederholbarkeit der Messungen und unterstützen die Schlussfolgerung, dass es sich bei den Schwankungen in den Messsignalen um Schwankungen in den Eigenschaften der untersuchten Materialprobe handelt. Weitere Messunsicherheiten können durch eine nicht exakte Positionierung der Messspitzen hervorgerufen werden. Die Untersuchung mit einem minimalen Versatz des Prüfkopfes um 10 µm zeigt keine Änderung des Messsignals. Bei einem Versatz des Prüfkopfes um 50 µm bis 100 µm zeigt sich eine leichte Änderung des Messsignals. Bei einem Versatz um 500 µm verschieben sich die gemessenen lokalen Minima und Maxima der Potentialkurve. Dies deutet darauf hin, dass die Eigenschaften des leitfähigen Netzwerkes aus Graphitpartikeln der PPS-Materialprobe in diesem Bereich variieren. Eine Bestätigung durch Auflösung der einzelnen Graphitpartikel und Darstellung des Netzwerkes aus Leitfähigkeitspfaden ist bei der Betrachtung eines 3 mm dicken Materialstreifens mittels Röntgentomographie jedoch nicht möglich gewesen. Größere Mängel, wie die Durchgangsbohrungen werden bei einem Versatz dennoch ebenso gut erkannt wie in der Referenzmessung. Bei einem Versatz des Prüfkopfes quer zur Probe messen die Messspitzen näher am Rand der Probe, sodass neben der Materialänderung zusätzlich die geometrischen Randbedingungen der Probe eine Rolle spielen.

Die Messergebnisse stimmen unter Vernachlässigung der Messsignalschwankungen gut mit der Simulation überein. Die Ausbreitung des Potentialfeldes in der Materialprobe kann mit dem Simulationsmodell berechnet werden. Dies zeigt sich bei der Messung der Potentialdifferenz mit unterschiedlichen Abständen zum stromführenden Messspitzenpaar. Auch bei variierenden stromführenden Messspitzen und Potentialmessspitzen entspricht das simulierte Spannungsniveau dem gemessenen Spannungsniveau. Die angenommenen spezifischen Leitfähigkeitswerte in der Simulation für das PPS-Material können somit als korrekt angenommen werden.

Umgekehrt folgt daraus, dass mit einem bekannten in-plane Leitfähigkeitswert sowie der Simulation und der Vermessung des Potentialfeldes auf den spezifischen Leitfähigkeitswert in through-plane Richtung geschlossen werden kann. Die mit diesem Verfahren ermittelten spezifischen through-plane Widerstandswerte stimmen unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten beider Verfahren gut mit der kompletten Kontaktierung einer Materialprobe, wie sie von Cunningham et al. [114] und Sadeghifar [115] beschrieben werden, überein. Die Messunsicherheiten beider Verfahren liegen im Bereiche von sechs bis sieben Prozent und sind nicht zu vernachlässigen. Bei der kompletten Kontaktierung der Probe sind die Messunsicherheiten von der verwendeten GDL, der Kontaktierung der GDL und dem Anpressdruck abhängig. Bei der Vermessung des Potentialfeldes hingegen sind die Messunsicherheiten nicht abhängig von einem weiteren Material wie der GDL, sondern hauptsächlich von Messunsicherheiten bei der Messung von Potentialdifferenzen am Material selbst. Die Vorteile der Bestimmung der through-plane Bestimmung über die Vermessung des Potentialfeldes liegen in der Möglichkeit den spezifischen Widerstand lokal zu bestimmen und so Rückschlüsse auf die Homogenität einer Bipolarplatte zu schließen. Hickmann und Zielinski [61] zeigen an Messungen des in-plane Oberflächenwiderstandes die Homogenität einer auf PPS basierenden Bipolarplatte. Die in dieser Arbeit vermessene PPS-Materialplatte ist ebenfalls sehr homogen, mit einer Variation des spezifischen through-plane Widerstands von weniger als ein Prozent. Eine höhere Auflösung für die lokale Verteilung der Homogenität bzw. die Detektion von Mängel in der Bipolarplatte kann erreicht werden, indem die an den Messspitzen ermittelten Potentiale direkt mit einem simulierten Wert verglichen werden und positionsbezogen ein Multiplikationsfaktor als Bewertungsgröße ermittelt wird.

Der Vergleich zwischen Simulation und Messung von positionsbezogenen Multiplikationsfaktoren für die Referenzmonopolarplatten mit Strömungsfeld liegt bei Werten nahe eins. Dies deutet zum einen auf eine gute Übereinstimmung von Simulation und Messung hin und zum anderen auf eine homogene Monopolarplatte ohne größere Mängel. Im Vergleich zur blanken Bipolarplatte bestimmen in der Monopolarplatte die geometrischen Ausprägungen des Strömungsfeldes die Potentialverteilung. Aufgrund des geringeren Abstands von der Stegkante zur Messspitze ist eine exakte Positionierung des Prüfkopfes von größerer Bedeutung, als bei dem untersuchten Materialstreifen. Eine Verschiebung des

Prüfkopfes von 200  $\mu\text{m}$  näher zum Rand des Steges bewirkt in den Messspitzen, die der Stromführung am nächsten sind, eine Erhöhung der Potentialmesswerte um ca. 10 %. Dies entspricht ungefähr der Erhöhung um 15 % des simulierten Peaks bei einer Durchgangsbohrung von 1 mm in dem Materialteststreifen. Eine Verschiebung des Prüfkopfes kann somit das Messsignal kleinerer Defekte überlagern, sodass diese nicht detektiert werden. Vereinzelt Mängel, wie beispielsweise kleine Risse, Lunker oder größere Fremdpartikel werden durch die Holzpartikel in den Monopolarplatten simuliert. Diese können mit der Betrachtung der Multiplikationsfaktoren nicht erkannt werden. Die Querleitfähigkeit des leitfähigen Netzwerkes aus Graphitpartikeln in den graphitischen Bipolarplattenmaterialien ist groß genug, um Störungen durch vereinzelt Fremdkörper mit maximalen Abmaßen von 1 mm bis 2 mm und mit einem Volumenanteil von getesteten 7,7 Vol.-% im Innern der Probe auszugleichen. Der Einfluss der Fremdkörper auf das Messsignal kann aufgrund des Messrauschens durch das leitfähige Netzwerk und zusätzlicher Messunsicherheiten wie Positionierfehler nicht gemessen werden. Auch einzelne bis an die Oberfläche ragende Fremdkörper werden nur unzureichend erkannt. Bei massiven Mängeln in der Monopolarplatte, wie es die Kunststoffansammlungen repräsentieren, sind das Messrauschen und die Messunsicherheiten von geringerer Bedeutung. In der Plattenebene flächig ausgebreitete zusammenhängende nichtleitende Bereiche werden durch die Potentialfeldmessung klar erkannt. Je nach Ausprägung und Lage der nichtleitenden Mängel reichen die Multiplikationsfaktoren von einem Vielfachen bis zu dem 100-fachen des Vergleichswertes einer idealen Probe in Bereichen, in denen auch Oberfläche massiv von nicht leitfähigem Material durchsetzt ist. Flächig ausgedehnte Mängel haben im Vergleich zu vereinzelt Fremdkörpern ab deutlich geringeren Volumenanteilen einen negativen Effekt auf die Bipolarplatteneigenschaften. Bei nichtleitenden Mängeln mit flächiger Ausbreitung in der Plattenebene reichen Volumenanteile von weniger als 6,9 Vol.-% aus, um den Stromfluss lokal in der Platte zu blockieren und mit der Methode der Potentialfeldmessung als Defekt bewertet zu werden.

Untersuchungen zum Einfluss und zur Bewertung der Mängel in den Monopolarplatten zeigen, dass die zahlreichen mikrometergroßen Fremdpartikel, die in jeder Probe vorhanden sind, sowie vereinzelt millimetergroße Fremdkörper keinen Einfluss auf den elektrischen Gesamtwiderstand der Platte haben. Die detaillierten Untersuchungen eines Ausschnitts aus der Monopolarplatte mit künstlich eingebrachten Fremdkörpern bestätigen die Messungen am gesamten Strömungsfeld. Lunker und Bläschenbildung in Bipolarplatten, wie Simaafrookhteh et al. [63] sie beschreiben, sowie Risse haben keinen Einfluss auf die globalen elektrischen Eigenschaften der Bipolarplatte. Vielmehr wird durch die Untersuchungen dieser Arbeit deutlich, dass die Kontaktwiderstände zwischen den einzelnen Komponenten einer Brennstoffzelle für den ohmschen Widerstand eine größere Rolle spielen, als Mängel im Innern einer Bipolarplatte. Wichtige Parameter für den Kontaktwiderstand sind die Beschaffenheit der GDL, die Geometrie des Strömungsfeldes der Bipolarplatte sowie der Anpressdruck



in der Zelle. Untersuchungen zum Kontaktwiderstand und Fehler durch mangelhaften Kontakt der Komponenten gehen jedoch über den Fokus dieser Arbeit hinaus. Die Ansammlungen von elektrisch nicht leitfähigen flächig ausgebreiteten Störkörpern haben entsprechend ihrem Auftreten und Lage einen großen Einfluss auf den ohmschen Widerstand der Bipolarplatte. Brennstoffzellentests zeigen durch die Aufnahme von Polarisationskurven und Impedanzspektren, dass der erhöhte Widerstand der Bipolarplatte durch die massiven flächigen Störkörperansammlungen in direktem Zusammenhang mit der Leistung der Brennstoffzelle steht. Aufgrund der Querleitfähigkeit des Bipolarplattenmaterials haben nichtleitende Störkörper im Inneren der Bipolarplatte einen geringeren Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung als nichtleitende Störkörper, die bis an die Oberfläche der Platte reichen. Der Einsatz von Proben mit Holzpartikeln zeigt, dass vereinzelte Risse, Lunken oder Fremdpartikel im Innern der Bipolarplatte nicht zu einer messbaren Reduktion der Brennstoffzellenleistung führen.

Mit dem entwickelten Prüfaufbau und Auswertung der Daten im Vergleich zur Simulation einer Referenzprobe können massive Störungen in der Bipolarplatte erkannt und die Homogenität der Bipolarplatte bestimmt werden. Die Detektion vereinzelter Störkörper innerhalb der Bipolarplattenprobe geht über das Limit des Prüfaufbaus hinaus. Mit dem entwickelten Prüfaufbau können die für den ohmschen Widerstand der Bipolarplatte und somit für die Leistung der Brennstoffzelle relevanten Mängel detektiert werden. Die Untersuchungen an den Proben mit Holzpartikeln zeigen jedoch auch, dass mit dem Prüfaufbau kleine Risse in der Probe nicht zuverlässig erkannt werden. Dies beinhaltet auch sicherheitskritische Risse, die bis an die Oberfläche reichen bzw. Risse, die sich im Brennstoffzellenbetrieb zu sicherheitskritischen Rissen entwickeln können.

Für eine Anwendung der elektrischen Potentialfeldmessung als Qualitätssicherungsinstrument muss der Prüfaufbau zudem konstruktiv weiterentwickelt werden. Die angestrebte Produktionsrate für Bipolarplatten und der Prüfzyklus bei einer vollständigen Prüfung liegen im Bereich von weniger als einer Sekunde pro Bipolarplatte. Diese Prüfzyklen sind mit dem Prüfaufbau nicht zu erreichen, sodass lediglich eine Stichprobenprüfung vorgenommen werden kann. Die Limitierungen in der Messgeschwindigkeit des Prüfaufbaus liegen hauptsächlich in der Bewegung des Messtisches und der Prüfköpfe von wenigen Millimetern in der Sekunde sowie der Schaltgeschwindigkeit der Matrixschalter von einer Schaltung pro Millisekunde begründet. Durch Einsetzen und Verschalten von mehreren hundert Messspitzen über die gesamte Fläche der Bipolarplatte kann die Bewegung des Messtisches ersetzt werden und die Messgeschwindigkeit gravierend erhöht werden. Gleichzeitig muss die Messelektronik durch leistungsfähigere Module ersetzt werden.

Die Messung und Interpretation der elektrischen Potentialfeldausbreitung kann in einem Qualitätssicherungsprozess von graphitischen Bipolarplatten eingesetzt werden, um stichprobenweise die elektrischen Eigenschaften, die Homogenität und größere Mängel der Bipolarplatten zu bewerten.

## 6 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird eine Messmethode zur Untersuchung von Mängeln in Graphit-Komposit Bipolarplatten für den Einsatz in der Qualitätskontrolle von Bipolarplatten entwickelt. Die entwickelte Messmethode beruht auf der Vermessung von elektrischen Potentialfeldern, die sich ausgehend von einer Punktquelle und einer Punktseke in den Bipolarplattenmaterialien ausbreiten. Basierend auf Simulationen des Messprinzips wird ein Prüfaufbau zur automatischen Vermessung von Potentialfeldern in Bipolarplatten ausgelegt, konstruiert und programmiert. Der Prüfaufbau besteht aus einem in Plattenebene bewegbaren Probentisch und zwei vertikal verfahrbaren Prüfköpfen. Die Prüfköpfe kontaktieren die Bipolarplattenmaterialproben von oben und unten und sind jeweils mit 25 goldbeschichteten gefederten Messspitzen bestückt. Diese können mithilfe einer Matrixschaltung, einer Source-Measure-Unit, einem Digitalmultimeter sowie der LabView-Steuerung so angesteuert werden, dass die Messspitzen wahlweise als stromführende Messspitzen oder Potentialmessspitzen fungieren. Mit dem Prüfaufbau werden blanke Materialproben und Monopolarplatten mit künstlich eingebrachten Mängeln untersucht. Bei den Monopolarplatten handelt es sich um Bipolarplattenhälften, die nur auf der einen Seite eine Strömungsfeldstruktur besitzen und nur mit dieser Seite in einem Brennstoffzellenaufbau einer MEA zugewandt sind. Die untersuchten Materialproben bestehen aus PPS, BMA5 und PPG86-Materialien der Firma Eisenhuth GmbH. Das Material der Monopolarplatten basiert ebenfalls auf einem PPS-Material, während die künstlichen Mängel durch Kunststoffansammlungen, Holzpartikeln oder Stahlpartikeln abgebildet werden. Die künstlich eingebrachten Kunststoffansammlungen sollen eine Entmischung und eine inhomogene Verteilung der Polymermatrix und leitfähigen Füllmaterialien in den Graphit-Komposit-Bipolarplatten repräsentieren. Die Holzpartikel bilden vereinzelte verteilte Fremdkörper in den Graphit-Komposit-Bipolarplatten ab und imitieren Risse, Lunken, Bläschen sowie größere im Material eingeschlossene Fremdkörper. Die Stahlpartikel werden als zusätzliche leitfähige Partikel dem Material beigemischt.

Als Referenz zu den Potentialfeldmessungen des Prüfstands werden die Röntgentomographie, ohmsche Widerstandmessungen sowie die Simulation von elektrischen Potentialfeldern eingesetzt. In dieser Arbeit wird zunächst an einem Teststreifen die Defekterkennung über die Potentialfeldmessung erprobt und eine Parameterstudie zu Messsignal beeinträchtigenden Größen durchgeführt. Als definierte Defekte dienen selbst angebrachte Durchgangsbohrungen in dem Materialstreifen. Die Simulationen des elektrischen Potentialfeldes und Messungen der Potentialdifferenzen mit den Messspitzen an dem Materialstreifen zeigen eine gute Übereinstimmung bezüglich des Spannungsniveaus und Signalauslässe aufgrund der Durchgangsbohrungen. Durch die Kombination der Bewegung des Prüfkopfes über die Defekte hinweg und die Spannungsmessung vor und hinter der

stromführenden Messspitze können die Durchgangsbohrungen lokalisiert werden. Beeinflusst wird die Messung der Potentialdifferenzen von einem komplexen Netzwerk an leitfähigen Graphitpartikeln in einer Polymermatrix in den Bipolarplattenmaterialien, welches Schwankungen in dem Messsignal hervorrufen. Mit Hilfe der Röntgentomographie können die Graphitpartikel und die Polymermatrix in dem Material sowie deren Verteilung sichtbar gemacht werden. Durch die Röntgentomographie kann außerdem die Existenz von Rissen, Luftblasen, Fehlstellen und sowie zahlreichen Fremdkörpern in formgepressten und spritzgegossenen Bipolarplattenmaterialien nachgewiesen werden.

Die Abhängigkeit des Messsignals und des Messrauschens von der Beschaffenheit der Probe wird durch die gute Wiederholbarkeit des Messsignals mit unterschiedlichen Messspitzen des Prüfkopfes bestätigt. Weitere Parameter, die einen Einfluss auf das Messsignal besitzen sind die Abrasterungsschrittweite und eine Verschiebung des Prüfkopfes, sowie die Auswahl und die Positionierung der potentialabgreifenden Messspitzen zur stromführenden Messspitze. Während eine Verschiebung des Prüfkopfes auf der Probe um 10  $\mu\text{m}$  keinen sichtbaren Einfluss auf das Messergebnis zeigt, verändert sich das Messrauschen bei Verschiebungen um mehrere 100  $\mu\text{m}$  deutlich. Eine engere Positionierung der Messspitzen bewirkt eine Erhöhung des gemessenen Spannungsniveaus, jedoch auch eine Erhöhung des Messrauschens, sodass die Defekte nicht besser detektiert werden können. Im Referenzfall wird der Strom durch direkt gegenüberliegende Messspitzen geleitet und die Potentialdifferenz an direkt gegenüberliegenden Messspitzen abgegriffen. Von diesem Muster abweichende Kontaktierungsmuster führen ebenfalls zu höheren messbaren Spannungsniveaus, die jedoch nicht zwangsläufig zu einer besseren Detektion der Bohrungen in dem Materialstreifen führen.

Als weitere Einsatzmöglichkeit der Messung der Potentialfeldverteilung in Kombination mit der Simulation wird in dieser Arbeit die Bestimmung des spezifischen through-plane Widerstandes von formgepressten blanken Bipolarplatten aufgezeigt. Durch die lokale Bestimmung des through-plane Widerstandes kann die Homogenität einer PPS-Platte bestimmt werden. In einem weiteren Schritt wird für den positionsbezogenen und messspitzenabhängigen Vergleich von Messwerten mit simulierten Werten ein Multiplikationsfaktor als Bewertungsgröße eingeführt. Mit den Multiplikationsfaktoren werden die Monopolarplatten auf Homogenität und Mängel überprüft. Bei den Referenzproben zeigen die Messungen und Simulationen eine gute Übereinstimmung mit kleinen Abweichungen. Die Abweichungen können durch Toleranzen bei der Positionierung des Prüfkopfes, Fertigungstoleranzen der Monopolarplatte sowie durch angenommene Materialeigenschaften begründet werden. Wie die Röntgentomographie zeigt, sind auch die Referenzmonopolarplatten ohne künstliche Mängel nicht makellos. In jeder Probe befinden sich Fremdpartikel, die zufällig über die gesamte Platte verteilt sind. Diese Fremdpartikel haben jedoch keinen messbaren Einfluss auf die Potentialverteilung oder auf den ohmschen Widerstand der Monopolarplatte.

Massive Störkörper in den Monopolarplatten, wie durch flächige zusammenhängende Kunststoffansammlung simuliert, werden mit der Messung der Potentialfeldverteilung und Auswertung über Multiplikationsfaktoren gut erkannt. Zusätzlich liefert die Höhe der Multiplikationsfaktoren einen Anhaltspunkt über die Ausprägung der Mängel und deren Einfluss auf den ohmschen Widerstand der Monopolarplatte. Die Multiplikationsfaktoren reichen von niedrigen einstelligen Werten für massive Störungen im Innern der Monopolarplatte bis zu dreistelligen Werten für nichtleitende Bereiche an der Oberfläche der Monopolarplatte. Im Gegensatz dazu werden vereinzelte millimetergroße Fremdkörper in den Monopolarplatten mit der Messmethode in dem Prüfaufbau nicht erkannt. Auch an der Oberfläche der Platte befindliche einzelne Fremdkörper können in Wiederholungsmessungen nicht zuverlässig erkannt werden.

Zur Bewertung der Mängel werden ohmsche Widerstandsmessungen an der kompletten aktiven Zellfläche und an Ausschnitten der aktiven Zellfläche durchgeführt. Massive Kunststoffansammlungen erhöhen entsprechend ihrem Anteil und der Lage den ohmschen Widerstand der Monopolarplatte. Vereinzelt und zerstreute Mängel besitzen auch mit einem Anteil von ca. 1,6 vol.-% an einem Monopolarplattenausschnitt keinen messbaren Einfluss auf den ohmschen Widerstand. Die Auswertung von Polarisationskurven und Impedanzspektren von Brennstoffzellentest mit variierenden Monopolarplattenkombinationen zeigen ebenfalls, dass nur massive Mängel, wie die Kunststoffansammlungen, einen negativen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung haben. Bei einem Einsatz von Monopolarplatten mit Holzpartikeln sind in den Polarisationskurven und den Impedanzspektren keine signifikanten Unterschiede im Vergleich zu Brennstoffzellentest mit Referenzplatten zu erkennen.

Der entwickelte Prüfaufbau eignet sich als Ergänzung zu einem Qualitätssicherungsprozess von graphitischen Bipolarplatten. Mit dem Prüfaufbau können stichprobenweise die Homogenität und die elektrischen Eigenschaften der Bipolarplatten bewerten werden. Massive Mängel, die einen negativen Einfluss auf die Brennstoffzellenleistung besitzen, können aufgezeigt werden.

Kernaussagen in Kurzform:

- Durch die Analyse von elektrischen Potentialfeldern können Mängel in graphitischen Bipolarplatten und Bipolarplattenmaterialien identifiziert und lokalisiert werden.
- Nur massive Schädigungen in den Bipolarplatten beeinflussen die Brennstoffzellenleistung. Mit dem entwickelten Prüfaufbau kann die Ausbreitung der für die Brennstoffzellenleistung relevanten Mängel erfasst werden.
- In einem Qualitätssicherungsprozess kann die Methode und der Prüfaufbau zur stichprobenhaften Überprüfung der elektrischen Eigenschaften eingesetzt werden.

## Literaturverzeichnis

1. Mehta, V. and J.S. Cooper, *Review and analysis of PEM fuel cell design and manufacturing*. Journal of Power Sources, 2003. **114**(1): p. 32-53.
2. Krewitt, W., M. Pehnt, M. Fishedick, and H. Temming, *Brennstoffzellen in der Kraft-Wärme-Kopplung: Ökobilanzen, Szenarien, Marktpotenziale*. 2004.
3. Kurzweil, P., *Brennstoffzellentechnik : Grundlagen, Komponenten, Systeme, Anwendungen*. 2., überarb. u. akt. Aufl. ed. 2013, Wiesbaden: Springer Vieweg. XII, 248 S.
4. Reimer, U., Y. Cai, R. Li, D. Froning, and 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. Klell, M., *Wasserstoff in der Fahrzeugtechnik : Erzeugung, Speicherung, Anwendung*. 2018: Ed.: 4., aktualisierte und erweiterte Auflage. Wiesbaden : Springer Vieweg. 2018.
6. Hermann, A., T. Chaudhuri, and P. Spagnol, *Bipolar plates for PEM fuel cells: A review*. International Journal of Hydrogen Energy, 2005. **30**(12): p. 1297-1302.
7. Taherian, R., *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.
8. De las Heras, A., F.J. Vivas, F. Segura, and J.M. Andújar, *From the cell to the stack. A chronological walk through the techniques to manufacture the PEFCs core*. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2018. **96**: p. 29-45.
9. Thompson, S.T., B.D. James, J.M. Huya-Kouadio, C. Houchins, D.A. DeSantis, R. Ahluwalia, A.R. Wilson, G. Kleen, and D. Papageorgopoulos, *Direct hydrogen fuel cell electric vehicle cost analysis: System and high-volume manufacturing description, validation, and outlook*. Journal of Power Sources, 2018. **399**: p. 304-313.
10. Knights, S.D., K.M. Colbow, J. St-Pierre, and D.P. Wilkinson, *Aging mechanisms and lifetime of PEFC and DMFC*. Journal of Power Sources, 2004. **127**(1): p. 127-134.
11. Hydrogen and Fuel Cell Technologies Office. *Technical Targets: Bipolar Plates for Transportation Applications*. 2020 [cited 2020 16.11.]; <https://www.energy.gov/eere/fuelcells/doe-technical-targets-polymer-electrolyte-membrane-fuel-cell-components>
12. Hu, Q., D. Zhang, H. Fu, and K. Huang, *Investigation of stamping process of metallic bipolar plates in PEM fuel cell—Numerical simulation and experiments*. International Journal of Hydrogen Energy, 2014. **39**(25): p. 13770-13776.
13. Hung, J.-C. and C.-C. Lin, *Fabrication of micro-flow channels for metallic bipolar plates by a high-pressure hydroforming apparatus*. Journal of Power Sources, 2012. **206**: p. 179-184.
14. Tawfik, H., Y. Hung, and D. Mahajan, *Metal bipolar plates for PEM fuel cell—A review*. Journal of Power Sources, 2007. **163**(2): p. 755-767.
15. Joseph, S., J.C. McClure, P.J. Sebastian, J. Moreira, and E. Valenzuela, *Polyaniline and polypyrrole coatings on aluminum for PEM fuel cell bipolar plates*. Journal of Power Sources, 2008. **177**(1): p. 161-166.
16. Mawdsley, J.R., J.D. Carter, X. Wang, S. Niyogi, C.Q. Fan, R. Koc, and G. Osterhout, *Composite-coated aluminum bipolar plates for PEM fuel cells*. Journal of Power Sources, 2013. **231**: p. 106-112.
17. Wang, S.-H., J. Peng, and W.-B. Lui, *Surface modification and development of titanium bipolar plates for PEM fuel cells*. Journal of Power Sources, 2006. **160**(1): p. 485-489.
18. Wang, S.-H., J. Peng, W.-B. Lui, and J.-S. Zhang, *Performance of the gold-plated titanium bipolar plates for the light weight PEM fuel cells*. Journal of Power Sources, 2006. **162**(1): p. 486-491.
19. Pozio, A., F. Zaza, A. Masci, and R.F. Silva, *Bipolar plate materials for PEMFCs: A conductivity and stability study*. Journal of Power Sources, 2008. **179**(2): p. 631-639.

20. Wang, H., M.A. Sweikart, and J.A. Turner, *Stainless steel as bipolar plate material for polymer electrolyte membrane fuel cells*. Journal of Power Sources, 2003. **115**(2): p. 243-251.
21. Davies, D.P., P.L. Adcock, M. Turpin, and S.J. Rowen, *Bipolar plate materials for solid polymer fuel cells*. Journal of Applied Electrochemistry, 2000. **30**(1): p. 101-105.
22. Taherian, R., *Application of polymer-based composites: Bipolar plate of PEM fuel cells*, in *Electrical Conductivity in Polymer-Based Composites: Experiments, Modelling, and Applications*. 2018. p. 183-237.
23. Antunes, R.A., M.C.L. Oliveira, G. Ett, and V. Ett, *Corrosion of metal bipolar plates for PEM fuel cells: A review*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**(8): p. 3632-3647.
24. Porstmann, S., T. Wannemacher, and W.G. Drossel, *A comprehensive comparison of state-of-the-art manufacturing methods for fuel cell bipolar plates including anticipated future industry trends*. Journal of Manufacturing Processes, 2020. **60**: p. 366-383.
25. Kreuz, C., *PEM-Brennstoffzellen mit spritzgegossenen Bipolarplatten aus hochgefülltem Graphit-Compound ; PEM fuel cells with injection moulded bipolar plates of highly filled graphite compounds*. Universität Duisburg-Essen, 2008.
26. Antunes, R.A., M.C.L. de Oliveira, G. Ett, and V. Ett, *Carbon materials in composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells: A review of the main challenges to improve electrical performance*. Journal of Power Sources, 2011. **196**(6): p. 2945-2961.
27. Heinzl, A., L. Kuhnemann, T. Derieth, M. Grundler, T. Grimm, and M. Kouachi, *Membrane Fuel Cells - Options for Bipolar Plate Materials and Production Technology*. ECS Transactions, 2013. **50**(2): p. 25-34.
28. Song, Y., C. Zhang, C.-Y. Ling, M. Han, R.-Y. Yong, D. Sun, and J. Chen, *Review on current research of materials, fabrication and application for bipolar plate in proton exchange membrane fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2019.
29. Mathur, R.B., S.R. Dhakate, D.K. Gupta, T.L. Dhami, and R.K. Aggarwal, *Effect of different carbon fillers on the properties of graphite composite bipolar plate*. Journal of Materials Processing Technology, 2008. **203**(1): p. 184-192.
30. Dhakate, S.R., R.B. Mathur, B.K. Kakati, and T.L. Dhami, *Properties of graphite-composite bipolar plate prepared by compression molding technique for PEM fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2007. **32**(17): p. 4537-4543.
31. Yan, X., M. Hou, H. Zhang, F. Jing, P. Ming, and B. Yi, *Performance of PEMFC stack using expanded graphite bipolar plates*. Journal of Power Sources, 2006. **160**(1): p. 252-257.
32. Oh, K.S., S. Heo, J. Yun, and K.S. Han. *Characterization of expanded graphite/flake-type graphite filled conductive polymer composites*. in *Advanced Materials Research*. 2008. Trans Tech Publ.
33. Maheshwari, P.H., R.B. Mathur, and T.L. Dhami, *Fabrication of high strength and a low weight composite bipolar plate for fuel cell applications*. Journal of Power Sources, 2007. **173**(1): p. 394-403.
34. Mighri, F., M.A. Huneault, and M.F. Champagne, *Electrically conductive thermoplastic blends for injection and compression molding of bipolar plates in the fuel cell application*. Polymer Engineering and Science, 2004. **44**(9): p. 1755-1765.
35. Lee, J.H., Y.K. Jang, C.E. Hong, N.H. Kim, P. Li, and H.K. Lee, *Effect of carbon fillers on properties of polymer composite bipolar plates of fuel cells*. Journal of Power Sources, 2009. **193**(2): p. 523-529.
36. Boyaci San, F.G. and G. Tekin, *A review of thermoplastic composites for bipolar plate applications*. International Journal of Energy Research, 2013. **37**(4): p. 283-309.
37. Brett, D.J.L. and N.P. Brandon, *Review of Materials and Characterization Methods for Polymer Electrolyte Fuel Cell Flow-Field Plates*. Journal of Fuel Cell Science and Technology, 2006. **4**(1): p. 29-44.
38. Heinzl, A., F. Mahlendorf, O. Niemzig, and C. Kreuz, *Injection moulded low cost bipolar plates for PEM fuel cells*. Journal of Power Sources, 2004. **131**(1-2): p. 35-40.

39. Anett, K. and R. Ferenc, *Effect of processing technology on the morphological, mechanical and electrical properties of conductive polymer composites*. Journal of Polymer Engineering, 2013. **33**(8): p. 691-699.
40. Cho, E.A., U.S. Jeon, H.Y. Ha, S.A. Hong, and I.H. Oh, *Characteristics of composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells*. Journal of Power Sources, 2004. **125**(2): p. 178-182.
41. Alo, O.A., I.O. Otunniyi, H. Pienaar, and S.E. Iyuke, *Materials for Bipolar Plates in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell: Performance Criteria and Current Benchmarks*. Procedia Manufacturing, 2017. **7**: p. 395-401.
42. Jiang, R., C.K. Mittelsteadt, and C.S. Gittleman, *Through-plane proton transport resistance of membrane and ohmic resistance distribution in fuel cells*. Journal of the Electrochemical Society, 2009. **156**(12): p. B1440-B1446.
43. Mamunya, Y.P., V.V. Davydenko, P. Pissis, and E.V. Lebedev, *Electrical and thermal conductivity of polymers filled with metal powders*. European Polymer Journal, 2002. **38**(9): p. 1887-1897.
44. Kuan, H.C., C.C.M. Ma, K.H. Chen, and S.M. Chen, *Preparation, electrical, mechanical and thermal properties of composite bipolar plate for a fuel cell*. Journal of Power Sources, 2004. **134**(1): p. 7-17.
45. Dawson, J.C. and C.J. Adkins, *Conduction mechanisms in carbon-loaded composites*. Journal of Physics: Condensed Matter, 1996. **8**(43): p. 8321-8338.
46. Kakati, B.K., V.K. Yamsani, K.S. Dhathathreyan, D. Sathiyamoorthy, and A. Verma, *The electrical conductivity of a composite bipolar plate for fuel cell applications*. Carbon, 2009. **47**(10): p. 2413-2418.
47. Derieth, T., G. Bandlamudi, P. Beckhaus, C. Kreuz, F. Mahlendorf, and A. Heinzel, *Development of highly filled graphite compounds as bipolar plate materials for low and high temperature PEM fuel cells*. Journal of New Materials for Electrochemical Systems, 2008. **11**(1): p. 21-29.
48. Heo, S.I., J.C. Yun, K.S. Oh, and K.S. Han, *Influence of particle size and shape on electrical and mechanical properties of graphite reinforced conductive polymer composites for the bipolar plate of PEM fuel cells*. Advanced Composite Materials, 2006. **15**(1): p. 115-126.
49. Dweiri, R. and J. Sahari, *Electrical properties of carbon-based polypropylene composites for bipolar plates in polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC)*. Journal of Power Sources, 2007. **171**(2): p. 424-432.
50. Chang, W.R., J.J. Hwang, F.B. Weng, and 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.
51. Avasarala, B. and P. Haldar, *Effect of surface roughness of composite bipolar plates on the contact resistance of a proton exchange membrane fuel cell*. Journal of Power Sources, 2009. **188**(1): p. 225-229.
52. Müller, A., P. Kauranen, A. von Ganski, and B. Hell, *Injection moulding of graphite composite bipolar plates*. Journal of Power Sources, 2006. **154**(2): p. 467-471.
53. Jiang, F., W. Liao, T. Ayukawa, S.H. Yoon, K. Nakabayashi, and J. Miyawaki, *Enhanced performance and durability of composite bipolar plate with surface modification of cactus-like carbon nanofibers*. Journal of Power Sources, 2021. **482**.
54. Yu, H.N., J.W. Lim, M.K. Kim, and D.G. Lee, *Plasma treatment of the carbon fiber bipolar plate for PEM fuel cell*. Composite Structures, 2012. **94**(5): p. 1911-1918.
55. Dafalla, A.M. and F. Jiang, *Stresses and their impacts on proton exchange membrane fuel cells: A review*. International Journal of Hydrogen Energy, 2018. **43**(4): p. 2327-2348.
56. Kulikovskiy, A.A., H. Scharmann, and K. Wippermann, *Dynamics of fuel cell performance degradation*. Electrochemistry Communications, 2004. **6**(1): p. 75-82.
57. Müller, M., J. Hirschfeld, R. Lambertz, A. Schulze Lohoff, H. Lustfeld, H. Pfeifer, and M. Reißel, *Validation of a novel method for detecting and stabilizing malfunctioning areas in fuel cell stacks*. Journal of Power Sources, 2014. **272**: p. 225-232.

58. Qiu, D., P. Yi, L. Peng, and X. Lai, *Assembly design of proton exchange membrane fuel cell stack with stamped metallic bipolar plates*. International Journal of Hydrogen Energy, 2015. **40**(35): p. 11559-11568.
59. Qiu, D., P. Yi, L. Peng, and X. Lai, *Study on shape error effect of metallic bipolar plate on the GDL contact pressure distribution in proton exchange membrane fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2013. **38**(16): p. 6762-6772.
60. Huang, N.B., H. Yu, L.S. Xu, S. Zhan, M. Sun, and D.W. Kirk, *Corrosion kinetics of 316L stainless steel bipolar plate with chromiumcarbide coating in simulated PEMFC cathodic environment*. Results in Physics, 2016. **6**: p. 730-736.
61. Hickmann, T. and O. Zielinski. *Bipolar Plates: Different Materials and Processing Methods for Their Usage in Fuel Cells*. in *E3S Web of Conferences*. 2020.
62. Suherman, H., A.B. Sulong, and J. Sahari, *Effect of the compression molding parameters on the in-plane and through-plane conductivity of carbon nanotubes/graphite/epoxy nanocomposites as bipolar plate material for a polymer electrolyte membrane fuel cell*. Ceramics International, 2013. **39**(2): p. 1277-1284.
63. Simaafrookhteh, S., M. Khorshidian, and M. Momenifar, *Fabrication of multi-filler thermoset-based composite bipolar plates for PEMFCs applications: Molding defects and properties characterizations*. International Journal of Hydrogen Energy, 2020. **45**(27): p. 14119-14132.
64. Boyaci San, F.G. and O. Okur, *The effect of compression molding parameters on the electrical and physical properties of polymer composite bipolar plates*. International Journal of Hydrogen Energy, 2017. **42**(36): p. 23054-23069.
65. Gholizadeh, S., *A review of non-destructive testing methods of composite materials*. Procedia Structural Integrity, 2016. **1**: p. 50-57.
66. Kumar, S. and D. Mahto, *Recent trends in industrial and other engineering applications of non destructive testing: a review*. International Journal of Scientific & Engineering Research, 2013. **4**(9).
67. Nsengiyumva, W., S. Zhong, J. Lin, Q. Zhang, J. Zhong, and Y. Huang, *Advances, limitations and prospects of nondestructive testing and evaluation of thick composites and sandwich structures: A state-of-the-art review*. Composite Structures, 2021. **256**.
68. Zhao, Q., X. Dan, F. Sun, Y. Wang, S. Wu, and L. Yang, *Digital Shearography for NDT: Phase Measurement Technique and Recent Developments*. Applied Sciences, 2018. **8**(12).
69. Hung, Y.Y. and H.P. Ho, *Shearography: An optical measurement technique and applications*. Materials Science and Engineering: R: Reports, 2005. **49**(3): p. 61-87.
70. Abou-Khousa, M.A., A. Ryley, S. Kharkovsky, R. Zoughi, D. Daniels, N. Kreitinger, and G. Steffes, *Comparison of X-Ray, Millimeter Wave, Shearography and Through-Transmission Ultrasonic Methods for Inspection of Honeycomb Composites*. AIP Conference Proceedings, 2007. **894**(1): p. 999-1006.
71. Placko, D. and I. Dufour. *Eddy current sensors for nondestructive inspection of graphite composite materials*. in *Conference Record of the 1992 IEEE Industry Applications Society Annual Meeting*. 1992.
72. García-Martín, J., J. Gómez-Gil, and E. Vázquez-Sánchez, *Non-destructive techniques based on eddy current testing*. Sensors, 2011. **11**(3): p. 2525-2565.
73. Hamill, L., J. Emerson, K. McGushion, and S. Nutt, *Low Frequency Eddy Current Testing of Insulators and Composites*. Journal of Nondestructive Evaluation, 2018. **37**(3): p. 58.
74. Cai, Z., D. Zou, and C. Liu, *Research on Eddy-Current Testing of Functional Polymer Composite Material*. IEEE Transactions on Magnetics, 2018. **54**(11): p. 1-5.
75. Mook, G., R. Lange, and O. Koeser, *Non-destructive characterisation of carbon-fibre-reinforced plastics by means of eddy-currents*. Composites Science and Technology, 2001. **61**(6): p. 865-873.
76. Schmidt, C., C. Schultz, P. Weber, and B. Denkena, *Evaluation of eddy current testing for quality assurance and process monitoring of automated fiber placement*. Composites Part B: Engineering, 2014. **56**: p. 109-116.



77. Krautkrämer, J. and H. Krautkrämer, *Ultrasonic Testing of Materials [E-Book]*. 4th Fully Revised Edition. ed. 1990, Berlin, Heidelberg: Springer. XVI, 677 p. 298 illus. online resource.
78. Yu, Z. and S. Boseck, *Scanning acoustic microscopy and its applications to material characterization*. Reviews of Modern Physics, 1995. **67**(4): p. 863-891.
79. Lin, Y.H., C.C. Huang, and S.H. Wang, *Quantitative assessment on the orientation and distribution of carbon fibers in a conductive polymer composite using high-frequency ultrasound*. IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, 2012. **59**(5): p. 970-980.
80. Jiang, B., N. Stübler, W. Wu, Q. Li, G. Ziegmann, and D. Meiners, *Manufacturing and characterization of bipolar fuel cell plate with textile reinforced polymer composites*. Materials and Design, 2015. **65**: p. 1011-1020.
81. Opitz, S. *Ultraschallprüfsystem USPC 3040 DAC mit Flex-Scanner*. 2020 [cited 2020 17.11. 17:03];
82. Drinkwater, B.W. and P.D. Wilcox, *Ultrasonic arrays for non-destructive evaluation: A review*. NDT and E International, 2006. **39**(7): p. 525-541.
83. Malkin, R.E., A.C. Franklin, R.L.T. Bevan, H. Kikura, and B.W. Drinkwater, *Surface reconstruction accuracy using ultrasonic arrays: Application to non-destructive testing*. NDT and E International, 2018. **96**: p. 26-34.
84. Maldague, X. and S. Marinetti, *Pulse phase infrared thermography*. Journal of Applied Physics, 1996. **79**(5): p. 2694-2698.
85. Yang, R. and Y. He, *Optically and non-optically excited thermography for composites: A review*. Infrared Physics & Technology, 2016. **75**: p. 26-50.
86. Popov, V. and M. Gurka, *Full factorial analysis of the accuracy of automated quantification of hidden defects in an anisotropic carbon fibre reinforced composite shell using pulse phase thermography*. NDT and E International, 2020. **116**.
87. Fischlschweiger, M., A. Stock, and M. Thurmeier, *Integrated Defect Classification in Manufacturing of Carbon Fibre Reinforced Thermoplastic Polymer Matrix Composites*. Materials Science Forum, 2017. **879**: p. 554-559.
88. Balageas, D., X. Maldague, D. Burleigh, V.P. Vavilov, B. Oswald-Tranta, J.M. Roche, C. Pradere, and G.M. Carlomagno, *Thermal (IR) and Other NDT Techniques for Improved Material Inspection*. Journal of Nondestructive Evaluation, 2016. **35**(1): p. 18.
89. Krishnapillai, M., R. Jones, I.H. Marshall, M. Bannister, and N. Rajic, *Thermography as a tool for damage assessment*. Composite Structures, 2005. **67**(2): p. 149-155.
90. Gould, B.D., R. Ramamurti, C.R. Osland, and K.E. Swider-Lyons, *Assessing fuel-cell coolant flow fields with numerical models and infrared thermography*. International Journal of Hydrogen Energy, 2014. **39**(26): p. 14061-14070.
91. Stock, S.R., *X-ray microtomography of materials*. International Materials Reviews, 1999. **44**(4): p. 141-164.
92. Garcea, S.C., Y. Wang, and P.J. Withers, *X-ray computed tomography of polymer composites*. Composites Science and Technology, 2018. **156**: p. 305-319.
93. Stock, S.R., *Recent advances in X-ray microtomography applied to materials*. International Materials Reviews, 2008. **53**(3): p. 129-181.
94. Katunin, A., A. Wronkowicz-Katunin, and K. Dragan, *Impact damage evaluation in composite structures based on fusion of results of ultrasonic testing and X-ray computed tomography*. Sensors, 2020. **20**(7): p. 1867.
95. Nikishkov, Y., L. Airoidi, and A. Makeev, *Measurement of voids in composites by X-ray Computed Tomography*. Composites Science and Technology, 2013. **89**: p. 89-97.
96. Schilling, P.J., B.P.R. Karedla, A.K. Tatiparthi, M.A. Verges, and P.D. Herrington, *X-ray computed microtomography of internal damage in fiber reinforced polymer matrix composites*. Composites Science and Technology, 2005. **65**(14): p. 2071-2078.

97. Baranowski, T., D. Dobrovolskij, K. Dremel, A. Hölzing, G. Lohfink, K. Schladitz, and S. Zabler, *Local fiber orientation from X-ray region-of-interest computed tomography of large fiber reinforced composite components*. Composites Science and Technology, 2019. **183**: p. 107786.
98. Czabaj, M.W., M.L. Riccio, and W.W. Whitacre, *Numerical reconstruction of graphite/epoxy composite microstructure based on sub-micron resolution X-ray computed tomography*. Composites Science and Technology, 2014. **105**: p. 174-182.
99. Naouar, N., E. Vidal-Sallé, J. Schneider, E. Maire, and P. Boisse, *Meso-scale FE analyses of textile composite reinforcement deformation based on X-ray computed tomography*. Composite Structures, 2014. **116**(1): p. 165-176.
100. Pilinski, N., N.N. Krishnan, B. Satola, M. Rastedt, A. Dyck, and P. Wagner, *Comparison of Carbon Based Bipolar Plate Materials for Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells*. ECS Transactions, 2018. **86**: p. 315-327.
101. Satola, B., L. Komsiyyska, and G. Wittstock, *Bulk Aging of Graphite-Polypropylene Current Collectors Induced by Electrochemical Cycling in the Positive Electrolyte of Vanadium Redox Flow Batteries*. Journal of The Electrochemical Society, 2017. **164**(12): p. A2566-A2572.
102. Kulkarni, N., M.D.R. Kok, R. Jervis, F. Iacoviello, Q. Meyer, P.R. Shearing, and D.J.L. Brett, *The effect of non-uniform compression and flow-field arrangements on membrane electrode assemblies - X-ray computed tomography characterisation and effective parameter determination*. Journal of Power Sources, 2019. **426**: p. 97-110.
103. Sietmann, M., H. Janßen, M. Müller, and W. Lehnert, *An analysis of the imperfections and defects inside composite bipolar plates using X-Ray computer tomography and resistivity simulations*. to be published in International Journal of Hydrogen Energy, 2021.
104. ISO1853:2018(E), *Conducting and dissipative rubbers, vulcanized or thermoplastic - Measurement of resistivity, in Method 1*, ISO, Editor. 2018.
105. ASTM, *Standard Test Method for Electrical Resistivity of Manufactured Carbon and Graphite Articles at Room Temperature, in C611-98 (Reapproved 2016)*, A. Internantional, Editor. 2016.
106. Valdes, L.B., *Resistivity Measurements on Germanium for Transistors*. Proceedings of the IRE, 1954. **42**(2): p. 420-427.
107. Schroder, D.K., *Semiconductor material and device characterization*. 3rd ed. ed. 2006, New York, NY: Wiley. XV, 779 S.
108. Mironov, V.S., J.K. Kim, M. Park, S. Lim, and W.K. Cho, *Comparison of electrical conductivity data obtained by four-electrode and four-point probe methods for graphite-based polymer composites*. Polymer Testing, 2007. **26**(4): p. 547-555.
109. Kang, K., S. Park, A. Jo, K. Lee, and H. Ju, *Development of ultralight and thin bipolar plates using epoxy-carbon fiber prepregs and graphite composites*. International Journal of Hydrogen Energy, 2017. **42**(3): p. 1691-1697.
110. Arai, T., Y. Tominaga, S. Asai, and M. Sumita, *A study on correlation between physical properties and interfacial characteristics in highly loaded graphite-polymer composites*. Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics, 2005. **43**(18): p. 2568-2577.
111. Planes, E., *Spatial distribution of the electrical conductivity in highly filled polymers: Experiment, modeling, and application to bipolar plates (11 pages)*. JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 2013. **114**(22): p. 223710.
112. Kakati, B.K., D. Sathiyamoorthy, and A. Verma, *Electrochemical and mechanical behavior of carbon composite bipolar plate for fuel cell*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**(9): p. 4185-4194.
113. Dhakate, S.R., S. Sharma, N. Chauhan, R.K. Seth, and R.B. Mathur, *CNTs nanostructuring effect on the properties of graphite composite bipolar plate*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**(9): p. 4195-4200.
114. Cunningham, N., M. Lefèvre, G. Lebrun, and J.-P. Dodelet, *Measuring the through-plane electrical resistivity of bipolar plates (apparatus and methods)*. Journal of Power Sources, 2005. **143**(1): p. 93-102.

115. Sadeghifar, H., *In-plane and through-plane electrical conductivities and contact resistances of a Mercedes-Benz catalyst-coated membrane, gas diffusion and micro-porous layers and a Ballard graphite bipolar plate: Impact of humidity, compressive load and polytetrafluoroethylene*. Energy Conversion and Management, 2017. **154**: p. 191-202.
116. Sow, P.K., S. Prass, P. Kalisvaart, and W. Mérida, *Deconvolution of electrical contact and bulk resistance of gas diffusion layers for fuel cell applications*. International Journal of Hydrogen Energy, 2015. **40**(6): p. 2850-2861.
117. Baumann, N., A. Blankenship, M. Dorn, and C. Cremers, *Evaluating Current Distribution and Influence of Defect Sites for Graphitic Compound Bipolar Plate Materials*. Fuel Cells, 2020. **20**(1): p. 40-47.
118. Shen, L., J. Li, B.M. Liaw, F. Delale, and J.H. Chung, *Modeling and analysis of the electrical resistance measurement of carbon fiber polymer–matrix composites*. Composites Science and Technology, 2007. **67**(11): p. 2513-2520.
119. Kovalovs, A., S. Rucevskis, V. Kulakov, and M. Wesołowski, *Damage Detection in Carbon Fibre Reinforced Composites Using Electric Resistance Change Method*. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 2019. **471**: p. 102014.
120. Baltopoulos, A., N. Polydorides, L. Pambaguan, A. Vavouliotis, and V. Kostopoulos, *Damage identification in carbon fiber reinforced polymer plates using electrical resistance tomography mapping*. Journal of composite materials, 2013. **47**(26): p. 3285-3301.
121. Gallo, G.J. and E.T. Thostenson, *Spatial damage detection in electrically anisotropic fiber-reinforced composites using carbon nanotube networks*. Composite Structures, 2016. **141**: p. 14-23.
122. Nonn, S., M. Schagerl, Y. Zhao, S. Gschossmann, and C. Kralovec, *Application of electrical impedance tomography to an anisotropic carbon fiber-reinforced polymer composite laminate for damage localization*. Composites Science and Technology, 2018. **160**: p. 231-236.
123. Eisenhuth GmbH & Co.KG. *Technisches Datenblatt Material BMA5*. 2020 [cited 2021 08.01. 11:10]; <https://eisenhuth.de/wp-content/uploads/2020/08/BMA5.pdf>
124. Eisenhuth GmbH & Co.KG. *Technisches Datenblatt Material PPS*. 2020 [cited 2021 07.01. 9:30]; <https://eisenhuth.de/wp-content/uploads/2020/08/PPS.pdf>
125. Eisenhuth GmbH & Co.KG. *Technisches Datenblatt Material PPG86*. 2020 [cited 2021 08.01. 11:15]; <https://eisenhuth.de/wp-content/uploads/2020/08/PPG86.pdf>
126. ANSYS Inc., *ANSYS Mechanical APDL Theory Reference*. 2017.
127. OWIS GmbH. *Produktinformation Hochpräzisions-Lineartische LIMES 84N*. 2021 [cited 2021 13.01.2021 15:41]; [https://www.owis.eu/fileadmin/user\\_upload/owis.eu/products/pdf/pi\\_limes\\_84n.pdf](https://www.owis.eu/fileadmin/user_upload/owis.eu/products/pdf/pi_limes_84n.pdf)
128. OWIS GmbH. *Produktinformation Präzisions-Lineartische LTM60P*. 2021 [cited 2021 13.01.2021 15:39]; [https://www.owis.eu/fileadmin/user\\_upload/owis.eu/products/pdf/pi\\_ltm\\_60p.pdf](https://www.owis.eu/fileadmin/user_upload/owis.eu/products/pdf/pi_ltm_60p.pdf)
129. National Instruments. *NI PXIe-2737 Device Specifications*. 2021 [cited 2021 13.01.2021 15:32]; <https://www.ni.com/pdf/manuals/376201a.pdf>
130. National Instruments. *PXI-4130 Specifications*. 2021 [cited 2021 13.01.2021 15:23]; <https://www.ni.com/pdf/manuals/374746e.pdf>
131. National Instruments. *PKI-4065 Specifications*. 2021 [cited 2021 13.01.2021 15:26]; <https://www.ni.com/pdf/manuals/374315j.pdf>
132. Bio-Logic SAS. *HCP-1005*. 2014 26.04.2021]; <https://www.biologic.net/documents/hcp-1005/>
133. Fouquet, N., C. Doulet, C. Nouillant, G. Dauphin-Tanguy, and B. Ould-Bouamama, *Model based PEM fuel cell state-of-health monitoring via ac impedance measurements*. Journal of Power Sources, 2006. **159**(2): p. 905-913.
134. Irmscher, P., *Mechanische Eigenschaften von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen*. 2019, Elektrochemische Verfahrenstechnik.

135. Qiu, D., H. Janßen, L. Peng, P. Irmscher, X. Lai, and 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.
136. Carl Zeiss X-ray Microscopy Inc., *ZEISS Xradia Versa User's Guide*. 2016.
137. Reichelt Chemietechnik GmbH & CoKG. *Polyphenylensulfid*. 2021 [cited 2021 15.02.2021 11:21]; <https://www.rct-online.de/de/RctGlossar/detail/id/40>
138. Ensinger. *TECATRON natural ungefülltes PPS*. 2020 [cited 2020 15.02.2020 11:20]; <https://www.ensingerplastics.com/de-de/halbzeuge/produkte/tecatron-natural>
139. Thielmann Graphite GmbH & Co.KG. *Graphit*. 2021 [cited 2021 15.02.2021 11:25]; <https://www.kwthielmann.de/de/graphite/allgemein.php>

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1:	Brennstoffzellenstack mit fünf Brennstoffzellen (links), Ausschnitt aus Brennstoffzelle mit Funktionsprinzip (rechts) .....	4
Abbildung 2.2:	Strom-Spannungs-Kennlinie, adaptiert nach Klell [5] .....	6
Abbildung 2.3:	Bipolarplattenmaterialien nach Hermann et al. [6] .....	8
Abbildung 2.4:	Leitfähigkeit in Abhängigkeit des Füllstoffanteils [43] .....	13
Abbildung 2.5:	Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Graphit-Komposit-Bipolarplattenmaterials mit Graphitpartikeln und Polymerbindermaterial sowie beispielhafter Einzeichnung möglicher Leitfähigkeitspfade entlang eines leitenden Netzwerkes aus Graphitpartikel.....	14
Abbildung 2.6:	In-Plane Messaufbauten für einen rechteckigen Querschnitt. a) klassischer Aufbau mit Kontaktierung über die Bauteilseitenflächen, b) Vier-Punkt-Messmethode mit Punktkontaktierung an vier linear angeordneten Punkten .....	27
Abbildung 2.7:	Schematische Darstellung unterschiedlicher through-plane Bestimmungsmethode a) through-plane Leitfähigkeitsmessung mit vollständiger Kontaktierung und Variation der Probendicke, b) through-plane Leitfähigkeitsmessung mit Messnadel, adaptiert nach [38].....	29
Abbildung 2.8:	FEM-Simulation des relativen elektrischen Potentialfeldes in einem Messaufbau mit Messnadel (geometrische Abmaße in Millimeter). a) Geometrie für die Simulation, b) Simulationsergebnisse für den Messaufbau, c) vergrößertes Bild zeigt die Verteilung der Äquipotentialebenen nahe der Bohrung, d) vergrößertes Bild zeigt die Verteilung der Äquipotentialebenen unter der BPP [116] .....	30
Abbildung 2.9:	2-D Probe und Elektrodenplatzierung a) ideale Probe, b) Probe mit Delaminationsdefekt mit $L_0 = 200$ mm, $L_1 = 10$ mm, $L_2 = 30$ mm, $L_3 = 2$ mm, $H = 3,2$ mm [118] .....	31
Abbildung 3.1:	Bipolarplatten a) Schematische Darstellung mit Abbildung des vorrangigen Mängelbereiches, b) Referenzplatte (Referenzprobe A), c) Monopolarplatte mit Holzspänen (Probe Holzpartikel A), d) Monopolarplatten mit sichtbarer Beimischung von Kunststoff (Probe Kunststoff C), e) Monopolarplatte mit nicht sichtbarer Beimischung von Kunststoff (Probe Kunststoff B), f) Monopolarplatte mit Beimischung von Stahlpartikeln (Probe Stahlpartikel A).....	37
Abbildung 3.2:	Simulationsmodell und Vernetzung .....	38
Abbildung 3.3:	Potentialfeldverteilung innerhalb einer idealen Probe (links) und eine Probe mit Defekt (rechts) .....	39
Abbildung 3.4:	simulierte Potentialdifferenzen entlang der Materialprobe .....	40
Abbildung 3.5:	Simulationsmodell für eine flächige Kontaktierung .....	41

---

Abbildung 3.6:	a) Prüfkopf mit einem 2mm Raster, b) Prüfkopf mit einem 1mm Raster, c) Bild des gesamten eingebauten Prüfkopfes, d) Bild des oberen und unteren Prüfkopfes mit Messspitzenzuordnung e) Schema der Messspitzenzuordnung.....	42
Abbildung 3.7:	a) Teststands Aufbau, b) Teststand mit Probenhalter und eingelegter Probe, c) Mit dem Prüfkopf kontaktiertes Strömungsfeld der Probe.....	44
Abbildung 3.8:	Schaltschema des Versuchsaufbaus mit in Rot markierter Beispielverbindung.....	46
Abbildung 3.9:	Seitenansicht des PPS-Materialstreifens mit Durchgangslöchern .....	46
Abbildung 3.10:	Bezeichnung der Positionen auf der Monopolarplatte und des Abtastmusters des Prüfkopfes mit detaillierter Darstellung der Messstiftplatzierung an den Positionen 1, 29 und 210 .....	47
Abbildung 3.11:	Materialprobenhalter mit Möglichkeit zur in-plane Messung.....	50
Abbildung 3.12:	Simulierte Potentialverteilung in einem Bipolarplattenmaterial .....	50
Abbildung 3.13:	linkes Diagramm zeigt Potentiale V1 und V3 simuliert für variierende spezifische through-plane Widerstände, rechtes Diagramm zeigt die tatsächlich gemessenen Potentiale V1 und V3.....	51
Abbildung 3.14:	Unterteilung der Bipolarplattenmaterialprobe in Abschnitte und Bestimmung der in-plane Messpositionen .....	52
Abbildung 3.15:	Ersatzschaltbild für die Impedanzspektroskopie.....	54
Abbildung 3.16:	Versuchsschema der Widerstandsmessung mit Kontaktierung der gesamten aktiven Zellfläche.....	55
Abbildung 3.17:	Schematischer Experimentaufbau, adaptiert nach [103] .....	56
Abbildung 3.18:	a) Schnitt durch ein Tomogramm b) Schnitt durch ein Tomogramm mit markierten Holzpartikeln c) Modell erstellt aus CT-Daten, adaptiert nach [103].....	59
Abbildung 4.1:	Röntgentomographie von verschiedenen Bipolarplattenmaterialien, adaptiert nach [103] .....	61
Abbildung 4.2:	Materialsegmentierung der Graphitpartikel (rot), Polymerbinder (grün), Magnesiumoxidpartikel (blau) und Fehlstellen (gelb) basierend auf deren Graustufenwerten. Adaptiert nach [103]. .....	63
Abbildung 4.3:	Vergleich Computertomographieaufnahme (links) und Rasterelektronenmikroskopie (rechts), adaptiert nach [103] .....	64
Abbildung 4.4:	Vergleich Risse in Röntgentomographie (links) mit REM-Aufnahmen (rechts) .....	65
Abbildung 4.5:	Tomogramm des gesamten Strömungsfeldes A) 0% Transparenz, B) ca. 50% Transparenz, C) ca. 75% Transparenz, D) ca. 95% Transparenz.....	66
Abbildung 4.6:	Vergleich der Potentialdifferenzen P1-P3 und P2-P4 und Bildung der Differenz der beiden Potentialdifferenzen. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte.....	68

Abbildung 4.7: Vergleich der Potentialdifferenzen P1-P3 für die Probe ohne Bohrungen (orange) und die Probe mit Bohrungen (blau). Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte. ....	69
Abbildung 4.8: Reproduzierbarkeit der Messergebnisse, dargestellt für die Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte. a) Messreihe automatisiert wiederholt mit der mittleren Messspitzenreihe, b) Messreihe wiederholt mit unterschiedlichen Messspitzenreihen .....	70
Abbildung 4.9: Verschiebung des Prüfkopfes entlang des Teststreifens, Darstellung eines Ausschnittes aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve für Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die mittleren stromführenden Kontaktstifte. ....	72
Abbildung 4.10: Verschiebung des Prüfkopfes quer zum Teststreifen, Darstellung eines Ausschnittes aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve für P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte. ....	73
Abbildung 4.11: CT-Aufnahmen einer Hälfte des PPS-Materialstreifens a) Übersichtsbild mit Konturen für die Querschnittsebenen, b) Querschnitt auf der XY-Ebene, c) Querschnitt XZ-Ebene, d) Querschnitt YZ-Ebene, e) Detail aus der XZ-Querschnittsebene, f) Detail aus der YZ-Querschnittsebene mit schematisch eingezeichneten Positionierung der Messspitzen für einen Prüfkopf mit 2 mm Raster .....	74
Abbildung 4.12: Potentialdifferenzen bei einem Abstand der Messspitzen zum stromleitenden Kontaktstift von 1 mm. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte. ....	76
Abbildung 4.13: Potentialdifferenzen bei einem Abstand der Messspitzen zum stromleitenden Kontaktstift von 4 mm. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte. ....	76
Abbildung 4.14: Vergleich von Simulation und Messung für unterschiedliche Abstände zwischen stromführenden Spitzen und Messspitzen für die Potentialdifferenz P1-P3. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte. ....	77
Abbildung 4.15: Serie von Potentialfeldern a) Position erster Peak, b) Position lokales Minimum, c) Position zweiter Peak .....	78
Abbildung 4.16: Potentialdifferenz P1-P3 in Abhängigkeit der Abrasterungsschrittweite. Darstellung eines Ausschnittes aus der gemessenen Potentialdifferenzkurve. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf die stromführenden Kontaktstifte. ....	79
Abbildung 4.17: Potentialfeldverteilung für unterschiedliche Messspitzenkombinationen .....	80
Abbildung 4.18: Messspitzenkombinationen an der gesamten PPS-Materialprobe im Vergleich zum simulierten Spannungsniveau. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf das mittlere Kontaktstiftpaar. ....	81
Abbildung 4.19: Prozentuale Abweichung der Messung vom simulierten Referenzwert. Darstellung der Bohrungspositionen bezogen auf das mittlere Kontaktstiftpaar. ....	81

Abbildung 4.20: Auswirkung der Verschiebung der Prüfköpfe gegeneinander für die Messspitzenkombination a) und c) .....	82
Abbildung 4.21: Vergleich der Trends der Potentialverläufe in Materialstreifen aus BMA5, PPG86 und PPS Material.....	84
Abbildung 4.22: Potentialfeldausbreitung (in mV) in einer blanken PPS-Bipolarplatte (100mm x100mm) für fünf Positionen bezogen auf die Mitte der Platte. Verschiebung der Positionen bezüglich der Mitte in mm .....	85
Abbildung 4.23: Gemessene Spannung des Gesamtaufbaus für unterschiedlich dicke BPP bei einer Stromdichte von $1A/cm^2$ in Abhängigkeit des Anpressdrucks .....	87
Abbildung 4.24: Ermittlung des spezifischen through-plane Widerstandes für eine PPS-Materialprobe mit Fehlerbetrachtung .....	90
Abbildung 4.25: Vergleich der beiden Bestimmungsmethoden für den through-plane Widerstand ...	91
Abbildung 4.26: a) in-plane Mapping auf PPS-Materialprobe, b) through-plane Mapping auf PPS-Materialprobe .....	92
Abbildung 4.27: Wiederholungsmessungen des in-plane und through-plane Mappings. a) 2. Messung des in-plane Mapping, b) Wiederholungsmessung des through-plane Mapping, berechnet mit lokalen in-plane Widerstandswerten, c) through-plane Mapping, berechnet mit konstantem in-plane Widerstandswert, d) Wiederholungsmessung des in-plane Mapping, e) Wiederholungsmessung des through-plane Mapping, berechnet mit lokalen in-plane Widerstandswerten, f) through-plane Mapping, berechnet mit konstantem in-plane Widerstandswert, Wiederholungsmessung .....	93
Abbildung 4.28: a) Mapping Multiplikationsfaktoren auf Basis der Bildung von Vergleichsgruppen b) Mapping Multiplikationsfaktoren auf Basis eines Vergleichs mit der Simulation einer idealen Probe.....	94
Abbildung 4.29: Multiplikationsfaktoren aus den Potentialfeldmessungen der Referenzprobe A mit der gegenüberliegenden Plattenhälfte als Referenz.....	95
Abbildung 4.30: Vergleich der Messwerte für die Messspitzenpaare bei Position 1 für die Referenzmessung und Simulation.....	97
Abbildung 4.31: Multiplikationsfaktoren für die aktive Zellfläche der Referenzprobe A mit simulierten Werte einer idealen Probe als Referenz.....	99
Abbildung 4.32: Multiplikationsfaktoren im Vergleich zur Simulation für die „Referenzprobe B“, die „Referenzprobe C“ und die „Referenzprobe D“ .....	99
Abbildung 4.33: a) Graustufenbild eines Tomogramms mit Holzpartikel, b) Tomogramm mit Segmentierung der Holzpartikel .....	100
Abbildung 4.34: Auswertung der Probe „Holzpartikel A“. a) Übersichtsmodell mit Verteilung der Holzpartikel, b) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe mit angedeutetem Auswerteausschnitt, c) Seitenansicht des Übersichtsmodells zeigt Positionierung der Holzpartikel in der Mitte der Monopolarplatte, d) Multiplikationsfaktoren aus der Potentialfeldmessung e) Verteilung der Volumenanteile der Holzpartikel im Bereich der aktiven Zellfläche in Vol.-% .....	102



Abbildung 4.35: Auswertung der Probe „Holzpartikel B“. a) Übersichtsmodell mit Verteilung der Holzpartikel, b) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe mit angedeutetem Vergleichsschnitt und zwei die Oberfläche berührende Holzpartikel, c) Verteilung der Volumenanteile der Holzpartikel in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren aus der Potentialfeldmessung, e) Multiplikationsfaktoren aus Wiederholungsmessungen der Potentialfeldmessung, f) Multiplikationsfaktoren aus Wiederholungsmessungen der Potentialfeldmessung .....	104
Abbildung 4.36: a) Ausschnitt aus dem Tomogramm einer Monopolarplatte mit Kunststoffansammlung, b) Tomogramm mit Segmentierung des Kunststoffs.....	105
Abbildung 4.37: Computertomographieaufnahmen und Modell für die Probe „Kunststoff A“ als Beispielprobe für eine Monopolarplatte mit massiven Mängeln. a) Übersichtsmodell mit Kunststoffansammlung auf der Oberseite in leuchtendem Rot, im Inneren der Probe in blassem Rot und auf der Unterseite in dunklem Rot, b) Schnittansicht des Tomogramms an der obersten Schicht, c) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe, d) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe, mit jeweils markiertem ersten Vergleichsausschnitt .....	106
Abbildung 4.38: Vergleich für die Probe "Kunststoff A" zwischen a) Übersichtsmodell aus Tomographiedaten, b) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung mit einer logarithmischen Skala von 1 bis 100, c) Volumenanteile der Kunststoffansammlungen in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 2 .....	107
Abbildung 4.39: Computertomographieaufnahmen und Modell für die Probe „Kunststoff B“ a) Übersichtsmodell mit Kunststoffansammlung auf der Oberseite in leuchtendem Rot, im Inneren der Probe in blassem Rot und auf der Unterseite in dunklem Rot, b) Schnittansicht des Tomogramms an der obersten Schicht, c) Schnittansicht des Tomogramms in der Mitte der Probe mit vereinzelt Größenangaben, d) Schnittansicht des Tomogramms an der Unterseite der Probe, mit jeweils markiertem ersten Vergleichsausschnitt, e) Schnitt quer durch das Tomogramm mit vereinzelt Angaben der Mängelgröße .....	108
Abbildung 4.40: Vergleich für die Probe "Kunststoff B" zwischen a) Übersichtsmodell aus Tomographiedaten, b) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 10, c) Volumenanteile der Kunststoffansammlungen in Vol.-%, d) Multiplikationsfaktoren der Potentialfeldmessung von 0 bis 2.....	109
Abbildung 4.41: Analyse der Mängelverteilung in der Probe „Kunststoff C“ mit a) Querschnitt aus Tomogramm, b) Modell aus Tomographiedaten, c) Multiplikationsfaktoren aus Potentialfeldmessungen.....	110
Abbildung 4.42: Röntgentomographieaufnahmen und Modellbildung der Probe „Holzpartikel C“. a) XY-Schnitt durch das Tomogramm an der rechten oberen Ecke, b) Isometrische Ansicht des Modells mit Rissausbreitung an der rechten oberen Ecke, c) XZ-Schnitt durch das Tomogramm der rechten oberen Ecke, d) XY-Schnitt durch das Tomogramm an der rechten unteren Ecke, e) Isometrische Ansicht des Modells mit Rissausbreitung an der rechten unteren Ecke, f) XZ-Schnitt durch das Tomogramm der rechten unteren Ecke .....	111
Abbildung 4.43: Vergleich des Modells aus der Röntgentomographie mit den Potentialfeldmessungen zur Detektion der Risse in der Probe „Holzpartikel C“ .....	112

---

Abbildung 4.44: Auswertung der Probe „Stahlpartikel A“. a) Foto der Probe, b) Schnitt durch das Tomogramm der Probe, c) Multiplikationsfaktoren aus den Potentialfeldmessungen .....	113
Abbildung 4.45: Gesamtwiderstände des Versuchsaufbaus in Abhängigkeit des Anpressdruckes ....	115
Abbildung 4.46: Modell aus Tomographiedaten für einen Ausschnitt aus der Probe Holzpartikel C, a) Draufsicht auf das gesamte Strömungsfeld mit markierten Holzpartikeln, b) 3-D Übersicht des Teilstückes, b) Draufsicht auf das Detail, c) Seitenansicht des Details .....	116
Abbildung 4.47: Messergebnisse des in-plane und through-plane Versuchsaufbau, adaptiert nach [103] .....	117
Abbildung 4.48: Simulierter Potentialverlauf innerhalb des Experimentaufbaus abhängig von der Position, adaptiert nach [103] .....	119
Abbildung 4.49: Polarisationskurven aus Brennstoffzellentest von unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen unter der Verwendung von neuen MEA und GDL. Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4.....	120
Abbildung 4.50: Polarisationskurven aus Brennstoffzellentest von unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen unter der Verwendung der gleichen MEA und GDL; Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4.....	121
Abbildung 4.51: Impedanzspektren von Brennstoffzellentest mit unterschiedlichen Monopolarplattenkombinationen Betriebsbedingungen: Betriebstemperatur 70 °C, rel. Feuchte 70 %, Stöchiometrie Anode:2, Stöchiometrie Kathode:4, Parameter EIS: potentiostatisch 0,67 V, Amplitude 10 mv, Frequenzbereich: 100 mHz – 10 kHz.....	123

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 3.1:	Materialproben der Firma Eisenhuth GmbH & Co.KG, typische Materialkennwerte	35
Tabelle 3.2:	Einstellungen für die Aufnahmen im Nano-CT für die unterschiedlichen Untersuchungen	58
Tabelle 4.1:	Zuordnung der Volumenanteile	64
Tabelle 4.2:	Vergleich zwischen Messwerten und Herstellerangaben für den spezifischen through-plane Widerstand der untersuchten Materialien	88
Tabelle 4.3:	Vergleich von Simulation und Messung für die in Abbildung 3.10 gezeigten Positionen	96
Tabelle 4.4:	Simulation der Verschiebungen des Prüfkopfes um wenige Zehntelmillimeter	98

## Abkürzungsverzeichnis

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
PEM-BZ	Polymer-Elektrolyt-Membran Brennstoffzelle
MEA	Membran-Elektroden-Einheit (engl.: membrane electrode assembly)
GDL	Gasdiffusionslage
MPL	Mikroporöse Schicht (engl.: micro porous layer)
FFP	Strömungsverteilerplatten (engl.: low field plates)
BPP	Bipolarplatte
DOE	Department of Energy
ICR	Kontaktwiderstand (engl.: interfacial contact resistance)
REM	Rasterelektronenmikroskopie
PTFE	Polytetrafluorethylen
DFT	Diskrete Fourier Transformation
CT	Computertomographie
FEM	Finite-Elemente-Simulation
PPS	Polyphenylensulfid
P1	Potentialmessstift 1
P2	Potentialmessstift 2
P3	Potentialmessstift 3
P4	Potentialmessstift 4
SMU	Source-Measure-Unit
DMM	Digitalmultimeter
V1	Vergleichsposition 1
V2	Vergleichsposition 2

V3	Vergleichsposition 3
V4	Vergleichsposition 4
V5	Vergleichsposition 5
EIS	Elektrochemische Impedanzspektroskopie
FOV	Betrachtungsfeld (engl.: field of view)
EDX	Energiedispersive Röntgenspektroskopie
PFA	Perfluoralkoxy-Polymer
IEK-14	IEK-14 Institut für Energie- und Klimaforschung Elektrochemische Verfahrenstechnik
Gew.-%	Gewichtsprozent
Vol.-%	Volumenprozent

## Formelzeichen und Indizes

Zeichen	Bedeutung	Einheit
$A$	Querschnittsfläche	$(\text{m}^2)$
$\vec{B}$	Magnetische Flussdichte	$(\text{T})$
$B$	Breite	$(\text{m})$
$D$	Dicke	$(\text{m})$
$e^-$	Elektron	$(-)$
$ecc$	Leitfähig an der Kontaktfläche	$\left(\frac{\text{S}}{\text{m}^2}\right)$
$\vec{E}$	Elektrische Feldstärke	$\left(\frac{\text{N}}{\text{C}}\right)$
$E$	Energie der Photonen	$(\text{J})$
$E$	Reversible Zellspannung	$(\text{V})$
$E^0$	Standardpotential	$(\text{V})$
$E_N$	Nernstspannung	$(\text{V})$
$E_{th}$	Thermoneutrale Zellspannung	$(\text{V})$
$f$	Frequenz	$(\text{Hz})$
$F$	Faraday-Konstante	$96485\left(\frac{\text{C}}{\text{mol}}\right)$
$F$	Füllstoffanteil	$(-)$
$F_1$	Geometrischer Korrekturfaktor	$(-)$
$F_2$	Geometrischer Korrekturfaktor	$(-)$
$-\Delta G^0$	Freie Reaktionsenthalpie	$\left(\frac{\text{J}}{\text{mol}}\right)$
$H_2$	Wasserstoffmolekül	$(-)$
$H_2O$	Wassermolekül	$(-)$
$-\Delta H^0$	Enthalpie	$\left(\frac{\text{J}}{\text{mol}}\right)$
$\Delta H_o$	Oberer Heizwert	$\left(\frac{\text{J}}{\text{mol}}\right)$

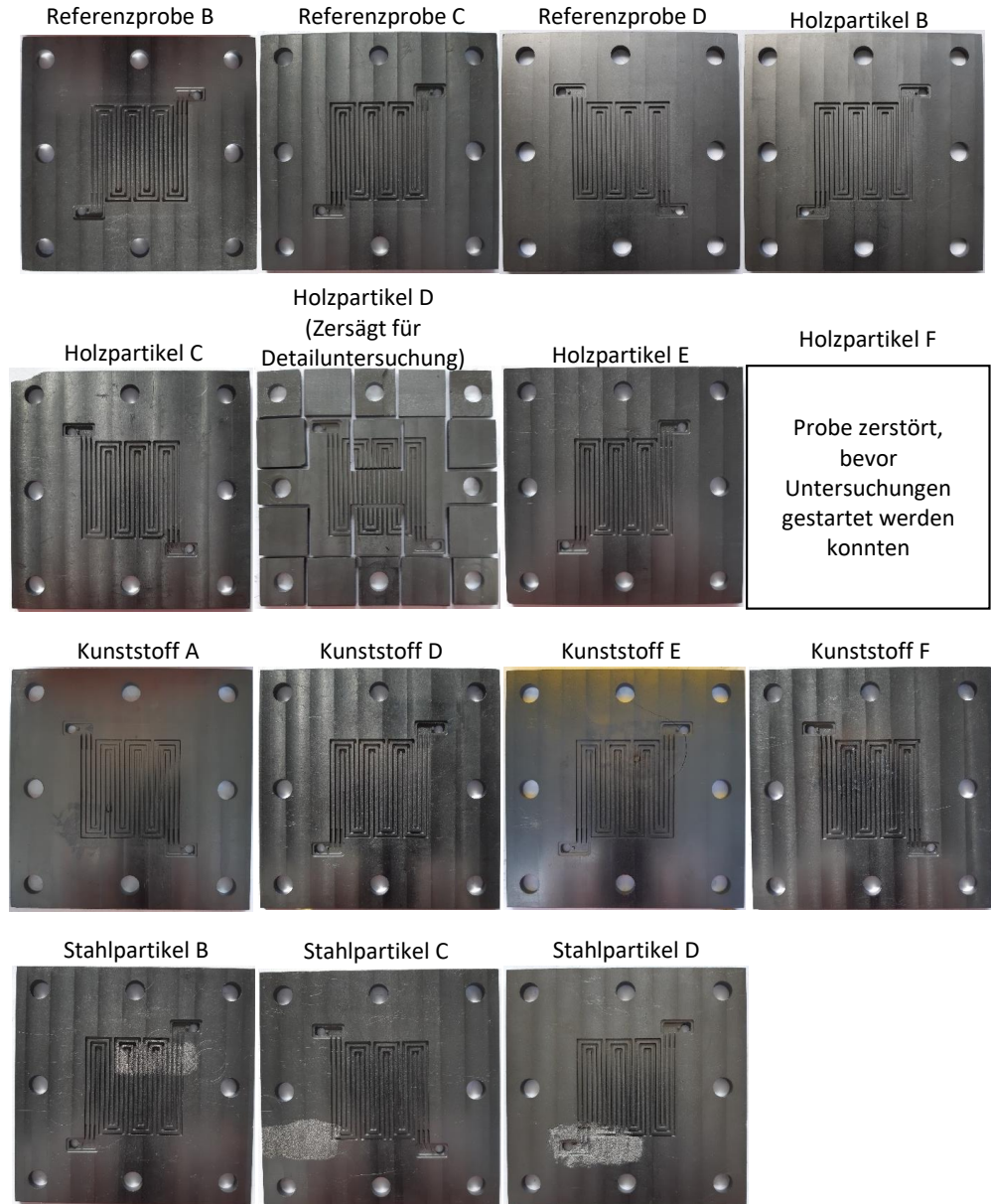
$\Delta H_u$	Unterer Heizwert	$\left(\frac{\text{J}}{\text{mol}}\right)$
$I$	Intensität	$\left(\frac{\text{W}}{\text{m}^2}\right)$
$I$	Stromstärke	(A)
$\vec{j}$	Stromdichte	$\left(\frac{\text{A}}{\text{m}^2}\right)$
$K$	Konstante	(–)
$L$	Abstand	(m)
$N_{\text{Apertur}}$	Numerische Apertur der Linse	(–)
$O_2$	Sauerstoffmolekül	(–)
$p_{H_2}$	Normierter Partialdruck des Wasserstoffs	(–)
$p_{H_2O}$	Normierter Partialdruck des Wassers	(–)
$p_{O_2}$	Normierter Partialdruck des Sauerstoffs	(–)
$R$	Ideale Gaskonstante	$8,315\left(\frac{\text{J}}{\text{mol}\cdot\text{K}}\right)$
$R$	Ohmscher Widerstand	( $\Omega$ )
$R_A$	Auflösung	(m)
$t$	Zeit	(s)
$U$	Spannung	(V)
$V$	Elektrisches Potential	(V)
$v_w$	Schallgeschwindigkeit	$\left(\frac{\text{m}}{\text{s}}\right)$
$w$	Dicke	(m)
$x$	Wegstrecke	(m)
$z$	Anzahl der an der Reaktion beteiligten Elektronen	(–)
$z$	Tiefenlage	(m)
$Z$	Ordnungszahl	(–)

$\alpha$	Thermische Diffusivität	$\left(\frac{\text{m}^2}{\text{s}}\right)$
$\varepsilon_0$	Elektrische Feldkonstant	$\left(\frac{\text{A} \cdot \text{s}}{\text{V} \cdot \text{m}}\right)$
$\lambda$	Wellenlänge	(m)
$\lambda_w$	Schallgeschwindigkeit	(m)
$\mu$	Linearer Röntgenabschwächungskoeffizient	$\left(\frac{1}{\text{m}}\right)$
$\mu_0$	Magnetische Feldkonstante	$\left(\frac{\text{V} \cdot \text{s}}{\text{A} \cdot \text{m}}\right)$
$\rho$	Dichte	$\left(\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}\right)$
$\rho$	Raumladungsdichte	$\left(\frac{\text{A} \cdot \text{s}}{\text{m}^3}\right)$
$\rho_{\text{Spez}}$	Spezifischer elektrischer Widerstand	$(\Omega \cdot \text{m})$
$\sigma$	Elektrische Leitfähigkeit	(S)
$\sigma_c$	Elektrische Leitfähigkeit an der Perkolationsschwelle	(S)
$\sigma_m$	Maximal erreichbare elektrische Leitfähigkeit	(S)
$\sigma_p$	Elektrische Leitfähigkeit von reinem Polymer	(S)
$\sigma_{\text{Spez}}$	Spezifische elektrische Leitfähigkeit	$\left(\frac{\text{S}}{\text{m}}\right)$
$\varphi$	Anteil Füllmaterial	(-)



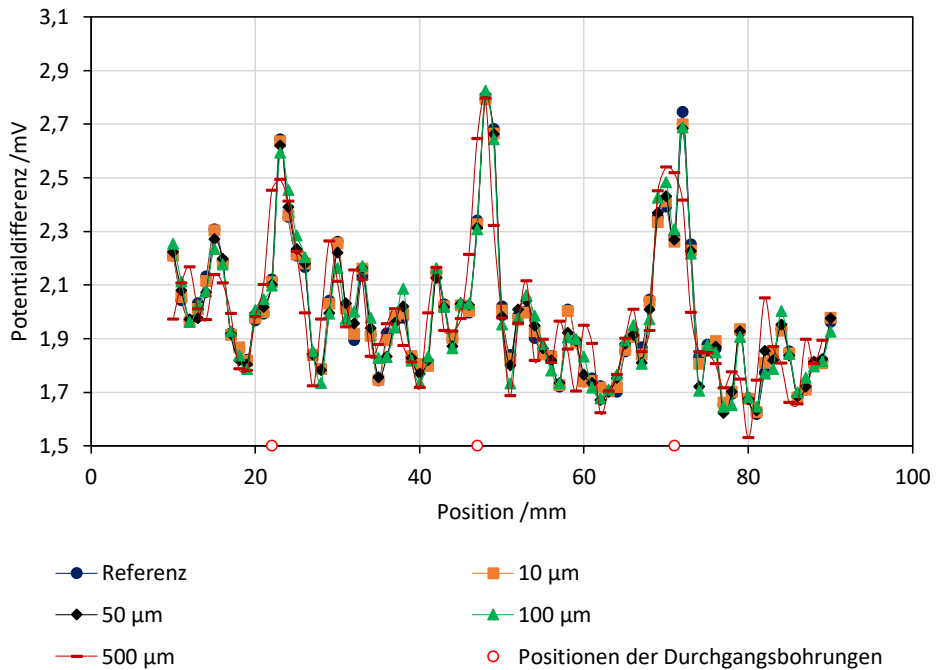
## Anhang

### Anhang zu Kapitel 3.1: Untersuchte Materialproben

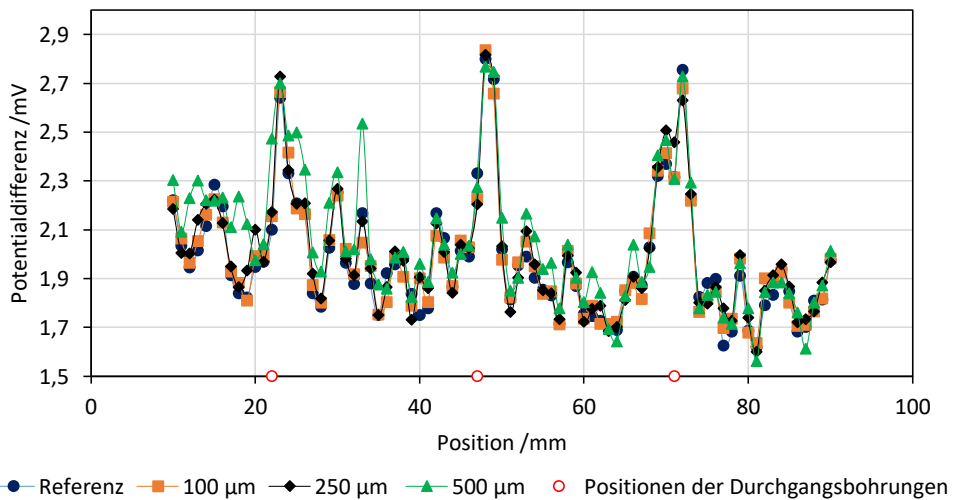


Anhang A1: Bilder der Monopolarplatten

## Anhang zu Kapitel 4.2.2: Einfluss der Positionierung des Prüfkopfes

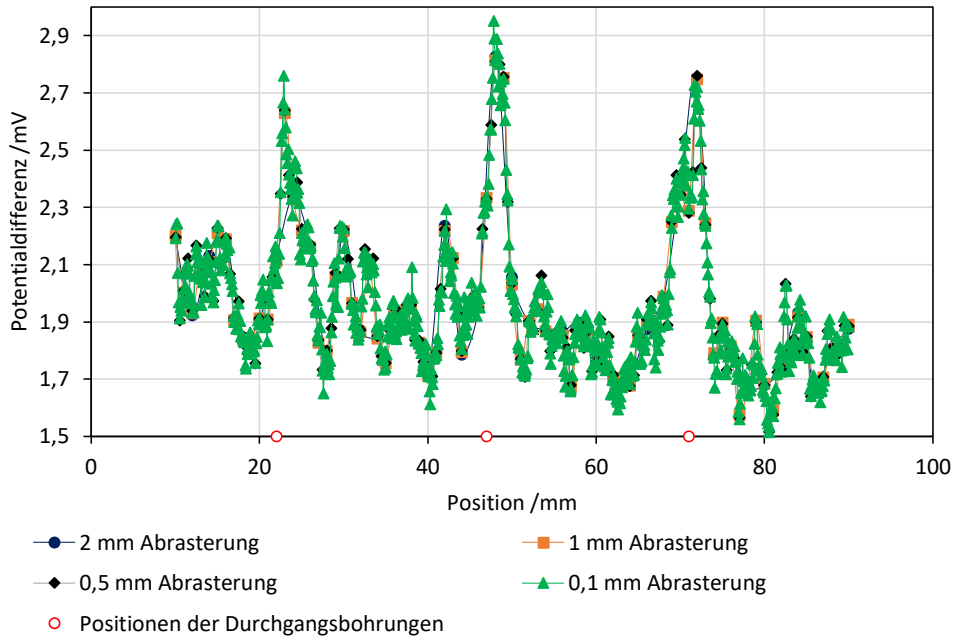


Anhang A2: Verschiebung des Prüfkopfes entlang des Teststreifens, Darstellung über gesamte Länge



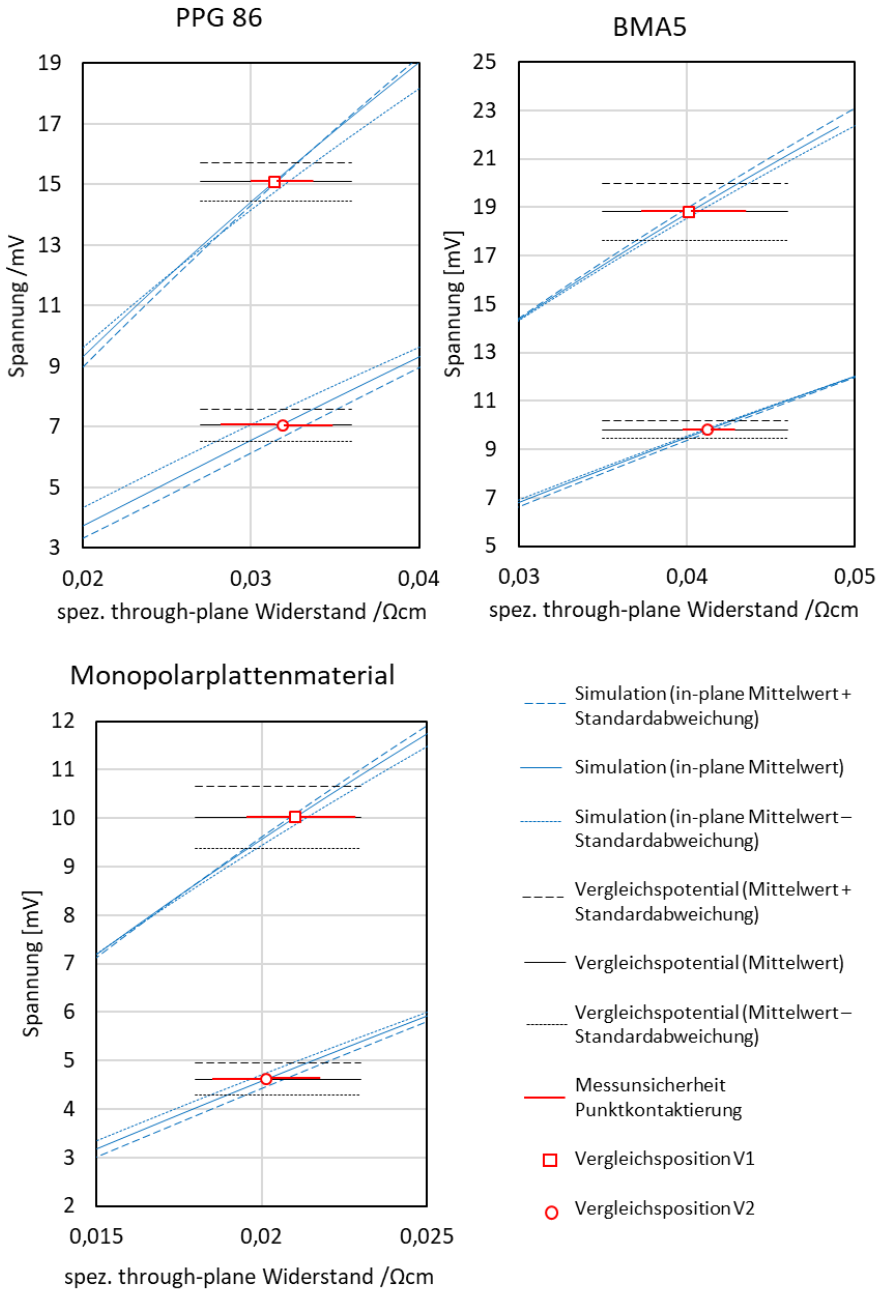
Anhang A3: Verschiebung des Prüfkopfes entlang des Teststreifens, Darstellung über die gesamte Länge

## Anhang zu Kapitel 4.2.4: Einfluss des Abstandes zwischen den Messspitzen und der Abrasterungsschrittweite



Anhang A4: Potentialdifferenzen P1-P3 in Abhängigkeit der Abrasterungsschrittweite, Darstellung über gesamte Länge

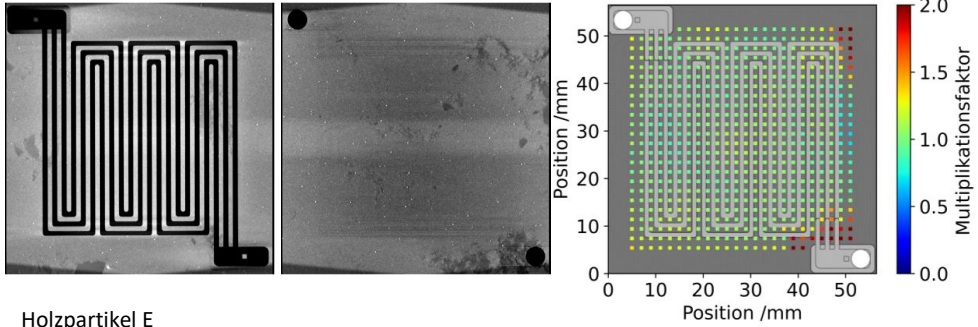
Anhang zu Kapitel 4.3.1: Vergleich zwischen flächiger Kontaktierung und Punktkontaktierung für die through-plane Widerstandsbestimmung



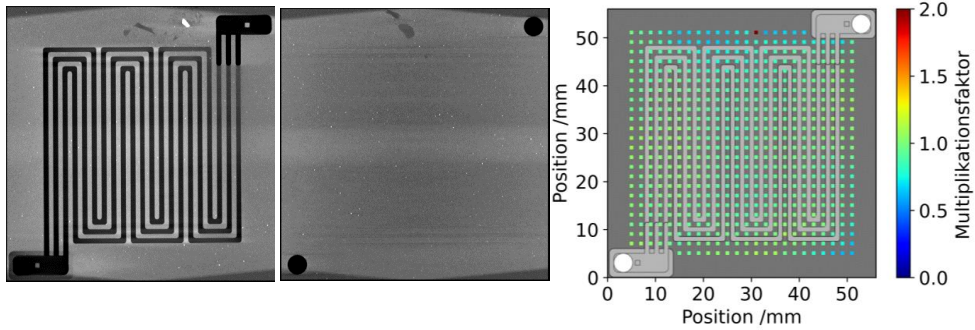
Anhang A5: Graphische Bestimmung der Messunsicherheit für die spez. through-plane Widerstandsbestimmung mittels Punktkontaktierung für PPG86, BMA5 und das Monopolarplattenmaterial

Anhang zu Kapitel 4.4.2: Monopolarplatten mit vereinzelt Fremdkörpern

Holzpartikel C



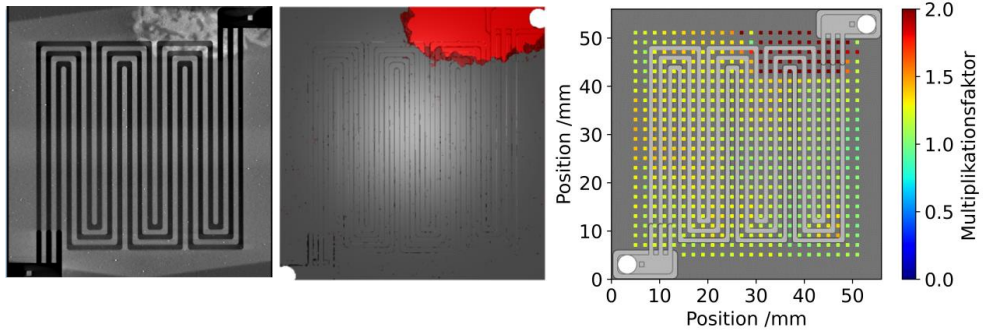
Holzpartikel E



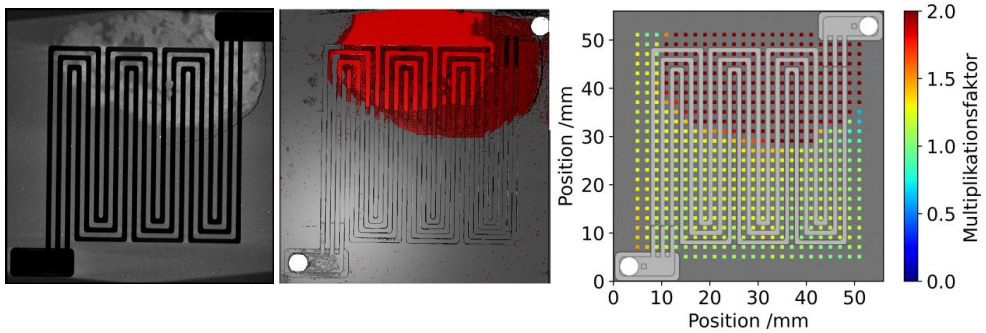
Anhang A6: Schnitte durch die Tomogramme der Proben "Holzpartikel C" und "Holzpartikel E" durch das Strömungsfeld und die Grundplatte sowie Darstellung der Ergebnisse der Potentialfeldmessungen

## Anhang zu Kapitel 4.4.3: Monopolarplatten mit flächigen nicht leitenden Bereichen

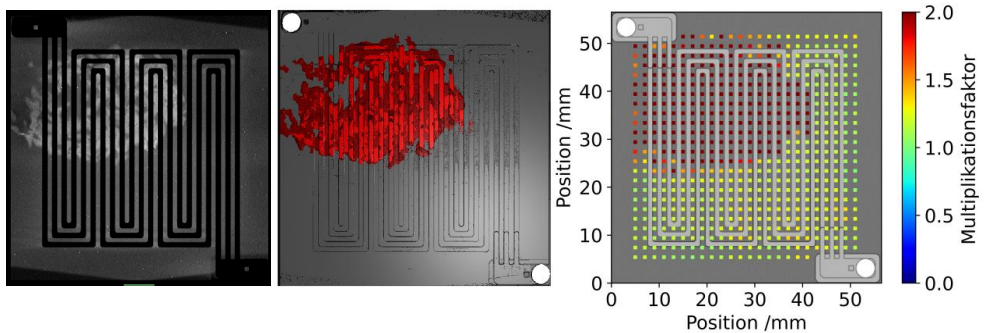
## Kunststoff D



## Kunststoff E



## Kunststoff F

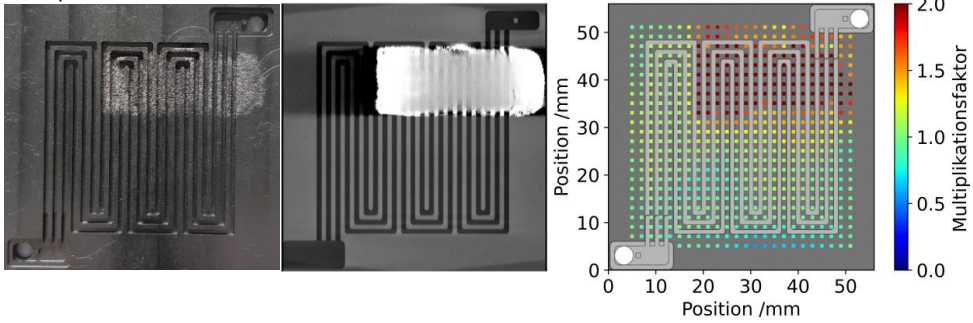


Anhang A7: Querschnitt aus dem Tomogramm, Modell aus den Tomographiedaten und Ergebnisse der Potentialfeldmessungen an den Proben „Kunststoff D“, „Kunststoff E“ und „Kunststoff F“

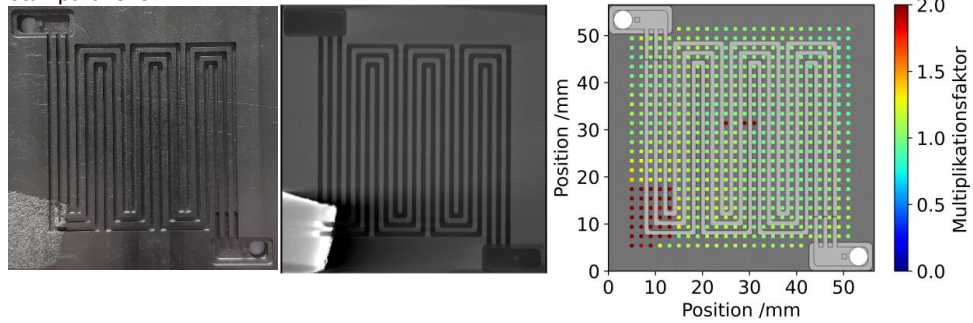


Anhang zu Kapitel 4.4.4: Monopolarplatte mit beschädigtem Strömungsfeld

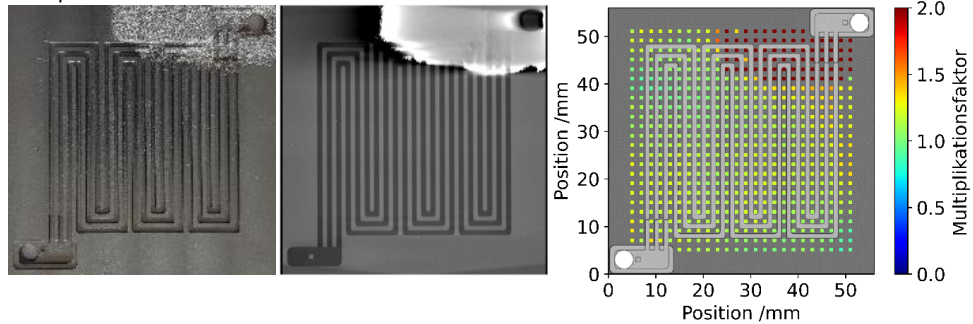
Stahlpartikel B



Stahlpartikel C



Stahlpartikel D



Anhang A8: Bilder der Oberseite, Schnitt durch die Tomogramme und Ergebnisse der Potentialfeldmessung der Proben „Stahlpartikel B“, „Stahlpartikel C“ und „Stahlpartikel D“

Anhang zu Kapitel 4.5.3: Brennstoffzellentest zur Bewertung von Mängeln in Monopolarplatten

Messung	R1 / $\Omega\text{cm}^2$	R1 /Error in %	R2 / $\Omega\text{cm}^2$	R2 /Error in %	CPE1-T / $\Omega^{-1}\text{s}^n\text{cm}^{-2}$	CPE1-T /Error in %	CPE1-P (=n von CPE1-T)	CPE1-P /Error in %
RB + RD (1.)	0,141	0,560	0,190	0,974	0,094	6,130	0,746	1,425
RB + RD (2.)	0,147	0,549	0,191	1,009	0,103	6,201	0,746	1,470
RB + RD (3.)	0,141	0,424	0,194	0,736	0,096	4,585	0,748	1,072
RD + HA	0,141	0,434	0,183	0,777	0,095	4,911	0,752	1,136
RD + HB	0,146	0,566	0,185	1,054	0,105	6,484	0,748	1,535
RD + KB	0,149	0,472	0,196	0,848	0,091	5,328	0,755	1,236
RB + KA	0,213	0,536	0,211	1,179	0,084	7,414	0,760	1,744
RB + KC	0,164	0,385	0,201	0,723	0,083	4,603	0,765	1,056
RB + SA	0,162	0,688	0,207	1,287	0,111	7,640	0,722	1,890

Anhang A9: Fitparameter der Impedanzspektren



## Danksagung

Die vorliegende Arbeit ist während meiner Doktorandentätigkeit am Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK), IEK-14: Elektrochemische Verfahrenstechnik entstanden. Für die zahlreichen Hilfestellungen möchte ich mich an dieser Stelle bedanken.

Bei meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Werner Lehnert möchte ich mich für seine herausragende Betreuung, die anregenden Diskussionen und die wertvollen Gespräche besonders bedanken, ohne die diese Arbeit sonst nicht möglich gewesen wäre.

Mein besonderer Dank gilt auch Herrn Dr. Janßen, der mir als Betreuer jederzeit im Arbeitsalltag und als kompetenter fachlicher Diskussionspartner zur Seite stand und durch seine Anregungen diese Arbeit bereichert hat.

Für die technische Unterstützung möchte ich mich bei Herrn Andreas Everwand, Herrn Eugen Hoppe, Herrn Rolf Reichelt, Herrn Richard Wegner und Herrn Yan Shi bedanken, durch deren Hilfe der Aufbau des Prüfstands und die Experimente erst in diesem Maße möglich gemacht wurden. Mein Dank gilt ebenfalls Herrn Klaus Wippermann für seine Unterstützung im Bereich der Impedanzspektroskopie.

Bei meinen Doktoranden-Kollegen möchte ich mich für die anregenden Diskussionen und die gemeinsame Zeit am IEK-14 bedanken.

Für ihre Zuarbeit in Form von Abschlussarbeiten gilt mein Dank Frau Yi Liu und Herrn Till Klewitz.

Zuletzt möchte ich mich bei meiner Familie, meinen Freunden und meiner Freundin für ihre Unterstützung während meiner Promotion herzlich bedanken.

Band / Volume 550

**Experimental study of the chemical degradation of biogenic volatile organic compounds by atmospheric OH radicals**

M. Rolletter (2021), XIII, 199 pp

ISBN: 978-3-95806-568-0

Band / Volume 551

**Infiltrated Positive Electrodes for All-Solid-State Sodium Batteries**

T. Lan (2021), vi, 104 pp

ISBN: 978-3-95806-576-5

Band / Volume 552

**Trajectory Analysis on the Asian Tropopause Aerosol Layer (ATAL) based on Balloon Measurements at the Foothills of the Himalayas**

S. Hanumanthu (2021), xiv, 147 pp

ISBN: 978-3-95806-578-9

Band / Volume 553

**Field assisted sintering of yttria ceramics for plasma etching applications**

M. Kindelmann (2021), VI, 122, XXX pp

ISBN: 978-3-95806-579-6

Band / Volume 554

**Characterisation of the effect of redox potential on the emission of greenhouse gases using wireless sensing techniques**

J. Wang (2021), XIV, 104 pp

ISBN: 978-3-95806-581-9

Band / Volume 555

**Stability assessment of variably saturated hillslopes using coupled hydromechanical models**

S. Moradi (2021), xxxii, 123 pp

ISBN: 978-3-95806-583-3

Band / Volume 556

**Catalytic-doping of Silicon Alloys for the Use in Silicon Heterojunction Solar Cells**

Y. Liu (2021), 126 pp

ISBN: 978-3-95806-591-8

Band / Volume 557

**Formation of highly oxygenated organic molecules from  $\alpha$ -pinene photochemistry**

S. Kang (2021), xvii, 156 pp

ISBN: 978-3-95806-596-3

Band / Volume 558

**Synthese von Cr<sub>2</sub>AlC MAX-Phasen Kompositen und Bestimmung ihrer oxidativen Eigenschaften**

T. Go (2021), ii, 119 pp

ISBN: 978-3-95806-598-7

Band / Volume 559

**Distribution of Relaxation Times for Analysis of Solid Oxide Fuel Cell Stacks**

K. Fitzek (2021), 237 pp

ISBN: 978-3-95806-599-4

Band / Volume 560

**Machine Learning in Modeling of the Dynamics of Polymer Electrolyte Fuel Cells**

W. Zou (2021), vii, 139 pp

ISBN: 978-3-95806-601-4

Band / Volume 561

**Introduction Strategies for Hydrogen Infrastructure**

S. Cerniauskas (2021), viii, 179 pp

ISBN: 978-3-95806-602-1

Band / Volume 562

**Noble Metal Coated Porous Transport Layers for Polymer Electrolyte Membrane Water Electrolysis**

C. Liu (2021), 139 pp

ISBN: 978-3-95806-603-8

Band / Volume 563

**Modeling and Diagnosis of the Stratospheric Circulation**

E. J. Charlesworth (2021), v, 103, A2 pp

ISBN: 978-3-95806-605-2

Band / Volume 564

**Potentialfeldmessungen zur Qualitätsbewertung von Bipolarplatten**

M. Sietmann (2021), ix, 160 pp

ISBN: 978-3-95806-606-9

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter

<http://www.zb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



Energie & Umwelt / Energy & Environment  
Band / Volume 564  
ISBN 978-3-95806-606-9

Mitglied der Helmholtz-Gemeinschaft

