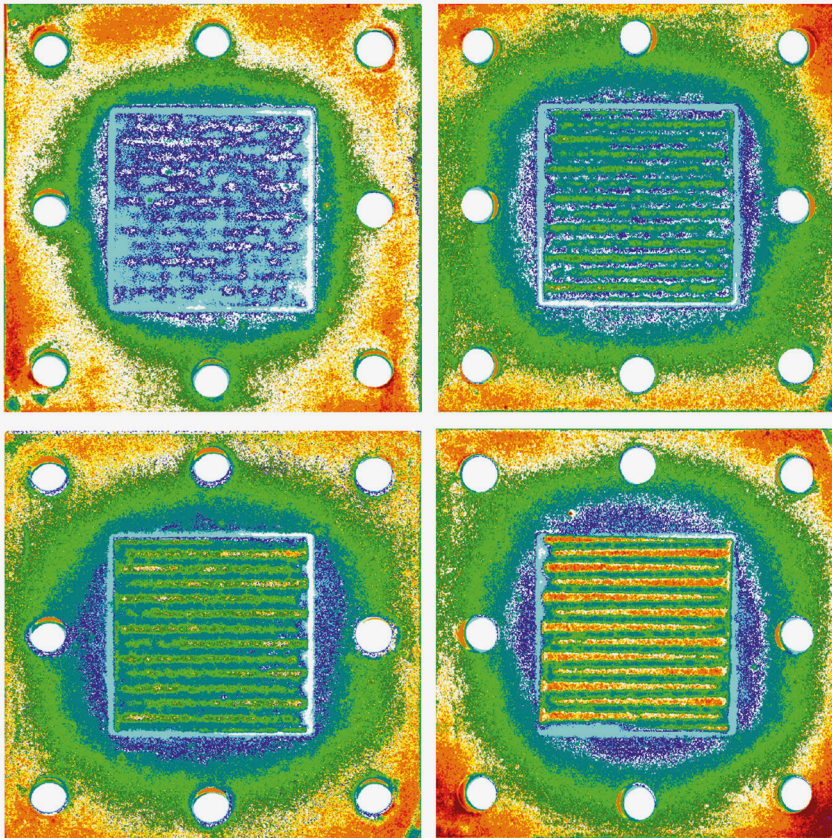




Mechanisches Verhalten von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen und -Stacks

Sebastian Holtwerth

Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 609

ISBN 978-3-95806-697-7

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

Mechanisches Verhalten von Polymer- Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen und -Stacks

Sebastian Holtwerth

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

Band / Volume 609

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-697-7

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
 www.fz-juelich.de/zb

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2023

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 609

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2021)

ISSN 1866-1793
ISBN 978-3-95806-697-7

Vollständig frei verfügbar über das Publikationsportal des Forschungszentrums Jülich (JuSER)
unter 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

Bei der Assemblierung von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen und Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysestacks werden dünne Schichtkomponenten durch Endplatten und Spannelemente wie Schrauben zu einem Aufbau verpresst. Der mechanische Zusammenbau ist entscheidend für die Funktionalität der verbauten Komponenten. So sind die elektrische Kontaktierung für die elektrochemischen Reaktionen zur Produktion von Wasserstoff und die Dichtigkeit eines Elektrolyseurs maßgeblich vom Anpressdruck zwischen den einzelnen Komponenten abhängig.

Das mechanische Verhalten von Elektrolysezellen und Elektrolysestacks wurde im Rahmen dieser Arbeit durch experimentelle Methoden untersucht und mithilfe eines neuartigen statisch-mechanischen Modells simulativ abgebildet. Mithilfe dieser Methoden konnte der Einfluss des Anpressdruckes, der Dichtungsmaterialien und Dichtungsgeometrien sowie des Endplattendesigns auf das mechanische Verhalten des Schichtaufbaus eines Elektrolyseurs untersucht werden. Eine Steigerung des Anpressdrucks auf den Bereich der aktiven Zellfläche steigert zum einen die elektrische Leistung, erhöht jedoch zum anderen den Wasserstoff-Crossover. In dieser Arbeit ergab sich ein optimaler mittlerer Anpressdruck von 1,23 MPa für eine Mäander-Flowfield-Struktur bei einer theoretischen Kompression des Kohlenstoffpapiers von 30%. Ebenfalls stellte sich eine möglichst gleichmäßige Anpressdruckverteilung als vorteilhaft heraus. Die Anpressdruckverteilung kann durch konstruktive Maßnahmen wie steife, poröse Materialien oder alternative Flowfield-Strukturen wie einem Streckmetall zusätzlich homogenisiert werden. Zur Auswahl eines passenden Dichtungsmaterials sowie der passenden Dichtungsgeometrie ließ sich ableiten, dass die Dichtigkeit durch eine Erhöhung der Assemblierungskräfte, der Reduktion der Dichtungsfläche sowie ein kompressibles und gleichzeitig mechanisch stabiles Dichtungsmaterial gesteigert werden kann. Eine gleichmäßige Druckverteilung kann durch ein mechanisch suffizientes Endplattenkonzept erreicht werden, da die Endplatten das zentrale Element für die Krafteinleitung in die Zellebene darstellen. Zum dynamischen Ausgleich des Verbiegens von Endplatten und der damit verbundenen, ungleichmäßigen Anpressdruckverteilung im gesamten Elektrolysestack wurde ein neues Konzept einer verstellbaren Endplatte entwickelt. Auf Basis dieses Endplattenkonzepts und den Erkenntnissen aus den Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Elektrolysezellen und Elektrolysestacks wurde ein mechanisch optimierter PEM-Elektrolysestack abgeleitet und als Prototyp realisiert. Abschließend konnte dieses neuartige Stack-Design mit einer aktiven Zellfläche von 100 cm² experimentell hinsichtlich der mechanischen Funktionalität erfolgreich überprüft werden.

Abstract

During the assembly of polymer electrolyte membrane electrolysis cells and polymer electrolyte membrane electrolysis stacks, thin layer components are pressed together by endplates and clamping elements such as screws. The mechanical assembly is crucial for the functionality of the installed components. For example, the electrical contact, which is crucial for the electrochemical production of hydrogen, and the sealing of an electrolyzer depend on the contact pressure between the individual components.

In this work, the mechanical behaviour of electrolysis cells and electrolysis stacks was investigated via experimental methods and simulated using a new type of static-mechanical model. Using these methods, it was possible to investigate the influence of the contact pressure, the sealing materials, sealing geometries, and the endplate design on the mechanical behaviour of the layer structures of an electrolyzer. Increasing the contact pressure on the active cell area increases the electrical performance on the one hand but increases the hydrogen crossover on the other hand. This work found an optimum average contact pressure of 1.23 MPa for a meander flowfield structure at a theoretical compression of the carbon paper of 30%. Furthermore, a uniform contact pressure distribution was found to be advantageous. The contact pressure distribution can be additionally homogenized by design measures such as stiff, porous materials or alternative flowfield structures such as an expanded metal. For the selection of a suitable sealing material as well as the suitable sealing geometry, it could be derived that the tightness can be increased by an increase of the assembly forces, the reduction of the sealing surface as well as a compressible and also mechanically stable sealing material. A mechanically sufficient endplate concept can achieve a uniform pressure distribution since endplates are the central element for the force introduction into the cell. A new concept of an adjustable end plate was developed to dynamically compensate for endplate bending and the associated uneven contact pressure distribution throughout the electrolysis stack. Based on this endplate concept and the findings from the investigations on the mechanical behaviour of electrolysis cells and electrolysis stacks, a mechanically optimized PEM electrolysis stack was derived and realized as a prototype. Finally, this novel stack design with an active cell area of 100 cm² was successfully tested experimentally regarding its mechanical functionality.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Ziel der Arbeit.....	1
2	Grundlagen und Stand der Technik.....	3
2.1	Grundlagen der Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolyse.....	3
2.1.1	Aufbau von Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolysezellen	6
2.1.2	Strömungsverteilerplatten	8
2.1.3	Poröse Materialien	9
2.2	Mechanischer Aufbau von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen.....	11
2.2.1	Mechanisches Verhalten der porösen Materialien	12
2.2.2	Elektrischer Widerstand	13
2.2.3	Einfluss der Zellmechanik auf die Elektrolysezelleistung	16
2.2.4	Einfluss unterschiedlicher, poröser Materialien auf die Zelleistung	18
2.2.5	Dichtungen in PEM-Elektrolyseuren	19
2.3	Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolysestacks	27
2.3.1	Endplatten und Stack-Verspannung	29
2.4	Modellierung von Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasser-Elektrolyseuren.....	31
2.4.1	Grundlagen Finite-Elemente-Methode in der Strukturmechanik	31
2.4.2	Mechanisches Materialverhalten	32
2.4.3	Modellierung des Materialverhaltens von porösen Materialien im Bereich der Brennstoffzellentechnologie	35
2.4.4	Modellierung des Kompressionsverhaltens	38
2.5	Evaluation Anpressdruck.....	43
2.6	Zusammenfassung.....	44
3	Versuchsaufbau für Einzelzellentests und experimentelle Methoden.....	46
3.1	Aufbau von Elektrolysetestzellen.....	46
3.1.1	Referenzaufbau.....	48
3.2	Ermitteln der Anpressdruckverteilung	49
3.2.1	Drucksensitive Folien	49
3.2.2	Zeitabhängige Druckverteilungsmessung mittels piezoresistiven Sensoren	52
3.2.3	Methodenvalidierung	54

3.2.4	Grenzen der Messmethoden und allgemeine Anmerkungen	61
3.3	Elektrochemische Charakterisierung der Elektrolysetestzelle	62
3.3.1	Versuchsaufbau	62
3.3.2	Polarisationskurven	63
3.3.3	Elektrochemische Impedanzspektroskopie.....	63
3.4	Überprüfung der Dichtigkeit von Elektrolysezellen und -stacks.....	64
4	Finte-Elemente-Modellierung des mechanischen Verhaltens von Elektrolyseuren	66
4.1	Modellbildung für eine Elektrolyseeinzelzelle.....	66
4.1.1	Geometrischer Zellaufbau	68
4.1.2	Kontaktbedingungen	69
4.1.3	Vernetzungsdefinition.....	70
4.1.4	Randbedingungen.....	72
4.1.5	Streckmetalldesign.....	73
4.2	Modellbildung für einen Elektrolysestack.....	76
4.2.1	Geometrischer Aufbau und Modell	77
4.2.2	Randbedingungen.....	80
4.3	Materialmodelle.....	81
4.3.1	Materialmodelle poröser Materialien.....	82
4.3.2	Membran-Elektroden-Einheit.....	86
4.3.3	Dichtungsmaterialien.....	87
4.3.4	Sonstige Materialmodelle	89
4.3.5	Vereinfachte Materialmodelle	90
5	Evaluation des mechanischen Verhaltens von Elektrolysezellen	92
5.1	Experimentelle Untersuchungen des mechanischen Verhaltens von Elektrolysezellen	92
5.1.1	Messungen für den Referenzaufbau	93
5.1.2	Mechanischer Einfluss der Endplatten und Flowfield-Platten.....	95
5.1.3	Messung des zeitlichen Kompressionsverlaufs	96
5.1.4	Untersuchung des mechanischen Einflusses auf die elektrochemische Leistung einer Elektrolysezelle	99

5.1.5	Mechanische Untersuchung von Dichtungen einer Elektrolysezelle	110
5.2	Finite-Elemente-Simulation des Fujifilm-Ersatzmodells	115
5.2.1	Variation der Kontaktdefinition.....	116
5.2.2	Einfluss der kathodischen GDL-Materialmodelle	126
5.2.3	Einfluss der Dichtungsmaterialmodelle.....	132
5.2.4	Variation Bekaert-Modell	135
5.2.5	Diskussion und Bewertung des Fujifilm-Ersatzmodells.....	137
5.3	Finite-Elemente-Simulation einer Elektrolysetestzelle	138
5.3.1	Variation der Schraubenkraft.....	143
5.3.2	Variation der GDL-Kompression.....	147
5.3.3	Variation der Flowfield-Struktur	151
5.3.4	Variation des Dichtungsdesigns	154
5.3.5	Variation des Endplattendesigns	160
5.3.6	Kurzzusammenfassung zum MEA-Zellmodell	162
6	Evaluation des mechanischen Einflusses auf die Komponenten eines PEM-Elektrolysestacks.....	165
6.1	Mechanische Evaluation eines quadratischen Stack-Designs	165
6.1.1	Einfluss der Schrauben auf die Spannungsverteilung in der Endplatte.....	168
6.1.2	Einfluss der Eckschrauben auf das mechanische Verhalten des Stacks	169
6.1.3	Parametrische Untersuchungen von Einflussgrößen	171
6.1.4	Kurzzusammenfassung.....	173
6.2	Konstruktive Untersuchungen zu Endplattendesigns.....	174
6.2.1	Topologieoptimierte Endplatte	174
6.2.2	Gebogene Endplatte	176
6.2.3	Verstellbare Endplatte	176
6.2.4	Vergleich der vorgestellten Endplattenkonzepte.....	177
6.2.5	Kurzzusammenfassung.....	178
6.3	Ableitung eines neuartigen Stack-Designs unter mechanischen und konstruktiven Gesichtspunkten	179
6.4	Diskussion.....	182

7	Spannungsoptimiertes, neuartiges Stack-Design	183
7.1	Untersuchung des Anpressdrucks.....	183
7.1.1	Drucksensitive Folien – Fujifilm	184
7.1.2	Zeitabhängige Druckverteilungsevaluation – Tekscan.....	186
7.2	Zusammenfassung und Diskussion	191
8	Diskussion.....	193
9	Zusammenfassung.....	203
10	Literaturverzeichnis	206
	Abbildungsverzeichnis.....	217
	Tabellenverzeichnis.....	224
	Abkürzungsverzeichnis.....	226
	Formelzeichen und Indizes.....	227
	Anhang.....	230

1 Einleitung und Ziel der Arbeit

In Zeiten des Klimawandels und unsicherer politischer Lagen kommt der Energieversorgung durch regenerative Energien eine immer größere Bedeutung zu. Erneuerbare Energiequellen, wie zum Beispiel Solarenergie oder Windenergie, weisen eine starke Abhängigkeit von nicht steuerbaren Umwelteinflüssen auf. Da somit eine starke Fluktuation auf verschiedenen zeitlichen Skalen der Energieverfügbarkeit vorliegt, werden Speichertechnologien benötigt, welche die Energie aus Zeiten hoher Verfügbarkeit zu Zeiten von niedriger Verfügbarkeit verlagern können. Diese tageszeit- und saisonalbedingten Fluktuationen verlangen Speichertechnologien, die eine sichere Stromversorgung über das gesamte Jahr sicherstellen können. In modernen Energiesystemen kann diese Energiespeicherung durch die Umwandlung von elektrischer in chemische Energie in Form von Wasserstoff erfolgen. Der Wasserstoff kann über lange Zeiträume und mit großer Kapazität gespeichert werden und mithilfe unterschiedlicher Technologien verlustarm transportiert werden. Die CO₂-freie Produktion von Wasserstoff kann mithilfe von Elektrolyseuren erfolgen. Eine vielversprechende Technologie für eine dynamische Erzeugung von Wasserstoff ist die Wasserelektrolyse mittels Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen. Diese Elektrolysezellen bestehen aus mehreren Schichten, welche zur Funktionalität des Gesamtsystems beitragen. Das korrekte Verpressen des gesamten Aufbaus ist entscheidend, damit jede Komponente ihre mechanische Funktionalität erfüllen kann. Diese wird durch eine Verspannung zwischen zwei Endplatten mithilfe von Spannelementen wie Schrauben erzielt. So ist die Kompression der porösen Materialien entscheidend für die elektrische Kontaktierung des Katalysatormaterials und damit für die Effizienz der elektrochemischen Reaktionen. Ebenso wird durch das Verpressen des Dichtungssystems die Dichtigkeit der Elektrolyseure gegenüber dem Austreten der Produktgase erzielt. Dies ist besonders im Hinblick auf einen Druckbetrieb von Elektrolysesystemen relevant. So beeinflussen im Schichtaufbau sowohl die einzelnen Komponenten als auch das Zusammenspiel der Komponenten im Verbund das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle, sodass die Komponenten konstruktiv aufeinander abgestimmt werden müssen, um einen optimierten mechanischen Aufbau von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen und -stacks erzielen zu können.

Ziel dieser Arbeit ist es, die Assemblierung von Elektrolysezellen und -stacks hinsichtlich des mechanischen Verhaltens der einzelnen Komponenten zu untersuchen und hieraus Erkenntnisse und Empfehlungen zur mechanischen Auslegung von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolyseuren abzuleiten.

So erfolgt in Kapitel 2 eine Einführung in die relevante Literatur zum Einfluss der Mechanik auf die einzelnen Komponenten und in den Stand der Technik für die Modellierung von Elektrolysezellen und -stacks. Zur experimentellen Untersuchung des mechanischen Verhaltens werden in Kapitel 3 unterschiedliche Methoden zur Evaluation der Anpressdruckverteilung vorgestellt. Diese Methoden werden in Kapitel 3 experimentell und in Kapitel 5 simulativ validiert. Weiterhin werden in Kapitel 3 Methoden zur Untersuchung des Einflusses der Anpressdruckverteilung auf das elektrochemische Verhalten und die Dichtigkeit einer Elektrolysezelle vorgestellt. Auf Basis der statisch-mechanischen Modellierung von elektrochemischen Zellen und deren Komponenten wird in Kapitel 4 ein realitätsnahes Modell einer Elektrolysezelle sowie ein vereinfachtes Modell eines Elektrolysestacks zur gezielten Untersuchung des mechanischen Verhaltens einzelner Komponenten abgeleitet.

In Kapitel 5 wird mit den vorgestellten Methoden der Einfluss der Anpressdruckverteilung auf die Funktionen der einzelnen Bauteile untersucht. So wird der Einfluss der Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche auf die Leistung einer Elektrolysezelle untersucht. Ebenfalls werden unterschiedliche Dichtungskonzepte und der Einfluss der Endplatten bei der Verspannung von Elektrolysezellen untersucht. Durch das statisch-mechanische Modell sollen die experimentellen Ergebnisse simulativ abgebildet werden, sowie ohne experimentellen Aufwand weitere parametrische Untersuchungen zu dem Einfluss der Zellkomponenten auf das mechanische Verhalten untersucht werden.

Aus den in Kapitel 5 erlangten Erkenntnissen über das Assemblierungsverhalten einer Elektrolysezelle sowie den Einfluss der mechanischen Verspannung der einzelnen Zellkomponenten auf deren Funktionalität, werden konstruktive Empfehlungen für die Auslegungen von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen und -stacks abgeleitet. In Kapitel 6 werden diese Erkenntnisse auf ein Elektrolysestack-Design übertragen, sowie Untersuchungen zu der mechanischen Verspannung von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysestacks, besonders im Hinblick auf das Endplattendesign, durchgeführt. Aus diesen Erkenntnissen wird ein mechanisch optimiertes Stack-Design konstruktiv abgeleitet, sowie in Kapitel 7 praktisch hinsichtlich seiner mechanischen Funktionalität untersucht.

2 Grundlagen und Stand der Technik

In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit notwendigen Grundlagen sowie der aktuelle Stand der Technik vorgestellt. Dazu wird zunächst auf die Grundlagen und den Stand der Technik der Polymer- Elektrolyt-Membran (PEM) -Wasserelektrolyse eingegangen. So werden sowohl die elektrochemischen Grundlagen als auch der prinzipielle Aufbau und die Komponenten eines Elektrolyseurs vorgestellt. In Abschnitt 2.2 wird daraufhin näher auf den für diese Arbeit entscheidenden mechanischen Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle eingegangen. Hierfür wird das mechanische Zusammenspiel der verbauten Komponenten und dessen Bedeutung für den Zellaufbau vorgestellt. Um die Grundlagen für die Stack-Auslegung zu schaffen, wird in Abschnitt 2.3 der Aufbau von PEM-Elektrolysestacks beschrieben und auf entscheidende mechanische Einflussparameter, wie das Endplattendesign, eingegangen. Da die Auslegung der Elektrolysezellen und –stacks auch simulativ vorgenommen werden soll, werden in Abschnitt 2.4 die Grundlagen für eine mechanische Modellierung von PEM-Elektrolyseuren vorgestellt. Ebenso werden auf Beispiele für derartige Simulationen in der Literatur eingegangen. Um das mechanische Verhalten von Elektrolyseuren auch praktisch evaluieren zu können, werden in Abschnitt 2.5 experimentelle Methoden vorgestellt, welche in der Literatur verwendet wurden.

2.1 Grundlagen der Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolyse

Bei dem elektrochemischen Prozess der PEM-Wasserelektrolyse wird durch das Anlegen elektrischen Stroms/Potentials Wasser in Sauerstoff und Wasserstoff umgewandelt. Durch die in Gleichung (1) dargestellte Redoxreaktion wird elektrische Energie in chemische Energie umgewandelt.



Zentrales Element der PEM-Wasserelektrolysezellen ist die protonenleitfähige Membran, die sogenannte Protonen-Austausch-Membran, welche als fester Elektrolyt die Teilreaktionen auf der Anodenreaktion (Gleichung (2)) und der Kathodenreaktion (Gleichung (3)) räumlich trennt. In der Anodenreaktion wird Wasser zu Sauerstoff und H^+ -Ionen oxidiert.



Die H^+ -Ionen werden im elektrischen Feld der angelegten Spannung durch die Membran zu der negativ geladenen Kathode transportiert, adsorbieren an der Katalysatoroberfläche und werden zu elementarem Wasserstoff reduziert.



Die für die endotherme Umwandlung von flüssigem Wasser zu Wasserstoff und Sauerstoff benötigte reversible Zellspannung E_{th}^0 lässt sich bei Standardbedingungen (25°C, 1013 hPa) durch das Heranziehen der freien Reaktionsenthalpie ΔG_R^0 , der Anzahl ausgetauschter Elektronen für den Umsatz eines Wassermoleküls z und der Faraday-Konstante F berechnen:

$$E_{th}^0 = -\frac{\Delta G_R^0}{zF} = \frac{237,22 \frac{\text{kJ}}{\text{mol}}}{2 \cdot 96.485 \frac{\text{C}}{\text{mol}}} = 1,229 \text{ V} \quad (4)$$

Die reversible Zellspannung entspricht der theoretisch minimal benötigten Zellspannung zur elektrochemischen Spaltung von Wasser in Wasserstoff und Sauerstoff, dem sogenannten Standardpotential [1]. Werden die Standardbildungsenthalpien der Stoffe betrachtet, so ergibt sich für den oberen Heizwert von Wasserstoff eine theoretische Spannung (Thermoneutralspannung) von $E_{th} = 1,48 \text{ V}$ [2].

Die Abweichung der reversiblen Zellspannung von den Standardbedingungen wird durch die Nernst-Spannung E_N beschrieben. Die Nernst-Gleichung (Gleichung (5)) beschreibt die Abhängigkeit der Nernst-Spannung von der reversiblen Zellspannung, den Aktivitäten a_i der an der Reaktion beteiligten Reaktanden und der thermischen Energie bestehen aus dem Produkt der Temperatur und der idealen Gaskonstante R [2]. Hierbei lassen sich die Aktivitäten näherungsweise mit den normierten Partialdrücken p_i der an der Reaktion beteiligten Reaktanten beschreiben.

$$E_N = E_{th}^0 + \frac{RT}{zF} \ln \left(\frac{a_{H_2} \cdot a_{O_2}^{0,5}}{a_{H_2O}} \right) \approx E_{th}^0 + \frac{RT}{zF} \ln \left(\frac{p_{H_2} \cdot p_{O_2}^{0,5}}{p_{H_2O}} \right) \quad (5)$$

Die real gemessene Zellspannung E_{Zell} liegt über der theoretischen Nernst-Spannung und weist zusätzliche Verlustmechanismen, sogenannte Überspannungen (η_i), bei Stromfluss auf.

$$E_{Zell} = E_N + \eta_{act} + \eta_{ohm} + \eta_{ST} \quad (6)$$

Die Aktivierungsüberspannung η_{act} beschreibt die begrenzte Ladungsdurchtrittsgeschwindigkeit von Elektronen und Ionen an den Phasengrenzen und charakterisiert die

Reaktionskinetik der elektrochemischen Reaktion. Die Aktivierungsüberspannung lässt sich durch die Buttlar-Volmer-Gleichung oder die Tafel-Gleichung beschreiben [2].

Die ohmschen Widerstandsüberspannungen, oder ohmschen Verluste η_{ohm} , lassen sich in protonische und elektronische Widerstandsüberspannungen unterteilen. Die protonischen Widerstandsüberspannungen $\eta_{ohm,m}$ werden durch den Protonentransport in der Membran charakterisiert, während die elektronischen Widerstandsüberspannungen $\eta_{ohm,e}$ vom Elektronentransport durch die Materialien und die Kontaktwiderstände zwischen den Materialien abhängen [2].

Für hohe Stromdichten kann die Geschwindigkeit des Stofftransports der Reaktanten zur Elektrodenreaktion limitierend auf die elektrochemische Reaktion wirken. Die bei hohen Stromdichten und bei unzureichender Versorgung der Elektroden mit Wasser auftretende Überspannung wird Stofftransportüberspannung η_{ST} bezeichnet [2].

Galvanostatische oder potentiostatische Messungen werden zur Charakterisierung des Elektrolysezellenverhaltens angewandt. Zur Repräsentation des Zellverhaltens bei angelegtem Strom/Potential, wird am häufigsten die Polarisationskurve genutzt, welche Rückschlüsse auf die einzelnen Überspannungen erlaubt. In Abbildung 1 ist eine Polarisationskurve und die Anteile der Überspannungen an der Zellspannung dargestellt.

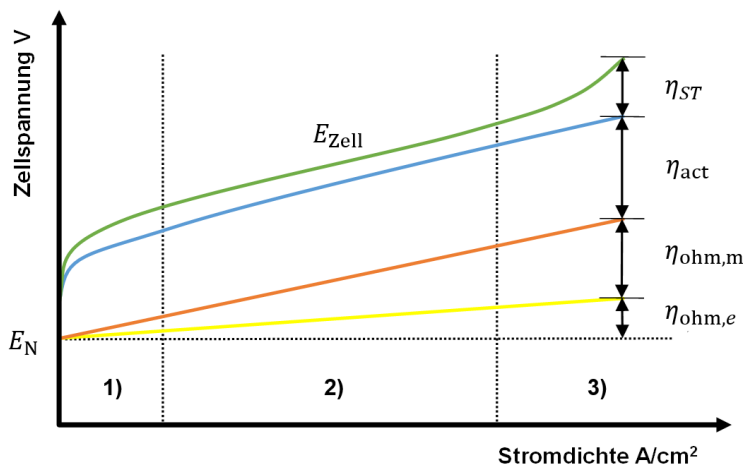


Abbildung 1: Polarisationskurve (grün), die Anteile der Überspannungen an der Zellspannung und Unterteilung der Polarisationskurve in Bereiche der dominierenden Verlustmechanismen (adaptiert nach [2]).

Entsprechend der Anteile der Überspannungen lässt sich die Polarisationskurve in drei unterschiedliche Bereiche einteilen, welche jeweils durch einen Verlustmechanismus

charakterisiert werden. Bei geringen Stromdichten dominieren die Aktivierungsüberspannungen und die Aktivierungsverluste (1). Der zweite Bereich (2) wird durch die Widerstandsverluste charakterisiert. Im Bereich hoher Stromdichten (3) sind die ohmschen Verluste ein bestimmender Faktor [2].

2.1.1 Aufbau von Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolysezellen

Das zentrale Element von PEM-Elektrolysezellen ist die Protonen-Austauschmembran. Für die sich anschließenden Elektroden werden jeweils poröse Katalysatorschichten verwendet, bestehend aus einem metallbasierten Katalysator und einem protonenleitfähigen Ionomer. Als Katalysator der Anode wird häufig Iridiumoxid IrO_2 mit einer Beladung von 3 mg/cm^2 eingesetzt während kathodenseitig Platin geträgert auf Kohlenstoff (mit $0,5 \text{ mg/cm}^2$) verwendet wird [1]. Kathoden- und Anodenschicht werden mit Hilfe von Verfahren wie der Decal-Methode auf die Membran aufgetragen [3].

Diese Komponente wird Membran-Elektroden-Einheit (engl. membrane electrode assembly, MEA) oder eine mit Katalysator beschichtete Membran (engl. catalyst coated membrane, CCM) genannt [4].

Der am weiteste verbreitete Polymerelektrolyt ist Nafion[™] entwickelt von DuPont. Nafion[™] ist eine perfluorierte Sulfonsäure (engl. Perfluorinated Sulfonic Acids, PSFA), die sich aus einem langkettigen hydrophoben Polymergerüst ($-\text{CF}_2-$) und abzweigenden kurzkettigeren hydrophoben Polymerketten ($-\text{CF}_2-$), welche meist eine endständig hydrophile Sulfonat-Kopfgruppe ($-\text{CH}_2-\text{SO}_3^-$) besitzen, zusammensetzt [4]. Die Acidität der Sulfonat-Kopfgruppe verursacht ein saures pH-Milieu in der PEM-Wasserelektrolyse.

In einer „Zero-Gap“ (engl. für „lückenfrei“) Zellkonfiguration, wie es bei der PEM-Wasserelektrolyse Stand der Technik ist, liegen angrenzend zur MEA auf Kathoden- und Anodenseite der Zelle poröse Materialien. Die Eigenschaften dieser Materialien werden durch ihre Funktion in der Zelle definiert, welches z.B. den mechanischen Kontakt zwischen MEA und Strömungsverteilerplatten (engl. flowfield plate, FFP) beinhaltet. Durch die mikroporöse Struktur der Materialien werden die Reaktanden homogen auf der aktiven Fläche der MEA bzw. Elektroden verteilt. Da die porösen Materialien zur elektrischen Kontaktierung der Katalysatorschichten dienen, haben sie ebenfalls eine große Bedeutung für die elektrochemische Umwandlung der Reaktanden. Dementsprechend müssen die Materialien eine möglichst hohe Porosität, eine gute elektrische Leitfähigkeit, sowie mechanische Stabilität aufweisen [3, 5].

Das für die Anodenreaktion benötigte Wasser wird mit einer Strömungsverteilerstruktur, wie beispielsweise einer Kanal-Steg-Struktur, auf den Bereich der aktiven Zellfläche eingeleitet und durch die porösen Materialien auf die Katalysatoroberfläche verteilt. Die entstehenden

Produktgase werden auf der Kathoden- und Anodenseite durch die porösen Materialien von der Katalysatoroberfläche zu den FFP abtransportiert [1]. Der schematische Aufbau einer PEM- Elektrolysezelle ist in Abbildung 2 dargestellt.

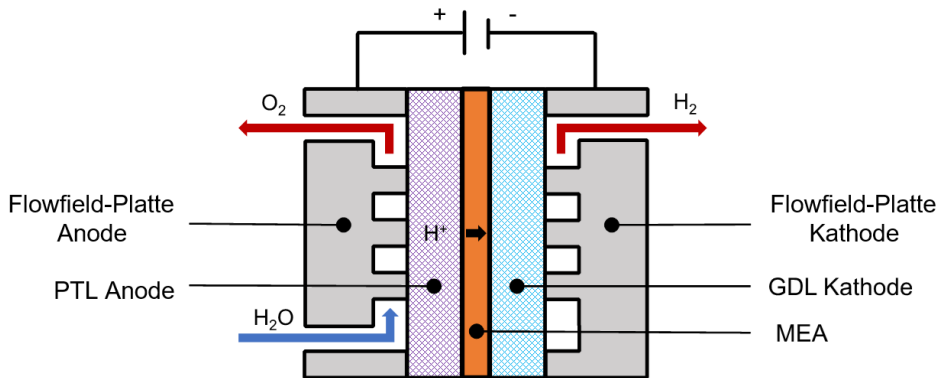


Abbildung 2: Schematischer Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle.

Eine weitere Funktion der porösen Materialien ist das Abführen der bei den Reaktionen freiwerdenden thermischen Energie, weshalb die porösen Materialien ebenfalls eine hohe thermische Leitfähigkeit aufweisen müssen. Terminologisch werden die porösen Materialien im Bereich der Brennstoffzellentechnologie sowohl auf der Kathoden- als auch auf der Anodenseite als Gasdiffusionsschicht (engl. gas diffusion layer, GDL) bezeichnet. Im Bereich der Wasserelektrolyse werden die porösen Materialien häufig als poröse Transportschicht (engl. porous transport layer, PTL) bezeichnet. Die genauen Begrifflichkeiten sind in der Literatur teilweise schwer voneinander zu trennen, da die in der Brennstoffzelle eingesetzten grafitischen GDL-Materialien auch in der Wasserelektrolyse als Kathodenmaterial zum Einsatz kommen. Häufig werden somit grafitische poröse Materialien als GDL und metallische poröse Materialien als PTL referiert. Dementsprechend werden im Folgenden grafitische poröse Materialien als GDL und metallische poröse Materialien als PTL bezeichnet. Bei der sauren Wasserelektrolyse können aufgrund des hohen Halbzellenpotentials der Anodenreaktion auf der Anodenseite nur titanbasierte PTLs oder beschichtete Metalle eingesetzt werden, während auf der Kathodenseite sowohl metallische als auch grafitische Materialien eingesetzt werden können. Die Widerstandsfähigkeit des Titans resultiert aus der Titanoxidschicht, zu welcher die Titanoberfläche im Zellbetrieb reagiert und die als Schutzschicht gegen Korrosion wirkt [1]. Da die Titanoxidschicht jedoch eine geringe elektrische Leitfähigkeit aufweist, wird die Oberfläche der PTL-Materialien mit Edelmetallen, wie Iridium oder Platin, beschichtet. Insbesondere Iridium weist eine gute Korrosionsbeständigkeit gegen das saure Milieu und hohe elektrische Spannungen auf [6].

Um der elektrochemischen Korrosion entgegenzuwirken, wird, wie bei den PTL, Titan als FFP-Material verwendet. Zur Verringerung des Kontaktwiderstands und zum Schutz vor Korrosion wird das Titan zusätzlich mit Gold, Platin, Titancarbid oder Titannitrid beschichtet [1], wobei auf der Anodenseite üblicherweise ebenfalls Iridium oder Platin zum Einsatz kommen, um die Bildung passiver Schichten zu vermeiden [5]. Die Interaktion zwischen den porösen Materialien und der Strömungsverteilerplatten ist entscheidend für das mechanische Verhalten einer Zelle. Deshalb soll im Folgenden auf diese Komponenten eingegangen werden.

2.1.2 Strömungsverteilerplatten

Die FFP gewährleisten in PEM-Elektrolysezellen den makroskopischen Stofftransport der Produkte und Edukte. So werden die Strömungsverteilerstrukturen auf die Wasserversorgung der Zelle sowie die Produktgasabfuhr ausgelegt. Es gibt eine Vielzahl unterschiedlicher geometrischer Ausführungen dieser Strukturen. Die typischen Geometrien werden als einförmige, parallele oder mäanderförmige Strukturen bezeichnet, welche in Abbildung 3 dargestellt sind. Bei der parallelen und mäanderförmigen Struktur spricht man ebenfalls von einer Kanal-Steg-Struktur. Die Auslegung von Strömungsverteilerstrukturen zielt auf geringe Druckverluste und eine homogene Wasserverteilung auf der aktiven Zellfläche ab [5].

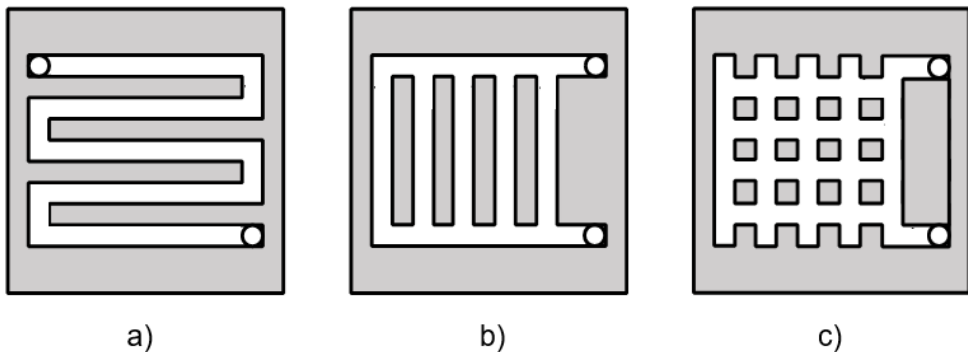


Abbildung 3: Schematische Darstellung einer a) mäanderförmigen, b) parallelen und c) „pin-type“-Struktur von Strömungsverteilern (adaptiert nach [5]).

Zur Reduktion der Material- und Fertigungskosten kommen ebenfalls in neuartigen Designs zur Strömungsverteilung Titanstreckmetalle zum Einsatz. Streckmetalle können sowohl als poröses Medium die PTL- oder GDL-Materialien ersetzen oder als Strömungsverteilerstruktur zum makroskopischen Stofftransport dienen und verfügen über eine dreidimensionale Struktur [5]. Die geometrischen Dimensionen der Streckmetalle werden durch die in Abbildung 4 illustrierten Parameter charakterisiert.

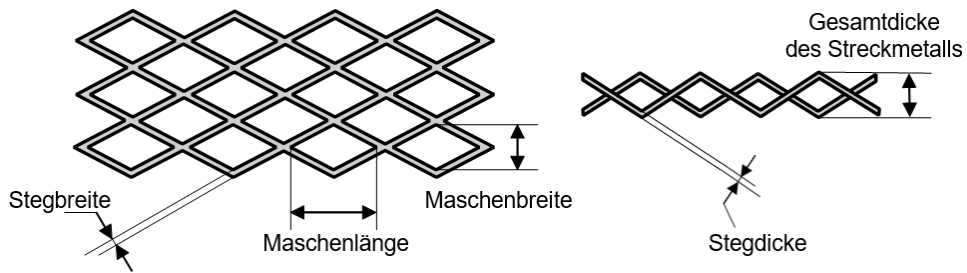


Abbildung 4: Darstellung der dreidimensionalen Struktur des Streckmetalls und der technischen Parameter zur Beschreibung der Streckmetallstruktur: Maschenbreite, Maschenlänge, Stegbreite, Steglänge und Gesamtdicke des Streckmetalls (adaptiert nach [5]).

Lafmejani et al. [7] prüfen simulativ und experimentell die Funktionalität des Streckmetalls als Strömungsverteilerstruktur, indem sie die Strömungsverteilung und die Druckverteilung im Streckmetall untersuchten. Dabei kommen Lafmejani et al. [7] zu dem Schluss, dass das Streckmetall mit der untersuchten Maschenweite sehr geeignet für Operationen mit hohen Stromdichten in der Elektrolyse ist. Ebenfalls werden die Streckmetalle in Elektrolysetestzellen [8–11] und -stacks eingesetzt [12, 13]. Borgardt et al. [8] finden einen optimalen Anpressdruck für einen Zellaufbau mit Streckmetall in einem Bereich von 2,0- 3,0 MPa. In dem Zellaufbau dient das Streckmetall sowohl zur makroporösen Strömungsverteilung als auch zur mikroporösen Verteilung auf die MEA. In weiteren Publikationen werden die Streckmetalle vergleichbar zu Borgardt et al. [8] ebenfalls als PTL und Strömungsverteiler eingesetzt [9–11]. In den Stack-Anwendungen von Selamet et al. [12, 13] werden die Streckmetalle als Strömungsverteiler verwendet. In allen Publikationen wird der Einsatz von Streckmetallen in der Elektrolysezelle als positiv bewertet, jedoch erzielt bei Borgardt et al. [8] ein klassisches Flowfield eine bessere Zelleistung.

2.1.3 Poröse Materialien

GDL-Materialien bestehen typischerweise aus einem Verbund aus Kohlenstofffasern mit einer Dicke von 6 bis 8 μm und werden hauptsächlich den drei Kategorien Kohlenstoffpapier, Kohlenstoffvlies und Kohlenstoffgewebe zugeordnet [14]. Die Struktur der Faserverbunde wird durch die Produktion und die Eigenschaften der Kohlenstofffasern beeinflusst. Während Kohlenstoffpapiere aus zufällig übereinander geschichteten, geraden Faserstrukturen bestehen [15], weisen Kohlenstoffvliese ineinander verschlungene gebogene Fasern [16] und Kohlenstoffgewebe verwobene Fasern auf nach [17].

Bei mechanischer Belastung der GDL-Materialien wird deren Porosität und Struktur verändert. Mit steigender Last wird die poröse Struktur komprimiert, was zu einem sinkenden Porenvolumen und einer geringeren Porosität führt [18–20]. Durch die Belastung brechen die Kohlenstofffasern zunehmend und es tritt eine irreversible Schädigung der porösen Struktur der Medien auf. Dies führt zum Ausbilden neuer Faserkontaktstellen, was sowohl das mechanische Verhalten als auch die elektrische Leitfähigkeit beeinflusst [17, 18, 21]. Die Faserschädigung eines Kohlenstoffpapiers werden beispielhaft durch Qiu et al. [17] für unterschiedliche Belastungen dargestellt.

Durch den Kontakt mit der Strömungsverteilerstruktur werden die Materialien ungleichmäßig belastet, sodass bei einer Kanal-Steg-Struktur zwischen einer Kompression unter den Stegen und unterhalb des Kanals unterschieden wird. In den Stegbereichen werden die Materialien wie zuvor beschrieben komprimiert [19, 22]. Im Bereich der Kanäle wird die mechanische Verformung durch die Materialeigenschaften und von der Kanalbreite beeinflusst. So bildet sich eine graduelle Stauchung zur Kanalmitte, welche nur eine geringe Verformung aufweist, aus. Die GDL ragt somit in den Kanal hinein. Entsprechend der Stauchung bildet sich ebenfalls eine graduelle Porositätsverteilung in der GDL aus [19, 23, 24].

Durch die Änderung der Porosität und die Schädigung der Faserstruktur wird ebenfalls das mechanische Verhalten bei einer Kompression und die Permeabilität der Materialien beeinflusst. Dies kann zu negativen Effekten beim Stofftransport führen. So führt eine zunehmende Verformung zu einer nichtlinearen Abnahme der Gaspermeabilität [21, 25]. Nach Irmischer gibt es hier ebenfalls einen Unterschied zwischen den unterschiedlichen GDL-Materialien. So nimmt die normierte Permeabilität von einem Kohlenstoffpapier der Firma Toray nach einer vorangegangenen Belastung von 6 MPa um 6% ab, während das Kohlenstoffvlies durch eine vorangegangene Belastung kaum irreversibel geschädigt wird und somit die Gaspermeabilität ebenfalls kaum verändert ist [21].

Als PTL werden unterschiedliche, poröse Titanmaterialien eingesetzt. Unter anderem werden Titanvliese, -gitter und -schäume sowie Titansinterkörper eingesetzt. Dabei wurde in der Vergangenheit der Einfluss unterschiedlicher Dicken, Porengrößen und Porositäten untersucht [26, 27]. In Abbildung 5 sind unterschiedliche Titansinterkörper und ein Titanvlies dargestellt.

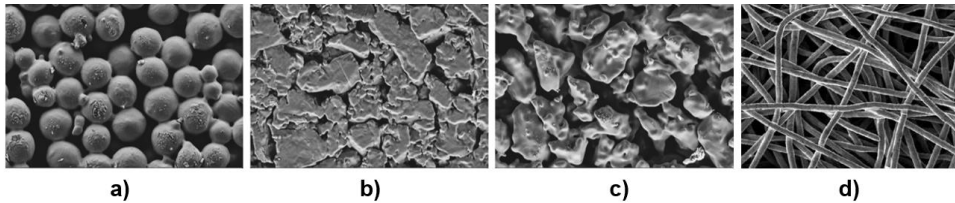


Abbildung 5: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen a) - c) unterschiedlicher Sintertitane und d) eines Titanvlieses (adaptiert nach [28, 29]).

Die mechanischen Eigenschaften der PTL-Strukturen und der GDL-Materialien unterscheiden sich signifikant und werden genauer in Abschnitt 2.2.1 diskutiert.

2.2 Mechanischer Aufbau von Polymer-Elektrolyt-Membran-Elektrolysezellen

Um den zuvor beschriebenen Zero-Gap-Aufbau von PEM-Elektrolysezellen gewährleisten zu können, werden die funktionellen Bauteile der Elektrolysezellen zwischen zwei Endplatten verspannt. Die hierfür notwendige Kraft wird durch mechanische Verspannungsvorrichtungen, wie beispielsweise Schrauben, hydraulische Stempel oder Zugbänder, auf die Endplatten aufgebracht. Durch die Kompression wird die elektrische Kontaktierung der Bauteile und die Abdichtung des Zellstapels gegen Leckagen sichergestellt. Hierbei variiert in Abhängigkeit des Zelldesigns die Platzierung, die Anzahl und das Anziehmoment der Schrauben, wodurch die Stärke und die Verteilung der Kompression beeinflusst werden.

Bei einem Testzellenaufbau werden häufig direkt die Flowfield-Platten durch die Endplatten verspannt. In diesem Fall erfolgt die Medien Zu- und Abfuhr durch die Flowfield-Platten oder durch die Endplatten. Zwischen den Flowfield-Platten werden die mechanisch in Reihe geschalteten, porösen Materialien und die MEA verspannt. Zu dem Aufbau eines Elektrolyseurs gehört stets ein geeignetes Dichtungskonzept, welches Leckagen vorbeugt und die Fertigungstoleranzen der Bauteile und die Rauigkeit der Komponentenoberflächen ausgleicht. Die Dichtung wird mechanisch parallel zu den porösen Materialien verspannt. Anforderungen an das verwendete Dichtungskonzept sind beispielsweise eine mechanische Dauerfestigkeit gegen zyklische Belastungen, geringes Kriechverhalten und chemische Langzeitstabilität gegenüber den Zellbedingungen. Gängige Dichtungskonzepte umfassen O-Ringe, Flachdichtungen und Klebedichtungen aus Elastomeren oder Polymeren [2, 4, 5]. Die Dichtungskonzepte werden in Abschnitt 2.2.5 näher erläutert.

Entsprechend der Funktionalität lässt sich die zweidimensionale Fläche einer Elektrolysezelle in die zwei unterschiedlichen Bereiche „Dichtungsbereich“ und „aktive Zellfläche“ unterteilen. Der Bereich der aktiven Zellfläche wird durch die geometrischen Ausmaße der Katalysatorschicht definiert, während die Dichtungsfläche den funktionalen Dichtungsbereich beschreibt. Beide Bereiche sind wie oben beschrieben häufig mechanisch parallelgeschaltet und dementsprechend im Krafthauptschluss oder im Kraftnebenschluss ausgeführt.

Abhängig vom Dichtungskonzept müssen die GDL und PTL mechanisch auf die jeweilige Dichtung abgestimmt werden. Die Eigenschaften der porösen Strukturen dieser Materialien variieren mit der Kompression beziehungsweise dem mechanischen Druck, mit dem sie belastet werden. Ebenso weisen unterschiedliche Dichtungsmaterialien ein variierendes Kompressionsverhalten auf. Das mechanische Verhalten der Materialien lässt sich durch unterschiedliche Materialverhalten beschreiben. Diese setzen die Kompression eines Materials mit dem dafür aufgewendeten Anpressdruck in Relation, wodurch beide Größen direkt aufeinander schließen lassen. Deshalb wird in Abschnitt 2.2.1 auf das mechanische Verhalten der porösen Materialien eingegangen und in Abschnitt 2.2.2 der Einfluss der Zellmechanik auf den elektrischen Widerstand beschrieben. Weiterhin wird in Abschnitt 2.2.3 der Einfluss der Zellmechanik auf die Elektrolyseleistung dargelegt.

In der Literatur lag der Fokus in den vergangenen Jahren auf der mechanischen Betrachtung von PEM-Brennstoffzellen. Die Erkenntnisse aus der Brennstoffzellentechnik lassen sich unter anderem aufgrund der Unterschiede bezüglich der Materialanforderungen, des Strömungsverhaltens und der Betriebsweise, wie z.B. dem Druckbetrieb, nicht vollständig übertragen, dienen aber als gute Ausgangslage für die mechanische Betrachtung von PEM-Elektrolysezellen.

2.2.1 Mechanisches Verhalten der porösen Materialien

Wie in Abschnitt 2.1.3 beschrieben, wird das mechanische Verhalten der unterschiedlichen GDL-Materialien durch ihre Porosität beeinflusst. Durch die Verringerung der Porosität mit steigender Kompression steigt der mechanische Widerstand der Probe. In Kompressionsmessungen, bei denen unter Steigerung des Kompressionsdrucks die Dicke der Probe gemessen wird, verringert sich mit zunehmendem Druck die Kompressionszunahme. Die Proben zeigen somit ein nichtlineares Kompressionsverhalten. Ein weiterer Einflussfaktor auf das Materialverhalten ist die unterschiedliche Faserstruktur der verschiedenen GDL-Materialien. So stellt Irmischer [21] Unterschiede im Kompressionsverhalten der Kohlenstoffpapiere der Firmen Toray und SGL, sowie dem Kohlenstoffvlies der Firma Freudenberg fest. Nach Irmischers Untersuchungen verhält sich das Kohlenstoffvlies weniger kompressibel als die Kohlenstoffpapiere. Zu ähnlichen Ergebnissen kommen auch Kleemann et al. [30], die zusätzlich die Biegesteifigkeit der Materialien untersuchen. So weisen die

Kohlenstoffvliese eine wesentlich geringere Biegesteifigkeit auf als das Kohlenstoffpapier der Firma Toray. Ebenso zeigt Irmischer [21], dass das Kohlenstoffpapier unter starker mechanischer Belastung eine stärkere irreversible Schädigung der porösen Struktur in Form von Faserbrüchen erfährt als das Kohlenstoffvlies der Firma Freudenberg.

Die irreversiblen Schädigungen der Faserstrukturen führen ebenfalls zu einer Veränderung des Kompressionsverhalten, was in der Literatur durch eine zyklische Belastung der GDL-Materialien untersucht wird. Irmischer [21] untersucht für unterschiedliche GDL-Materialien das zyklische Verhalten. Dabei werden die Materialien bei jedem der 5 Zyklen sukzessiv bis zu einem Kompressionsdruck von 2,5 MPa belastet. Sowohl für die Kohlenstoffpapiere als auch für das Kohlenstoffvlies zeigt sich vor allem ein unterschiedliches Kompressionsverhalten nach dem ersten Lastzyklus. Ebenfalls stellt sich nach einmaliger Kompression die anfängliche Materialdicke nicht wieder ein und die plastische Verformung der Materialien von 11% (GDL der Firma Toray) bis ca. 25% (GDL der Firma SGL) ist deutlich messbar. Mit jedem weiteren Zyklus sinkt die plastische Verformung. Die plastische Materialverformung wird ebenfalls von Sadeghi et al. [31] und Gigos et al. [32] festgestellt.

Die PTL-Materialien weisen hingegen ein deutlich steiferes Materialverhalten auf, welches nicht mit dem der kohlenstoffbasierten Materialien zu vergleichen ist. Wang et al. [33] zeigen in Kompressionsversuchen eine Abhängigkeit der Materialeigenschaften von der Porosität des Materials. So weisen Proben geringerer Porosität höhere E-Module in Kompressionsrichtung auf. Ein ähnliches Verhalten wird von Imwinkelried et al. [34] und Borgaltdt et al. [35] festgestellt. Ebenso weisen die Sinterkörper oder Titanschäume in den Druckbereichen, die für die Elektrolysezelle relevant sind, ein linear-elastisches Materialverhalten auf. Im Rahmen dieser Arbeit ist besonders das mechanische Verhalten von Titanvlies relevant, da dieses für die Durchführung der Experimente angewendet wird. Zum aktuellen Zeitpunkt ist dem Autor keine Studie bekannt, welche das Materialverhalten von Titanvlies ausreichend genau für die Zwecke dieser Arbeit untersucht. Dementsprechend wird in Abschnitt 4.3.1 eine eigene Untersuchung zum Kompressionsverhalten eines Titanvlieses vorgenommen und an dieser Stelle nicht weiter auf das Materialverhalten der Titansinterkörper und Titanschäume eingegangen.

Auf das Materialverhalten der GDL-Materialien bei einmaliger Kompression wird detaillierter in Kapitel 2.4.3 eingegangen.

2.2.2 Elektrischer Widerstand

Bedingt durch den Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle ist für die elektrische Kontaktierung der Katalysatoroberfläche der Kontaktwiderstand zwischen allen in Reihe geschalteten Bauteilen

entscheidend. So ist der Kontaktwiderstand zwischen der Flowfield-Platte und den porösen Materialien sowie der Kontaktwiderstand zwischen den porösen Materialien und der Katalysatorschicht der MEA entscheidend für den ohmschen Widerstand einer Elektrolysezelle. Wird der elektrische Strom nicht an der Flowfield-Platte abgegriffen, hat ebenfalls der Kontaktwiderstand zwischen der Flowfield-Platte und dem Stromabnehmer Einfluss auf den Gesamtwiderstand einer Zelle. Der elektrische Widerstand aller Materialien setzt sich aus Kontakt- und Materialwiderstand zusammen. So zeigen Netwall et al. [36], dass sich für das untersuchte Zelldesign einer Brennstoffzelle der gesamte Widerstand aus ca. 70% Kontaktwiderständen und 30% Materialwiderständen zusammensetzt. Für eine einzelne Zelle setzt sich der Gesamtwiderstand aus ca. 55% Kontaktwiderständen und 45% Materialwiderständen zusammen. Nach dem Materialwiderstand der MEA haben hierbei die Kontaktwiderstände der GDL zu den benachbarten Komponenten den größten Einfluss auf den Gesamtwiderstand.

Für den Kontaktwiderstand zwischen porösen Materialien und der FFP ist deren Kontaktfläche im Bereich der Strömungsverteilerstruktur entscheidend. Somit hat die Form der Strömungsverteilerstruktur einen Einfluss auf die Kontaktfläche und den Kontaktdruck zwischen beiden Geometrien, da je nach Struktur die eingeleitete Kraft in eine größere oder kleinere Fläche eingeleitet wird. Nach Avasarala et al. [37] hat ebenfalls die Oberflächenrauheit in dieser Kontaktregion einen Einfluss auf den Kontaktwiderstand. Dieser Einfluss wurde jedoch nur für grafitische Bipolarplatten überprüft.

Bei der Messung von elektrischen Widerständen poröser Medien überlagern sich die Effekte des Anpressdrucks auf den Kontaktwiderstand und Materialwiderstand [38]. So wird beispielsweise mit der mechanischen Belastung von GDL-Materialien, wie in Abschnitt 2.1.3 gezeigt, die poröse Struktur des Materials verändert. Die Veränderung der porösen Struktur führt zu mehr Kontaktstellen der Kohlenstofffasern und dadurch zu einem reduzierten Widerstand. Der Kontaktwiderstand ist ebenfalls von der Anpresskraft und den kontaktierten Materialien abhängig.

Verschiedene Studien zeigen, dass der elektrische Widerstand mit steigendem Anpressdruck sinkt. Exemplarische Verläufe für den elektrischen Widerstand eines grafitischen GDL-Materials und eines Titan-PTL-Materials sind in Abbildung 6 dargestellt. Dabei wird jeweils die erste Kompression der porösen Materialien betrachtet, indem der Anpressdruck sukzessiv in Lastschritten erhöht wird und der gesamte Widerstand des Messaufbaus gemessen wird. Die Abbildung verdeutlicht, dass das grafitische Material einen deutlich geringeren elektrischen Widerstand aufweist als das titanbasierte Material. Der elektrische Widerstand des PTL-Materials kann hingegen durch eine Beschichtung mit einem Edelmetall wie Platin gesenkt werden [6, 17, 39]. Dies resultiert vermutlich aus einer Reduktion des Kontaktwiderstands.

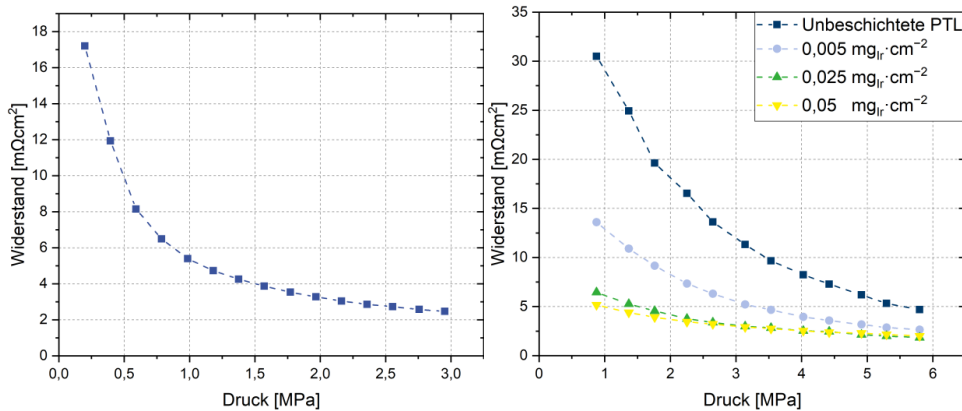


Abbildung 6: Elektrischer Widerstand von verschiedenen porösen Materialien in Abhängigkeit des Anpressdrucks. a) Grafitpapier des Typs Toray TGP-H-60; b) Titanvlies des Typs Bekipor® ST Titanium Grade 1 der Firma Bekaert unbeschichtet und mit unterschiedlichen Iridium Beladungen (adaptiert nach [17] [39]).

Der elektrische Widerstand von grafitischen GDLs ist ebenfalls von den Lastzyklen abhängig [17, 18]. So sinkt der Kontaktwiderstand bei einer vorangegangenen Kompression. Dies hängt mit mechanischen Schädigungen der GDL-Materialien zusammen [40]. Ebenso variieren die Kontaktwiderstände von unterschiedlichen grafitischen GDL-Materialien, was nicht nur von der Materialstruktur, sondern ebenfalls von der Materialdicke der GDL abhängt [18]. Bhosale et al. [41] stellen eine Übersicht von Einflüssen auf die Kontaktwiderstände in Brennstoffzellen sowie den Einfluss der Kontaktwiderstände auf die Brennstoffzellenleistung vor. So werden als Haupteinflüsse auf den Kontaktwiderstand an den Grenzflächen die Oberflächenmorphologie an der GDL und BPP, die elektrische Leitfähigkeit und die Korrosionsbeständigkeit der Oberflächenbeschichtung (bei metallischen BPP) sowie die Druckverteilung an der Grenzfläche zwischen der GDL und PTL identifiziert.

Jedoch ist nicht nur der Kontaktwiderstand zwischen der GDL und dem Flowfield vom Anpressdruck abhängig. Kleemann et al. [30] messen ebenfalls mit steigendem Anpressdruck zwischen der GDL und Katalysatorschicht eine Verbesserung des Kontaktwiderstands. Diese Abhängigkeit vom Anpressdruck führt in Zellsimulationen an den Grenzflächen zwischen dem Katalysator und der GDL zu Potentialverlusten. So ergeben sich beispielsweise für einen Anpressdruck von 0,6 MPa Kontaktwiderstände von 50 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$ und für einen Anpressdruck von 0,1 MPa Kontaktwiderstände von 170 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$.

Die dargestellten elektrischen Widerstände der Materialien beeinflussen den ohmschen Widerstand einer Elektrolysezelle und haben dementsprechend auch einen Einfluss auf die Verluste einer Elektrolysezelle. Im folgenden Abschnitt soll deshalb auf den Einfluss der Zellmechanik auf die Elektrolysezelleistung eingegangen werden.

2.2.3 Einfluss der Zellmechanik auf die Elektrolysezelleistung

Um den Einfluss des mechanischen Aufbaus einer Elektrolysezelle auf die Zelleistung zu untersuchen, wird in der Literatur die mechanische Belastung auf der aktiven Zellfläche variiert. Hierzu wird der Anpressdruck von Al Shakhshir et al. [42] zwischen ca. 0,4 und 1,1 MPa, von Borgardt et al. [8] zwischen 0,79 und 5,66 MPa und Frensch et al. [43] zwischen 0,77 und 3,45 MPa direkt eingestellt. In allen betrachteten Studien werden unterschiedliche Methoden und Zellaufbauten verwendet, um den Druck auf der aktiven Zellfläche zu etablieren. So wird von Borgardt [44] eine Industriepresse und von Frensch Druckfedern verwendet, um extern einen Druck auf die aktive Zellfläche zu realisieren. Selamet et al. [12] hingegen verwenden eine Kombination aus unterschiedlichen Dichtungsmaterialien und Schraubenkräften, um den Anpressdruck indirekt zu steigern. Zur Überprüfung der Homogenität des Anpressdrucks werden drucksensitive Folien verwendet [8, 12, 43]. Stähler et al. [45] verändern den Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche indirekt über unterschiedliche Kompressionen des kathodenseitigen GDL-Materials, referieren jedoch nur auf die Kompression und nicht auf den Anpressdruck. Die Kompression wird über die Variation der Dichtungshöhe auf der Kathodenseite eingestellt. Stähler et al. [46] und Al Shakhshir et al. [42] detektieren während der Messung von Polarisationskurven ebenfalls den Wasserstoffvolumenanteil in Sauerstoff.

In allen Studien wird mit steigendem Anpressdruck bzw. steigender Kompression ein Anstieg der Zelleistung festgestellt. In Abbildung 7 sind die Studien von Stähler et al. dargestellt.

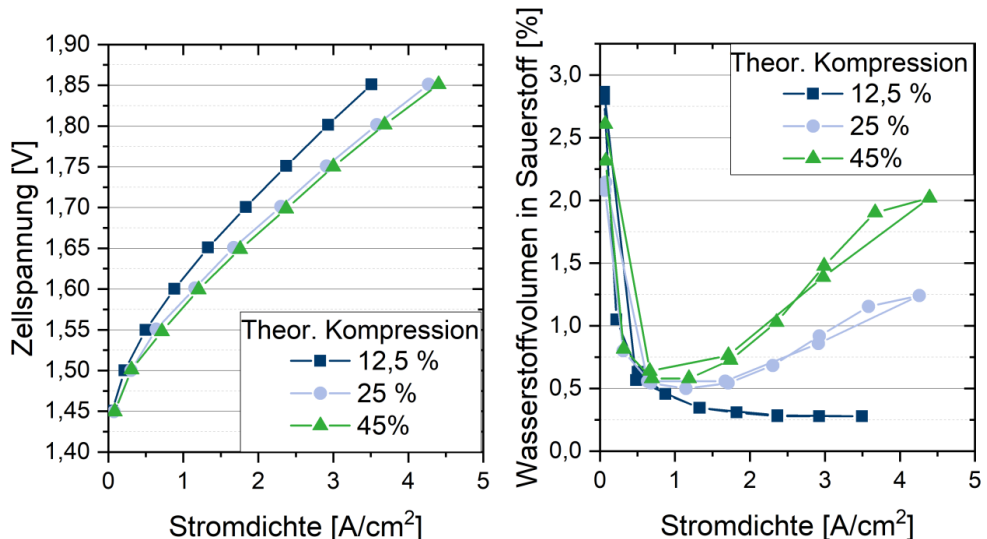


Abbildung 7: Zellspannungen (links) und der Wasserstoffvolumen im Sauerstoff als Funktion der Stromdichte und in Abhängigkeit von verschiedenen theor. Kompressionen des kathodenseitigen GDL-Materials (adaptiert nach [45]).

So stellen Stähler et al. [45] fest, dass mit steigender Kompression einerseits die Zelleistung zunimmt, andererseits jedoch auch der Wasserstoff-Crossover für hohe Stromdichten ansteigt. Nur bei einer Kompression von 12,5% steigt der Wasserstoff-Crossover nicht mit zunehmenden Stromdichten. Bei Al Shakhshir et al. [42] sinkt die Wasserstoffpermeation mit zunehmender Stromstärke und zunehmendem Anpressdruck. Jedoch sind der maximale Anpressdruck mit 1,1 MPa und die maximale Stromstärke mit 1,2 A/cm² verhältnismäßig gering. Weiterhin unterscheiden sich die Membrandicken mit ca. 50 µm [45] und 127 µm [42], was die Wasserstoffpermeation maßgeblich beeinflusst. Stähler et al. [45] deuten den erhöhten Wasserstoff-Crossover mit einem steigenden Wasserstoffvolumen an der Kathodenoberfläche bei erhöhten Kompressionen. Dies ist gleichbedeutend mit einem Anstieg des Massentransportwiderstands auf der Kathodenseite. So wird eine optimale Kompression zwischen einer theoretischen Kompression von 25% und 45% vermutet.

Borgardt et al. [8] bestimmen abhängig von der Zellkonfiguration einen Bereich des optimalen Anpressdrucks zwischen 2,0 und 3,0 MPa. Bei höheren Anpressdrücken werden deutliche Massentransportverluste festgestellt. In der Studie von Selamet et al. [12] ergibt sich für das Dichtungsmaterial Silikon und EPDM ein optimales Drehmoment von 10 Nm, was gemäß der Messung des Anpressdrucks zu einem mittleren Anpressdruck von ca. 2 MPa auf der aktiven Zellfläche führt. Frensch et al. [43] messen eine kontinuierliche Leistungssteigerung bis zu einem Anpressdruck von 3,45 MPa und geben bei ihren Messungen keine Wasserstoffkonzentration im Sauerstoff an.

Durch die Kompression bzw. die Steigerung des Anpressdrucks ergibt sich eine Reduktion des Kontaktwiderstandes zwischen der GDL und BPP. Wie in Abschnitt 2.2.2 dargestellt, nimmt der elektrische Widerstand signifikant bis zu Kontaktdrücken von 1 MPa ab und sinkt auch für höhere Werte weiter. Dies ist als einer der Haupteinflussfaktoren verbesserter Zelleistungen bei höheren Anpressdrücken zu deuten. So wird ebenfalls eine Reduktion des elektrischen Widerstands der Zelle ex situ [12, 43] und in situ während des Zellbetriebs [43, 45] festgestellt. Die In situ-Messungen erfolgen mithilfe der Impedanzspektroskopie, wodurch sich der Hochfrequenzwiderstand repräsentativ für den ohmschen Widerstand der Zelle bestimmen lässt. Frensch et al. [43] stellen ebenfalls fest, dass sich neben der Reduktion der Kontaktwiderstände bei steigender Kompression der Membranwiderstand ansteigt.

Der erhöhte Wasserstoff-Crossover wirkt sich, neben den Leistungseinbußen, auch auf die Sicherheit des Zellbetriebs aus, da eine kritische Anreicherung von Wasserstoff mit Sauerstoff oder von Sauerstoff mit Wasserstoff eine Gasexplosion verursachen kann [47].

2.2.4 Einfluss unterschiedlicher, poröser Materialien auf die Zelleistung

Im Bereich der Elektrolysezellen liegen nach Wissen des Autors noch keine detaillierten Studien zum Einfluss der Materialeigenschaften unterschiedlicher, poröser Materialien auf die Elektrolysezelleistung vor. Im Bereich der Brennstoffzellentechnologie erfolgen hingegen Untersuchungen mit unterschiedlichen GDL-Materialien.

Für Brennstoffzellen wurde in der Literatur, vergleichbar zu den in Abschnitt 2.2.3 festgestellten Einflüssen der Zellmechanik auf die Elektrolyseleistung, eine Abhängigkeit der Brennstoffzelleistung vom Anpressdruck oder der Kompression der GDL-Materialien festgestellt [20, 21, 48]. Jedoch beeinflusst die strukturelle Schädigung der GDL-Materialien die Zelleistung deutlicher als bei den Elektrolysezellen. So treten bei einer übermäßigen Steigerung des Anpressdrucks signifikante Massentransportlimitierungen in den Messungen auf [20, 22, 48].

Irmscher et al. [48] stellen Unterschiede des Brennstoffzellverhaltens bei der Verwendung unterschiedlicher GDL-Materialien fest. So stellen Irmscher et al. [48] einen optimalen Anpressdruck bei 0,5 MPa für ein Kohlenstoffpapier der Firma SGL bzw. einen optimalen Anpressdruckbereich von 0,7 bis 1,6 MPa für ein Kohlenstoffpapier der Firma Toray fest. Für ein Kohlenstoffvlies der Firma Freudenberg hingegen sind alle Anpressdrücke größer 0,7 MPa gleichwertig gut. Dieses Verhalten wird damit erklärt, dass das Kohlenstoffvlies, verglichen mit den Kohlenstoffpapieren, eine geringe irreversible Schädigung der Faserstruktur erfährt und somit der Massentransport für hohe Kompressionen weniger gehemmt wird [21]. In seiner Dissertation stellt Irmscher [21] ebenfalls einen Unterschied zwischen dem Anpressdruck im Kanal- und Stegbereich der verwendeten Mäanderstrukturen heraus. Diese Verteilung wird bei Aussagen über den mittleren Anpressdruck häufig vernachlässigt.

Die ungleichmäßige Verteilung der Anpressdrücke über Kanal-Steg-Strukturen wird von Kleemann [49] simulativ untersucht. So kommt Kleemann zu dem Schluss, dass ein biegesteiferes Verhalten der GDL zu höheren Anpressdrücken der GDL im Kanalbereich auf der MEA führt. Hierdurch wird der Kontaktwiderstand zwischen der GDL und MEA verringert, was nach Kleemann [49] zu verbesserten Zelleistungen führt. So werden Kohlenstoffvliese und ein Kohlenstoffpapier im Vergleich betrachtet, wobei das Kohlenstoffpapier eine größere Biegesteifigkeit aufweist und somit zu einer verbesserten Zelleistung führt. Den Trend der simulierten Polarisationskurven bestätigt Kleemann ebenfalls mit experimentell gemessenen Polarisationskurven [49]. Um den Anpressdruck im Kanalbereich weiter zu erhöhen, verringert Kleemann ebenfalls die Kanalbreite von 2,2 auf 0,6 mm der Flowfield-Struktur, was wiederum zu einer Verbesserung der Zelleistung führt. Da die Kohlenstoffvliese eine geringere Biegesteifigkeit aufweisen, hat eine Veränderung der Kanalbreite einen größeren Einfluss auf das simulierte und gemessene Zellverhalten [49]. Die verbesserte Zelleistung ist in diesem

Fall jedoch nicht nur auf die homogenere Druckverteilung zurückzuführen, sondern ebenfalls auf andere Effekte in den GDL-Materialien, wie beispielsweise auf verringerte Diffusionswege unter den Stegbereichen.

2.2.5 Dichtungen in PEM-Elektrolyseuren

Ein weiterer, wichtiger Bestandteil in der Zell- oder Stack-Mechanik von PEM-Elektrolyseuren ist das Dichtungssystem. Dementsprechend muss bei der mechanischen Auslegung eines Elektrolyseurs ebenfalls eine korrekte Auslegung des Dichtungssystems erfolgen.

Die Auslegung von Dichtungen und Dichtungskonzepten für Elektrolyseure hängt von unterschiedlichen Betriebsparametern und Anforderungen an die Dichtung ab. Ein wichtiger Betriebsparameter für das Dichtungskonzept ist der Betriebsdruck von Elektrolyseuren. Hier wird zwischen dem Differenzdruck und Gleichdruckbetrieb unterschieden [50, 51]. Bei Gleichdruckbetrieb wird in beiden Zellkompartimenten (Anode und Kathode) ein Betriebsdruck in der Gasphase aufgebaut. Bei Differenzdruck wird auf einem Kompartiment (Anode oder Kathode) ein relativer Druck zum anderen Kompartiment aufgebaut. Berechnungen haben hierbei ergeben, dass ein Differenzdruckbetrieb mit einem Überdruck auf der Kathodenseite wirtschaftlich vorteilhaft sein kann, um den Wasserstoff für die nachfolgende Speicherung chemisch zu komprimieren. Hierdurch können unter anderem Verdichterstufen gespart werden [52].

Scheepers et al. [51] ermitteln optimale Betriebsdrücke auf der Kathodenseite in Abhängigkeit von der Stromdichte und der für die MEA verwendeten Membran. So ergeben sich für hohe Stromdichten und dünne NafionTM Membranen (25.4 μm) optimale Betriebsdrücke von bis zu 17.2 bar. Für dickere Nafion[®] Membranen (183 μm) wird der maximale kathodenseitige Druck mit 34.6 bar bei einer Stromstärke von 2.1 A/cm² bestimmt. Tjarks et al. [50] berechnen für einen Wasserstoffspeicherdruck von 750 bar und einer Stromdichte von 3 A/cm² optimale kathodenseitige Betriebsdrücke von bis zu 20 bar.

Neben dem Verlust an Produktgasen kann ein Dichtungsversagen ebenfalls zu Sicherheitsrisiken führen. So muss bei Leckagen des Wasserstoffs darauf geachtet werden, dass eine kritische Mischung von Sauerstoff und Wasserstoff zu einem explosionsfähigen Gemisch führen kann [47].

Zur näheren Erläuterung der theoretischen Auslegung von Dichtungen soll im Folgenden auf die grundlegende Dichtungstheorie eingegangen werden.

Allgemeine Dichtungsgeometrie

In der Dichtungstechnik wird generell zwischen statischen und dynamischen Dichtungen unterschieden. Da in Elektrolyseuren keine Relativbewegung der Komponenten stattfindet und

die Systeme statisch verspannt werden, sind im Rahmen dieser Arbeit nur statische Dichtungssysteme relevant. Statische Dichtungen werden in der Literatur anhand der Krafteinleitung in das Dichtungssystem unterschieden. So kann ein Einbau der Dichtungen im Krafthauptschlussverfahren und im Kraftnebenschlussverfahren erfolgen. Wie in Abbildung 8 prinzipiell dargestellt, wird im Krafthauptschluss die gesamte Klemmkraft der Verspannungsvorrichtung in das Dichtungssystem geleitet. Im Kraftnebenschluss erfolgt die Krafteinleitung in zwei Schritten. Im ersten Schritt wird die Dichtung in der Dichtungsgeometrie, wie beispielsweise einer Nut vorverspannt. Durch die Vorverspannung wird die Dichtung mit einer genau definierten und vom Materialverhalten der Dichtung abhängigen Kraft verspannt. Im zweiten Schritt wird die restliche Verspannungskraft über die im Kraftnebenschluss vorliegenden Geometrie abgeführt. Ein klassisches Beispiel für ein Dichtungssystem im Kraftnebenschluss sind O-Ring-Dichtungen. Der Einbau von Flachdichtungen erfolgt häufig im Krafthauptschluss, kann jedoch auch im Kraftnebenschluss erfolgen [53].

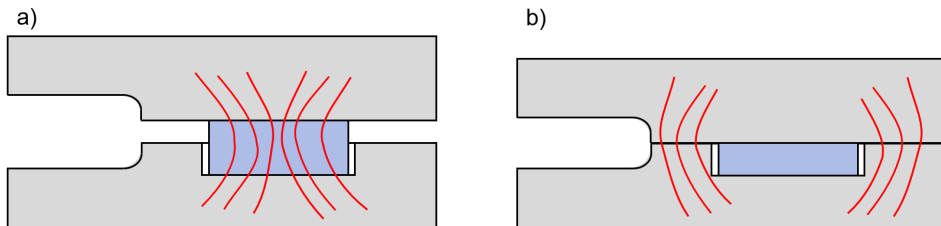


Abbildung 8: Prinzipskizze des a) Krafthauptschlusses und des Kraftnebenschlusses b). Die roten Linien symbolisieren die Kraftlinien, während das blau dargestellte Bauteil die Dichtung repräsentiert (adaptiert nach [53]).

Flachdichtungen

Da im Rahmen dieser Arbeit das Dichtungskonzept der Flachdichtungen für einen Elektrolyseur näher untersucht wurde, wird im Folgenden näher auf diese Form der Dichtung eingegangen.

Auch wenn Dichtungen, und somit auch Flachdichtungen, Normbauteile sind und somit hauptsächlich mithilfe genormter Parameter beschrieben und ausgelegt werden, gibt es in der Dichtungstheorie auch einige theoretische Ansätze zur physikalischen Beschreibung des Dichtungsverhaltens [53].

So betrachten Baten und Hummelt [54] eine Flachdichtung, vereinfacht als eine Ansammlung paralleler Kapillare, durch die eine Leckage erfolgen kann. Dieses vereinfachte Modell einer Kapillare ist in Abbildung 9 dargestellt.

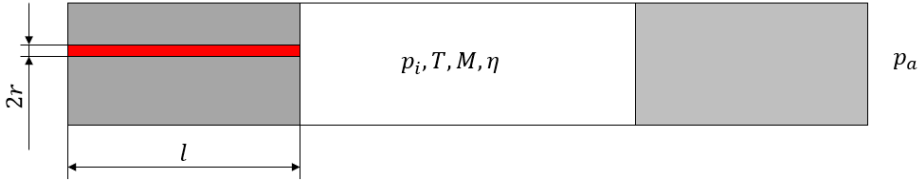


Abbildung 9: Schematische Darstellung des Kapillarmodells einer Flachdichtung (adaptiert nach [53]).

Während die Länge der Kapillare (l) ungefähr mit der Dichtungsbreite gleichzusetzen ist, verringert sich der Durchmesser ($2r$) der Kapillare proportional mit der wirkenden Flächenpressung. Eine Leakage erfolgt entlang eines Dichtungsdruckgradienten zwischen dem inneren, abzudichtenden Druck (p_i) und dem äußeren Druck (p_a). Die real auftretende Leakage durch Flanschdichtungen liegt zwischen der Knudsenströmung (Gleichung (7)) und der laminaren Strömung (Gleichung (8)), sodass sich die Massenströme ($\dot{m}$) oder Leckagen des vereinfachten Kapillarmodells durch die folgenden Gleichungen beschreiben lassen:

$$\dot{m} = \frac{4r^3}{3} \sqrt{2\pi \frac{M}{RT} \frac{p_i - p_a}{l}} \quad (7)$$

$$\dot{m} = \frac{M}{RT} \frac{pr^3}{8\eta} \frac{(p_i - p_a)^2}{l} \quad (8)$$

wobei M , T und η die molare Masse, die Temperatur und Viskosität des Fluides beschreiben und R für die ideale Gaskonstante des Fluides steht [54].

Aus dieser vereinfachten Betrachtung geht hervor, dass der Radius der Kapillare und damit indirekt die Flächenpressung auf der Dichtung mit dritter bzw. vierter Potenz in den Massenstrom eingeht und damit einen maßgeblichen Einfluss auf die Leakage einer Flachdichtung hat [53].

In der Praxis werden Flachdichtungen als Normbauteile, welche entsprechend des Anwendungsfalls genau definierte Anforderungen erfüllen müssen, charakterisiert. Entsprechend der Normen werden Dichtungskennwerte und das Dichtungsverhalten charakterisiert. Solche Richtlinien liegen für Dichtungssysteme im Bereich der Elektrollysetechnik nicht vor, weshalb sich im ersten Schritt der Charakterisierung von Dichtungen zur Abdichtung von Elektrolyseuren aus Normen vergleichbarer Systeme bedienen werden muss. Ein solches rudimentär vergleichbares System sind Flanschverbindungen, in denen ebenfalls Kraftdichtungen im Kraftnebenschluss und Krafthauptschluss eingesetzt

werden, um ein unter Druck stehendes Medium nach außen abzudichten. Dichtungen von Flanschverbindungen werden entsprechend der Prüfnorm DIN EN 13555 [55] hinsichtlich der Dichtungskennwerte charakterisiert. Die exemplarischen Parameter sind hier die erforderliche Mindest-Flächenpressung bei der Montage oder die maximale Flächenpressung, mit der die Dichtung bei Betriebstemperatur belastet werden darf. Neben den sonstigen Materialeigenschaften und der Beständigkeit sind dies wichtige Materialparameter für die Auslegung einer Dichtung [56].

Da die vollständige Dichtwirkung nur erreicht werden kann, wenn die Mindest-Flächenpressung an allen Stellen der Dichtung eingehalten wird, ist eine möglichst gleichmäßige Verteilung des Anpressdrucks erstrebenswert.

Um die Dichtigkeit einer Flachdichtung im Krafthaupschluss zu erreichen, müssen durch das Verpressen der Dichtungen Oberflächenunebenheiten und Rauheiten der Dichtfläche ausgeglichen werden. Die dazu erforderliche Dichtkraft F'_{DV} lässt sich in Abhängigkeit vom Innendruck p eines Systems ermitteln. Wie in Abbildung 10 dargestellt, kann die Dichtkraft F_D so lange erhöht werden, bis bei der Kraft F_{DV} ein kritischer Punkt erreicht wird, an dem die erforderliche Dichtkraft linear zum Innendruck des Systems ansteigt [57].

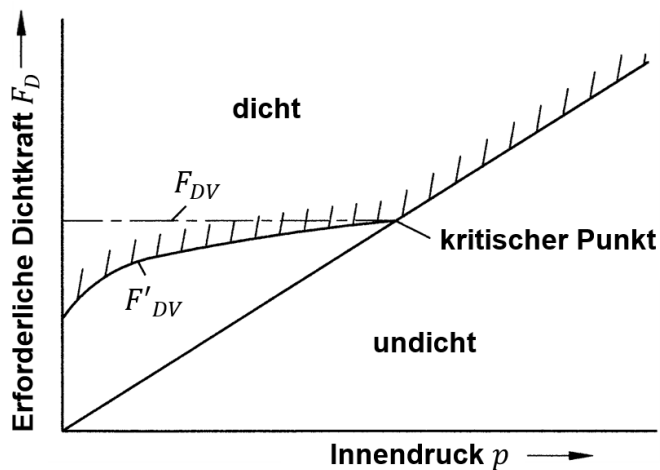


Abbildung 10: Abhängigkeit der erforderlichen Dichtkraft einer Flachdichtung vom Systeminnendruck (adaptiert nach [57]).

Die erforderliche Dichtkraft F_{DV} ist hierbei abhängig vom mittleren Durchmesser der Dichtung, sowie von der Dichtungsform und vom Dichtungsmaterial. Der Einfluss der mechanischen Eigenschaften eines Dichtungsmaterials ist hierbei signifikant für die Dichtigkeit [57].

Es existiert eine Vielzahl von Dichtungsmaterialien für Flachdichtungen. Eine Unterscheidung kann hier anhand der Materialeigenschaften der Dichtungen erfolgen. Im Bereich elektrochemischer Zellen, wie bei der Elektrolyse oder bei Brennstoffzellen, finden Thermoplaste und Elastomere eine weite Anwendung. Das erste Kriterium bei der Materialauswahl von Dichtungswerkstoffen ist die chemische Beständigkeit beziehungsweise die korrosive Beständigkeit gegenüber den Systemparametern. Die Anforderungen an die Dichtungen in PEM-Elektrolyseuren sind somit vor allem die Beständigkeit gegen Wasserdampf bei Betriebstemperaturen bis zu 90°C sowie die Korrosionsbeständigkeit in saurer Umgebung. Ebenso muss eine Korrosionsbeständigkeit gegen Sauerstoff und Wasserstoff vorliegen [58]. Besonders im Bereich von PEM-Elektrolysetestzellen findet der zu den Thermoplasten gehörende Werkstoff Polytetrafluorethylen (PTFE) Anwendung. Als exemplarische Elastomere sind Fluor-Kautschuk (FKM; früher FPM), Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk (EPDM) und Silikon-Elastomere zu nennen. Der für diese Arbeit maßgebliche Unterschied zwischen diesen Werkstoffen ist das mechanische Werkstoffverhalten. Ebenfalls haben Temperaturen einen signifikanten Einfluss auf das mechanische Verhalten der Elastomere, was bei der Auslegung von Dichtungen für Betriebsbedingungen beachtet werden muss [59].

In der Dichtungsliteratur zu Flanschdichtungen wird für Elastomerdichtungen ein Einsatzbereich für Temperaturen bis 120°C und einen Mediendruck von 10 bar beschrieben, während der Einsatzbereich für PTFE für Temperaturen bis 150°C und einen Mediendruck von 20 bar beschrieben wird. Für Dichtungsanwendungen bei höheren Druckbereichen werden in der Praxis häufig Verbundwerkstoffe aus PTFE oder metallringgestützte Elastomere verwendet [53].

Weiterhin wird durch die Prüfnorm DIN EN 13555 [55] ein Verfahren zur spezifischen Leckagerate in Abhängigkeit von der Dichtungsflächenpressung beschrieben. Durch diese Kennwerte werden die jeweiligen Dichtungen von den Dichtungsherstellern charakterisiert und können vom Anwender entsprechend der gewünschten Leckagerate ausgelegt werden. Die wesentlichen Abweichungen der Norm vom Anwendungsfall in einem Elektrolyseur sind hierbei die Oberflächenrauheiten der Prüfgeometrie. In Abbildung 11 sind repräsentativ die Dichtungseigenschaften einer PTFE- (a)) und FKM- (b)) Flachdichtung gezeigt. Die spezifische Leckagerate misst den Leckagemassenstrom [mg/s] eines Prüfgases und ist auf den Durchmesser der Probegeometrie bezogen. So ist deutlich erkennbar, dass für ein hartes Werkstoffverhalten, wie das von PTFE, hohe Anpressdrücke von 40 MPa benötigt werden, um eine Gasdichtigkeit bei einer spezifischen Leckagerate von 10^{-4} mg/(s*m) zu erreichen. Die Elastomere wie FKM mit einem sehr elastischen Materialverhalten hingegen benötigen nur einen geringen Anpressdruck von unter 10 MPa um eine spezifische Leckagerate von 10^{-4}

mg/(s·m) zu erreichen. Höhere Anpressdrücke können sogar schädlich für das Dichtverhalten von Elastomeren sein. Wichtig ist hierbei, dass dieser Druck homogen auf der Dichtungsfläche aufgebracht wird und sich keine Fehlerstellen geringeren Drucks ergeben. Diese können bereits zu einem Dichtungsversagen führen. Deshalb wird in der Dichtungsliteratur eine Überprüfung der Anpressdruckverteilung mittels drucksensitiver Folien empfohlen. Weiterhin wird von Thompson et al. [56] zur Auslegung des Dichtungssystems für eine Flanschverbindung eine vorherige, simulative Untersuchung der Einbausituation und der Auslegung empfohlen. Als Beispiel wird hier die Finite-Elemente-Methode zur Simulation des mechanischen Verhaltens genannt.

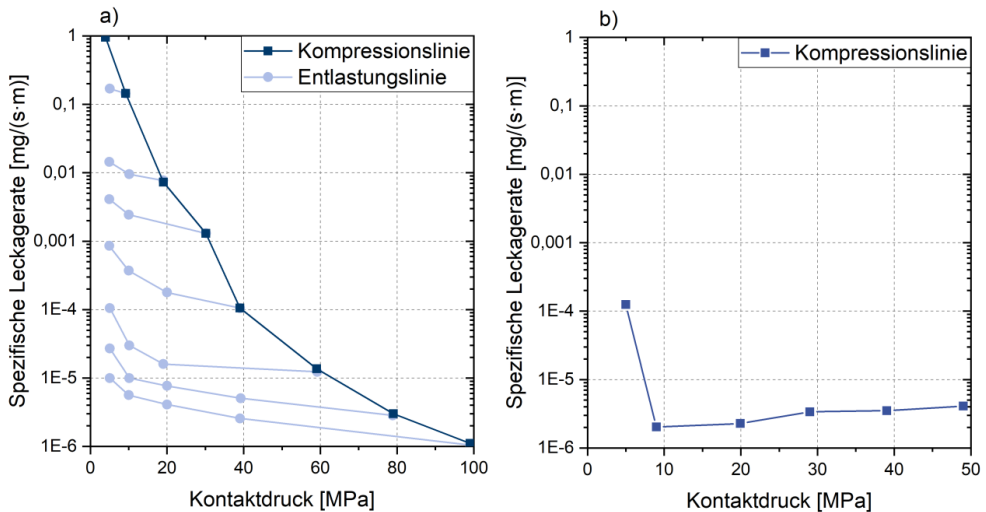


Abbildung 11: Spezifische Leckageratemessungen für eine a) PTFE-Flachdichtung mit einer Dichtungstärke von 2 mm und eine b) FKM-Flachdichtung mit einer Dichtungstärke von 4 mm nach DIN EN 13555 für einen Betriebsdruck von 40 bar (adaptiert nach [60, 61]).

Da keine Normen im Bereich der Elektrolysetechnologie existieren, wird zur Bewertung der Dichtigkeit die Leckagerate eines Zell- oder Stack-Aufbaus verwendet. Diese gibt den Druckabfall Δp über eine gegebene Zeit Δt im Volumen V an: [62, 63]

$$Q = V \cdot \frac{\Delta p}{\Delta t} \quad (9)$$

Die Leckagerate wird üblicherweise in $\left[\frac{\text{mbar} \cdot \text{l}}{\text{s}}\right]$ angegeben und ist schematisch in Abbildung 12 dargestellt. Zu beachten ist, dass die mit einem Leck verbundene Leckagerate von der Größe der Gasmoleküle abhängt. Da die Leckagerate über einen definierten Zeitraum bilanziert wird, variiert sie mit dem gewählten Messintervall. Ebenfalls hängt die Leckagerate von dem Prüfvolumen ab. Da das Zellvolumen von Elektrolysezellen ein verhältnismäßig geringes

Volumen aufweist, können direkte Messungen mit dem Stack-Volumen zu einem hohen Fehler in der Berechnung der Leckagerate führen. Die Linearisierung des Druckverlaufs durch die Leckagerate ist in Abbildung 12 illustriert.

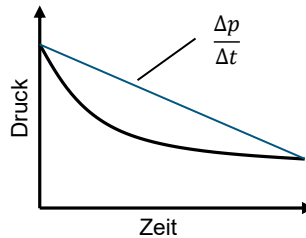


Abbildung 12: Linearisierung des realen Druckverlaufs durch die Leckagerate.

Dichtungen im Bereich der Brennstoffzellen und Elektrolysezellen

In der Literatur zu Brennstoffzellen und Elektrolysezellen wurde eine Vielzahl von Dichtungsdesigns untersucht. Diese Designs sind jedoch speziell auf das jeweilige Zelldesign abgestimmt und lassen selten allgemeingültige Aussagen zur Dichtung von elektrochemischen Zellen zu.

Untersuchungen zu Dichtungen erfolgen in der Literatur hauptsächlich im Brennstoffzellenbereich. Brennstoffzellen weisen im Vergleich zu Elektrolyseuren größtenteils ähnliche mechanische Belastungen und Betriebsbedingungen für die Dichtungen auf, jedoch werden Brennstoffzellen üblicherweise nicht im Druckbetrieb verwendet. Daher sind die mechanischen Anforderungen an Dichtungen in Brennstoffzellen deutlich geringer. Entsprechend widmen sich ein Großteil der Untersuchungen den Dichtungsmaterialien und deren chemische und mechanische Langzeitstabilität. Hierbei werden unterschiedliche Materialien den Betriebsbedingungen einer Brennstoffzelle ausgesetzt. So werden unterschiedliche Elastomere wie beispielsweise Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk (EPDM) [64, 65], FKM [66] oder Silikone [67] anhand unterschiedlicher Prüfbedingungen untersucht. Besonders auffällig ist hier das temperaturabhängige mechanische Verhalten der Elastomere. So treten starke Spannungsrelaxationen für erhöhte Temperaturen (60°C) auf und das Dichtungsmaterial wird weicher (höhere Kompressibilität) [64]. Dieses Verhalten ist nachteilig für den Einsatz als Flachdichtung und erschwert die mechanische Auslegung des Dichtungssystems. Dennoch kommen Elastomere in Elektrolyseanwendungen zum Einsatz. So verwenden Selamet et. al [13] zum Dichten eines Elektrolyseurs mit einem Betriebsdruck von 50 bar und einer Betriebstemperatur von 80°C die Kombination einer Flachdichtung aus Silikon und einem Titanrahmen.

Da das Dichtungsdesign spezifisch auf die jeweiligen Zellen ausgelegt wird, ist es schwierig in der Literatur allgemeingültige Aussagen zur Auslegung von Dichtungen zu finden und unterschiedliche Auslegungen zu vergleichen. Ye et al. [68] geben einen detaillierten Überblick zu Dichtungsdesigns aus Patenten und Veröffentlichungen. Dabei werden die unterschiedlichen Dichtungsdesigns in verschiedene Kategorien unterteilt. Bei Dichtungen der Typen „PEM-Direktdichtungsstruktur“ reicht die Membran bis an den Rand der Zelle, sodass die Dichtung direkt auf die Membran erfolgt. Dieser Kategorie können beispielsweise auch die in dieser Arbeit betrachteten Flachdichtungen zugeordnet werden. Bei der „MEA-ummantelten Rahmen-Dichtungsstruktur“ wird die MEA mit dem Dichtungsmaterial ummantelt und so in einen passenden Bipolarplattendesign eingebaut. Hierdurch werden keine zusätzlichen Dichtungskomponenten notwendig, sodass dieses Dichtungsdesign für die Massenfertigung geeignet scheint. Als letzte Gruppe werden die rahmengestützten Dichtungsdesigns vorgestellt. In diesem Design wird neben der Dichtung ein Rahmen eingesetzt, um die verwendete GDL vor einer Überkompression zu schützen. Repräsentative Darstellungen der einzelnen Dichtungsdesigns sind in Abbildung 13 dargestellt.

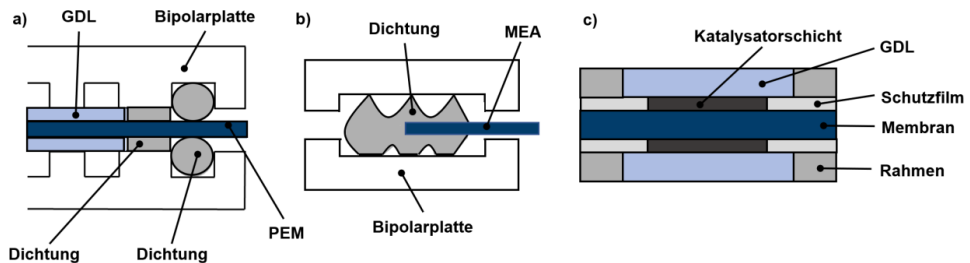


Abbildung 13: Darstellung unterschiedlicher Dichtungskonzepte der von Ye et al. [68] definierten Typen: a) PEM-Direktdichtungsstruktur, b) MEA-ummantelte Rahmen-Dichtungsstruktur und c) rahmengestütztes Dichtungsdesign (adaptiert nach [68]).

Da die verschiedenen Dichtungsmaterialien unterschiedliche Kompressionsverhalten aufweisen, muss bei der Auslegung der Dichtung auf den Einfluss des Anpressdrucks im Bereich der aktiven Zellefläche geachtet werden. So untersuchen Selamet et al. [12] den Einfluss der Drehmomente auf die Zelleistung unter Verwendung von verschiedenen Dichtungen. Während bei harten Dichtungsmaterialien, wie PTFE, die Steigerung der Schraubenkräfte/ Drehmomente kaum einen Einfluss auf die Zelleistung hat, wird durch den Einsatz eines Elastomers, wie EPDM, das Dichtungsmaterial und gleichermaßen die Materialien auf der aktiven Zellefläche komprimiert und die Zelleistung gesteigert. Diesem Verhalten kann durch den Einsatz von Rahmen in der Dichtungsfläche bedingt entgegengewirkt werden. Ein Titanrahmen verhinderte eine gesteigerte Kompression. Die Verwendung eines Silikonrahmens führte zu einer Zelleistung, die unbeeinflusst von der

Schraubenkraft blieb. Die Funktionalität der Dichtungsfläche wird mithilfe von drucksensitiven Folien evaluiert, mit denen es möglich ist, die räumliche Verteilung des Anpressdrucks auf der Dichtung zu bestimmen. Ähnliche Messungen zur Ermittlung des Anpressdrucks auf der Dichtung werden auch von Irmscher [21] und Moreno [69] durchgeführt. So werden kritische Leckagestellen in Dichtungsbereichen festgestellt, in denen ein geringer Anpressdruck vorliegt. Die Methode der drucksensitiven Folien zur Ermittlung der Anpressdruckverteilung wird näher in Abschnitt 2.5 betrachtet.

In der Literatur werden Dichtungen ebenso simulativ, hinsichtlich unterschiedlicher Einflüsse auf das System, untersucht. So wird beispielsweise die aus dem Dichtungssystem resultierenden Scherbelastungen auf die MEA simuliert [70, 71].

Eine exemplarische Auslegung einer Dichtung für eine Brennstoffzelle basierend auf simulativen Betrachtungen wurde durch Habibina et al. [72] untersucht. Mit einer Vorrichtung zur Prüfung der Leckage wird ein definierter Anpressdruck auf die Dichtung gegeben um den notwendigen Anpressdruck auf die Dichtung, entsprechend der gewünschten Dichtigkeit, zu ermitteln. Daraufhin wird das mechanische Verhalten der Zelle simuliert, um zu prüfen, ob der auf der Dichtung wirkende Druck ausreichend ist, um das gewünschte Dichtungsverhalten zu erzielen.

Entsprechend der Forderung in der Dichtungsfachliteratur soll auch im Rahmen dieser Arbeit die Auslegung einer Dichtung simulativ betrachtet werden. In Abschnitt 2.4 wird deshalb die Finite-Elemente-Methode zur mechanischen Simulation von Elektrolysezellen und -stacks untersucht. Weiterhin ist bei der Dichtungsauslegung die Unterscheidung zwischen dem Dichtungssystem von einzelnen Testzellen und Elektrolysestacks wichtig. Während bei Testzellen nur eine Dichtigkeit zur Umgebung erzielt werden muss, kann bei Elektrolysestacks aufgrund des geometrischen Aufbaus ebenfalls eine Leckage vom Anodenreaktionsraum zum Kathodenreaktionsraum erfolgen. Diese Leckagen werden auch als Querundichtigkeit bezeichnet. Im Folgenden soll näher auf die Auslegung von Elektrolysestacks eingegangen werden.

2.3 Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasserelektrolysestacks

Um die Wasserstoffproduktion von Elektrolysezellen kostengünstig zu skalieren, werden mehrere Elektrolysezellen zu einem Zellstapel assembliert. Diese Zellstapel werden auch Elektrolysestacks genannt und zeichnen sich durch größere Zellflächen aus. Beim Stapeln der Zellen kann eine elektrische Verschaltung als Parallelschaltung oder Reihenschaltung erfolgen. Die Reihenschaltung ist jedoch gebräuchlicher, da somit Systemkomponenten, wie die Medienzufuhr und Stromanschlüsse, eingespart werden. Ebenfalls werden in

Elektrolysestacks mehrere Zellen durch nur ein paar von Endplatten eingespannt, was auch auf der Komponentenebene zu Ersparnissen führt. Die Explosionsansicht eines PEM-Elektrolysestacks ist in Abbildung 14 dargestellt.

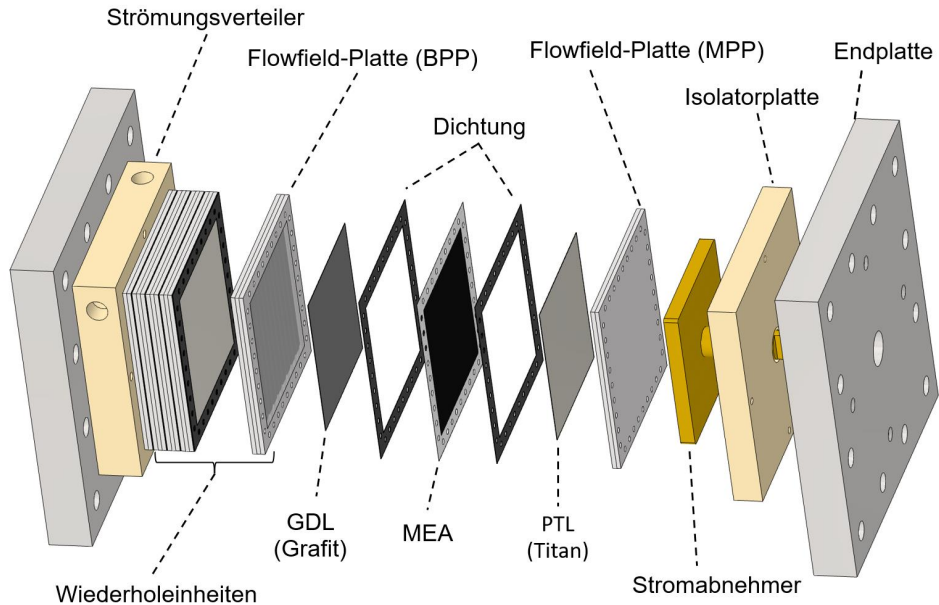


Abbildung 14: Geometrischer Aufbau eines repräsentativen, quadratischen Stack-Designs mit Beschriftung der verwendeten Komponenten.

In einem Elektrolysestack werden ebenfalls die MEA, GDL, PTL und die Dichtungen zwischen zwei angrenzenden Flowfield-Platten assembliert. Die Ausführung der Flowfield-Platten unterscheidet sich hier jedoch von den Einzelzellen. Die Flowfield-Platten am Rand versorgen jeweils nur eine Kathode oder Anode mit Medien und werden deshalb auch Monopolarplatten (MPP) genannt. Flowfield-Platten, die zwischen zwei Zellen liegen, sorgen für den Stromfluss zwischen beiden Zellen und versorgen die Kathode bzw. die Anode der angrenzenden beiden Zellen mit Medien. Diese Platten werden auch Bipolarplatten (BPP) genannt [73]. Ein Elektrolysestack besteht dementsprechend aus n Zellen und $n-1$ BPP. Die Flowfield-Platten müssen in einem Stack-Aufbau neben der Medienverteilung in der Zellebene auch die Medienverteilung über den gesamten Stack und damit jeweils zur nächsten Zelle gewährleisten, was ein weiterer Unterschied zum Einzelzellendesign ist. Im Stack-Aufbau wird eine Zelle auch als Wiederholeinheit bezeichnet, da sich alle Zellen im Zellaufbau gleichen. Die elektrische Kontaktierung der einzelnen Zellen erfolgt an den Monopolarplatten. Hierbei werden unterschiedliche Methoden verwendet. Soll die Kontaktierung (wie in Abbildung 14 dargestellt) nicht über die Endplatten erfolgen, so müssen die Endplatten gegenüber dem

Zellstapel isoliert werden. Weiterhin erfolgt die Medienzufuhr für den gesamten Stack über einen Strömungsverteiler, welcher die Medien senkrecht in den Stack leitet und diese auch wieder abführt. Alle Komponenten werden üblicherweise über zwei Endplatten verspannt [5]. Die Endplatten übertragen die definierte Vorspannkraft auf die Zellen, die darin liegenden Dichtungen und die aktive Zellfläche. Zusätzlich nehmen die Endplatten die Betriebskräfte auf. Wie bereits zuvor beschrieben, beeinflusst die daraus resultierende Kompression der porösen Medien die Zelleistung und für die Dichtungswirkung des Dichtungssystems ist die Anpresskraft ebenfalls entscheidend. Dementsprechend kommt der Verspannung und damit den Endplatten eine entscheidende mechanische Bedeutung zu.

Weiterhin sollen Elektrolysestacks zur chemischen Kompression des Wasserstoffs ebenfalls im Druckbetrieb betrieben werden. Hierbei wird zwischen Gleichdruck- und Differenzdruckelektrolyseuren unterschieden [5]. Durch den Druckbetrieb entstehen zusätzliche mechanische Belastungen im Inneren des Stacks, die entgegen der Verspannungsrichtung der Schraubenkräfte wirken, sodass die Endplatten auch hinsichtlich unterschiedlicher Betriebspunkte mechanisch funktional sein müssen. Deshalb wird im Folgenden spezifisch auf die Anforderungen an die Endplatten eingegangen.

2.3.1 Endplatten und Stack-Verspannung

Die Verspannung der Endplatten erfolgt üblicherweise über Schrauben beziehungsweise Zuganker an den Rändern der Endplatten (siehe Abbildung 14). Durch diese Art der Belastung verbiegt sich die Endplatte, sodass die aufgebrachte Vorspannkraft ungleichmäßig auf die Zellfläche aufgebracht wird. So wird mit zunehmender Durchbiegung der Endplatten ebenfalls die Druckverteilung auf den Zellkomponenten ungleichmäßiger. So gibt es in der Literatur unterschiedliche Konzepte die Durchbiegung der Endplatte im assemblierten Zustand zu reduzieren. Das in Abbildung 15 dargestellte Prinzip einer im entlasteten Zustand vorgebogenen Endplatte, soll den Durchbiegungen im verspannten Zustand entgegenwirken, um somit eine gleichmäßigere Druckverteilung in der Zelle zu erzielen [74].

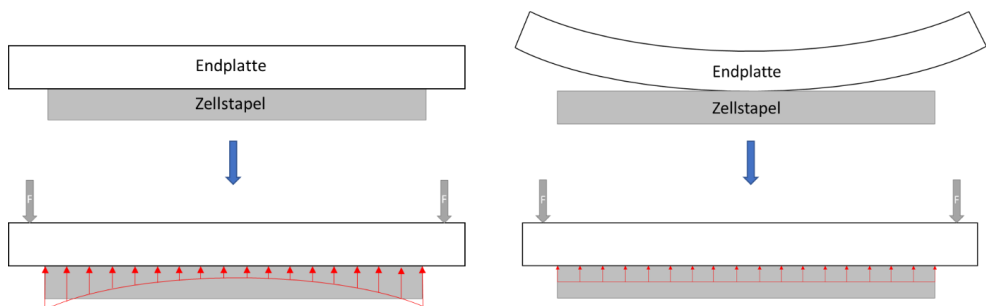


Abbildung 15: Illustration einer gleichmäßigen Spannungsverteilung durch eine vorgebogene Endplatte (adaptiert nach [74]).

Im Bereich der Brennstoffzellentechnik wird zur Reduktion des Gewichts der Endplatten das Konzept der Topologieoptimierung verwendet. Durch diese mechanisch optimierte Struktur kann mit gleichbleibendem Materialeinsatz eine höhere Steifigkeit der Endplatte erzielt werden. Aus der Topologieoptimierung ergeben sich jedoch meist fertigungstechnisch nicht zu realisierende Strukturen, sodass für die praktische Umsetzung repräsentative Stegstrukturen auf die flache Endplatte gebracht werden, die das Flächenträgheitsmoment erhöhen.

Weiterhin ist die Form der Endplatte relevant für eine optimale Krafteinleitung in die Endplatte. So vergleichen Jo et al. [75] runde und viereckige Endplattendesigns und führen für diese eine Topologieoptimierung durch. Ein rundes Endplattendesign führt hierbei in Simulationen zu geringeren Vergleichsspannungen und zu geringeren Verformungen. Zudem werden einige Möglichkeiten vorgestellt, um eine Topologieoptimierung der Platten in ein neues geometrisches Modell zu überführen und ein Zusammenhang zwischen dem reduzierten Material und der resultierenden Vergleichsspannung wird dargestellt. Die simpelste Methode zur Verringerung der Durchbiegung der Endplatte ist die Steigerung der Endplattendicke. Mit einer Steigerung der Endplattendicke von 30 mm auf 50 mm können Alizadeh et al. [76] den Anpressdruck auf dem Flowfield der aktiven Zellfläche messbar steigern. Weiterhin haben ebenfalls die Endplattenmaterialien einen Einfluss auf die Endplattendurchbiegung. Im Vergleich zu dem üblich verwendeten Stahl verursachen weniger steife Materialien, wie Aluminium, stärkere Durchbiegungen [76].

Neben der Optimierung der Endplattengeometrie existieren auch unterschiedliche Ansätze für eine Stack-Verspannung. So schlägt Ruge [77] Verspannungsmechanismen vor, mit denen die Krafteinleitung direkt auf die Endplattenmitte oder möglichst flächig auf die Endplatte aufgebracht wird. Mason et al. [78] und von Qiu et al. [79] geben eine ausführliche Zusammenfassung für unterschiedliche Patente im Bereich der Brennstoffzellen Assemblierung und Endplattenverspannung an. Das von Mason et al. [78] als Blattfeder vorgestellte Design ist hierbei ähnlich zu dem in Abbildung 15 dargestellte Konzept der verbogenen Endplatte.

Weiterhin schlagen Alizadeh et al. [80] einen neuartigen Mechanismus zur Stack-Verspannung vor, bei dem die Endplatten nicht über die außen liegenden Zuganker verspannt werden, sondern mithilfe eines pneumatischen Drucks flächig auf die Endplatten gedrückt werden. Ähnliche Konzepte werden auch durch Qiu et al. [79] in Form von „Oberflächenbelastungsanordnung mit Druckverteilungsplatten“ und „adaptiven Verspannungsvorrichtungen“ vorgestellt. Die verwendeten Verspannungskonzepte basieren hierbei auf einem Zusammenspiel aus Endplattendesign und weiteren Verspannungselementen wie Schrauben und Federelementen.

Auch für Einzelzellen konnte in der Literatur ein Einfluss der Endplattensteifheit auf die Druckverteilung in einer Zelle experimentell [72, 81] und simulativ [72, 82] festgestellt werden. So beeinflusste die Biegung der Endplatte die Anpressdrücke auf dem Dichtungsbereich und aktiven Zellbereich, sodass auch hier eine mechanische Optimierung der Endplatten vorgenommen wurde. Montanini et al. [81] stellen ebenso experimentell einen Einfluss der Endplattenmaterialien auf die Verformung der Endplatten von Brennstoffzellen fest. So sorgen weniger steife Materialien für größere Durchbiegungen.

Alle Konzepte für die Auslegung von Endplatten für Stack- oder Einzelzellendesigns sind jedoch auf das jeweilige Design angepasst, sodass die Auslegung stets an die Anforderungen der Anwendung angepasst werden muss. Im Folgenden sollen deswegen die rechnergestützte Finite-Elemente-Methode zur Simulation des mechanischen Verhaltens von elektrochemischen Zellen vorgestellt werden.

2.4 Modellierung von Polymer-Elektrolyt-Membran-Wasser-Elektrolyseuren

Die mechanische Modellierung von PEM-Wasserelektrolyseuren wird derzeit kaum in der Literatur behandelt. Jedoch liegen zahlreiche Publikationen zur Modellierung des mechanischen Verhaltens von Brennstoffzellen oder Brennstoffzellsystemen vor. Die Brennstoffzelle weicht mechanisch nur im geringen Maße von der Elektrolysezelle ab, sodass im Folgenden die Modellierung von Brennstoffzellen näher betrachtet wird. Zur strukturmekanischen Modellierung wird häufig die Finite-Elemente-Methode verwendet, welche in Abschnitt 2.4.1 vorgestellt wird. Bei der Verwendung der Finite-Elemente-Methode ist eine korrekte Materialdefinition entscheidend für das Simulationsergebnis, daher werden in Abschnitt 2.4.2 verschiedene Materialmodelle vorgestellt. Weiterhin müssen spezielle Modelle für die Modellierung poröser Materialien erstellt werden, auf welche in Abschnitt 2.4.3 eingegangen wird. Abschließend bietet Abschnitt 2.4.4 einen Überblick über die Modellierung des Kompressionsverhaltens in der Literatur.

2.4.1 Grundlagen Finite-Elemente-Methode in der Strukturmechanik

Bei der Finite-Elemente-Methode (FEM) werden ein- bis dreidimensionale Strukturen durch miteinander gekoppelte Elemente beschrieben, was auch als eine Diskretisierung oder Vernetzung eines Körpers beschrieben wird. Das mechanische Verhalten der Knotenpunkte von miteinander gekoppelten Elementen wird mithilfe von partiellen Differenzialgleichungen beschrieben. Die Finite-Elemente-Methode wird mathematisch angewendet, um diese partiellen Differenzialgleichungen zu lösen. Zur Vernetzung werden Elementtypen verwendet,

welche sich in ihren Geometrien unterscheiden und die durch Knotenpunkte miteinander gekoppelt sind. Die Kopplung der Elemente erfolgt durch partielle Differenzialgleichungen, welche in der Simulation entsprechend den Randbedingungen gelöst werden. Zwischen den Ergebnissen der Knoten wird zur Abbildung des Gesamtsystems interpoliert. Der Fehler der Berechnung sowie der benötigte Rechenaufwand sind abhängig von der Anzahl der Elementknoten [83, p. 364].

Das strukturmechanische Differenzialgleichungssystem wird aus den Gleichgewichtsbedingungen der Kinematik und den Materialgesetzen der zu beschreibenden Körper zusammengesetzt. Die Gleichgewichtsbedingungen bilanzieren die äußeren und inneren Spannungen, während die Kinematik den Zusammenhang zwischen den Verschiebungen und den damit verbundenen Systemverzerrungen herstellt. Das Materialgesetz des dazugehörigen Werkstoffs beschreibt den Zusammenhang zwischen den Verzerrungen und Spannungen des Körpers [84]. Die hierfür verwendeten Materialgesetze werden näher in Abschnitt 2.2.4 beschrieben.

Für die Lösung des Differenzialgleichungssystems müssen in jedem Knoten die Kompatibilitätsbedingung und die Gleichgewichtsbedingung erfüllt sein. Um die Kompatibilitätsbedingung zu erfüllen, müssen Knoten, die lokal zusammenfallen, auch global eine gleiche Verschiebung erfahren. Ebenfalls muss an jedem Knoten durch die Summe der Kräfte die Gleichgewichtsbedingung erfüllt sein, sodass die Knoten statisch bestimmt sind [84]. Die Verzerrung der Elemente resultiert somit aus den Verschiebungen der Knoten.

2.4.2 Mechanisches Materialverhalten

Das Materialverhalten von Festkörpern lässt sich anhand von Materialgesetzen beschreiben, welche den Zusammenhang zwischen der Spannung und Verformung eines Körpers herstellt. Die Verformung eines Körpers lässt sich unter anderem in reversible, elastische und irreversible, plastische Verformung unterteilen. Zur Modellierung von PEM-Wasserelektrolyseuren werden Körper oder Bauteile vordergründig mit einem elastischen Materialverhalten beschrieben. Im Rahmen dieser Arbeit werden zusätzlich hyperelastische Materialverhalten zur Beschreibung von Dichtungsmaterialien herangezogen. Weiterhin wird in der Abgrenzung zur Viskoelastizität in den beschriebenen Modellen nur zeitunabhängiges Materialverhalten betrachtet [84].

Elastisches Materialverhalten

Ein linear-elastisches Materialverhalten kann mithilfe des Hookeschen Gesetzes beschrieben werden. Das Hookesche Gesetz beschreibt den Zusammenhang zwischen den Verformungen ($\varepsilon_i, \gamma_{ij}$) und der Spannungen (σ_i, τ_{ij}) eines Körpers durch eine lineare Beziehung mit einer konstanten Elastizitätsmatrix (oder auch Steifigkeitsmatrix) (C_{σ}) (vgl. Gleichung (10)). Die

Elastizitätsmatrix wird durch den materialspezifischen Elastizitätsmodul (E-Modul) und die Querkontraktionszahlen (ν) beschrieben [84].

$$\sigma = C_{\sigma} \cdot \varepsilon \quad (10)$$

Für die FEM erfolgt die räumliche Notation der Spannungszustände in der Voigt-Notation. Sind die elastischen Eigenschaften eines Stoffes vollständig richtungsabhängig, so werden diese als anisotrop bezeichnet. Um das Materialverhalten beschreiben zu können, werden 21 unabhängige elastische Konstanten (C_{ijkl}) für die Elastizitätsmatrix benötigt, welche je nach Orientierung unterschiedliche Werte aufweisen können (vgl. Gleichung (11)) [84].

$$\begin{pmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \tau_{yz} \\ \tau_{zx} \\ \tau_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{xxxx} & C_{xxxy} & C_{xxzz} & C_{xxyz} & C_{xxzx} & C_{xxxy} \\ & C_{yyyy} & C_{yyyz} & C_{yyyz} & C_{yyzx} & C_{yyxy} \\ & & C_{zzzz} & C_{zzyz} & C_{zzzx} & C_{zzxy} \\ & & & C_{zyyz} & C_{zyzx} & C_{zyxy} \\ & \text{sym.} & & & C_{zxzx} & C_{zxxy} \\ & & & & & C_{xyxy} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_z \\ \gamma_{xy} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix} \quad (11)$$

Ein Sonderfall der Anisotropie ist die Orthotropie. Bei der Orthotropie liegen drei orthogonal zueinanderstehende Symmetrieebenen vor und der Werkstoff zeigt in den drei Raumrichtungen unterschiedliche Eigenschaften. Dementsprechend wird ein orthotropes Material durch 9 unabhängige Werkstoffparameter beschrieben (vgl. Gleichung (12)). Die Normalspannungen und Schubverzerrungen sowie die Schubspannungen und Dehnungen sind dabei entkoppelt, jedoch bleiben die Längsdehnungen mit den Querdehnungen gekoppelt [49, 85].

$$\begin{pmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \tau_{yz} \\ \tau_{zx} \\ \tau_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{xxxx} & C_{xxxy} & C_{xxzz} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{yyyy} & C_{yyyz} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{zzzz} & 0 & 0 & 0 \\ & & & C_{zyyz} & 0 & 0 \\ & \text{sym.} & & & C_{zxzx} & 0 \\ & & & & & C_{xyxy} \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_z \\ \gamma_{xy} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix} \quad (12)$$

Die elastischen Konstanten (C_{ijkl}) zur Beschreibung der Normalspannungen (σ_i) werden somit durch materialspezifische Elastizitätsmodule (E_i) und Querkontraktionszahlen (ν_{ij}) beschrieben und elastische Konstanten zur Beschreibung der Schubspannungen (τ_{ij}) werden durch Schubmodule (G_{ij}) beschrieben. Das orthotrope Materialmodell findet beispielsweise Anwendung für Fasermaterialien, welche strukturell den porösen Materialien dieser Arbeit ähneln [49, 85].

Ein Sonderfall eines orthotropen Materialverhaltens ist das transversal-isotrope Materialverhalten, bei der zwei orthogonale Raumrichtung gleich sind [85]. Nur die senkrecht auf diesen Ebenen stehende Richtung weist ein abweichendes Materialverhalten auf. In dieser Arbeit wird die Isotropie-Ebene als xy-Ebene definiert, sodass die dazu senkrechte Ebene in z-Richtung verläuft. So ergeben sich für die Materialparameter folgende Beziehungen:

$$E_x = E_y \equiv E \quad (13)$$

$$E_z \equiv E_z \quad (14)$$

$$G_{xy} = G_{yx} \equiv G \quad (15)$$

$$G_{zx} = G_{yz} = G_{zy} = G_{xz} \equiv G_z \quad (16)$$

$$\nu_{xy} = \nu_{yx} \equiv \nu \quad (17)$$

$$\nu_{zx} = \nu_{zy} \equiv \nu_z \quad (18)$$

$$\nu_{xz} = \nu_{yz} \quad (19)$$

Mit den Nebenbedingungen:

$$G = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (20)$$

$$\frac{\nu_z}{E_z} = \frac{\nu_{xz}}{E} \quad (21)$$

Somit ergibt sich für das Hookesche Gesetz mit invertierter Elastizitätsmatrix die folgende Form:

$$\varepsilon = C_{\sigma}^{-1} \cdot \sigma \quad (22)$$

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_z \\ \gamma_{xy} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1/E & -\nu/E & -\nu_z/E_z & 0 & 0 & 0 \\ -\nu/E & 1/E & -\nu_z/E_z & 0 & 0 & 0 \\ -\nu_{xz}/E & -\nu_{xz}/E & 1/E_z & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G_z \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \tau_{yz} \\ \tau_{zx} \\ \tau_{xy} \end{pmatrix} \quad (23)$$

Somit lässt sich das transversal-isotrope Materialverhalten mit fünf elastischen Konstanten beschreiben (E ; E_z ; G_z ; ν ; ν_z). Da es sich um einen Sonderfall der Orthotropie handelt, lässt sich das transversal-isotrope Materialverhalten ebenfalls für Fasermaterialien anwenden und kann somit zur Vereinfachung des Materialmodells dienen [49, 85].

Verhält sich ein Material richtungsunabhängig, so spricht man von einem isotropen Materialverhalten. Somit sind auch alle Materialparameter richtungsunabhängig und das Material wird in alle Dehnungsrichtungen durch ein richtungsunabhängiges E-Modul und eine richtungsunabhängige Querkontraktionszahl beschrieben. Somit ergibt sich für das Hookesche Gesetz:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_z \\ \gamma_{xy} \\ \gamma_{xz} \\ \gamma_{yz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1/E & -\nu/E & -\nu/E & 0 & 0 & 0 \\ -\nu/E & 1/E & -\nu/E & 0 & 0 & 0 \\ -\nu/E & -\nu/E & 1/E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G \end{pmatrix} * \begin{pmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \tau_{yz} \\ \tau_{zx} \\ \tau_{xy} \end{pmatrix} \quad (24)$$

Durch die Richtungsunabhängigkeit und den in Gleichung (24) dargestellten Zusammenhang lässt sich das isotrope Materialverhalten mit zwei elastischen Konstanten beschreiben (E ; ν) [49, 85].

Hyperelastisches Materialverhalten

Für das hyperelastische Materialverhalten ist der Zusammenhang zwischen der Dehnung und Spannung im Gegensatz zum elastischen Materialverhalten nichtlinear. Für das Materialmodell wird Isotropie und Inkompressibilität des Materials angenommen. Es existieren unterschiedliche Materialgesetze für das hyperelastische Materialverhalten, die aus der Formänderungsenergie eines Materials Hauptspannungstensoren ableiten [86]. Die Beschreibung dieser Materialverhalten überschreiten den Rahmen dieser Arbeit und eine detaillierte Beschreibung der Materialmodelle, wie das Yeoh-Modell 3. Ordnung, können [87] entnommen werden. Generell gehören Materialien wie Gummi oder Elastomere zu den hyperelastischen Materialien.

2.4.3 Modellierung des Materialverhaltens von porösen Materialien im Bereich der Brennstoffzellentechnologie

Für die Modellierung des Kompressionsverhaltens von Brennstoffzellen und Elektrolysezellen ist die Abbildung der Materialien mit korrekten Materialmodellen essentiell. Typischerweise kommen für die mechanischen Komponenten wie Endplatten und Flowfield-Platten metallische Materialien zum Einsatz deren Materialeigenschaften bereits sehr gut untersucht wurden. Schwieriger gestaltet sich die korrekte Darstellung der porösen Materialien. In der Literatur im

Bereich der Brennstoffzellentechnologie wird häufig die Kompression von grafitischen Materialien wie Kohlenstoffpapieren oder Kohlenstoffvliesen betrachtet [30, 88, 89]. Die Simulationen erfolgen üblicherweise in unterschiedlichen Modellen, welche näher in Abschnitt 2.4.4 betrachtet werden.

Die Darstellung der Materialeigenschaften von porösen Materialien erfolgt in der Literatur mit verschiedenen Materialmodellen. Wie in Abschnitt 2.1.3 beschrieben, weist das Kohlenstoffpapier eine poröse Struktur mit zufällig angeordneten steifen Kohlenstofffasern auf. Diese Faserstruktur führt nach Kleemann et al. [30] zu einem orthotropen, richtungsabhängigen Materialverhalten [30, 88].

Wird das Kohlenstoffpapier nun räumlich in Faserrichtung (x- und y- Richtung) und Kompressionsrichtung (z- Richtung) unterteilt, so weist das poröse Medium vergleichbar mit anderen Faserverbundwerkstoffen eine hohe Steifigkeit in der Ebene (in x- und y-Richtung) auf. Quer zu der Ebene (in Kompressionsrichtung z) ist aufgrund der porösen Struktur eine hohe Nachgiebigkeit mit einem nichtlinearen Spannungs-Stauchungs-Verlauf zu beobachten [30, 88].

Experimentelle Materialuntersuchungen zum Kompressionsverhalten von Kohlenstofffasermaterialien erfolgten in der Literatur für unterschiedliche Materialien von verschiedenen Herstellern. Ein häufig untersuchtes Material ist die TGP-H -Reihe der Firma Toray. Bei den Untersuchungen variieren die Probenanzahl und Probengeometrie (wenn angegeben) und die Messungen erfolgen für unterschiedliche Druckbereiche. Escribano et al. [90] und Matsuura et al. [91] erhöhen bei ihren Versuchen die Probendicke durch das Stapeln von zehn Kohlenstoffpapierproben, und können damit auch höhere Spannungen und Stauchungen bei geringerem Fehler messen. Irmischer [21], Kleemann et al. [30] und Mathias et al. [14] verwenden einzelne Proben und testen diese für einen kleineren Lastbereich. Kompressionsversuche, die in der Literatur für die Kohlenstoffpapiere der Firma Toray gemessen wurden, sind in Abbildung 16 dargestellt.

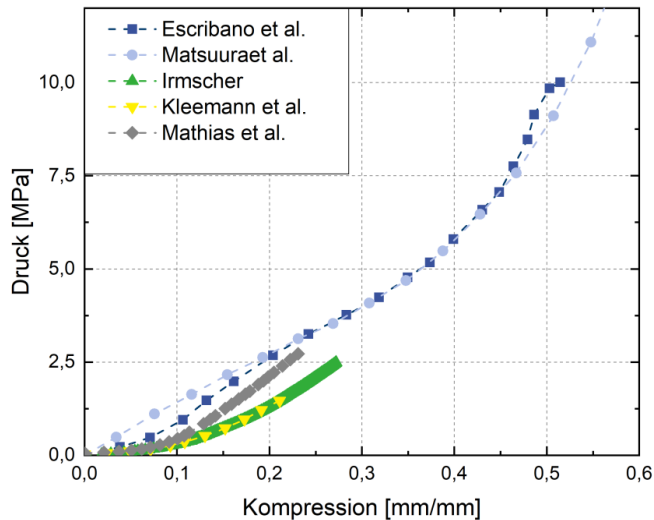


Abbildung 16: Kompressionsversuche unterschiedlicher Publikationen für Kohlenstoffpapiere TGP-H-Reihe der Firma Toray für eine einmalige Kompression (adaptiert nach [14, 21, 30, 90, 91]).

Nach Irmscher hat die Probenanzahl einen Einfluss auf das Kompressionsergebnis, das jedoch innerhalb des Messfehlers des verwendeten Messaufbaus lag. Irmscher [21], Kleemann et al. [30] und Mathias et al. [14] verwenden bei ihren Versuchen Proben des Typs TGP-H-60 mit einer nominellen Probendicke von ca. 190 bis 200 μm . Matsuura et al. [91] und Escribano et al. [90] hingegen führen die Messungen mit dem Typ TGP-H-90 mit einer nominellen Anfangsdicke von ca. 280 bis 290 μm durch. Nach Sadeghi et al. [31] hat der verwendete Typ des Kohlenstoffpapiers einen Einfluss auf die kompressiblen Eigenschaften, weshalb die Ergebnisse nicht vergleichbar sind.

Yi et al. [92], Norouzifad et al. [93] und Zhang et al. [94] modellieren das Materialverhalten des Kohlenstoffpapiers mithilfe numerischer Modelle. Hierfür werden die steifen Kohlenstofffasern einzeln mithilfe ihrer Materialmodelle dargestellt und strukturiert [92, 93] oder zufällig [94] räumlich für eine Kompressionssimulation angeordnet. Yi und Zhang stellen hierbei das TGP-H-60 dar und validieren das Simulationsergebnis mit den eigenen Messdaten bzw. mit den Ergebnissen von Mathias et al. [14]. Norouzifad et al. [93] validieren ihre Ergebnisse für das TGP-H-60 und TGP-H-120 mit den Messungen von Sadeghi. Die Ergebnisse von Zhang et al. [94] und Norouzifad et al. [93] zeigen jeweils, analog zu den experimentellen Daten, ein nichtlineares Materialverhalten bei kleiner Last, was auf eine Versteifung des Materials mit zunehmender Last hindeutet. Ebenfalls ermitteln beide Modelle (vergleichbar zu Sadeghi et al. [31]) ein steiferes Materialverhalten der dickeren Probentypen.

Bei den in Abbildung 16 dargestellten experimentellen Daten stimmen die Messungen von Escribano et al. [90] und Matsuura et al. [91] überein. Diese weichen jedoch für geringe

Kompressionen (bis 0,3 mm/mm) von den restlichen Messungen ab. Garcia et al. [88] postulierten ein Kompressionsmodell, welches auf den Daten von Mathias et al. [14] und Matsuura et al. [91] basiert und sich in drei unterschiedliche Kompressionsregime unterteilen lässt. Hier lässt sich zwischen den Kompressionsbereichen zwischen $0 < \varepsilon \leq 0,25$; $0,25 < \varepsilon \leq 0,4$ und $0,4 < \varepsilon$ unterscheiden. Das Materialverhalten in diesen Regionen wurde durch Polynomfunktionen angenähert, die aus experimentell ermittelten Druckspannungs-Stauchungs-Graphen gefittet wurden. Das sich ändernde Materialverhalten ist vermutlich auf die sich ändernde poröse Struktur und die sich damit ändernden Kontaktbedingungen zwischen den Kohlenstofffasern zu begründen. Ähnlich hierzu sind die Beobachtungen von Irmischer, welcher jedoch nur im Bereich geringer Kompressionen misst und dessen Ergebnisse deckungsgleich zu denen von Kleemann et al. [30] sind.

Mithilfe des Hooke'schen Gesetzes und damit der Annahme linearer Elastizität kann eine Abhängigkeit des E-Moduls des GDL-Materials von der Kompression ($E(\varepsilon)$) aufgestellt werden (vgl. Abbildung 40). García-Salaberri et al. [88] stellen ebenfalls die Abhängigkeit des E-Moduls von der Kompression dar, rechnen jedoch die in der Literatur angegebenen Kompressionen in „wahre Kompressionen“ um. Hiervon wird in der weiteren Literatur abgesehen, sodass die Verläufe quantitativ nicht miteinander vergleichbar sind. Weitere in der Literatur gemessene Daten für grafitische Materialien sind in Anhang Bild 1 dargestellt.

Kleemann et al. [30] definieren ein orthotropes Materialmodell zur Beschreibung des Kohlenstoffpapiers. Hierfür werden einige geometrische Vereinfachungen getroffen, sodass das Materialmodell auf zwei Dimensionen reduziert werden kann. Somit werden zur Definition des Modells der E-Modul in Kompressionsrichtung, die Querkontraktionszahlen in der Faserebene und der Schermodul zwischen den Ebenen benötigt. Der Schermodul wird simulativ ermittelt und die Querkontraktionszahlen zu Null bestimmt. Der E-Modul in der Faserebene wird ebenfalls experimentell ermittelt.

Die meisten Finite-Elemente-Simulationen des mechanischen Verhaltens von grafitischen Materialien oder Zellmodellen verwenden jedoch linear-elastische, isotrope Materialmodelle für die GDL-Komponente [95, 96]. Vereinzelt kommen jedoch auch Kompressionskurven zum Einsatz, ohne explizit ein orthotropes Materialmodell zu verwenden. Ein Großteil der verwendeten linear-elastischen, isotropen E-Module liegt zwischen Werten von 6 und 12 MPa. Auch die Angabe der Querkontraktionszahlen schwankt zwischen den Materialmodellen.

2.4.4 Modellierung des Kompressionsverhaltens

Da in der Literatur nach Wissen des Autors derzeit keine mechanischen Simulationen zur Assemblierung von PEM-Elektrolysezellen vorliegen, werden im Folgenden mechanische

Systeme betrachtet, die im Zusammenhang mit der PEM-Brennstoffzellentechnologie untersucht wurden. Da sich der mechanische Aufbau beider Systeme ähnelt, sind die Ergebnisse ebenfalls für den Anwendungsbereich der PEM-Elektrolyse relevant und interessant. Da in der PEM-Elektrolyse ebenfalls auf der Kathodenseite ein grafitisches, poröses Material zum Einsatz kommen kann, sind vor allem Kompressionsbetrachtungen zu den GDL-Materialien der Brennstoffzelle von Interesse.

Wie in Abschnitt 2.2.4 dargestellt, hat die Kompression der GDL unterhalb einer Strömungsverteilerstruktur einen maßgeblichen Einfluss auf die Leistung einer Brennstoffzelle. Entsprechend untersuchen, vergleichbar mit Kleemann [30], zahlreiche Studien simulativ die Druckverteilung, Kompression und Porositätsverteilung der GDL unter den Belastungen durch eine Kanal-Steg-Struktur.

Das Kompressionsverhalten wird in unterschiedlichen Studien in zwei- oder dreidimensionalen Teilsystemen der Kontaktstellen zwischen der GDL und Strömungsverteilerstruktur der FFP untersucht. Wie in Abschnitt 2.4.3 dargestellt, erfolgt in den meisten Studien die mechanische Beschreibung des GDL-Materials und der FFP über ein isotropes, linear-elastisches Materialverhalten unter Verwendung eines Elastizitätsmoduls und einer Querkontraktionszahl [89, 97, 98]. Zur Diskretisierung wird eine Kombination aus strukturierter und freier Vernetzung verwendet [97]. Die Kontakte zwischen den Bauteilen werden als Verbundkontakte definiert [89, 97]. Neben den Lagerungen der Systeme wird die Last als homogene Druckbelastung auf der Oberseite der FFP definiert [89, 97, 98].

Auf Basis der Kompressionsergebnisse und dem empirischen Zusammenhang des Kontaktwiderstands zur Kompression, werden aus der Simulation Rückschlüsse über die Verteilung der elektrischen Widerstände in den Bauteilen abgeleitet [89] [98]. Ebenso wird aus den Simulationsergebnissen die Verteilung der Porosität in der komprimierten GDL ermittelt. Dabei wird angenommen, dass allein ein verringertes Porenvolumen zu einer Veränderung im Volumen der GDL führt [88, 89]. Weiterhin wird mithilfe einer Monte-Carlo-Simulation der Einfluss von Fertigungsfehlern auf die Druckverteilung der GDL untersucht [97].

Wie in Abschnitt 2.4.3 dargestellt, verwenden Garcia-Salaberri et al. [88] vergleichbar zu den Studien von Klemann [49] ein orthotropes Materialmodell zur realitätsnahen Beschreibung des Materialverhaltens. Der Kontakt zwischen der Stegstruktur und der GDL wird als reibungsbehaftet mit einer Reibungszahl von 0,2 angenommen [88]. Als statisch-mechanische Last wird die feste Verschiebung des Stegs zur GDL definiert, sodass sich Kompressionen des GDL-Materials von 8% - 32% ergaben [88]. In der Studie dient die Simulation der Kompression unter anderem zur Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher Modellparameter auf die Porositätsverteilung unterhalb der GDL. Ebenfalls wird die Sensitivität einiger Materialparameter auf das Simulationsergebnis überprüft. Die Bewertung erfolgt

anhand der Eindringtiefe der GDL in den Kanalbereich. Die Variation der Dicke der GDL sowie die Stegweite zeigen hierbei einen besonders großen Einfluss von -33,3% bis 25% sowie von -25,4% bis 34,6% im Vergleich zum Ausgangswert. Die Veränderung des Schubmoduls, welcher die Biegesteifigkeit der GDL maßgeblich beeinflusst, verursacht eine Veränderung der Eindringtiefe von -6,8% bis 14,6%, während bei einer Variation des E-Moduls in Kompressionsrichtung, mit einer Verringerung um den Faktor 10, die GDL um lediglich 11% tiefer in den Kanal eindringt. Diese Erkenntnisse decken sich quantitativ mit den Untersuchungen von Kleemann [49]. Besonders signifikant ist der Einfluss unterschiedlicher Materialmodelle auf die Spannungsverteilung im Kanal- und Stegbereich. Wie in Abbildung 17 dargestellt, unterscheidet sich das Materialverhalten der linear-isotropen Materialmodelle vor allem im Kanalbereich vom orthotropen Materialmodell. Dies führt ebenfalls zu einem geringeren Eindringen des GDL-Materials in den Kanalbereich. Unter dem Steg wird die Spannung hingegen hauptsächlich vom E-Modul in Kompressionsrichtung bestimmt.

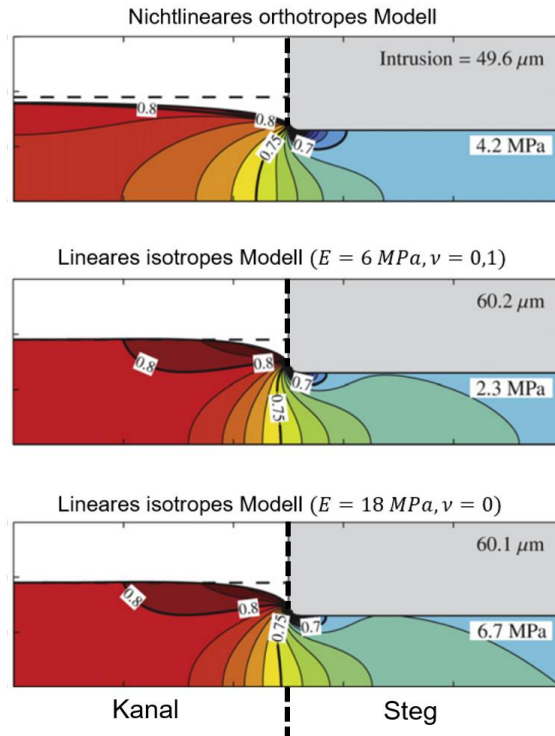


Abbildung 17: Porositätsfeld $f(x,y)$, GDL-Intrusion in den Kanal und Druckspannung an der Steggeometrie, ermittelt mit dem nichtlinearen, orthotropen Modell und zwei linear-isotropen Modellen für eine aufgezwungene Stegverschiebung von $60 \mu\text{m}$ (adaptiert nach [88]).

Die Erkenntnisse von Kleemann [49] und Garcia-Salaberri et al. [88] weisen darauf hin, dass bei der Definition eines Zellmodells eine korrekte Beschreibung des Materialverhaltens der GDL essentiell für die korrekte numerische Abbildung des Kompressionsverhaltens ist.

Brennstoffzellenmodelle

Neben den Betrachtungen zu den zuvor beschriebenen Teilmodellen wurden in der Literatur ebenfalls Simulationen des mechanischen Verhaltens der vollständigen Brennstoffzelle vorgenommen.

In den Zellmodellen werden im Gegensatz zu den zuvor betrachteten Teilmodellen dreidimensionale Baugruppen betrachtet, welche vergleichbar mit dem Aufbau einer Elektrolysezelle in Abschnitt 3.1 sind [72, 96, 99]. Die Simulationen erfolgen in ANSYS Mechanical. Mikkola et al. [100] verwenden hingegen ein Ersatzmodell ohne poröse Materialien und MEA und führen die Simulation in COMSOL aus. Das Materialverhalten aller Bauteile wird als isotrop und linear-elastisch angenommen [96, 99, 100]. Lediglich Habibina et al. [72] setzen für die GDL und Dichtung Materialmodelle ein, die auf Messpunkten bzw. Spannungs-Dehnungs-Kurven (der Dichtung) beruhen. Mit einer Druckbelastung an der fiktiven Kontaktstelle zwischen den Endplatten und Schraubenköpfen werden die Schraubenkräfte nachgestellt [72, 96, 100]. Die Druckverteilungen der Simulationen, die in ANSYS Mechanical ausgeführt wurden, werden als Vergleichsspannungen ausgewertet [72, 96] und stimmen qualitativ mit den experimentellen Ergebnissen überein. Zur qualitativen Bewertung des Modells wurden die auf der aktiven Zellfläche simulierten Druckverteilungen mit dem gemessenen Druck aus Druckfolientests verglichen [32], [33] (siehe Abschnitt 2.5).

In einem quantitativen Vergleich von Lee et al. [96] und Mikkola et al. [100] wird der betrachtete Bereich in neun Quadranten eingeteilt, für die jeweils ein Mittelwert des Drucks errechnet wird. Die sich ergebenden Fehler liegen zwischen -38,2% und 72,3% [96] sowie ca. -60% und 60% [100]. Die starke Abweichung der Simulationen wird auf Fertigungstoleranzen im realen Aufbau, die Vereinfachung der Materialmodelle sowie auf die Messungsungenauigkeiten der drucksensitiven Folien zurückgeführt.

Habibina et al. [72] hingegen nutzen, wie in Abschnitt 2.2.5 beschrieben, die Simulationsergebnisse zur Evaluation und Auslegung des Dichtungsdesigns und konnten so optimierte Werte für den Anpressdruck auf die Schrauben, die Nutdichte der verwendeten Dichtung und die Endplattendicke ermitteln. In einer weiteren Studie nutzen Habibina et al. [82] das Zellmodell zur mechanischen Optimierung der Endplattengeometrie.

Brennstoffzellenstackmodelle

Vergleichbar mit den zuvor vorgestellten Modellierungen der Testzellen werden in der Literatur ebenfalls unterschiedliche Brennstoffzellenstacks untersucht.

Die modellierten Stack-Aufbauten variieren stark in den verwendeten Geometrien und Materialien. So werden Endplatten aus Edelstahl [34], [37] oder Aluminium [35], [36] betrachtet und die FFP aus Grafit werden mit mäanderförmiger [34], [36], [37] und vereinfachter paralleler [35] Strömungsverteilerstruktur ausgeführt. Die GDL-Materialien werden als Kohlenstoffpapier modelliert, während für die MEA vereinfachte Materialmodelle von NafionTM verwendet werden. Die Dichtungen bestehen aus PTFE und Silikon [95, 101–103]. Carral et al. [101] und Hu [103] verwenden für die MEA und GDL ein Ersatzmaterialmodell, in dem beide Bauteileigenschaften zusammengefasst wurden, wobei das Modell von Carral et al. [101] auf eigenen Messungen beruht und als ein in drei Intervallen unterteiltes, isotropes, multilineares Materialmodell dargestellt wird. Alle weiteren Materialien werden mit isotropem, linear-elastischem Materialverhalten dargestellt [95, 102, 103].

Carral et al. [103] vereinfachen die Geometrie über Symmetriebedingungen zu einem Achtel des ursprünglichen Brennstoffzellenstacks [101]. Die Kontakte zwischen den Bauteilen werden als Verbundkontakte simuliert [95, 101].

Das Aufbringen der Last variiert zwischen den Arbeiten. In einigen Arbeiten werden auf der Schraubenauflagefläche Druckbelastungen aufgebracht, ohne die Abbildung der Schrauben [101–103]. Bates et al. [95] definieren Axialkräfte an den Bohrungen als Substitution für Schraubenvorspannkräfte. Hu et al. [103] verschieben die obere Endplatte gegen das restliche Stack.

Zur Validierung der Ergebnisse werden die Druckverteilungen auf den aktiven Zellflächen im Stack mit den Ergebnissen der Druckfolientests verglichen. Bis auf das Modell von La Cruz et al. [102], bei dem die Wahl der Strömungsverteilergeometrie keinen Einfluss auf die Druckverteilung der MEA hat und eine homogene Druckverteilung vorliegt [102], stimmen die quantitativen Druckprofile der Simulationen und Experimente überein [95]. Carral et al. [101] stufen ihr Modell über einen Vergleich der Verformung der Endplatten in der Simulation und in Realität ein. Die Diskrepanz liegt bei ungefähr 3 bis 10 % [101]. Die Ergebnisse der Simulationen zeigen, dass durch die Verschraubung des Brennstoffzellenstacks vom Rand zum Zentrum der Baugruppen hin ein Druckgradient auf der aktiven Zellfläche entsteht. Die Druckdifferenz ist besonders signifikant im Randbereich nahe der Endplatten [95, 101]. Je mehr Zellen der Stack besitzt, desto homogener ist die Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche [95, 101]. Laut Carral et al. [101] sollten Stacks aus mindestens fünf Zellen

bestehen, um eine homogene Druckverteilung in einem Druckbereich von 1,4 bis 1,6 MPa auf der aktiven Zellfläche zu erzielen.

2.5 Evaluation Anpressdruck

Die Evaluation des Anpressdrucks erfolgt in der Literatur mithilfe drucksensitiver Folien der Firma Fujifilm oder mit einem piezoresistiver Matrixsensor der Firma Tekscan.

Piezoresistive Matrixsensoren wurden von Montanini et al. [81] und Gatto et al. [104] dazu verwendet, den Einfluss unterschiedlicher Drehmomente auf die Anpressdruckverteilung in einer Brennstoffzelle mit einem PTFE-Dichtungsdesign zu evaluieren. Durch die Möglichkeit der quantitativen Evaluation der Anpressdruckverteilung wird die Methode des piezoresistiven Matrixsensors als vielversprechende Methode für die Evaluation variabler Zelldesigns beschrieben.

Im Gegensatz zu den piezoresistiven Matrixsensoren finden jedoch die drucksensitiven Folien eine breitere Anwendung zur Evaluation der Anpressdruckverteilung von elektrochemischen Einzelzellen oder Stacks. Da die drucksensitiven Folien nur in bestimmten Druckbereichen messen, werden in den Messungen häufig darunter oder darüber liegende Druckwerte nicht oder nur unzureichend abgebildet.

In experimentellen Zellaufbauten werden die drucksensitiven Folien verwendet, um sowohl die Anpressdruckverteilung in der aktiven Zellfläche als auch auf dem Dichtungsbereich zu bestimmen. So verwenden Frensch et al. [43] in einer Versuchsreihe die drucksensitiven Folien zur Validierung der auf die Zelle gegebene Kraft und zur Untersuchung der Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche. Selamat et al. [12] verwenden ebenfalls die drucksensitiven Folien um die Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche zu untersuchen. Wie im Kapitel zu Dichtungen beschrieben, werden die drucksensitiven Folien ebenfalls eingesetzt um die Funktionalität der Dichtungen zu überprüfen [12, 21].

Ebenfalls werden die drucksensitiven Folien zur qualitativen Evaluation von simulierten Spannungsverteilungen verwendet. Dabei werden die qualitativen Anpressdruckverläufe mit den Simulationsergebnissen verglichen, ohne einen numerischen Vergleich anzustellen [72, 75, 76, 95, 102, 105, 106]. In einigen wenigen Studien erfolgt jedoch ein quantitativer Vergleich [96, 100, 107] bei denen die Diskrepanz zwischen der Messung und Simulation zwischen 10 - 60% betrug (vgl. Abschnitt 2.4.4).

Irmscher [21] und Borgardt [44] verwenden einen Stapel aus drucksensitiven Folien, um einen breiteren Bereich von Anpressdrücken mit einer Messung abbilden zu können. So verwendet Borgardt das Messsystem um die Druckhomogenität für unterschiedliche Flowfield– PTL/GDL-

Kombinationen in einem speziellen Zellaufbau zu überprüfen. Ebenso wurde die Druckverteilung mit dem mittleren Anpressdruck auf die Zellfläche in Relation gesetzt. Irmischer [21] verwendete den Folienstapel ebenfalls um die Druckverteilung für unterschiedliche Zellaufbauten zu evaluieren und Rückschlüsse über die Funktionalität von Endplattendesigns oder Dichtungsdesigns zu erzielen. Ebenso werden mithilfe der drucksensitiven Folien relative Häufigkeitsverteilungen der Drücke über eine mäanderförmige Flowfield-Struktur ermittelt.

2.6 Zusammenfassung

In Kapitel 2 wurden die theoretischen Grundlagen und der Stand der Technik für diese Arbeit vorgestellt und diskutiert. Nach einer kurzen Einführung in die Grundlagen und Grundbegriffe der PEM-Elektrolyse wurde auf den mechanischen Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle eingegangen und die Bedeutung der mechanischen Assemblierung der Bauteile herausgestellt. Für die elektrische Kontaktierung des Katalysators auf der aktiven Zellfläche ist die mechanische Verspannung der angrenzenden porösen Materialien entscheidend. Das komplexe mechanische Materialverhalten der porösen Materialien ist abhängig von deren Struktur und Material, und wird maßgeblich durch die Porosität beeinflusst.

Der Anpressdruck hat ebenfalls einen Einfluss auf den elektrischen Widerstand der Materialien, wobei hier zwischen dem Kontaktwiderstand und dem Materialwiderstand unterschieden werden muss. Die entscheidenden Kontaktwiderstände sind hier zwischen dem Flowfield und den porösen Materialien sowie zwischen den porösen Materialien und der Katalysatorschicht. Ebenso muss zwischen dem Anpressdruck auf dem Stegbereich und dem Kanalbereich unterschieden werden, da im Stegbereich ein deutlich höherer Anpressdruck vorliegt, welcher zur Verformung des porösen Materials und möglicherweise einer Schädigung der Fasern führt.

Der elektrische Widerstand und die Veränderung der Porosität der porösen Materialien führen zur Beeinflussung der Elektrolysezelleistung und in verschiedenen Elektrolyse-Zellaufbauten ergaben sich Optimierungsprobleme hinsichtlich des ohmschen Widerstands und den Massentransportverlusten einer Elektrolysezelle. Für Brennstoffzellen wurde ebenfalls eine Abhängigkeit der Zelleistung von der Struktur der verwendeten GDL-Materialien festgestellt.

Bei der Auslegung von Flachdichtungen ist, neben der korrosiven Stabilität des Dichtungsmaterials bei Betriebsbedingungen, der Anpressdruck auf der Dichtung entscheidend für die Dichtigkeit eines Systems. Hierbei muss ebenfalls eine gleichmäßige Anpressdruckverteilung sichergestellt werden, um Fehlerstellen im Dichtungssystem zu vermeiden. Dementsprechend wird in der Dichtungstechnik die simulative Auslegung und Evaluation eines Dichtungskonzepts empfohlen.

Durch die großen Flächen und hohen Betriebsdrücke von PEM-Elektrolysestacks kommt der korrekten mechanischen Verspannung der Zellstapel eine größere Bedeutung zu. Als relevantes Bauteil stellen sich hierbei die Endplatten heraus, da diese die Kraftverteilung in einem Elektrolysestack gewährleisten. Deshalb werden in der Literatur unterschiedliche Endplattenkonzepte und Verspannungskonzepte vorgestellt, um die Funktionalität der Endplatten zu optimieren.

Als ein bewährtes Mittel für die Darstellung statisch-mechanischer Systeme, wurde die Finite-Elemente-Methode zur Evaluation des mechanischen Verhaltens von Elektrolysezellen und -stacks vorgestellt. In der Literatur liegen derzeit hauptsächlich Modellierungen des mechanischen Verhaltens von Brennstoffzellen vor. Aufgrund der mechanischen Ähnlichkeit zu Elektrolysezellen können jedoch einige der Erkenntnisse aus der Simulation von Brennstoffzellen und -stacks übertragen werden. Als wichtiger Faktor stellte sich hier die korrekte Darstellung der Materialmodelle der einzelnen Komponenten heraus. Einige Materialmodelle aus der Literatur für die Brennstoffzellenmodellierung lassen sich auf die Modellierung von Elektrolyseuren übertragen. Wohingegen vor allem die porösen Materialien der GDLs für einige Komplikationen bei der Modellierung sorgen. Dementsprechend ist eine genauere Untersuchung des mechanischen Verhaltens der porösen Materialien im Rahmen dieser Arbeit notwendig.

Neben der Modellierung von Elektrolysezellen und -stacks wird in der Literatur das mechanische Verhalten mithilfe drucksensitiver Folien untersucht. Hierbei wird jedoch auf eine numerische Validierung des Messsystems verzichtet und in einigen Veröffentlichungen werden die drucksensitiven Folien nur für eine qualitative Evaluation der Anpressdruckverteilung verwendet.

3 Versuchsaufbau für Einzelzellentests und experimentelle Methoden

In diesem Kapitel werden die in dieser Arbeit genutzten experimentellen Methoden behandelt und die verwendeten Materialien vorgestellt. In Abschnitt 3.1 werden der experimentelle Aufbau des in dieser Arbeit untersuchten Elektrolysetestzellendesigns und die dabei verwendeten Materialien vorgestellt. Dieser Aufbau soll sowohl zur Evaluation des mechanischen als auch des elektrochemischen Verhaltens einer Elektrolysezelle verwendet werden. Die Methoden zur Untersuchung des mechanischen Verhaltens mithilfe der Druckverteilung im Zellaufbau werden in Abschnitt 3.2 vorgestellt, sowie die Methoden zur elektrochemischen Charakterisierung im Zellbetrieb in Abschnitt 3.3. Im Anschluss ist in Abschnitt 3.4 der Versuchsaufbau zur Überprüfung der Dichtigkeit dargestellt. Für die in Kapitel 4 vorgestellte Modellierung des mechanischen Verhaltens einer Elektrolysezelle müssen die Werkstoffeigenschaften aller Materialien bekannt sein. Die in dieser Arbeit verwendete Methode zur Evaluation des kompressiblen Materialverhaltens wird im Anhang dargestellt.

3.1 Aufbau von Elektrolysetestzellen

In dieser Arbeit wird ein am Forschungszentrum Jülich entwickeltes Elektrolysetestzellendesign verwendet. Die Elektrolysezellen werden sowohl für die mechanische Untersuchung der Anpressdruckverteilung als auch für die elektrochemischen Versuche und die Dichtigkeitstests verwendet. Um die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse gewährleisten zu können, wurden die Elektrolysetestzellen stets mittels derselben Methode und den gleichen Materialien aufgebaut. Von der Methode wurde lediglich abgewichen, wenn ausdrücklich der Einfluss anderer Materialien untersucht werden sollte. Diese Abweichungen werden im Text explizit erwähnt. Die Explosionsansicht des funktionalen Aufbaus einer Elektrolysezelle ist in Abbildung 18 dargestellt.

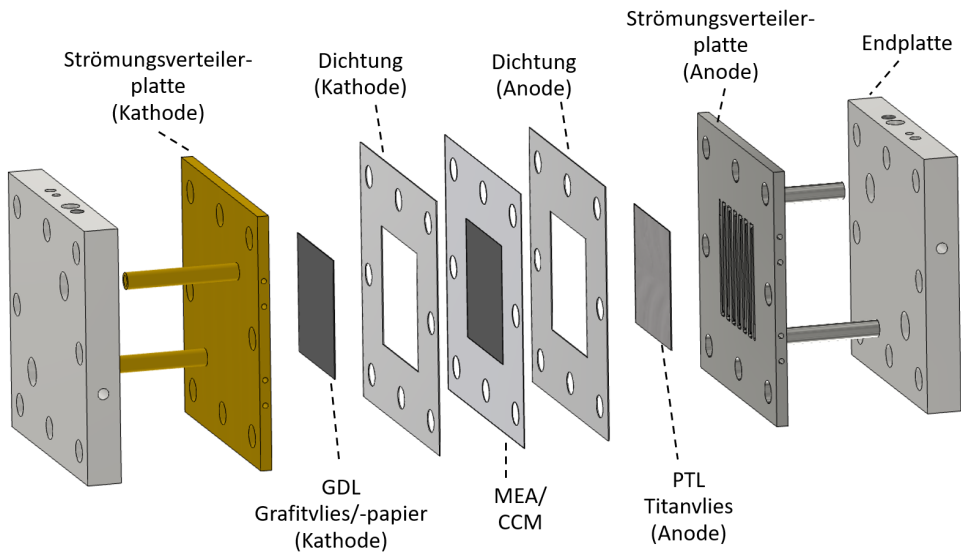


Abbildung 18: Darstellung einer Standardelektrolysetestzelle des Forschungszentrum Jülichs.

Bei der Assemblierung der Testzellen werden die dargestellten Komponenten der Reihenfolge nach gestapelt. Die Endplatte und Strömungsverteilerplatte (FFP) sind für alle Aufbauten baugleich und das Flowfield der Strömungsverteilerplatte entspricht der in Anhang Bild 2 dargestellten Mäanderstruktur. Auf der Kathodenseite wird ein Grafitvlies des Typs H23 der Firma Freudenberg oder ein Grafitpapier des Typs TGP-H-120 der Firma Toray als poröses Material verwendet, welche in dieser Arbeit als GDL (engl. gas diffusion layer) -Materialien bezeichnet werden. Auf der Anodenseite wird ein Titanvlies des Typs Bekipor® ST Titanium Grade 1 der Firma Bekaert als poröses Material verwendet, welches in dieser Arbeit als PTL (engl. porous transport layer) bezeichnet wird. Sowohl von der GDL und PTL als auch von den Dichtungen auf der Kathoden- und Anodenseite wird vor der Assemblierung mittels „Dickenmesser D-2010“ der Firma Hans Schmidt & Co GmbH die Dicke der einzelnen Schichten bestimmt. Der Dickenmesser D-2010 hat eine Auflösung von 1 µm und die Messung erfolgt stets mit einer Messung an fünf Messstellen verteilt über die gesamte Bauteilfläche. Die in dieser Arbeit dargestellten Werte sind Mittelwerte der Fünffachmessung. Die Standardabweichung der in dieser Arbeit verwendeten Proben liegt für die GDL der Firma Toray bei bis zu ca. 1,5%, bei der GDL der Firma Freudenberg bei bis zu ca. 2,5% und bei der PTL der Firma Bekaert bei bis zu ca. 1,4% des gemessenen Dickenmittelwertes. Die porösen Materialien und Dichtungen liegen bei der Assemblierung in einer Ebene und es wird sichergestellt, dass es zu keiner Überlappung der Materialien kommt. Je nach Versuchsreihe ist das zentrale Element der Testzelle die Membran-Elektroden-Einheit (MEA; engl. membrane electrode assembly) oder die drucksensitiven Folien. Die MEA kommt bei der

elektrochemischen Charakterisierung der Zelle zum Einsatz und besteht aus einer 50 μm dicken Nafion™ 212 Membran, welche auf der Kathodenseite und Anodenseite mit Katalysatoren beschichtet ist. Als kathodenseitiger Katalysator wird Pt/C mit 60 Gew.-% Pt auf Ketjen black verwendet. Die flächenspezifische Beladung liegt bei ca. 0,25 mgPt/cm^2 . Der anodenseitige Katalysator ist IrO_2 von Alpha Aesar mit einer Beladung von ca. 1,0 mgIr/cm^2 . Die genaue Herstellung erfolgt nach dem von Stähler et al. [46] beschriebenen Verfahren. Die drucksensitiven Folien kommen für die mechanische Evaluation des Anpressdrucks zum Einsatz. Verwendet werden hier die drucksensitiven Folien des Typs Prescale der Firma Fujifilm oder der Drucksensor des Typs Prescale der Firma Tekscan. Die Messmethoden werden ausführlicher in Abschnitt 3.2 beschrieben.

Der in Abbildung 18 dargestellte Aufbau wird durch das Einführen von Isolationshülsen, Unterlegscheiben, Schrauben und Muttern vervollständigt. Die Isolationshülsen dienen in dem Aufbau zur Isolation der Schrauben gegen einen elektrischen Kurzschluss. Die Zelle wird mithilfe eines Drehmomentschlüssels der Firma HAZET mit einem maximalen Drehmoment von 10 Nm und einer Genauigkeit von $\pm 2\%$ zusammengezogen. Das Anziehen der Schrauben erfolgt in Drehmomentstufen und stets in derselben Reihenfolge. Das genaue kreuzweise Anziehmuster ist in Anhang Bild 11 dargestellt. Als Zieldrehmoment wurde 4 Nm pro Schraube gewählt, welches in 2 Schritten (Schritt 1: 2 Nm, Schritt 2: 4 Nm) aufgebracht wurde.

3.1.1 Referenzaufbau

Der sogenannte „Referenzaufbau“ der Elektrolysetestzellen diente in den Versuchsreihen als Referenz für parametrische Anpassungen des Aufbaus. Bei diesem Aufbau wurde die GDL des Typs TGP-H-120 der Firma Toray (Toray-GDL) mit einer vom Hersteller angegebenen Dicke von 360 μm verwendet. Die mittlere Dicke schwankte in den Aufbauten zwischen ca. 340 μm und ca. 370 μm . Entsprechend der Dicken der Toray-GDL wurde die Dicke der Dichtung um ca. 30% dünner als die der GDL gewählt. Um möglichst exakte Werte zu erzielen, wurden hierfür Polytetrafluorethylen (PTFE)-Dichtungen mit Dicken zwischen 50 und 300 μm mit dünnen Polyimid (PI)-Folien mit Dicken zwischen 12 und 50 μm kombiniert. Die mittleren Gesamtdicken der Dichtungen schwankten deshalb zwischen 238 μm und 259 μm mit einer Standardabweichung von bis zu 2%. Auf der Anodenseite wurde die zuvor beschriebene PTL der Firma Bekaert (Bekaert-PTL) mit mittleren Dicken zwischen ca. 345 μm und ca. 370 μm ($\pm 1,4\%$) verwendet. Die anodenseitige Dichtung wurde ebenfalls entsprechend der gemessenen mittleren Dicken der Bekaert-PTL mithilfe von PTFE-/PI-Folien-Kombinationen ausgelegt. Die mittlere Dichtungsdicke sollte hier möglichst genau der Dicke der Bekaert-PTL entsprechen. Bei Annahme eines inkompressiblen Dichtungsverhaltens beträgt die theoretische Kompression der GDL in diesem Aufbau ca. 30%.

3.2 Ermitteln der Anpressdruckverteilung

Zur praktischen Evaluation des mechanischen Verhaltens einer Elektrolysetestzelle wurde in dieser Arbeit die Anpressdruckverteilung auf Zellebene der MEA und über die gesamte Zellfläche (aktive Zellfläche und Dichtungsfläche) evaluiert. Im Folgenden werden die Methoden zur Evaluation des Anpressdrucks vorgestellt. In Abschnitt 3.2.1 wird die Methode der drucksensitiven Folien, welche eine Momentaufnahme der Druckverteilung liefern, dargestellt. Anschließend wird in Abschnitt 3.2.2 die Methode und der Messaufbau für einen elektronischen Drucksensor, welcher die Druckverteilung zeitlich auflösen kann, dargestellt. In einer Methodenvvalidierung in Abschnitt 3.2.3 werden die numerischen Fehler und sonstige Einflüsse auf die Methoden betrachtet. Abschließend wird eine Diskussion zu den verwendeten Methoden und den Fehlern der Methoden in Abschnitt 3.2.4 vorgenommen.

3.2.1 Drucksensitive Folien

Zur Evaluation des Anpressdrucks zwischen zwei Ebenen oder Schichten wurden die drucksensitiven Folien der Firma Fujifilm („Fujifilm-Folien“) verwendet. Das Messsystem der hier verwendeten Typen von Prescale-Folien besteht jeweils aus zwei Folien. Eine der beiden Folien wird als farbgebende und die entgegengesetzte Folie als farbentwickelnde Folie bezeichnet. Das Messsystem ist in Abbildung 19 dargestellt.

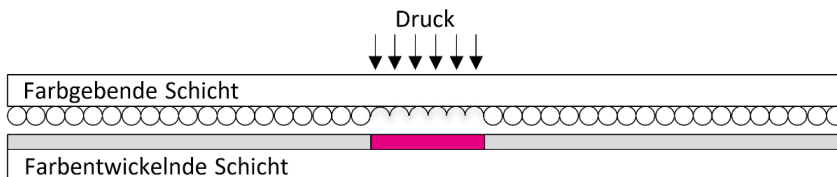


Abbildung 19: Schematisches Funktionsprinzip drucksensitive Folien (adaptiert nach [108]).

Auf der farbgebenden Folie ist ein Färbematerial in Mikrokapseln eingebracht, welche unter Kraft- bzw. Druckeinwirkung platzen. Das austretende Material reagiert chemisch mit der farbentwickelnden Schicht der zweiten Folie. Die Anzahl der platzenden Kugeln sorgt für eine unterschiedliche Farbdichte an Rotschattierungen auf der farbnehmenden Folie. Dabei verhält sich die Farbdichte im Messbereich der einzelnen Folienpaarungen proportional zum Druckniveau. Die verwendeten Typen der Fujifilm-Folien lassen sich entsprechend der Drucksensitivität der Farbkapseln jeweils unterschiedlichen Messbereichen zuweisen. Da es für verschiedene Druckbereiche verschiedene Folientypen gibt, schlägt Irmischer [21] vor, drucksensitive Folien unterschiedlicher Messbereiche zu kombinieren. Hierdurch kann die Anpressdruckverteilung von weiter gestreuten Druckniveaus erfasst werden. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Typen der Fujifilm-Folien sind die Typen LW, LLW und LLLW. Der

Folientyp LW (low pressure) misst in einem Druckbereich von 2,5 – 10 MPa, während der Folientyp LLW (super low pressure) für einen Druckbereich von 0,5 – 2,5 MPa und der Folientyp LLLW (ultra super low pressure) für einen Druckbereich von 0,2 – 0,6 MPa ausgelegt sind [108]. Bei der von Irmischer vorgestellten Methode werden alle 3 Folientypen mit exakt gleicher Geometrie zu einem Folienstapel aus 6 Folien gestapelt, damit die resultierenden Druckverteilungsbilder zu einer gesamten Druckverteilung zusammengefügt werden können. Ebenfalls evaluiert Irmischer die Stapelreihenfolge qualitativ anhand der resultierenden Druckbilder. Da sich jedoch das evaluierte Messsystem von Irmischer [21] von dem hier verwendeten Messsystem einer gesamten Elektrolysezelle unterscheidet, wird in Abschnitt 3.2.3 eine qualitative und quantitative Evaluation der Messmethode betrachtet. Vom Hersteller wird für die Folientypen eine Messgenauigkeit von $\pm 10\%$ oder weniger für Messungen bei einer Temperatur von 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 65% angegeben [108]. Die gemessenen Druckwerte sind darüber hinaus von Temperatur und Luftfeuchtigkeit abhängig. Um reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten, wurden alle Versuche in einem klimatisierten Raum mit kontrollierter Temperatur und Luftfeuchtigkeit durchgeführt.

Für die Versuchsdurchführung wurden die Folien in Form der zu testenden Geometrie ausgestanzt und anstelle der MEA in den Zellaufbau eingebracht. Die Zelle wird daraufhin wie in Abschnitt 3.1 beschrieben assembliert. Nach einer empfohlenen Wartezeit von zwei Minuten wurde die Zelle wieder schrittweise disassembliert und die rot gefärbte farbentwickelnde Folie für das Postprocessing verwendet.

Die Auswertung der Folien erfolgte mithilfe der Mapping-Software „FPD-8010E“ von der Firma Fujifilm. Zunächst werden die Originalfolien mit den Rotschattierungen mit einer Auflösung von 0,125 mm Seitenlänge pro Pixel eingescannt. Durch eine vorherige Kalibration lassen sich mithilfe der Software den unterschiedlichen Rotschattierungen Druckwerte zuweisen. Diese Druckverläufe lassen sich von der Software grafisch mithilfe von Konturbändern darstellen. Hierbei wurde für jeden Folientyp ein unterschiedliches Farbschema gewählt. Zur qualitativen Analyse der Druckverteilung wurden mithilfe des Graphikprogramms „GIMP“ die einzelnen Farbverläufe zu einem Gesamtdruckbild zusammengefügt. Die gewählten Farbschemata der einzelnen Folientypen und das resultierende Gesamtdruckbild sind schematisch in Abbildung 20 dargestellt.

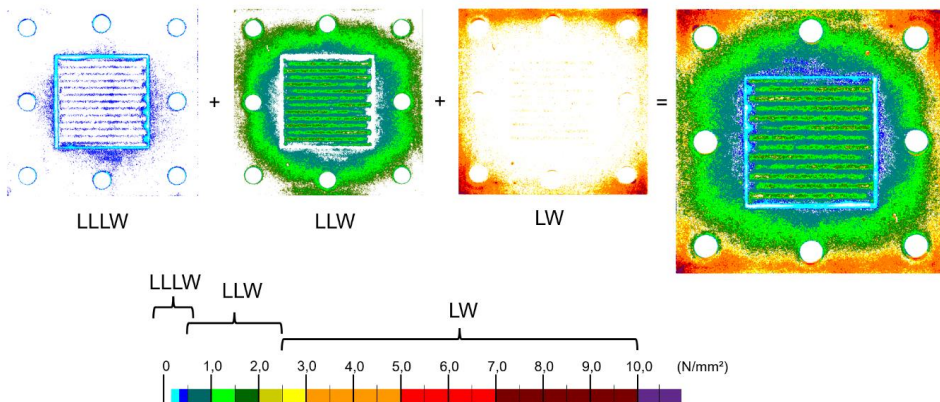


Abbildung 20: Mithilfe der Mapping-Software „FPD-8010E“ der Firma Fujifilm ausgewertete Druckverteilung und die beispielhafte Darstellung der Überlagerung der Druckspektren zu einer gesamten Druckverteilung inklusive dazugehöriger Scala.

Bei der grafischen Darstellung ist darauf zu achten, dass die Farbverläufe bzw. die Farbskala nicht linear gewählt sind. Dies dient zur besseren Illustration der niedrigeren Druckbereiche unterhalb von 3 MPa.

Datenverarbeitung

Neben der grafischen Darstellung wurden mithilfe der Mapping-Software Druckdatenpunkte entsprechend des zweidimensionalen Oberflächenrasters exportiert. Mithilfe dieser zweidimensionalen Rasterdaten der einzelnen Folientypen lässt sich zusätzlich eine quantitative Analyse der Ergebnisse vornehmen. Hierfür werden die Rasterdaten für die einzelnen Folientypen in eine Matrix mit X Zeilen und Y Spalten exportiert. Die Zahlenwerte können mithilfe eines Python-Skripts eingelesen werden und mithilfe einiger mathematischer Methoden zu einer gesamten Druckverteilung (bestehend aus der gewünschten Anzahl von Druckfolien-Messbereichen) zusammengefügt werden. Das genaue mathematische Vorgehen ist in Anhang C dargestellt. Da bei den Untersuchungen vor allem die numerische Evaluation der Druckwerte auf der aktiven Zellfläche von Interesse ist, werden die Daten innerhalb des Programms in zwei Bereiche (den Dichtungsbereich und den aktiven Zellbereich) unterteilt, sodass diese voneinander getrennt evaluiert werden können. So lässt sich beispielsweise der mittlere Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche ermitteln, oder die relative Häufigkeitsverteilung der unterschiedlichen gemessenen Druckniveaus des Anpressdrucks auf der aktiven Zellfläche bestimmen. Die grafische Darstellung der Datenaufbereitung ist in Anhang C dargestellt.

In Abschnitt 3.2.3 wird die numerische Methode genauer evaluiert und eine Fehlerbetrachtung der Ergebnisse vorgenommen.

3.2.2 Zeitabhängige Druckverteilungsmessung mittels piezoresistiven Sensoren

Die zweite Methode zur Evaluation der Anpressdruckverteilung erfolgt mit dem „Pressure Mapping Sensor 5101“ der Firma Tekscan (Tekscan-Sensor). Der Sensor besteht aus einem Polymerträger, auf dem piezoresistive Drucksensoren angebracht sind, die eine numerische Druckkarte und eine farbige Darstellung über eine digitale Schnittstelle ermöglichen. Da die Piezoelemente auf eine Druckveränderung mit einem veränderten Messsignal reagieren, kann mithilfe der elektronischen Druckmesssensoren die zeitliche Anpressdruckveränderung eines Messaufbaus in situ evaluiert werden. Der verwendete Pressure Mapping Sensor 5101 ist in Abbildung 21 dargestellt und hat eine quadratische Drucksensormatrix von 111,8 mm x 111,8 mm (Außenabmessungen), die aus 1936 Sensorelementen besteht. Dies entspricht einer Auflösung von 15,5 Sensoren pro cm^2 . Die Sensoren befinden sich in Abbildung 21 auf den „Kreuzungen“ des im Bild als Sensorik gekennzeichneten Felds. Die Drucksättigung bzw. der messbare Druckbereich wird mit 20,586 MPa angegeben. Die Auflösung des Drucks beträgt etwa 10 kPa bei einer maximalen Abtastrate von etwa 100 Hz. Die Angabe der Druckwerte erfolgt als elektronisches Messsignal und wird durch eine kraftbasierte und materialspezifische Kalibration in Kraft- oder Druckwerte umgerechnet. Die Kalibration kann hierbei in situ, bei bekannter Messkraft, oder ex situ durch ein externes Kalibrationssystem erfolgen. Somit ist die Genauigkeit ebenfalls von der Güte der Kalibration abhängig.

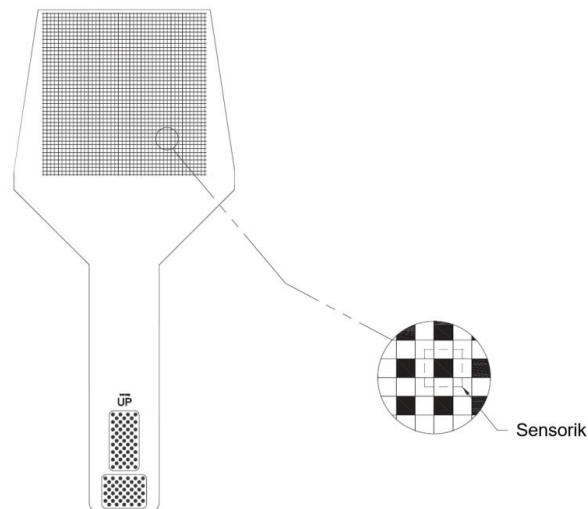


Abbildung 21: Darstellung des Pressure Mapping Sensor 5101 und der lokalen Realisierung der piezoresistiven Drucksensoren (adaptiert nach [109]).

Bei der Kalibration für Messungen in einer Elektrolysezelle muss die Heterogenität der Materialien (poröse Materialien und Dichtungsmaterialien) beachtet werden. Durch unterschiedliche Biegesteifigkeiten der Materialien kann die detektierte Kraft auf den Sensorelementen variieren. Materialien mit geringer Steifheit können in die Stellen zwischen den Sensoren „einsinken“ und somit die Kalibrierung des Sensors mit einem lokalen Messfehler befallen.

In dem im Folgenden beschriebenen Messsystem der Elektrolysetestzelle erfolgte die Kalibration in situ mittels der Pressenkraft und der Genauigkeit einer Industriepresse. Für die Messungen im Elektrolysestack erfolgte die Kalibration ex situ mit einem Fehler von $\pm 5\%$.

Versuchsaufbau Elektrolysetestzelle

Da der verwendete Sensor die geometrischen Abmessungen der Elektrolysezelle überschreitet, ist durch das Einbringen des Sensors in den Zellaufbau ein Verspannen des Aufbaus durch Schrauben nicht möglich. Um die Anpressdruckverteilung dennoch evaluieren zu können, wurde der in Abbildung 22 dargestellte Aufsatz („Pressengeometrie“) konstruiert, um die Verspannung der Elektrolysezelle mittels einer hydraulischen Industriepresse des Typs PWV 2 EH-SERVO von P/O/Weber mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1$ kN vornehmen zu können. Die Zelle wurde mithilfe der Aufsätze, wie in Abbildung 22 dargestellt, in der Presse assembliert. Die verwendeten Assemblierungselemente besitzen eine gleiche geometrische Kontaktfläche zu den Endplatten wie die Isolierhülsen im normalen Testaufbau. Somit kann mithilfe der Konstruktion die Krafteinleitung der Schrauben nachgestellt werden. Über die Presse wurde ein definiertes Kraftprofil auf den Messaufbau gegeben, welches gleichzeitig zur Kalibration des Messsignals dienen konnte.

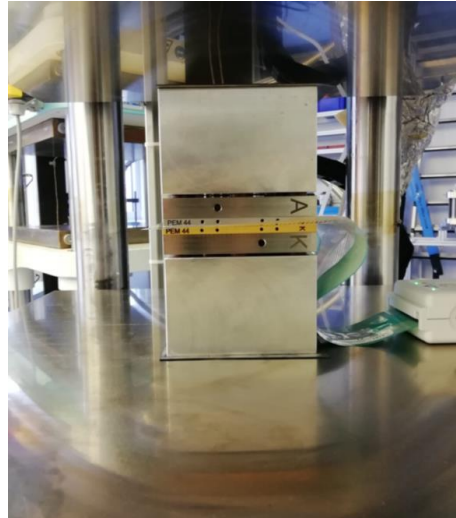
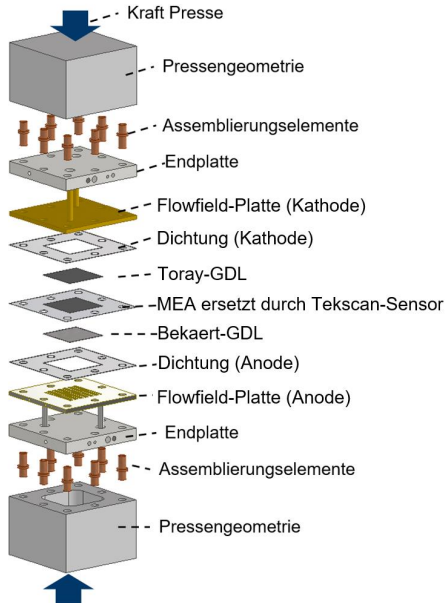


Abbildung 22: Messaufbau für Assemblierungsversuche in einer Presse. Links: Schematischer Aufbau der Assemblierung. Rechts: Darstellung des realen Aufbaus.

Versuchsaufbau Elektrolysestack

Zur Evaluation der Anpressdruckverteilung im Elektrolysestack ist kein gesonderter Messaufbau notwendig, da die zu evaluierende Fläche des Elektrolysestacks die Geometrien des Sensors überschreitet. So kann der Sensor in den Stack-Aufbau eingebracht und mithilfe der Schrauben realitätsnah verspannt werden. Da der Sensor nicht die gesamte Zelloberfläche bedeckt, führt der eingebrachte Höhenunterschied durch den Sensor zu einem leicht verfälschten Druckbild.

3.2.3 Methodenvalidierung

Zur Validierung der hier angewendeten Methoden zur Analyse der Anpressdruckverteilung werden im Folgenden unterschiedliche numerische Betrachtungen zu den Messungen vorgestellt. So wird die korrekte Darstellung der Kraft mittels der Fujifilm-Methode durch den in Abbildung 22 dargestellten Aufbau in einer Industriepresse überprüft und der Einfluss des Folienstapels untersucht, um die numerische Korrektheit der hier angewendeten Methode darzustellen. Weiterhin wurde die Fujifilm-Methode vergleichend mit der Realzeitmessung des Tekscan-Sensors betrachtet. Weitere praktische Betrachtungen in der Handhabung der Fujifilm-Methoden sind in Anhang G dargestellt.

Numerische Validierung mittels Industriepresse

Zur numerischen Validierung der drucksensitiven Folien (Fujifilm-Folien) wurde die Testzelle in einer Industriepresse mit dem in Abbildung 22 beschriebenen Aufbau untersucht. Die Komposition der Zellmaterialien glich dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen Referenzaufbau zur Kompression des grafitischen Materials (Toray-GDL) um 30%. Die Presse wurde mit einer zuvor ermittelten Kraft von ca. 19,1 kN beaufschlagt. Dieser Kraftwert wird im Folgenden als Sollwert definiert.

Die resultierende Druckverteilung wurde nach den in Anhang C beschriebenen numerischen Methoden zum Ermitteln der Gesamtkraft evaluiert. Beim Auslesen der Daten können hierbei die von der Firma Fujifilm beschriebenen Messgrenzen (im Folgenden als „mit Grenzen“ bezeichnet; vgl. Abschnitt 3.2.1) als Ausschlusskriterium für einige Messdaten definiert werden, oder es können alle gemessenen Daten ausgelesen werden („ohne Grenzen“). Ebenfalls können die Druckverteilungen der Folien einzeln betrachtet werden („separat“) oder das Messergebnis wird aus allen drei Folientypen kombiniert („kombiniert“), was zum Überlagern einiger Werte führen kann. Bei der Überlagerung zweier Werte wird der niedrigere Wert gelöscht. Somit ergeben sich für die Auswertung der Gesamtkraft vier Methoden. Diese wurden im Zuge dieser Validierungsmessung ebenfalls verglichen. Werden die Ergebnisse der Folienkombination (kombiniert) aus LLLW-, LLW- und LW-Folie mit den vorgegebenen Messgrenzen der Firma Fujifilm („mit Grenzen“) ausgewertet, so ergibt sich bei einer Dreifachmessung ein Mittelwert von ca. 15,47 kN mit einer Standardabweichung von 0,21 kN. Dies entspricht einer Abweichung von ca. -19% des Sollkraftwerts bei einer Standardabweichung von ca. 1,1% vom vorgegebenen Wert. Werden die Druckwerte der Folien einzeln unter Einhaltung der vorgegebenen Grenzen („mit Grenzen“ - „separat“) herangezogen so ergibt sich eine Gesamtkraft von ca. 17,34 kN $\pm$ 0,55 kN was einer Abweichung von -9,2% $\pm$ 2,9% entspricht. Werden bei der Auswertung alle gemessenen Werte herangezogen („ohne Grenzen“) so ergibt sich für die bei einer Kombination („kombiniert“) der Folienmesswerte eine Gesamtkraft von ca. 16,53 kN $\pm$ 0,3 kN was einer Abweichung von ca. -13,4% $\pm$ 1,5% entspricht. Werden die Gesamtkräfte der einzelnen Folien („separat“) herangezogen und addiert so ergibt sich eine Gesamtkraft von ca. 23,78 kN $\pm$ 1,07 kN was einer Abweichung von ca. +24,5% $\pm$ 5,5% vom Kraftsollwert entspricht.

Die Ergebnisse decken sich mit der Erwartungshaltung zur Evaluationsmethode. So wird der Erwartungswert unter Heranziehen aller Messwerte der einzelnen Messfolien, also auch der Messwerte, die außerhalb des Messbereichs liegen, um bis zu 30% überschritten. Einer der Gründe ist, dass die drucksensitiven Folien für niedrige Messbereiche (LLLW und LLW) für Druckwerte oberhalb ihres Messbereiches auslösen (überauslösen) und hiermit inkorrekte Messwerte in Bereichen erzeugen, in denen auch Messdaten durch die anderen Folientypen erzeugt werden. Dementsprechend überschreiten alle Messungen den Sollkraftwert. Diese

zusätzlichen Werte werden bei der Evaluationsmethode mit vorgegebenen Kraftgrenzen für die einzelnen Folientypen („mit Grenzen“ – „separat“) herausgeschnitten. Bei der Methode „Mit Grenzen – Separat“ ist die Abweichung vom Sollkraftwert am geringsten (ca. 9,2%). Die überausgelösten Messwerte entfallen. Bei der Kombination der Folientypen („kombiniert“) entfallen diese Werte durch Überlagern der Messwerte ebenfalls. Ein Überschreiten des Sollkraftwertes könnte somit lediglich durch ein fehlerhaftes Auslösen der drucksensitiven Folien erfolgen.

Um festzustellen welchen Einfluss die gesetzten Grenzen bei der Auswertung auf die Druckverteilung haben, wurde die Druckverteilung für beide Fälle auf der aktiven Zellfläche evaluiert. Die Ergebnisse eines repräsentativen Versuchs sind in Abbildung 23 dargestellt.

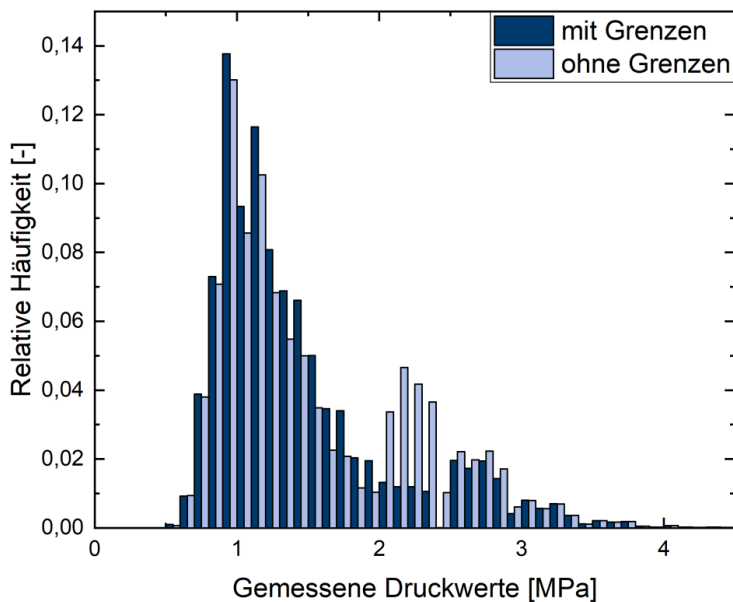


Abbildung 23: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zellfläche des Referenzaufbaus ausgewertet mit dem Kriterium „mit Grenzen“ und „ohne Grenzen“.

Sowohl quantitativ als auch qualitativ sind die gemessenen Daten für den Großteil des gemessenen Spektrums nahezu identisch. Die größte Abweichung der Messdaten erfolgt im Messbereich zwischen 2 und 2,5 MPa, in dem ohne vorgegebene Messgrenzen eine mehr als doppelt so hohe relative Häufigkeit zu sehen ist. Bei genauerer Betrachtung der einzelnen Messdaten lässt sich erkennen, dass die LW Folie in diesem Messbereich einige Messdaten detektiert. Diese werden im Fall „mit Grenzen“ herausgeschnitten und es verbleiben nur die Messwerte der LLW Folie in diesem Druckbereich. Der mittlere Anpressdruck auf die aktive Zellfläche ist für den Fall „ohne Grenzen“ mit einem Wert von ca. 1,55 MPa etwa 7% höher als der Wert für den Fall „mit Grenzen“ mit ca. 1,44 MPa. Diese Abweichung liegt unabhängig von

der hier dargestellten Versuchsreihe bei vergleichbarem Versuchsaufbau (Referenzversuch) zwischen 4 und 10%. Ebenfalls treten im Messbereich zwischen der LW-Folie und der LLW-Folie bei einigen Messungen qualitativ sichtbare Messlücken auf. Möglicherweise misst in diesem Messbereich weder die LLW-Folie noch die LW-Folie korrekt und die tatsächliche Druckverteilung liegt zwischen den beiden betrachteten Fällen.

Der Ausfall dieser möglichen Messwerte im Grenzbereich zwischen den Messbereichen von LLW- und LW-Folien könnte mitunter auch eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz der Messungen „mit Grenzen“ und dem Sollkraftwert sein.

Einfluss des Folienstapels

Um den von Irmischer [21] vorgestellten Einfluss der Reihenfolge der unterschiedlichen Druckmessfolientypen für das hier getestete Messsystem zusätzlich quantitativ zu untersuchen, wurde der Versuch mit dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen Referenzaufbau durchgeführt. Die grafisch ausgewerteten Druckverläufe sind in Abbildung 24 dargestellt. Zusätzlich sind die numerisch „mit Grenzen“ und „ohne Grenzen“ ausgewerteten Druckverläufe mit linearer Skala in Anhang Bild 13 -- Anhang Bild 15 dargestellt.

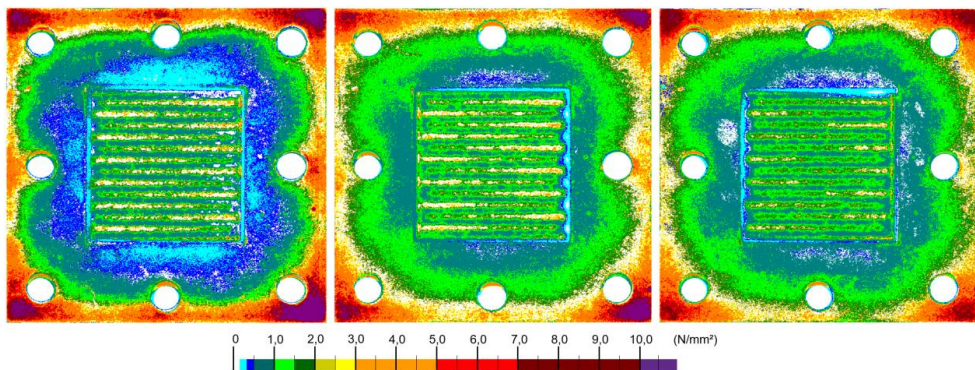


Abbildung 24: Konturbänder der Druckverteilungsmessung des Referenzaufbaus bei unterschiedlichen Varianten des Folienstapels: (links) Folientyp einzeln in einem separaten Messaufbau gemessen; alle drei Folientypen zusammen im Stapel gemessen (mitte) mit Stapeln der LW-Folie auf der Toray-GDL und (rechts) mit Stapeln der LLLW-Folie auf dem Toray.

Qualitativ lässt sich ein signifikanter Unterschied in der Druckverteilung feststellen. Jedoch erstreckt sich dieser Unterschied hauptsächlich auf die niedrigen Druckbereiche unterhalb von 1 MPa. So ist vor allem im Dichtungsbereich, um die aktive Zellfläche und im Bereich unter den Kanalregionen im aktiven Zellbereich, ein optisch signifikanter Unterschied zu erkennen. Dieser Eindruck wird jedoch durch die nichtlineare Skala beeinflusst. So werden im Bereich

direkt angrenzend zur aktiven Zellfläche bei der Messung mit einzelnen Messfolien Druckwerte von 0,2 bis 0,35 MPa gemessen. Bei beiden Messungen mit einem Messfolienstapel der drei Folientypen ergeben sich im selben Messbereich Druckwerte zwischen 0,35 und 0,5 MPa oder sogar Druckwerte im Bereich zwischen 0,5 und 1 MPa. Eine ähnliche Erhöhung der Druckwerte lässt sich im Bereich der Kanäle feststellen. Diese Beobachtung deckt sich auch mit der numerischen Evaluation der Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche. Wie in Abbildung 25 dargestellt, ergibt sich für die Auswertungsmethoden „mit Grenzen“ eine Verschiebung der relativen Häufigkeit von Druckwerten um 0,5 bis 1 MPa zu Druckwerten von 1 bis 1,5 MPa.

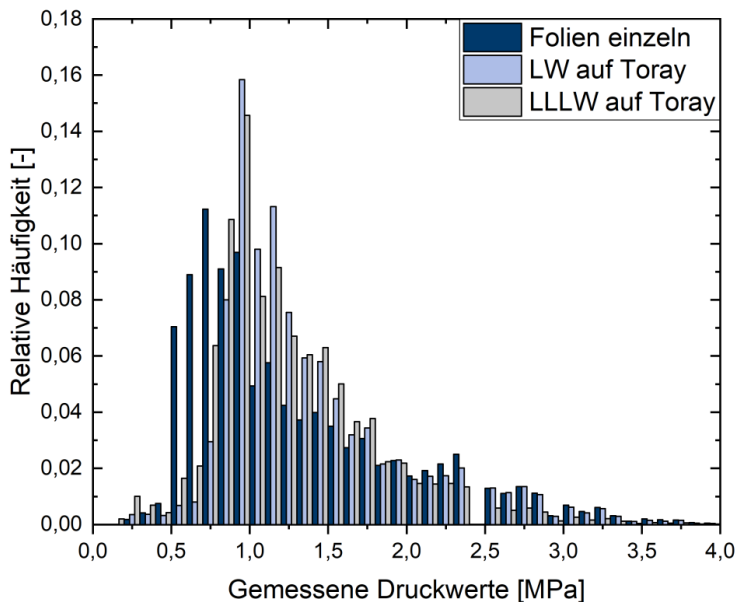


Abbildung 25: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der in Abbildung 24 dargestellten Messdaten und den drei betrachteten Fällen zum Stapeln der Folien („mit Grenzen“).

Der genaue Betrag der Verschiebung einzelner Druckwerte lässt sich kaum feststellen, sodass hier nur der Verlauf der Häufigkeitsverteilungen bewertet werden kann. Im Bereich höherer Anpressdrücke (1,75 MPa und größer) stimmen die relativen Häufigkeiten der Anpressdrücke quantitativ besser überein. Auffällig ist hierbei, dass die Stapelreihenfolge der Fujifilm-Folien das Ergebnis beeinflusst. Wird die LW-Folie zuerst auf dem Toray-Papier gestapelt, so ist die relative Häufigkeit der Anpressdrücke von 2 bis 4 MPa vergleichbar mit den Ergebnissen der einzelnen Folien. Diese Beobachtungen lassen folgende Schlussfolgerungen hinsichtlich der Messmethode zu:

Das Stapeln der Fujifilm-Folien führt aufgrund der erhöhten Steifigkeit und Schichtdicke der in das Messsystem eingebrachten Schicht – eine Schichtdicke von 600 µm bei den gestapelten drucksensitiven Folien und eine Schichtdicke von 200 µm beim einzelnen Folienmesssystem – zu einer Gleichverteilung der gemessenen Kräfte. Diese äußert sich vor allem im Bereich niedriger Druckwerte von 0 bis 1 MPa, in dem die Drücke um vermutlich bis zu 0,5 MPa erhöht werden. Weiterhin werden ebenfalls höhere Druckwerte leicht beeinflusst, wenn auch dieser Effekt weniger stark auffällig ist. So sind die Kraftwerte beim Messen mit einzelnen Folien weiter gestreut als bei den anderen beiden Messverfahren. Für hohe Druckwerte (> 2 MPa) wird mit den einzelnen Folien eine ähnliche Häufigkeitsverteilung der Anpressdrücke, wie im gestapelten Fall mit der LW-Folie auf dem Toray-Papier erzielt. Die hier gemessenen Kraftwerte liegen im unteren Messbereich der LW-Folie und im oberen Messbereich der LLW-Folie. Die Messergebnisse der Folie, die im Messaufbau das Toray direkt kontaktiert, sind folglich vergleichbarer mit den Ergebnissen der Einzelfolien. Da jedoch die Druckwerte im Bereich zwischen 0 und 1 MPa stark durch die erwähnten Folieneigenschaften beeinflusst werden, lässt sich dieses nicht für das Stapeln der LLLW-Folie auf dem Toray-GDL bestätigen.

Der mittlere Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche liegt für den Fall „mit Grenzen“ für die einzelnen Folien bei ca. 1,29 MPa, während dieser beim Stapeln mit LW auf Toray ca. 7% über diesem Wert bei ca. 1,39 MPa liegt. Beim Stapeln der LLLW Folie auf dem Toray liegt der Wert mit ca. 1,26 MPa ca. 2,5% unterhalb des Wertes der einzelnen Folien. Die Gesamtkraft wird somit bei allen drei Methoden numerisch vergleichbar innerhalb der Fehlertoleranzen bestimmt. Dies ist ein weiteres Indiz für die Vermutung, dass durch das Einlegen mehrerer Folien nicht die gemessene Gesamtkraft beeinflusst wird, sondern hauptsächlich die Druckverteilung auf der Fläche beeinflusst wird. Die gesamten Ergebnisse sind in Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1: Berechnete mittlere Anpressdrücke der einzelnen Methoden zum Folienstapeln und die Abweichung von der "Einzel-Folienmessung".

	Mittlerer Anpressdruck „mit Grenzen“ [MPa]	Mittlerer Anpressdruck „ohne Grenzen“ [MPa]	Abweichung von Einzelfolien „mit Grenzen“ [MPa]	Abweichung von Einzelfolien „ohne Grenzen“ [MPa]
<i>Folien einzeln</i>	1,29	1,42	-	-
<i>LW auf Toray</i>	1,39	1,49	+7,4%	+5,5%
<i>LLLW auf Toray</i>	1,26	1,32	-2,5%	-7,8%

Ein weiterer zu beachtender Effekt ist das Überlagern von Kraftwerten in dieser Versuchsreihe. Beim Stapeln der drucksensitiven Folien im selben Aufbau, wird exakt der gleiche Aufbau mit

jeder Folie gleichzeitig untersucht. Werden die Folien einzeln in den Aufbau gelegt, muss ein exakt gleicher Aufbau gewährleistet werden. Durch das Verschieben einzelner Schichten oder durch sonstige Fehlerquellen kann dies mitunter schwierig sein. Die Anzahl der Überlagerungen bei der Gesamtauswertung kann also stark variieren.

Vergleich der Fujifilm-Methode und den Messungen des Tekscan-Sensors

Mithilfe des in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Aufbaus wurde die Druckverteilung mithilfe des drucksensitiven Sensors der Firma Tekscan und mit den drucksensitiven Folien der Firma Fujifilm im selben Versuchsaufbau untersucht. Hierbei wurde ebenfalls eine Gesamtkraft von 19,1 kN vorgegeben, welche auch zur Kalibration des Kraftsensors diente. Die Ergebnisse beider resultierender Druckverteilungen sind in Abbildung 26 dargestellt. Wie in der Darstellung zu erkennen, führen die piezoresistiven Sensorelemente des Tekscan-Sensors zu lokalen Spannungsspitzen in der Fujifilm-Druckverteilungsmessung. Dies liegt an der zuvor beschriebenen Höhendifferenz zwischen den einzelnen Sensorelementen und den geringen Steifigkeiten der kontaktierten Zellmaterialien und der Fujifilm-Folien. Ein direkter Vergleich beider Messsysteme im selben Zellaufbau ist deshalb schwierig. Ebenso kann durch die grobe Verteilung der Tekscan-Drucksensoren über die lokale Druckverteilung auf dem Kanal- und Stegbereich der aktiven Zellfläche kaum eine Aussage getroffen werden, jedoch weist die Messung mittels Tekscan-Sensors durch die programminterne Interpolation eine mit der Fujifilm-Methode vergleichbare quantitative Druckverteilung auf.

Somit eignet sich der Tekscan-Sensor vordergründig zur qualitativen Analyse des zeitlichen Anpressdruckverhaltens der Testzelle, da der qualitative Verlauf vergleichbar mit den Ergebnissen aus der Fujifilm-Methode ist. Während die quantitativen Druckwerte aufgrund der unterschiedlichen Materialpaarungen in der Elektrolysezelle und der geringen Auflösung des Sensors nicht repräsentativ sind. Ebenso lässt sich mithilfe der Kraftmessung des Tekscan-Sensors die Kraftbetrachtung der Fujifilm-Methode überprüfen.

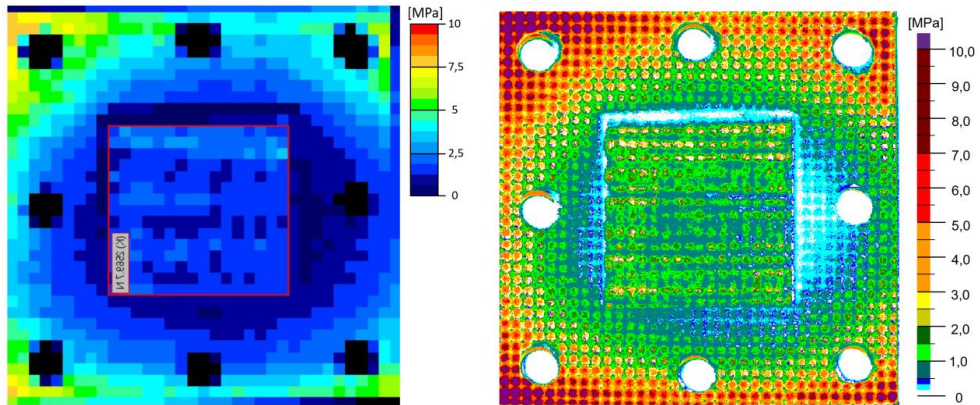


Abbildung 26: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen mittels piezoresistivem Drucksensor der Firma Tekscan (links) und drucksensitiver Folien der Firma Fujifilm (rechts) gemessen im selben Zellaufbau.

3.2.4 Grenzen der Messmethoden und allgemeine Anmerkungen

Generell beeinflussen die drucksensitiven Folien bedingt durch das eigene Materialverhalten das Messergebnis. Quantitativ wird hierdurch besonders die Druckverteilung in Bereichen mit geringen Anpressdrücken beeinflusst. In dem hier betrachteten System sollte die Membran-Elektroden-Einheit durch die Fujifilm-Folie ersetzt werden, um die repräsentative Druckverteilung auf der MEA bestimmen zu können. Die MEA besitzt hingegen andere Materialeigenschaften und hat einen geringeren E-Modul und bedingt hierdurch auch eine geringere Steifigkeit (vgl. Abschnitt 4.3). Das unterschiedliche Materialverhalten muss bei der Auswertung der Ergebnisse stets berücksichtigt werden. Weiterhin ist es bei der Messung essentiell, dass die drucksensitiven Folien die gesamte Ebene, wie hier beispielsweise den Dichtungsbereich und die aktive Zellfläche, bedeckt, um eine Veränderung der Höhenverhältnisse und damit der Mechanik im Messsystem zu vermeiden.

Generelle Anmerkung: Die Messungen mit den Fujifilm-Folien erfolgten nicht nur teilweise mit unterschiedlichen Testzellen, sondern ebenfalls in teilweise größeren zeitlichen Abständen. Formal konnte ein einheitliches Messsystem bewahrt werden. Jedoch ist es sehr schwierig die korrekte Zuordnung von Schrauben und Muttern zu gewährleisten. Wie in Abschnitt 4.1.4 dargestellt, hängt die Schraubenkraft stark von der Reibungszahl ab. Diese kann für unterschiedliche Schraube–Mutter-Kombinationen stark variieren, sodass die Kraftverteilung unterschiedlicher Versuchsreihen untereinander schwierig zu vergleichen ist. Weiterhin wird vermutet, dass sich die Endplatten der Testzellen im Verlauf der Testreihen zunehmend plastisch verformen, was zu einer verstärkten konkaven Verformung der Endplatten auf der Flowfield-Platten zugewandten Seite führen könnte. Die Vermutung lässt sich rückwirkend jedoch schwer nachvollziehen.

3.3 Elektrochemische Charakterisierung der Elektrolysetestzelle

Im Rahmen dieser Arbeit soll der Einfluss der Zellmechanik auf das elektrochemische Verhalten einer Elektrolysezelle untersucht werden. Hierfür wird in einer Versuchsreihe der Anpressdruck auf die aktive Zellfläche verändert. Da der Anpressdruck nicht in situ gemessen werden kann, wird dieser über eine Kompression des kathodenseitigen GDL-Materials eingestellt. Ebenfalls soll der Einfluss der Eigenschaften des GDL-Materials überprüft werden, indem zwischen zwei unterschiedlichen Materialien variiert wird. In Abschnitt 3.3.1 wird der Versuchsaufbau der Versuchsreihe näher dargestellt und in Abschnitt 3.3.2 und Abschnitt 3.3.3 werden die Methoden zur Charakterisierung des elektrochemischen Verhaltens näher erläutert.

3.3.1 Versuchsaufbau

Für alle Versuche wurde die in Abschnitt 3.1 beschriebene Elektrolysetestzelle verwendet und mit dem beschriebenen Verfahren assembliert. Die mittleren Schichtdicken der verwendeten Dichtungen und porösen Materialien wurden vor der Messung fünfmal vermessen und gemäß der zu testenden Kompression aufeinander abgestimmt. Als GDL-Material wurde wie oben beschrieben ein TGP-H-120 der Firma Toray mit einer Normdicke von 350 μm , sowie ein H23 der Firma Freudenberg mit einer Normdicke von 180 μm verwendet. Die auf der Anodenseite verwendete Bekaert-PTL wurde mit dem von Liu et al. [6] vorgestellten Verfahren beidseitig mit einer Iridiumbeladung von 0.05 mg/cm^2 besputtert. Die Dichtungsdicken wurden, wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, entsprechend der einzustellenden GDL-Kompression mit einer PTFE-/PI-Folien-Kombination eingestellt. Die jeweiligen Dicken der einzelnen Materialien und die damit erzielte theoretische Kompression sind in Tabelle 2 dargestellt.

Tabelle 2: Gemessene Probendicken der GDL-Materialien und der Dichtungen für die Versuchsreihe und die sich daraus ergebende theoretische Kompression.

GDL-Material	Probe Nr.	Dicke GDL [μm]	Dicke PTFE [μm]	Theor. Kompression
Toray TGP-H-120	1	365 ± 3	343 ± 5	0,06 (~ 6%)
	2	361 ± 1	289 ± 2	0,199 (~ 20%)
	3	364 ± 3	252 ± 2	0,307 (~ 30%)
	4	363 ± 4	205 ± 3	0,435 (~ 44%)
Freudenberg H23	1	174 ± 1	167 ± 1	0,034 (~ 3%)
	2	171 ± 4	140 ± 2	0,175 (~ 18%)
	3	175 ± 5	122 ± 5	0,297 (~ 30%)
	4	170 ± 2	103 ± 1	0,388 (~ 39%)

Der Zellaufbau wurde in einen Teststand der Firma Fuelcon eingebaut. Im anodenseitigen und kathodenseitigen Medienkreislauf wurden jeweils Durchflussraten von 100 mL/min eingestellt und die Temperatur von den Fluidkreisläufen und der Elektrolysezelle wurde auf je 80°C geregelt. Der Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff wurde mit dem FTC300 der Firma Messkonzept mit einem Rauschen von <2% vom kalibrierten Messbereich gemessen. Im System wird mithilfe eines Wasserkondensators sichergestellt, dass sämtliche Restfeuchtigkeit aus der Gasphase auskondensiert, da eine Restfeuchte zu Messfehlern des Messkonzept-Sensors führen kann.

3.3.2 Polarisationskurven

Zum Erstellen der Polarisationskurven wurde das Potential der Zelle in chronoamperometrischer Betriebsweise konstant gehalten und der resultierende Mittelwert der gemessenen Stromdichte ermittelt. Das Potential wurde beginnend bei 1,45 V in Schritten von 0,05 V bis zu einem Endwert von 1,85 V erhöht und daraufhin wieder in Schritten von 0,1 V auf einen Wert von 1,55 V reduziert. Die Haltezeit der einzelnen Potentialpunkte der Messung entsprach der Zeit, die nötig war, damit sich im Gasvolumen des Messsystems ein konstanter Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff („H₂ in O₂ – Konzentration“) einstellte. Die Haltezeit der einzelnen Punkte variierte somit entsprechend der produzierten Menge an Sauerstoff und Wasserstoff.

Nach der Einfahrprozedur für die Elektrolysezelle wurden jeweils fünf Polarisationskurven und die resultierende H₂ in O₂ – Konzentration gemessen.

3.3.3 Elektrochemische Impedanzspektroskopie

Elektrochemische Impedanzspektroskopie (EIS)-Messungen können entweder galvanostatisch oder potentiostatisch durchgeführt werden. Beim galvanostatischen EIS-Verfahren wird ein sinusförmiger Strom mit einer kleinen Amplitude angeregt und die Reaktion des Systems gemessen. Hierbei wird der Wechselstromwiderstand, die Impedanz, des Systems in Abhängigkeit der Frequenz ω des angelegten Stroms bestimmt. Der Impedanz (Z) lässt sich in einen Realteil (Z_{Re}) und einen Imaginärteil (Z_{im}) unterteilen, was sich mithilfe eines Nyquist-Diagramms der EIS-Messung (Abbildung 27) illustrieren lässt. Für niedrige Frequenzen ($\omega \rightarrow 0$) werden elektrochemische Reaktionen häufig durch den Massentransport/Stofftransport dominiert. Für hohe Frequenzen ($\omega \rightarrow \infty$) werden die Reaktionen rein kinetisch dominiert.

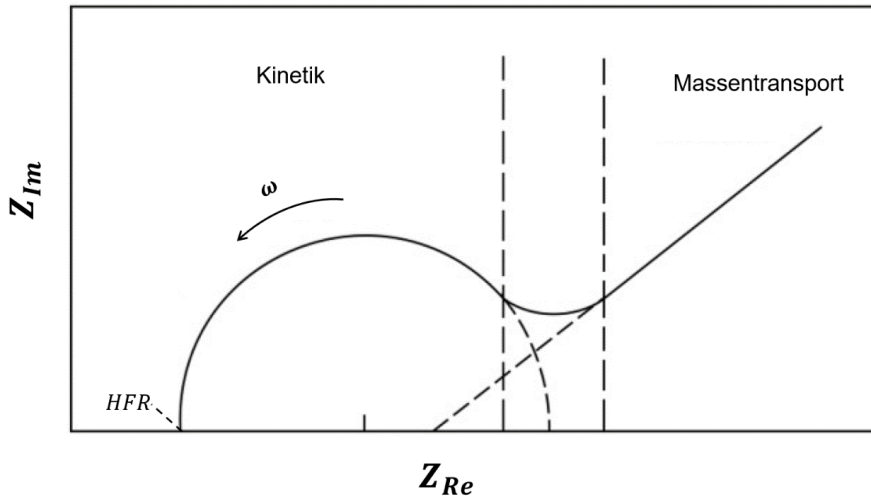


Abbildung 27: Darstellung der Impedanz im Nyquist-Diagramm eines einfachen elektrochemischen Systems. (adaptiert nach [110])

Der Hochfrequenzwiderstand (engl. high frequency resistance; HFR) einer EIS-Messung lässt sich in der Nyquist-Darstellung durch den Schnittpunkt der Messdaten mit der Achse, welche den Realteil beschreibt, ermitteln und beschreibt den ohmschen Widerstand einer elektrochemischen Zelle [111].

Nach jeder Versuchsreihe wurde eine EIS-Messung der Testzelle durchgeführt. Die Messungen wurden mit dem Potentiostaten Biologic HCP 1005 durchgeführt und erfolgte entsprechend eines internen Protokolls bei einem Potential von 1,45 V und in einem Spektrum von 10 kHz – 100 mHz. Die EIS-Messung sollte im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich zur Bestimmung des HFRs dienen, sodass von einer vollständigen Auswertung des Impedanzspektrums abgesehen wird.

3.4 Überprüfung der Dichtigkeit von Elektrolysezellen und -stacks

Da in der Literatur kein einheitlich verwendetes Prüfverfahren zur Dichtigkeitsbestimmung von Elektrolyseuren vorgestellt wird und ebenso keine offiziellen Prüfungsvorschriften vorhanden sind, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein eigenes Prüfverfahren zur Evaluation der Dichtungsleistung entwickelt.

Um einen möglichst realitätsnahen Aufbau gewährleisten zu können, wurden die Elektrolyseure wie in Abschnitt 3.1 assembliert. Abweichend vom Zellaufbau für den

Elektrolysebetrieb wurde die MEA in Form einer mit Katalysator beschichteten Nafion™ 212 Membran mit einer nominellen Dicke von ca. 50 µm durch eine unbeschichtete Nafion™ 117 Membran mit einer nominellen Dicke von ca. 178 µm ersetzt. Durch die wesentlich dickere Membran wird die Permeation des Prüfgases von der Kathoden- zur Anodenseite stark reduziert. Zur Versuchsdurchführung wurden an der Kathoden- und Anodenseite des Elektrolyseurs, wie in Abbildung 28 für eine Elektrolysetestzelle dargestellt, jeweils Drucksensoren der Firma WIKA mit einer Genauigkeit von ca. 0,1 bar angeschlossen. Da die Zellvolumina einer Elektrolysezelle sehr gering (<10 ml) sind, wurde ein zusätzliches „Druck-Puffervolumen“ von einem Liter an den Messaufbau der Kathodenseite geschlossen. Hierdurch werden Messfehler aufgrund zu geringer Volumenströme vermieden. Auf der Kathodenseite wurde ein Überdruck von 8,5 bar angelegt. Dabei wurde aus Gründen der Verfügbarkeit Stickstoff als Prüfgas verwendet. Dieses lässt keine quantitativen Schlüsse auf das Dichtverhalten gegenüber Wasserstoff zu, eignet sich jedoch um Dichtungssysteme qualitativ und vergleichend zu beurteilen.

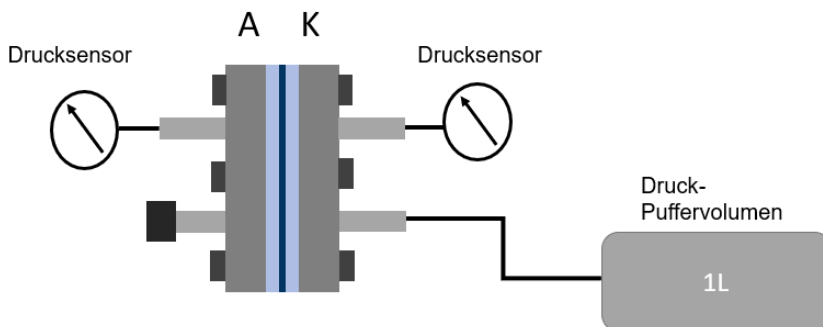


Abbildung 28: Schematischer Aufbau der Drucktests.

4 Finte-Elemente-Modellierung des mechanischen Verhaltens von Elektrolyseuren

In diesem Kapitel wird der Aufbau der Modelle einer Elektrolysetestzelle und eines Elektrolysestacks für die Finite-Elemente-Modellierung (FEM) des mechanischen Verhaltens beschrieben. Im ersten Abschnitt soll die Elektrolysetestzelle abgebildet werden, welche bereits in Abschnitt 3.1 für den experimentellen Aufbau verwendet wurde. Zur Modelldefinition gehören, neben der geometrischen Darstellung, das Bestimmen der Kontaktbedingungen, die Vernetzung des Modells sowie die Definition von Randbedingungen, wie Symmetrieebenen und Lagerungen des statisch-mechanischen Modells und die Definition der wirkenden Kräfte. Die Ergebnisse der resultierenden Simulation sollen mit den in Abschnitt 5.1 dargestellten experimentellen Ergebnissen validiert werden. Dementsprechend soll das hier definierte Modell im Rahmen der Rechenkapazitäten die Realität möglichst genau abbilden.

Die Modellierung des Elektrolysestacks baut auf dem Testzellmodell auf, jedoch wird der Detailgrad für das mechanische Modell reduziert, um gezielt die mechanischen Eigenschaften der Endplatte und der damit verbundenen Krafteinleitung über die Endplatte in den Elektrolysestack untersuchen zu können.

Für die Modellierung des mechanischen Verhaltens sind die Materialmodelle für die verwendeten Komponenten essentiell. Einige der betrachteten Materialien weisen besondere innere Strukturen (z. B. Porosität) auf und lassen sich nicht durch einfache Materialmodelle beschreiben. Hier werden in Abschnitt 4.3 die experimentellen Ergebnisse aus den in Anhang F beschriebenen Kompressions-Stauchungskurven herangezogen und mit der Literatur verglichen. Die sonstigen Materialmodelle sollen mithilfe aus der Literatur bekannte Daten beschrieben werden.

4.1 Modellbildung für eine Elektrolyseeinzelzelle

Bei der Modellierung der Elektrolysetestzelle wird zwischen der Modellierung des in Abschnitt 3.1 beschriebenen Messsystems zur praktischen Evaluation des Anpressdrucks und dem realen, funktionsfähigen Zellzusammenbau unterschieden. In dem beschriebenen Messsystem werden anstelle der Membran-Elektroden-Einheit (MEA) die drucksensitiven Folien vom Typ Prescale der Firma FUJIFILM Europe GmbH (im Folgenden Fujifilm-Folien) eingesetzt. Der verwendete Folienstapel ist aus 6 Folien mit einer Dicke von jeweils 100 μm zusammengesetzt und besteht im Wesentlichen aus PET. Da der Fujifilm-Folienstapel somit unterschiedliche Materialeigenschaften und eine unterschiedliche Dicke verglichen mit der MEA aufweist, hat das Messsystem auch ein unterschiedliches mechanisches Verhalten als der reale Zellaufbau. Dementsprechend soll in einem ersten Schritt das Fujifilm-

Folienmesssystem modelliert werden, um diese Ergebnisse mit den Ergebnissen der entsprechenden Messung vergleichen zu können. Nach der parametrischen Untersuchung und experimentellen Validierung des Ersatzmodells soll in einem zweiten Schritt das reale Zellsystem simuliert werden, um hiermit Rückschlüsse auf das mechanische Verhalten der Elektrolysezelle ziehen zu können. Neben der Modellierung des Fujifilm-Folienstapels ist eine geometrische Besonderheit des hier dargestellten Testzellmodells, verglichen mit den in Abschnitt 2.4.4 dargestellten Zellmodellen, die möglichst realitätsnahe Darstellung der Kompression des kathodenseitigen Kohlenstoffmaterials (GDL der Kathode). In Abbildung 29 ist die geometrische Realisierung des Höhenunterschieds zwischen dem Dichtungsmaterial und der GDL im unkomprimierten Zustand schematisch dargestellt. Diese mit der Ausgangsgeometrie dargestellte Höhendifferenz (Δh) muss sich im Verlauf der mechanischen Simulation schließen, indem das GDL-Material auf die Höhe der Dichtung komprimiert wird.

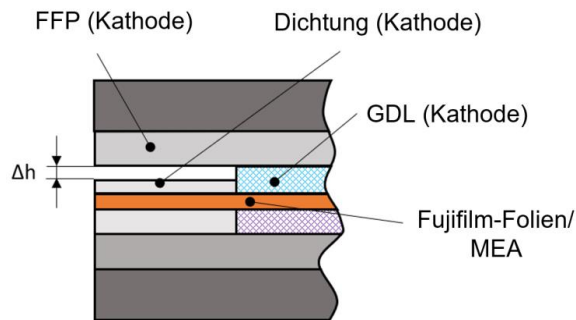


Abbildung 29: Schematische Darstellung des Höhenunterschieds im Testzellmodell (unkomprimiert, Ausgangssituation für die Simulation).

Im Folgenden sollen die geometrische Umsetzung der Bauteile, die Kontaktbedingungen und die Vernetzung beschrieben werden. Für die Kontaktbedingungen und Vernetzungen wurden im Vorfeld der Modellbildung Voruntersuchungen durchgeführt, auf welchen das hier dargestellte Modell beruht. Die statisch-mechanische Modellierung wurde in ANSYS Workbench durchgeführt und ist somit an die Möglichkeiten der Software gebunden. Die Modeldefinition erfolgt in dem in ANSYS Workbench enthaltenen Tool ANSYS Mechanical.

Weiterhin werden in Abschnitt 4.1.4 die Randbedingungen für das Zellmodell beschrieben. Die Randbedingungen definieren Symmetriebedingungen und Lagerungen des Modells, sowie die auf das Modell wirkenden statischen Kräfte. Neben der Definition des Grundmodells sollen ebenfalls parametrische Änderungen dieses Modells vorgenommen werden, um den mechanischen Einfluss diverser Geometrien oder Bauteile besser evaluieren zu können. So ist in Abschnitt 4.1.5 die Variation des Flowfield-Designs beschrieben. Während im Grundmodell ein Mäander-Flowfield verwendet wird, beschreibt die alternative Geometrie

einen als Flowfield fungierenden Streckmetallverbund. Die geometrische Umsetzung dieses Flowfield-Designs geht ebenfalls mit einigen Änderungen im restlichen Modell einher. So muss auch teilweise die Vernetzung der Bauteile angepasst werden.

4.1.1 Geometrischer Zellaufbau

Die Geometrie der modellierten Elektrolysezelle wird als Vereinfachung der am Forschungszentrum Jülich verwendeten Elektrolysetestzellen (vgl. Abschnitt 3.1) ausgeführt. Die Explosionsansicht der Baugruppe ist in Abbildung 30 dargestellt und umfasst die kathoden- und anodenseitigen Endplatten (EP), Flowfield-Platten (FFP) und Dichtungen, die Membran-Elektroden-Einheit (MEA) oder Fujifilm-Folienstapel, sowie die porösen Materialien auf beiden Zellseiten, welche zur besseren Unterscheidung im Folgenden als PTL (anodenseitige poröse Transportschicht, engl. porous transport layer) und GDL (kathodenseitige Gasdiffusionsschicht; engl. gas diffusion layer) bezeichnet werden. Die dazugehörigen geometrischen Abmessungen der Bauteile werden in Tabelle 3 ausgeführt.

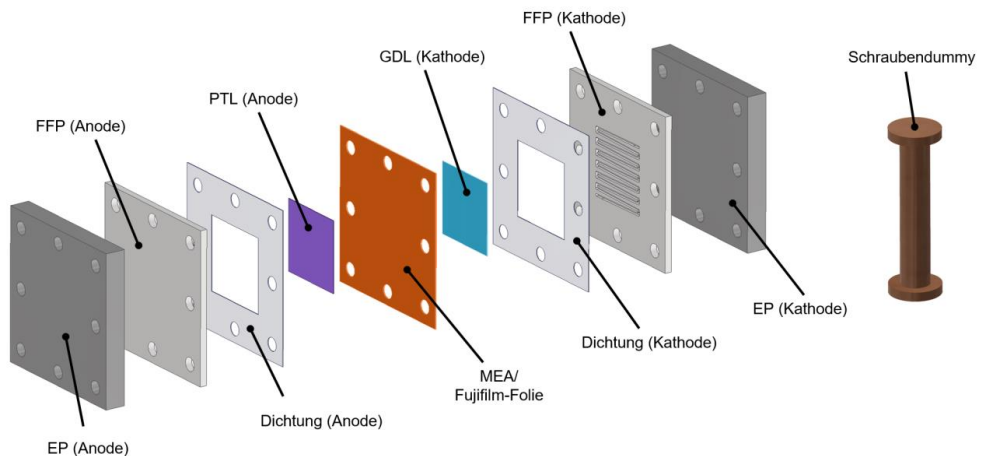


Abbildung 30: Explosionsansicht des geometrischen Modells.

Das hier verwendete Modell wurde um alle funktionellen Bohrungen für die Medienzuführung oder die elektrischen Anschlüsse reduziert, da diese die Vernetzung erschweren und die Rechenzeit erhöhen, jedoch die mechanischen Eigenschaften der Elektrolysezellen nur geringfügig beeinflussen.

Die in der Realität verwendete Kombination aus Schraube, Schraubenisolation (Isolationshülle), Unterlegscheiben und Muttern wurden in der Simulation zu einem „Schraubendummy“ zusammengefasst und vereinfacht (vgl. Abbildung 30). Bei der Vereinfachung muss die Gesamtlänge des Schaftes des Schraubendummys auf die Gesamthöhe der unverspannten Zelle abgestimmt werden, um mit dem Schraubenkraft-Tool

von ANSYS Workbench die entsprechende Kraft aufzubringen. Ebenfalls müssen die „Köpfe“ der Schraubendummys entsprechend der Kontaktfläche mit den Endplatten des realen Aufbaus dimensioniert werden. Hierdurch wird eine möglichst realitätsnahe Krafteinleitung gewährleistet.

4.1.2 Kontaktbedingungen

Für die Kontaktbedingungen zwischen den einzelnen Bauteilen gibt es unterschiedliche Möglichkeiten der Ausführung. Üblicherweise wird der Kontakt zweier Bauteile in der Literatur [89, 96, 101] als Verbundkontakt ausgeführt. Jedoch gibt es auch Beispiele für Simulationen, welche die theoretisch realitätsnäheren reibungsbehafteten Kontakte verwenden (vgl. Abschnitt 2.4) [88]. Durch reibungsbehaftete Kontakte wird eine Bewegung quer zu der Kompressionsrichtung zugelassen, welche jedoch in der Praxis bei der Verspannung von Elektrolysezellen kaum vorkommt. Durch die Nichtlinearität reibungsbehafteter Kontakte wird der Rechenaufwand im Vergleich zu Verbundkontakten erhöht und es können je nach Netzkonsistenz numerische Fehler auftreten [112]. Die resultierende Kraftübertragung der unterschiedlichen Kontaktbedingungen weicht somit voneinander ab und muss im Modell vergleichend betrachtet werden.

Bei der Kompression der GDL auf der Kathodenseite (vgl. Abbildung 29) verändert sich während der Simulation die Kontaktsituation zwischen der FFP und der kathodenseitigen Dichtung von „kein Kontakt“ zu „Kontakt“. Diese Veränderung der Kontaktsituation kann mit der Kontaktsuchfunktion „Pinnballradius“ realisiert werden. Um jedoch eine Verschiebung zwischen den beiden Bauteiloberflächen zu erlauben, muss dieser Kontakt als reibungsbehafteter Kontakt definiert werden. Die Darstellung als Verbundkontakt ist dementsprechend nicht möglich.

Ein Problem für die Simulation von reibungsbehafteten Kontaktbedingungen ist, dass die Reibungszahlen für die Mehrzahl der Stoffpaarungen in dem Modell unbekannt sind. Deshalb wird die Reibungszahl anhand verschiedener Literaturangaben zur Grenzreibung von 0,01 – 0,2 [113] überschlägig zu $\mu = 0,2$ abgeschätzt, was auch von Garcia-Salaberri et al. [88] zur Modellierung der GDL Kompression angenommen wird. Da nicht eingeschätzt werden kann, inwiefern diese Annahme von der Realität abweicht, kann hier ebenfalls eine Fehlerquelle für reibungsbehaftete Kontakte vorliegen. In einigen Vorversuchen ergaben sich für unterschiedliche Reibwerte von 0,05 bis 0,2 Unterschiede von <2% im Ergebnis, da es bei der simulierten Kompression fast keine seitlichen Verschiebungen gibt.

Die Kontaktflächen zwischen den Schraubendummys und Endplatten werden als Verbundkontakte dargestellt, um die Kontaktformulierung zu vereinfachen und das gesamte Modell gegen Relativbewegungen zu sperren.

4.1.3 Vernetzungsdefinition

Zur Vernetzung der einzelnen Bauteile wurden Vernetzungsstudien durchgeführt, auf welchen die hier dargestellten Vernetzungen beruhen. Die aus den Untersuchungen resultierenden Parameter werden in Tabelle 3 angeführt. Als Kriterium für die zulässige Durchdringung wurde eine Penetration von kleiner als $10\text{ }\mu\text{m}$ ($\leq 10\%$ der Größenordnung der kleinsten Bauteilgeometrie von $100\text{ }\mu\text{m}$) definiert.

Da die dünnen Bauteile (GDL, PTL, Dichtungen und MEA/Fujifilm) im Verhältnis zu ihrer Fläche nur über eine sehr geringe Bauteildicke verfügen, kann die Vernetzung dieser Bauteile nicht ausschließlich über die Elementgröße erfolgen. Aus den Netzuntersuchungen wird ersichtlich, dass diese Bauteile mit mindestens zwei Teilungen in Kompressionsrichtung (über ihre Dicke) vernetzt werden müssen. Durch die Teilungen wird sichergestellt, dass das Bauteil mit mindestens zwei Elementen in Kompressionsrichtung vernetzt wird. Mit jeder zusätzlichen Teilung vervielfacht sich die Elementanzahl der Komponenten und der Rechenaufwand steigt. Zudem wird die Qualität der Elemente durch die zunehmend ungleichmäßigeren Seitenverhältnisse der dreidimensionalen Geometrie gemindert. Dies führt zu einem instabileren Konvergenzverhalten und mehr benötigten Iterationsschritten. Dementsprechend werden die dünnen Bauteile mit zwei Teilungen in Kompressionsrichtung und den in Tabelle 3 angegebenen Elementgrößen diskretisiert. Die Vernetzung erfolgt mithilfe der „Sweep“-Methode, welche für die Bauteile strukturiert eine Hexaeder-Vernetzungsstruktur erstellt. Die restlichen Bauteile werden mit der „MultiZone“-Methode vernetzt. Dabei werden die Körper in mehrere Bereiche eingeteilt und die entstehenden Teilkörper werden einzeln diskretisiert. Hierdurch wird ein verfeinertes Netz im Bereich der Kanal-Steg-Struktur der FFP erzielt. Für die Diskretisierung der Schraubendummys wird eine Empfehlung zur Schraubenvernetzung aus der Literatur herangezogen [114]. Es wird die MultiZone-Methode verwendet und die Teilung der Auflageflächen der Schraubendummys auf den EP und der Kopfdicke angesteuert.

Zur Verbesserung der Krafteinleitung in das Modell werden zusätzlich rund um die Durchgangsbohrungen Prismenschichten vergleichbar zur Auflagefläche der Schraubenköpfe erzeugt. Hierdurch ist das Netz in den Kontaktregionen um die Durchgangsbohrungen für alle Bauteile identisch.

Tabelle 3: Geometrische Abmessung der Modellgeometrien, verwendete Vernetzungsmethoden, maximale Elementgröße und gewählte Elementansatzfunktion. Abkürzungen: K: Kathode; A: Anode; aZ: Bereich der aktiven Zelfläche; D: Dichtungsbereich.

Komponente		Geom. Abmessungen [mm]	Vernetzungsmethode	Elementgröße [mm]	Elementansatzfunktion
EP		90 x 90 x 12	MultiZone	2	-
FFP	FF	90 x 90 x 4	MultiZone	0,5	-
	Platte			2	-
Schrauben			MultiZone	1	-
GDL (K)		42 x 42 x 0,35	Sweep	0,35	Quadratisch
Dichtung (K) (Ausschnitt)		90 x 90 x 0,25 (44 x 44)	Sweep	1	Quadratisch
PTL (A)		42 x 42 x 0,35	Sweep	0,35	Quadratisch
Dichtung (A) (Ausschnitt)		90 x 90 x 0,35 (44 x 44)	Sweep	1	Quadratisch
MEA	aZ	42 x 42 x 0,2	Sweep	0,5	Quadratisch
	D	90 x 90 x 0,2	Sweep	1	Quadratisch
Fuji-film	aZ	42 x 42 x 0,6	Sweep	0,5	Quadratisch
	D	90 x 90 x 0,6	Sweep	1	Quadratisch

Die für die Simulation verwendete Vernetzung der Elektrolysezelle ist in Abbildung 31 dargestellt.

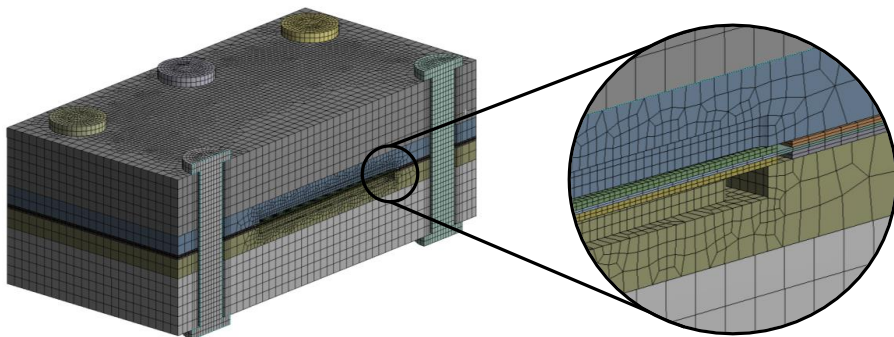


Abbildung 31: Darstellung der Vernetzung des Modells mit Detailansicht auf den Bereich am Rand der aktiven Zelfläche.

Das verwendete Netz besteht aus 188.324 Elementen mit 837.798 Knoten. Die hier detailliert beschriebenen Methoden zur Vernetzung und zur Kontaktdefinition dienen als Grundlage für alle weiteren betrachteten Modelle und Variationen. Die verwendeten Materialmodelle werden in Abschnitt 4.3 dargestellt.

4.1.4 Randbedingungen

Mit dem in dieser Arbeit behandelten Modell soll in erster Instanz der mechanische Einfluss der Montagesituation dargestellt werden. Dementsprechend wird die Umgebungstemperatur von 23°C als Temperatur für das Modell und die Materialmodelle verwendet.

Der geometrische Aufbau des Gesamtmodells verhält sich punktsymmetrisch zum Zentrum der Elektrolysezelle. Diese Symmetrie wird zur Vereinfachung des Zellmodells und zur Reduktion der Rechenzeit (Halbierung) ausgenutzt. Das Modell wird dementsprechend entlang der Symmetrieebene geschnitten und mit Symmetriebedingungen versehen. Ein Vergleich mit dem Gesamtmodell zeigt nur geringe Abweichungen, die hauptsächlich am Randbereich der Schnittebene auftreten und unter Abwägung des Rechenaufwands tolerierbar sind. Zur Vergleichbarkeit mit den Realdaten werden die Simulationsergebnisse punktsymmetrisch gespiegelt dargestellt. Entgegen einigen Modellen aus der Literatur [72, 101] liegt aufgrund der unterschiedlichen porösen Materialien auf Anoden- und Kathodenseite und aufgrund der speziellen Mäanderstruktur des Flowfields keine Spiegelsymmetrien innerhalb der Zelle vor.

Der Kraftauftrag auf die Schraubendummys erfolgt aufgrund ihres geometrischen Anteils am Gesamtmodell. Somit werden die halben Schraubendummys nur mit der Hälfte der Kraft eines ungeschnittenen Schraubendummys beaufschlagt, während jeder Schraubendummy mit einem Achtel der auf die Zelle wirkenden Gesamtkraft verspannt wird, da im Gesamtmodell acht Schrauben zur Krafteinleitung verwendet werden.

Die Schraubenkräfte der einzelnen Schrauben können mithilfe der in Anhang I vorgestellten Gleichungen zur Berechnung der Schraubenkraft theoretisch bestimmt werden. Da die Reibkoeffizienten für die Schrauben zwischen 0,08 - 0,16 [115] liegen, variieren die Schraubenkräfte je nach Oberflächenbeschaffenheit der Schrauben stark. Je nach Annahme des Reibkoeffizienten variieren somit auch die berechneten Schraubenkräfte stark. Der stark variierende Einfluss unterschiedlicher Schrauben auf die gemessenen Kräfte wurde auch bei der Bestimmung der Gesamtkräfte unterschiedlicher Zellen mit unterschiedlichen Schrauben beobachtet. Die Werte variierten unter Verwendung der Methode der drucksensitiven Folien (vgl. Abschnitt 3.2) bis zu ca. 35% zwischen den unterschiedlichen Zellen/Schrauben. Da sich somit die realen Schraubenkräfte kaum theoretisch berechnen lassen, ist eine Validierung von Simulationsergebnissen, die auf der Basis des Drehmoments theoretisch bestimmter

Schraubenkräfte beruht, kaum möglich. Dementsprechend wurde für die Validierung des Modells aus der zuvor gemessenen Kraftverteilung (vgl. Abschnitt 5.1) eine Gesamtkraft von approximiert 14 kN bestimmt. Unter Annahme einer gleichmäßigen Kraftaufteilung wird im Modell eine Schraubenvorspannkraft von $F_V = 1750 \text{ N}$ auf die Schraubendummys aufgebracht. Die Randbedingungen sind zusammenfassend in Abbildung 32 dargestellt.

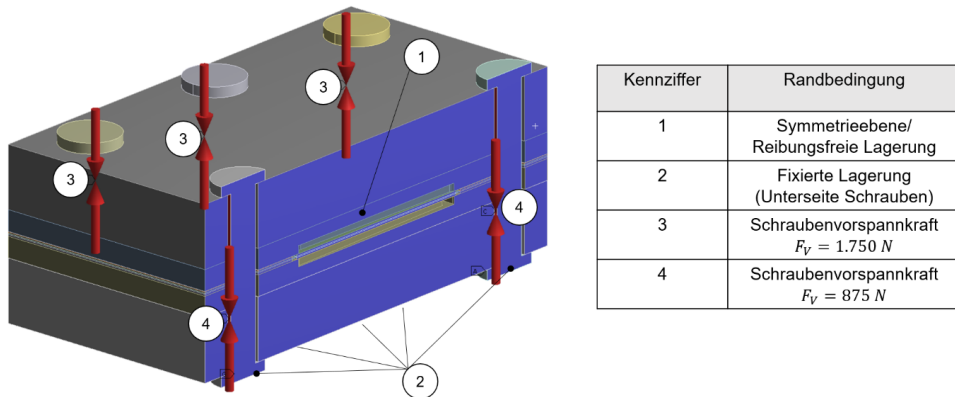


Abbildung 32: Randbedingungen für das Elektrolysezellmodell.

4.1.5 Streckmetalldesign

Um den mechanischen Einfluss der Strömungsverteilerstruktur auf die Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche evaluieren zu können und gegebenenfalls eine homogenere Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche zu erzielen, wurden die in Abschnitt 2.1.2 beschriebenen Streckmetalle in ein Zellmodell überführt. Die verwendeten Geometrien sind einem vom Forschungszentrum Jülich eingereichten Patent zu einer Einkomponentenbipolarplatte [116], welche im Zuge dieser Arbeit mitentwickelt wurde, nachempfunden. In dem neuartigen Zelldesign sollen die zu einem Verbund assemblierten Streckmetalle die klassische Strömungsverteilerstruktur ersetzen. Es soll vergleichend mit dem zuvor betrachteten herkömmlichen mäanderförmigen Flowfield untersucht werden.

Der verwendete Streckmetallverbund besteht aus drei Streckmetalllagen mit jeweils unterschiedlichen Geometrien. Die genauen geometrischen Maße sind in Tabelle 4 dargestellt. Entsprechend der Maschenbreite und -länge der einzelnen Streckmetalle werden diese als „grobes“, „mittleres“ und „feines“ Streckmetall bezeichnet. Das grobe Streckmetall hat in diesem Fall die größte Maschenweite. Der Streckmetallverbund wird seiten- und höhenbündig in einen Rahmen gefasst. Dieser Komponentenverbund wird mit einer Grundplatte, über welche die Strömungszuführung erfolgt und die die Rückseite der Flowfield-Platte darstellt, zu

einem Bauteil assembliert. Gemäß des erwähnten Patents werden diese Bauteile in einem Diffusionsschweißprozess zu einer Komponente gefügt. In ANSYS Mechanical kann die Schweißverbindung nur als Verbundkontakt der einzelnen Schichten dargestellt werden. Die Explosionsansicht der Baugruppe ist in Abbildung 33 dargestellt.

Tabelle 4: Dimensionen der Streckmetalle gemäß den in Abbildung 4 dargestellten Parametern.

	Maschenlänge [mm]	Maschenbreite [mm]	Stegbreite [mm]	Stegdicke [mm]
Feines Streckmetall	2,5	2	0,5	0,5
Mittleres Streckmetall	4	2	0,8	0,5
Grobes Streckmetall	12	6	1,5	0,8

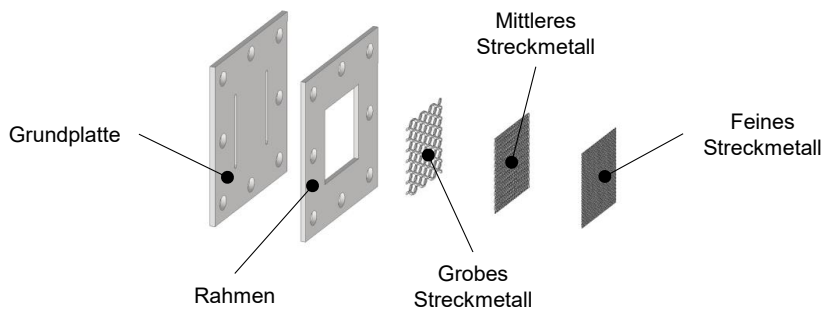


Abbildung 33: Aufbau der Streckmetall-Flowfield-Platte

Alle Komponenten der Strömungsverteilerplatte bestehen aus Titan. Auf der Anodenseite wird die ebenfalls aus Titan bestehende PTL (Titanvlies) gemeinsam mit dem Streckmetallverbund höhenbündig in den Rahmen eingelassen. Dadurch entfällt die anodenseitige Dichtung in diesem Zellaufbau. In Abbildung 34 ist die vollständige Zellgeometrie des Streckmetalldesigns dargestellt.

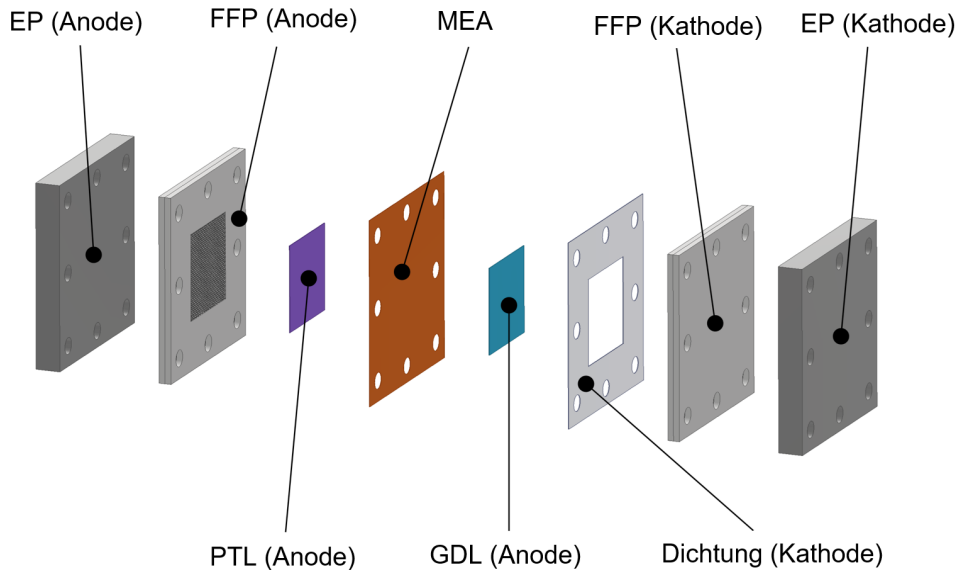


Abbildung 34: Geometrischer Aufbau des Streckmetallzellenmodells.

Die Modellerstellung des dargestellten Zellaufbaus erfolgt analog zum oben vorgestellten Grundmodell. Die Geometrien der EP, Dichtung, GDL, PTL und MEA werden mit Ausnahme des Bereichs der aktiven Zellfläche des MEA-Bauteils entsprechend der in Tabelle 3 dargestellten Parameter vernetzt. Die Grundplatte und der Rahmen der FFP wird mit der MultiZone- und der Sweep-Methode und einer Elementgröße von 2 mm vernetzt. Aufgrund der komplexen Geometrie der Streckmetalle müssen diese mit einer unstrukturierten Tetraedervernetzung versehen werden. Die Elementgröße in den Streckmetallen wird mit 0,35 mm so gewählt, dass mindestens zwei Elemente in jeder Bauteilrichtung vorliegen

Analog zu den Erkenntnissen aus der Simulation des Grundmodells (vgl. Abschnitt 5.3) werden – bis auf den Kontakt zwischen der kathodenseitigen Dichtung und der kathodenseitigen FFP – alle Kontakte als Verbundkontakte dargestellt. Der Kontakt zwischen der Dichtung und der FFP wird aus den oben genannten Gründen als reibungsbehaftet mit einer Reibungszahl von $\mu = 0,15$ angenommen.

Die Randbedingungen werden ebenfalls vom Grundmodell adaptiert. Das Aufbringen der Schraubenkräfte erfolgt auf dieselbe Weise und es werden ebenfalls die Annahmen der Zellsymmetrie getroffen, um ein entsprechendes Halbmodell darzustellen. Das erzeugte Netz und die Randbedingungen sind in Abbildung 35 dargestellt.

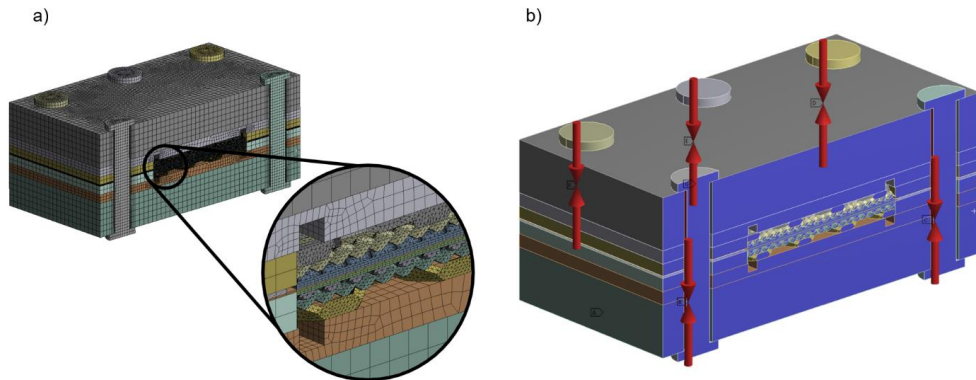


Abbildung 35: Darstellung der Vernetzung (a)) und Randbedingungen (b)) des Streckmetallzellenmodells

Das Modell des Streckmetalldesigns setzt sich aus insgesamt 741.959 Elementen und 1.804.533 Knoten zusammen.

4.2 Modellbildung für einen Elektrolysestack

Bei der Modellierung eines Elektrolysestacks kann auf die Erkenntnisse aus dem Zellmodell zurückgegriffen werden. Jedoch überschreiten die Dimensionen eines Stackes die einer Elektrolysetestzelle. Dementsprechend muss die statisch-mechanische Simulation eines Elektrolysestacks entsprechend einer Zielsetzung und dem dafür nötigen Detailgrad erfolgen, um das Modell mit der vorhandenen Rechenkapazität lösen zu können. Mithilfe des zuvor dargestellten Modells einer Testzelle soll im Rahmen dieser Arbeit eine Modellvalidierung durch praktische Evaluation der Ergebnisse erfolgen. Deshalb wurde in dem Testzellmodell im Rahmen der Rechenkapazitäten für jedes verwendete Bauteil ein möglichst hoher Detailgrad gewählt, um das mechanische Verhalten einer Zelle vergleichbar zur Messung darstellen zu können. In dem in diesem Abschnitt behandelten Modell eines Elektrolysestacks sollen gezielt einzelne Bauteile auf das mechanische Verhalten untersucht werden, weshalb der Detailgrad der restlichen Komponenten durch repräsentative Vereinfachungen reduziert wird. Im Hinblick auf die Diskussionen in Abschnitt 2.3.1 ist die Krafteinleitung in einen Elektrolysestack entscheidend für dessen mechanischen Verhalten. Die Krafteinleitung in einen Stack erfolgt über die Endplatten, weshalb auf dieses Bauteil eine essentielle Aufgabe für die Kraft- und Druckverteilung im Zellstapel fällt. Deshalb soll im Folgenden das Modell eines Elektrolyseurs im Hinblick auf die Untersuchung des mechanischen Verhaltens der Endplatten aufgebaut werden. Hierbei ist die detailgetreue Darstellung der einzelnen Zellkomponenten vor allem in Hinblick auf die benötigte Rechenleistung untergeordnet.

4.2.1 Geometrischer Aufbau und Modell

Um das mechanische Verhalten eines repräsentativen quadratischen Stacks untersuchen zu können, ist das verwendete geometrische Modell des Elektrolyseurs an einen am Forschungszentrum Jülich entwickelten realen Elektrolysestacks angelehnt. Der reale Aufbau dieses Elektrolyseurs ist in Abbildung 14 dargestellt. Der dargestellte Stapelaufbau entspricht dem typischen Aufbau eines quadratischen Elektrolyseurs, auch wenn in der Praxis eine große Variation in der Gestaltung einzelner Bauteile vorliegt. Da das Stack-Design vordergründig hinsichtlich der mechanischen Krafteinleitung untersucht werden soll, ist hier die Geometrie der Endplatten und der Kontakt zum restlichen mechanischen Aufbau relevant. Aus diesem Grund werden für das verwendete Modell einige geometrische Vereinfachungen getroffen. Hierbei wird die Anzahl der Wiederholeinheiten reduziert, sodass der Stack-Aufbau mit nur einer Zelle und somit zwei Flowfield-Platten in Form von Monopolarplatten (MPP) erfolgt. Diese Vereinfachung beeinträchtigt die Krafteinleitung in den Aufbau nicht signifikant, jedoch soll der Einfluss eines Aufbaus mit mehreren Zellen im Ergebnisteil erörtert werden. Weiterhin wird der Aufbau des Stacks als symmetrischer Aufbau vereinfacht. Als spiegelsymmetrische Ebene soll die MEA dienen. Hierfür wird auf der einen Seite des Stacks die „Isolatorplatte“ durch die geometrisch und mechanisch ähnliche „Strömungsverteilerplatte“ ersetzt. Die Einflüsse dieser Vereinfachung wurden ebenfalls vergleichend zum vollständigen Modell (ohne Symmetrieebene) untersucht und führten zu einer Abweichung zwischen ca. 1 bis 3 % einzelner Kenngrößen. Weiterhin liegt aufgrund des unterschiedlichen Materialverhaltens der porösen Materialien (GDL und PTL) eine leichte mechanische Asymmetrie zwischen der Anodenseite und Kathodenseite vor. Diese Asymmetrie wird näherungsweise mit der im Folgenden vorgestellten Vereinfachung der Zellgeometrie zu einem Zelldummy vermieden. Das Ersatzmodell für den modellierten Stack ist in Abbildung 36 dargestellt. Die verwendeten Geometrien sind in Tabelle 5 aufgeführt.

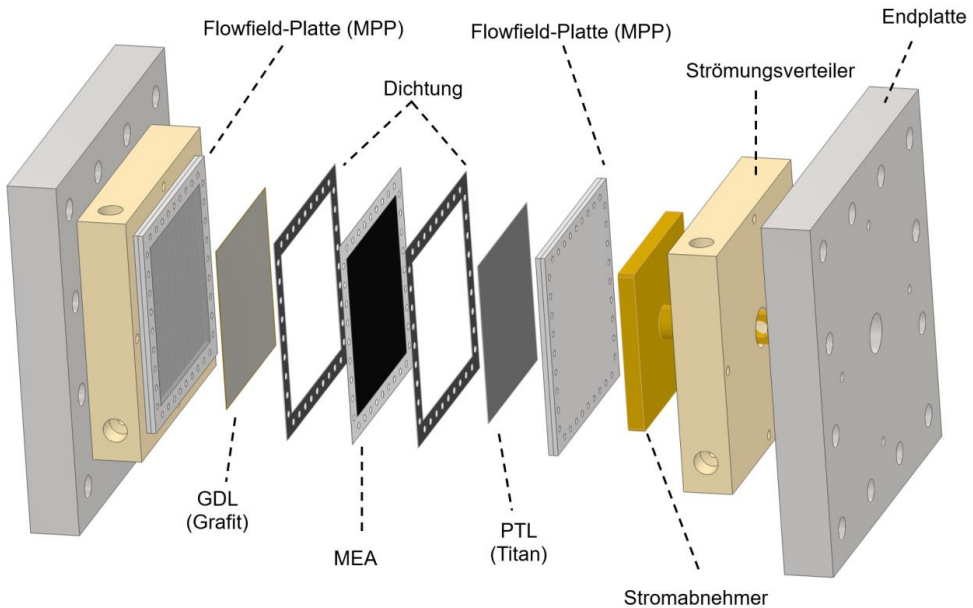


Abbildung 36: Vereinfachter geometrischer Aufbau für das Stackmodell.

Tabelle 5: Geometrische Dimensionen des Stackmodells.

Komponente		Geom. Abmessungen (L x B x H) [mm]
Schraubendummy	Schaft	Länge: 66; Durchmesser: 12
	Kopf	Länge: 2; Durchmesser: 14/15
Endplatte		220 x 220 x 30
Stromabnehmer (Kontaktplatte)		100 x 100 x 10
Strömungsverteiler		151 x 151 x 30
Dummy-Bauteil	Zelldummy	100 x 100 x 6
	Rahmen	125 x 125 x 5,7
Dichtung		125 x 125 x 0,3

Wie erwähnt wird in dem Modell die MEA als Symmetrieebene verwendet. Aufgrund der dünnen und schwer zu vernetzenden Schicht, sowie dem vernachlässigbar kleinen Einfluss auf die Evaluation des mechanischen Verhaltens bei der Stack-Assemblierung, wird die MEA im Stack-Modell nicht dargestellt. Analog zum Elektrolysetestzellmodell, werden die zwölf Zuganker, bestehend aus jeweils einer Gewindestange, Muttern und Unterlegscheiben, zu einem „Zuganker-Dummy“ vereinfacht. Die hier vorgestellte Modellierung des Stacks bleibt

grundsätzlich für alle untersuchten Konfigurationen und Optimierungsansätze gleich. Es werden dementsprechend jeweils nur die konstruktiv veränderten Geometrien angepasst, um das mechanische Verhalten des restlichen Stacks vergleichbar zu halten.

Als geometrisches Vorbild der Flowfield-Platten (Monopolarplatten) dient die bereits in Abschnitt 4.1.5 erwähnte Einkomponentenbipolarplatte. Die komplexe Struktur im Bereich der aktiven Zellfläche dieser Platten wird gemeinsam mit den angrenzenden porösen Materialien zu einem Ersatzbauteil vereinfacht. Hierdurch wird die Vernetzung dieser Bauteile signifikant vereinfacht und die Komplexität des Modells stark reduziert. Das für die Simulation verwendete Dummy-Bauteil ist in Abbildung 37 dargestellt. Das Dummy-Bauteil besteht aus einem Titan-Rahmen und einem Mittelteil, dem sogenannten Zelldummy. Der Zelldummy fasst Streckmetall, Titan-Zwischenplatte und die porösen Medien anteilmäßig zusammen und wird auf beiden Seiten von einer 0,3 mm dicken Dichtung aus Polytetrafluorethylen (PTFE) eingefasst. Die Höhe des Zelldummys beträgt 6 mm für die Darstellung der Monopolarplatte.

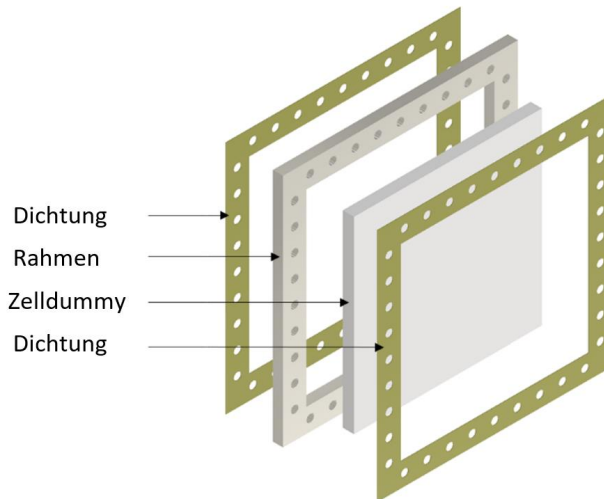


Abbildung 37: Geometrischer Aufbau der Dummy-Zelle.

Gemäß den Diskussionen zur Kontaktdefinition (vgl. Abschnitt 4.1.2) für die Elektrolysetestzelle wird auch in diesem Modell zwischen Verbundkontakten und reibungsbehafteten Kontakten variiert. Da in dieser vereinfachten Modellierung des Elektrolysestacks die Kompression des Kohlenstoffpapiers nicht betrachtet wird, kann jedoch in diesem Fall theoretisch jeder Kontakt als Verbundkontakt dargestellt werden. Wie auch bei der Elektrolysetestzelle wird in beiden Fällen der Kontakt zwischen der Endplatte und dem Zugankerdummy als Verbundkontakt dargestellt. Ebenfalls werden die Kontakte zwischen den Dummy-Bauteilkomponenten, also zwischen den Dichtungen, dem Rahmen und dem

Zelldummy, als Verbundkontakte definiert. Hiermit wird erreicht, dass sich die Baugruppe wie ein Bauteil mit verschiedenen Steifigkeitsbereichen verhält. Außerdem werden hierdurch die nichtlinearen, reibungsbehafteten Kontakte der dünnen Dichtungsschichten reduziert und damit die numerische Genauigkeit des Modells erhöht und die Konvergenz verbessert. Alle weiteren Kontaktflächen werden als reibungsbehaftete Kontakte dargestellt. Wie in Abschnitt 4.1.4 angeführt, wird hierfür ein Reibwert von 0,15 eingestellt.

Die Bauteile Endplatte, Rahmen, Dichtungen und Zelldummy werden mithilfe der Sweep-Methode vernetzt, während für die Stromabnehmerplatte und die Schrauben die „MultiZone“-Methode verwendet wird. Da die Strömungsverteilerplatte eine vergleichsweise komplexe Geometrie aufweist, kann diese nur mit einer unstrukturierten Vernetzung aus Tetraedern und Hexaedern dargestellt werden.

Es wird eine Elementgröße von 3 mm für die Vernetzungseinstellung angesetzt. Abweichend davon wird für den Zelldummy und Rahmen sowie die Elemente der Kontaktfläche zum Stromabnehmer die Elementgröße auf 1 mm verkleinert und für die Dichtung eine Elementgröße von 0,5 mm eingestellt, um dem hohen Maß an Durchdringung durch angrenzende Bauteile entgegenzuwirken. Die Elementgröße des Strömungsverteiler wird auf 2 mm festgelegt. Das Ergebnis der Vernetzung für die Baugruppe ist in Abbildung 38 dargestellt. Das Netz besteht aus ca. 872.000 Elementen und ca. 2,23 Mio. Knoten.

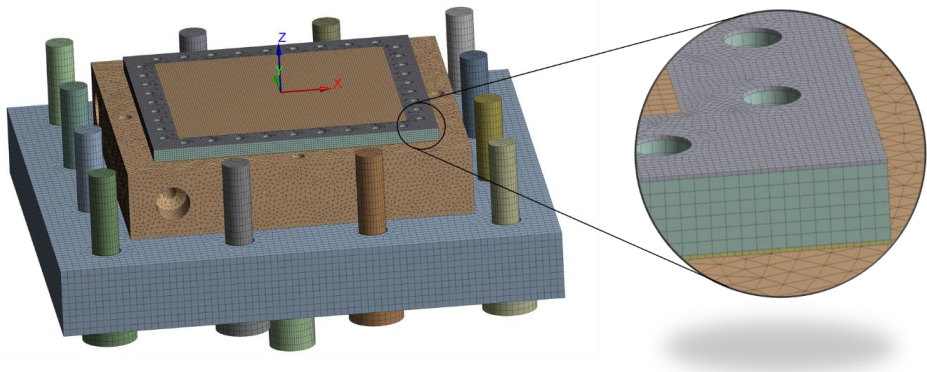


Abbildung 38: Vernetzung des Stack-Modells mit Detailansicht auf eine Kante des Zelldummys und die Dichtung.

4.2.2 Randbedingungen

Bei der mechanischen Modellierung des Elektrolyseurstacks soll vergleichbar zu der Elektrolysetestzelle lediglich die Montagesituation dargestellt werden. Dementsprechend wird

eine Temperatur von 23°C für das Modell und die Materialmodelle aus Abschnitt 4.3 verwendet.

Der geometrische Aufbau des Stacks ist aufgrund der im vorherigen Abschnitt diskutierten Vereinfachungen spiegelsymmetrisch zur Ebene der MEA. Die Lagerung des Modells ist in Abbildung 39 dargestellt. Die Symmetrieebene des Stacks wird als Loslager bestimmt. Die Schnittflächen der Schrauben werden fixiert gelagert, um zusätzlich die Starrkörperbewegung des Stacks in der Symmetrieebene zu unterbinden. Die aufgewendete Vorspannkraft wird über die Schäfte der Zugankerdummy's induziert. Die Kraftwerte der Zugankerdummy's wurden im Verlauf der Simulation parametrisch verändert, um deren Einfluss auf die Durchbiegung der Endplatte und die Stack-Mechanik ermitteln zu können. Als Ausgangswert wurde eine Kraft von 6,8 kN pro Zugankerdummy gewählt, was abhängig vom gewählten Reibungswert (gemäß der in Anhang I dargestellten Rechnung zur Ermittlung der Schraubenkraft) einem Drehmoment von ca. 30 Nm entspricht. Die variierten Kraftwerte liegen im Bereich zwischen 2,5 und 20 kN, was Drehmomenten von 10 bis 50 Nm entspricht. Eine Messung der Stack-Kraft war aufgrund eines fehlenden Prototyps nicht möglich.

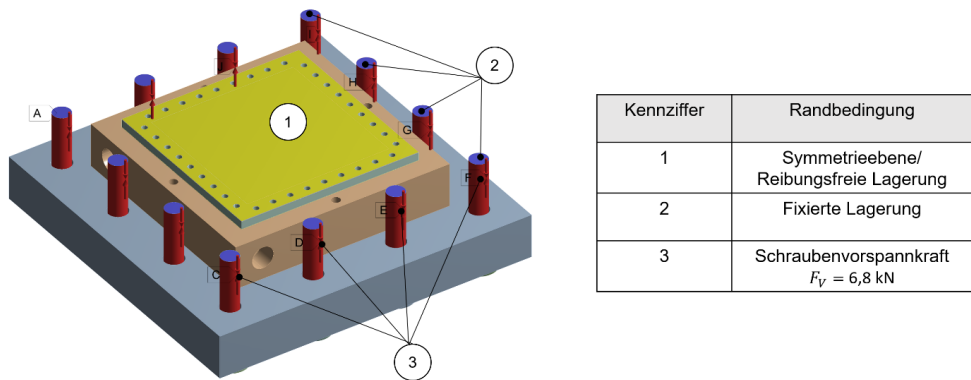


Abbildung 39: Randbedingungen des Stackmodells.

4.3 Materialmodelle

Um das mechanische Verhalten eines Elektrolyseurs korrekt mithilfe einer statisch-mechanischen Simulation abbilden zu können, muss das Materialverhalten durch möglichst realitätsnahe Materialmodelle in ANSYS Workbench beschrieben werden. Die Grundlage hierfür bilden die Materialdaten. Jedoch lässt sich mit den in ANSYS Workbench enthaltenen Materialmodellen nicht jedes Materialverhalten beschreiben. Deshalb muss für ein komplexes

Materialverhalten, wie das der porösen Materialien, ein geeignetes Ersatzmodell gefunden werden. Wie in Abschnitt 2.4 dargestellt, weisen die porösen Materialien ein nichtlineares Verhalten auf, welches in ANSYS Mechanical nicht beschrieben werden kann. Ebenso kann die Porosität nur schwer abgebildet werden. Weiterhin decken die in der Literatur angegebenen Kompressionsdaten nicht den gesamten für dieses Modell relevanten Druckbereich ab. Deswegen wurden im Vorfeld für die Modelldefinition mit dem in Anhang F dargestellten Verfahren zur Untersuchung des Kompressionsverhalten eigene Materialuntersuchungen angestellt. Diese werden in Abschnitt 4.3.1 vergleichend zu anderen Materialuntersuchungen und Materialmodellen vorgestellt. Eine detaillierte Diskussion der Ergebnisse ist in Anhang L dargestellt

Des Weiteren werden im Folgenden Materialmodelle für alle im Modell verwendeten Materialien definiert. Hierfür werden Literaturwerte und Herstellerangaben für das Materialverhalten herangezogen.

4.3.1 Materialmodelle poröser Materialien

Kathodenseite - Kohlenstoffpapier

In dem Modell wird auf der Kathodenseite, wie auch im experimentellen Aufbau, Kohlenstoffpapier des Typs TGP-H-120 von Toray mit einer nominellen Dicken von 350 μm als GDL verwendet. Da Kohlenstoffpapier auch weithin im Brennstoffzellenbereich angewendet wird, wurde dessen Materialverhalten bereits häufig in der Literatur untersucht. In Abschnitt 2.4.3 wurde detailliert auf Kompressionsmessungen für das Kohlenstoffpapier eingegangen. Ebenfalls wurden Materialmodelle, welche in der Brennstoffzellenliteratur Anwendung finden vorgestellt. So lässt sich das reale Materialverhalten des Kohlenstoffpapiers gut mit einem orthotropen Materialmodell beschreiben. Um das Materialverhalten für das hier betrachtete Modell weiter sinnvoll zu vereinfachen wird der in Abschnitt 2.4.2 vorgestellte Sonderfall des orthotropen Materialverhaltens, das transversal-isotrope Materialverhalten verwendet [49]. Kleemann et al. [49] begründen diese Vereinfachung damit, dass sich das Material in der Ebene entlang der Fasern (x- und y-Ebene in diesem Modell) in beide Richtungen approximiert gleich verhält. Hierdurch wird das Modell auf 5 Materialparameter reduziert.

Das Materialverhalten in z-Richtung oder Kompressionsrichtung lässt sich durch die zuvor beschriebenen Kompressionsversuche beschreiben. Da in der Literatur nur die Materialtypen TGP-H-60 und 90 der Firma Toray für teilweise niedrige Druckbereiche (vgl. Abbildung 40 und Tabelle 6) untersucht wurden und in dieser Arbeit ein Material des Typs TGP-H-120 von der Firma Toray verwendet wurde, wurden mit dem in Anhang F dargestellten Prüfverfahren eigene Materialmessungen angestellt. In Abbildung 40 ist das in dieser Arbeit ermittelte

Materialverhalten gegenüber den Messungen aus der Literatur (vgl. Abschnitt 2.4.4) dargestellt. Herauszustellen ist dabei ebenfalls, dass die Kompressionsversuche nicht nur mit unterschiedlichen Materialien erfolgen, sondern ebenfalls mit einer unterschiedlichen Anzahl an gestapelten Proben im Versuchsaufbau durchgeführt wurden. Diese sind vergleichend in Tabelle 6 dargestellt.

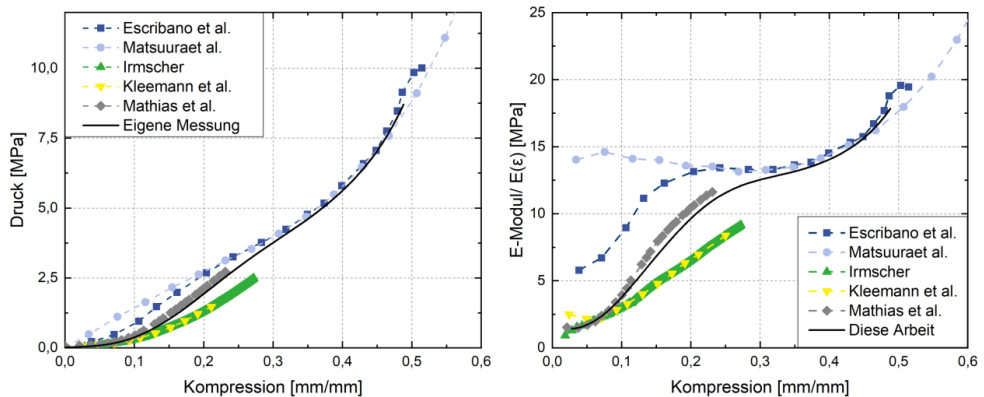


Abbildung 40: Druck-Kompressions-Kurve und der von der Kompression abhängige E-Modul [14, 21, 30, 90, 91].

Das nichtlineare Materialverhalten des GDL-Materials in Kompressionsrichtung ist jedoch problematisch für die Darstellung in ANSYS Mechanical und lässt sich nicht mit den üblichen linear-elastischen Materialparametern beschreiben. Dementsprechend muss für dieses richtungsspezifische Materialverhalten eine Vereinfachung getroffen werden. Aus diesem Grund wird im Rahmen dieser Arbeit das nichtlineare Materialverhalten durch die Annahme linearer Elastizität für eine definierte Kompression approximiert und vereinfacht. Die Abhängigkeit des E-Moduls in Kompressionsrichtung von der Kompression ($E(\epsilon)$) des GDL-Materials ist in Abbildung 40 b) dargestellt.

Für das Grundmodell der Elektrolysetestzelle soll von einer Kompression von ca. 30% der Toray-GDL (vgl. Abschnitt 3.1.1) ausgegangen werden. Werden aus den in Abbildung 40 dargestellten Druck-Kompressions-Kurven die E-Module in Kompressionsrichtung für eine Kompression von 30% (0,3 mm/mm) abgeleitet, so ergeben sich für das Materialmodell die in Tabelle 6 dargestellten linear-elastischen E-Module in Kompressionsrichtung.

Tabelle 6: Darstellung der ermittelten, linearisierten E-Module für eine Kompression von 30%, den für die Messung verwendeten Probentypen und der verwendeten Probenanzahl in der Prüfmethode.

Quelle	Linear-elastischer E-Modul [MPa] (Kompressionsrichtung)	Probentyp	Prüfmethode
Diese Arbeit	ca. 12,5	TGP-H-120	5 Proben
Escribano[90]	ca. 13,2	TGP-H-90	10 Proben
Matsuura[91]	ca. 12,2	TGP-H-90	10 Proben
Kleemann[30]	(extrapoliert) ca. 10,2	TGP-H-60	1 Probe
Irmscher[21]	(extrapoliert) ca. 10,2	TGP-H-60	1 Probe
Mathias[14]	(extrapoliert) ca. 12,5	TGP-H-60	1 Probe

Das transversal-isotrope Materialmodell kann durch die von Kleemann et al. [49] bestimmten richtungsabhängigen Materialparameter beschrieben werden. Der E-Modul in Faserrichtung (x- und y-Richtung) liegen in Übereinstimmung mit den Angaben des Herstellers bei mehreren GPa und wird gemittelt mit 7 GPa festgelegt [49, 117].

Die Querkontraktionszahl wird zu Null bestimmt [30]. Damit beläuft sich die gesamte Verformung auf die Stauchung in Kompressionsrichtung. Als Schubmodul wird, wie in der Arbeit von García-Salaberri et al. [88], ein Mittelwert für die von Kleemann et al. [30] gemessenen Schubmodule berechnet. Somit beträgt das Schubmodul (G-Modul) 14 GPa. Aus den in Tabelle 6 dargestellten E-Modulen wird ein E-Modul von 12 MPa für die Kompressionsrichtung (z-Richtung) abgeleitet. Da der Großteil der in der Literatur verwendeten Materialparameter im Bereich zwischen 6 und 12 MPa liegt, soll der Einfluss des Materialparameters in diesem Bereich getestet werden. Ebenfalls müssen die von Kleemann et al. [30] bestimmten Schubmodule verifiziert und parametrisch hinsichtlich ihres Einflusses untersucht werden, da hier ebenfalls aufgrund des unterschiedlichen Materialtyps ein unterschiedliches Materialverhalten zu den von Kleemann et al. [30] gemessenen Werten erwartet wird.

Alle weiteren Größen ergeben sich gemäß der in Abschnitt 2.4.2 dargestellten Abhängigkeiten für das transversal-isotrope Materialmodell.

Anodenseite - Titanvlies

Wie beim experimentellen Aufbau wird auf der Anodenseite ein Titanvlies des Typs Bekipor 2-GDL10-0,35 von Bekaert als PTL eingesetzt. Da keine Materialdaten zur Beschreibung des mechanischen Materialmodells in der Literatur zu finden sind, wurde das kompressible Verhalten des Materials ebenfalls mit dem in Anhang F beschriebenen Kompressionsversuch

untersucht. Aufgrund der Faserverbundstruktur, welche der der Kohlenstoffvliese ähnlich ist, ist davon auszugehen, dass das Titanvlies ebenfalls ein transversal-isotropes Materialmodell aufweist. Somit müssen alle weiteren fehlenden Materialparameter mithilfe von Literaturangaben zu vergleichbaren Materialien physikalisch sinnvoll abgeschätzt werden.

Aufgrund der vorangegangenen Betrachtungen zum Kohlenstoffvlies werden die Querkontraktionen zu 0 angenommen. Da nicht die experimentellen Möglichkeiten bestanden, um die E-Module in Faserrichtung (x- und y- Richtung) sowie die Schubmodule zu bestimmen, werden diese im ersten Ansatz durch die Materialdaten, die aus den Messungen zu Titansinterkörpern und Titanschäumen bekannt sind, übernommen. Wie in Abschnitt 2.2.1 dargestellt, untersucht Imwinkelried [34] das kompressible, mechanische Verhalten anodenseitiger PTL-Materialien in Form von porösen Titanschäumen in Abhängigkeit von ihrer Porosität. Nach Angaben des Herstellers hat das Titanvlies eine Porosität von 68% [29]. Ein Titansinterkörper mit vergleichbarer Porosität weist linear-elastisches Materialverhalten mit einem E-Modul von ca. 2920 MPa auf. Somit ergeben sich für das hier verwendete Materialmodell mit der Annahme eines ähnlichen Materialverhaltens ein E-Modul zu ca. 2920 MPa in Faserrichtung und ein Schubmodul von 1098 MPa. Aufgrund der mechanischen Belastung in einer Elektrolysezelle ist vordergründig das Kompressionsverhalten (Stauchungsverhalten in z-Richtung) entscheidend, daher ist die Bestimmung der restlichen Materialparameter des transversal-isotropen Materialmodells über poröse Titanschäume und Titansinterkörper ausreichend.

Zur Bestimmung des Materialverhaltens sind die Ergebnisse des oben beschriebenen Kompressionsversuchs sowie das daraus resultierende kompressionsabhängige E-Modul in Abbildung 41 dargestellt. Das E-Modul wurde analog zum Kohlenstoffpapier unter der Annahme linear-elastischen Verhaltens bestimmt.

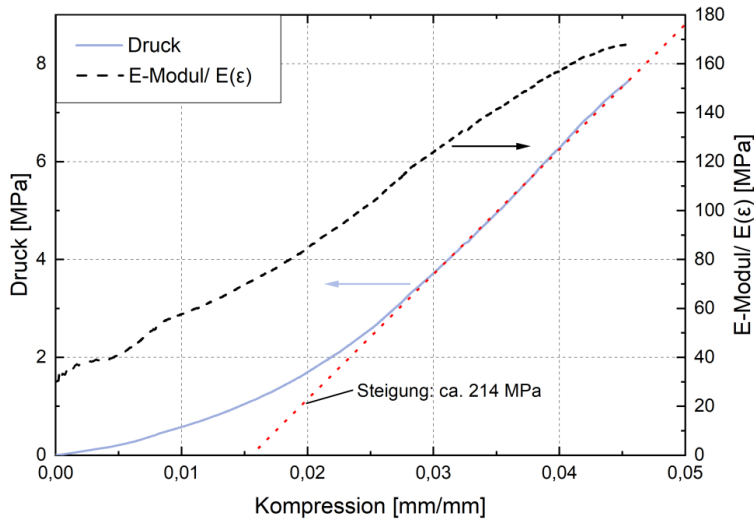


Abbildung 41: Kompressions-Versuch und abgeleiteter, linear-elastischer E-Modul für Titanvlies.

Das Kompressionsverhalten des Titanvlieses ist wie vermutet vergleichbar mit Materialien ähnlicher Faserstrukturen und weist im Bereich geringer Kräfte eine Materialverhärtung auf. Jedoch liegt die gemessene Kompression für die gleiche Druckbeaufschlagung um eine Größenordnung unterhalb der der grafitischen Medien.

Da auch für das Titanvlies für das orthotrope Materialmodell in ANSYS Mechanical ein linear-elastischer E-Modul abgeleitet werden muss und hier die Größenordnung der intendierten Kompressionen nicht bekannt ist, wird für ein erstes Modell der E-Modul des in Abbildung 41 dargestellten linear-elastischen Bereichs von ca. 214 MPa verwendet. Auch dieser Materialparameter wird in Abschnitt 5.2.4 parametrisch untersucht. Da das Titanvlies mit dem wesentlich kompressibleren Kohlenstoffpapier mechanisch in Reihe geschaltet ist, wird vermutet, dass die Materialparameter des grafitischen Materials einen signifikant größeren Einfluss auf das Simulationsergebnis haben.

4.3.2 Membran-Elektroden-Einheit

Die mechanischen Eigenschaften der MEA wurden in der Literatur durch Borgardt [44] in einem Kompressionsversuch mit einem Probenstapel von 12 Proben untersucht. Hierbei wurden von Borgardt [44] Spannungs-Stauchungs-Kurven für die mit Katalysator beschichtete Membran bestimmt. Da die gemessenen Kurven einen linearen Verlauf aufweisen, lässt sich das MEA-Material mit einem isotropen, linear-elastischen Materialmodell beschreiben. In der Versuchsreihe verursacht jede zusätzliche Probe im geprüften Stapel eine Reduktion des E-Moduls um 4 %, sodass dieser Probeneinfluss aus dem berechneten linear-elastischen E-Modul herausgerechnet werden muss. Der Wert für die Querkontraktionszahl von Nafion™

kann den Angaben des Herstellers entnommen werden [118]. Für die MEA werden hier vereinfacht die gleichen Werte angenommen. Die verwendeten Werte sind in Tabelle 7 dargestellt.

Tabelle 7: Verwendete Materialeigenschaften für das isotrope, linear-elastische Materialmodell der MEA.

Eigenschaft	Einheit	Wert
Querkontraktionszahl	-	0,33
E-Modul	MPa	161,24

Die Modellierung des Materialverhaltens der MEA für einen Elektrolysestack kann in Analogie zu Materialmodellen von Brennstoffzellen aus der Literatur durchgeführt werden. Bei der Modellierung von Brennstoffzellen oder Brennstoffzellenstacks kommen ebenfalls linear-elastische Materialmodelle für die MEA zum Einsatz. Beispielwerte für den gewählten E-Modul eines isotropen MEA-Materialmodells sind hier 18,1 MPa [95, 96], 232 MPa [105] oder 200 MPa [102]. In anderen Modellen werden die GDL und MEA zu einem Materialmodell zusammengefasst [101, 103, 106].

Im Zellmodell wird bei der geometrischen Darstellung der CCM auf die Katalysatorschicht verzichtet, da diese sehr dünn ist und die mechanischen Eigenschaften bereits im MEA-Modell enthalten sind.

4.3.3 Dichtungsmaterialien

Polytetrafluorethylen (PTFE)

Die Literaturangaben zum Materialverhalten von Polytetrafluorethylen (PTFE) weisen abhängig vom Hersteller starke Variationen auf. So liegen die angegebenen E-Module zwischen Werten von ca. 350 – 720 MPa [119].

In den Datenblättern vom PTFE-Material des Typs Teflon von DuPont werden Ergebnisse zu Kompressionstests nach der ASTM D695 Prüfnorm gelistet. Für eine Versuchstemperatur von 23°C zeigt sich ein nichtlineares Materialverhalten, bei dem ab einem Kraftwert von 10 MPa die Steifigkeit des Werkstoffes mit zunehmender Belastung abnimmt. In ANSYS Workbench lässt sich dieses Materialverhalten durch eine Plastizität mit der Bezeichnung „multilineare, isotrope Verfestigung“ beschreiben. Im linear-elastischen Bereich wird hierfür ein E-Modul von 670 MPa bestimmt. Die Querkontraktionszahl wird mit einem Zahlenwert von 0,45 den Herstellerangaben entnommen. Die multilineare, isotrope Verfestigung wird dem linear-elastischen, isotropen Materialverhalten hinzugefügt, indem tabellarisch eine spannungsabhängige plastische Verformung des Materials vorgegeben wird [119].

Um den Einfluss des herstellerspezifischen Materialverhaltens genauer zu evaluieren, wurde repräsentativ für die weicheren PTFE-Materialien das in der Datenbank von ANSYS Workbench vorhandene Materialmodell von PTFE verwendet. Dieses wird als linear-elastisches, isotropes Materialmodell mit einem E-Modul von 470 MPa und der Querkontraktionszahl von 0,3 dargestellt [120].

Fluorkautschuk - FKM

Der zur Gruppe der Elastomere gehörende FKM-Werkstoff eignet sich als gutes Beispiel für einen in der Elektrolysetechnik eingesetzten, weichen Dichtungswerkstoff, da dieser eine vergleichsweise hohe Kompressibilität aufweist und deshalb, wie in Abschnitt 2.2.5 angeführt, bereits bei geringem Anpressdruck eine gute Abdichtung gewährleistet. Es wird dementsprechend der kommerzielle FKM-Werkstoffe Viton® mit einer Shore-Härte von 75A des Unternehmens DuPont betrachtet.

Um das hyperelastische Materialverhalten des FKM-Werkstoffes abbilden zu können, stehen in der Materialdatenbank von ANSYS Workbench einige Modelle zum Anpassen von hyperelastischen Versuchsdaten zur Verfügung. Die besten Ergebnisse zur Abbildung der Versuchsdaten von Ellhard et al. [121] wurden hierbei mit dem Curve-Fit für das Yeoh-Modell dritter Ordnung erzielt.

Die für das Yeoh-Modell dritter Ordnung verwendeten Materialparameter sind in Tabelle 8 aufgeführt.

Tabelle 8: Materialparameter für das Yeoh-Modell dritter Ordnung zur Beschreibung des Materialverhaltens von Viton® mit einer Shore-Härte von 75A.

Werkstoff	FKM
Kompressionsmodul K	2800 MPa [121]
Materialkonstante c_{10}	1,0276 MPa
Materialkonstante c_{20}	- 0,021747 MPa
Materialkonstante c_{30}	0,061789 MPa
Inkompressibilitätsparameter d_i	0,000714 MPa ⁻¹

Um das Material hinsichtlich des mechanischen Verhaltens in Kompressionsrichtung mit anderen Materialien vergleichen zu können, hilft eine Betrachtung des E-Moduls in Kompressionsrichtung. Um das FKM-Material um 10% zu dehnen, wird eine Spannung von 0,6 MPa benötigt. Das entspricht einem E-Modul von 6 MPa. Für FKM90 wird dieselbe Dehnung bei 1,45 MPa erreicht, was einem E-Modul von 12 MPa entspricht. Damit liegt der E-Modul um mehr als eine Größenordnung unterhalb dem E-Modul von PTFE und ist

vergleichbar mit den E-Modulen von Kohlenstoffpapier. In der Literatur wurden diverse andere Dichtungsmaterialien mit vergleichbarem kompressiblem Verhalten verwendet, die jedoch mithilfe eines linear-elastischen, isotropen Materialmodells durch ein E-Modul und eine Poissonzahl beschrieben werden [95, 96, 100, 102, 122]. Liang et al. [70] definieren das Materialverhalten des im Modell verwendeten Silikonkautschuks mithilfe eines hyperelastischen Materialverhaltens, basierend auf dem Ansatz der Formänderungsenergie. Diese Ergebnisse werden ebenfalls von Qiu et al. [71] zur Modellierung eines Brennstoffzellenrandbereichs verwendet.

Modellanpassungen

Um eine konvergente Simulation mit diesen Materialien erzielen zu können, muss das in Abschnitt 4.1 beschriebene Modell angepasst werden. Dies ist vor allem mit dem nichtlinearen Verhalten und den vergleichsweise hohen Verformungen des Werkstoffs zu erklären. So wird im Modell mit einer FKM-Dichtung die Dichtungen mit den gleichen Höhen der porösen Materialien angenommen. Weitere Modellanpassungen sind im Anhang J beschrieben.

4.3.4 Sonstige Materialmodelle

Die Materialdatenbank von ANSYS Workbench enthält Materialparameter einiger Materialien, die in den zuvor vorgestellten Modellen zum Einsatz kommen sollen. So wurden die Daten für Edelstahl und Titan der Datenbank [120] entnommen und mit den Herstellerangaben [123] zu den verwendeten Materialien verglichen. Im betrachteten Belastungsfall der Elektrolysetestzellen wird von Belastungen unterhalb der Streckgrenze ausgegangen, sodass von einem isotropen, linear-elastischen Materialverhalten ausgegangen wird. Die drucksensitive Fujifilm-Folie besteht laut Herstellerangaben aus dem Material Polyethylenterephthalat (PET) [108] für welches sich ebenfalls ein repräsentatives Materialmodell der ANSYS Workbench Datenbank entnehmen lässt. Das Materialmodell der Isolationsplatten, bestehend aus Polyetheretherketon (PEEK), sowie des aus Kupfer bestehenden Stromabnehmers sind ebenfalls bekannt [120]. Die Komponenten und die dazugehörigen Materialparameter sind in Tabelle 9 dargestellt.

Tabelle 9: Materialparameter der restlichen Testzell- und Stack-Bauteile [120].

Komponente	Material	Eigenschaft	Einheit	Wert
Endplatten, Schrauben (Zelle+ Stack)	Edelstahl	Dichte	kg/m ³	7900
		Querkontraktionszahl	-	0,27
		E-Modul	MPa	1,98 x 10 ⁵
Flowfield- Platten (Zelle+ Stack)	Titan	Dichte	kg/m ³	4510
		Querkontraktionszahl	-	0,36
		E-Modul	MPa	1,02 x 10 ⁵
Fujifilm-Folie (Zelle)	Polyethylen- terephthalat (PET)	Dichte	kg/m ³	1340
		Querkontraktionszahl	-	0,389
		E-Modul	MPa	2900
Strömungs- verteilerplatte (Stack)	Polyether- etherketon (PEEK)	Dichte	kg/m ³	1310
		Querkontraktionszahl	-	0,4
		E-Modul	MPa	3850
Strom- abnehmer	Kupfer	Dichte	kg/m ³	8940
		Querkontraktionszahl	-	0,345
		E-Modul	MPa	1,25 x 10 ⁵

Die Annahme für den linear-elastischen Bereich muss für alle Materialien anhand der auftretenden/simulierten Spannungen im Endergebnis überprüfend evaluiert werden.

4.3.5 Vereinfachte Materialmodelle

Für den in Abschnitt 4.2 dargestellten Elektrolysestack sollen die zuvor präsentierten Materialmodelle verwendet werden. Den Endplatten und dem Zugankerdummy ist dementsprechend das Materialmodell für Edelstahl zuzuweisen, während die Strömungsverteilerplatte, der Stromstempel und die Dichtung mithilfe der Materialmodelle für PEEK, Kupfer und PTFE abgebildet werden. Da die Randbereiche der Mono- und Bipolarplatte, welche den Zelldummy umfassen, aus Titan bestehen, kann für diese Bauteile das zuvor beschriebene Materialmodell für Titan verwendet werden. Um die mechanische Ähnlichkeit zu den realen Komponenten im aktiven Zellbereich gewährleisten zu können, wurden die zuvor vorgestellten Materialmodelle vereinfacht und zu einem repräsentativen Ersatzmaterial zusammengefasst. So wird für das Titanvlies und Grafitpapier ein repräsentativer E-Modul aus den vorliegenden Daten gewählt. Für das Trennblech wird der E-Modul von Titan verwendet. Der E-Modul des aus Titan bestehenden Streckmetallverbundes wird aufgrund seiner Porosität auf 5100 MPa abgeschätzt. Die Querkontraktionszahl des Streckmetalls wird analog zu seiner dreidimensionalen Struktur, dessen Kompressionsverhalten sich ähnlich zu den hier verwendeten porösen Medien verhält, mit 0

abgeschätzt. Die Querkontraktionszahlen vom Titanvlies und Kohlenstoffvlies können den jeweiligen Abschnitten entnommen werden.

Für die Berechnung des E-Moduls des repräsentativen Materialmodells werden die Materialien als eine Reihenschaltung von Druck-Stäben betrachtet. Zusätzlich wird, wie bereits beschrieben, die Gültigkeit des Hookeschen Gesetzes für alle Körper angenommen, sodass die E-Module jeweils anteilmäßig mit ihrer jeweiligen Höhe in den Kennwert eingehen. Die Querkontraktionszahl des Materialmodells wird ebenfalls entsprechend der einzelnen Querkontraktionszahlen und der anteiligen Höhe der jeweiligen Schichten berechnet. Die genauen Berechnungen sind in Anhang K dargestellt. Die verwendeten Materialparameter für den Zelldummy sind in Tabelle 10 dargestellt.

Tabelle 10: Verwendete Materialparameter für das Ersatzbauteil.

Komponente	Eigenschaft	Einheit	Wert
Zelldummy Monopolarplatte	Querkontraktionszahl	-	0,18
	E-Modul	MPa	272,9
	Höhe	mm	6

An dieser Stelle ist herauszustellen, dass mit dem vorgestellten Ersatzmodell für den Zelldummy das bei einer Einzelzelle untersuchte Kompressionsverhalten des Kohlenstoffpapiers nicht abgebildet und untersucht werden kann. Da es bei dieser mechanischen Modellierung eines Shortstacks jedoch um die Untersuchung eines quadratischen Endplattendesigns gehen soll und das mechanische Verhalten im Zellbereich nicht numerisch genau betrachtet werden soll, ist das hier verwendete Materialmodell hinreichend genau.

5 Evaluation des mechanischen Verhaltens von Elektrolysezellen

In diesem Kapitel soll der Einfluss der Zellkomponenten auf das mechanische Verhalten von Elektrolysezellen untersucht werden. In einer Zero-Gap-Konfiguration wird sowohl die Leistung einer Zelle (vgl. Abschnitt 2.2.3) als auch das Dichtungssystem (vgl. Abschnitt 2.2.5) der Zelle durch den Anpressdruck auf die funktionalen Komponenten beeinflusst. In Abschnitt 5.1 wird das mechanische Verhalten der einzelnen Zellbauteile und des Bauteilverbunds experimentell untersucht. Die experimentellen Ergebnisse sollen ebenfalls zur Validierung des in Abschnitt 5.2 vorgestellten Modells zur Simulation des mechanischen Verhaltens dienen. Mithilfe der Validierung können Annahmen und parametrische Betrachtungen überprüft werden. Ebenso kann durch die Simulation des Messsystems die Methode der drucksensitiven Folien weiter untersucht werden. Da das Messsystem außerdem nur Informationen über die Druckverteilung auf der Ebene der MEA liefert, können aus der Simulation weitere mechanische Informationen abgeleitet werden. Deshalb werden in Abschnitt 5.3 die Ergebnisse des zuvor betrachteten Ersatzsystems (Messsystems) auf ein reales Zellsystem übertragen, um die Auswirkung der mechanischen Auswahl und Auslegung der Komponenten auf die Elektrolysezelle simulieren zu können. Ebenfalls soll gezeigt werden, dass mithilfe simulativer Untersuchungen das mechanische Verhalten von Zelldesigns bestimmt werden kann, ohne das jeweilige Design realisieren zu müssen.

5.1 Experimentelle Untersuchungen des mechanischen Verhaltens von Elektrolysezellen

Zur experimentellen Untersuchung des mechanischen Verhaltens von PEM-Elektrolysezellen, werden die in Abschnitt 3.2 vorgestellten Methoden der drucksensitiven Folien (Fujifilm-Folien) und des piezoresistiven Drucksensors der Firma Tekscan (Tekscan-Sensor) verwendet. Da die entsprechenden Komponenten als zusätzliche Schicht in den Messaufbau gebracht werden müssen, ermöglichen sie nur die Auswertung der flächigen Druckverteilung in einer Schicht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Membran-Elektroden-Einheit (MEA) durch diese Messsysteme ersetzt. Weiterhin soll gezielt die Anpressdruckverteilung auf der Katalysatoroberfläche untersucht werden. Im Folgenden soll die Druckverteilung auf der Zellebene der MEA dazu dienen, Rückschlüsse auf das mechanische Verhalten des Bauteilverbunds zu ziehen. Hierfür soll in Abschnitt 5.1.1 der in Abschnitt 3.1.1 definierte Referenzaufbau betrachtet werden und ausgehend von dem Referenzaufbau der Einfluss einzelner Zellkomponenten auf das mechanische Verhalten der Zelle evaluiert werden.

Dementsprechend wird in Abschnitt 5.1.2 das mechanische Verhalten der krafteinleitenden Komponenten, der Endplatten und der Flowfield-Platten, untersucht. Diese verspannen die Dichtungen und poröse Materialien im Krafthauptschluss (mechanische Reihenschaltung). Da jedoch die Dichtungsmaterialien und poröse Materialien in einer Ebene liegen und somit mechanisch parallelgeschaltet sind, wechselwirken die mechanischen Einflüsse der Materialien. In Abschnitt 5.1.5 wird der mechanische Einfluss der Dichtungen genauer untersucht und einige Dichtungsdesigns in Hinblick auf ihren Einfluss auf die Dichtigkeit der Zelle getestet.

5.1.1 Messungen für den Referenzaufbau

Wie in Abschnitt 3.1.1 dargestellt, wurden beim Referenzaufbau auf der Kathodenseite die Dicke der aus PTFE bestehenden Dichtung so gewählt, dass ein Kohlenstoffpapier der Marke Toray (Toray-GDL) mit einer nominellen Dicke von 350 μm theoretisch um 30% komprimiert wird. Auf der Anodenseite wurde die Dicke der PTFE-Dichtung entsprechend der Dicke des Titanvlieses (PTL) eingestellt und die Membran-Elektroden-Einheit (MEA) wurde mit den Fujifilm-Folien substituiert. Die mittels Fujifilm-Folien gemessene Druckverteilung des Referenzaufbaus ist in Abbildung 42 dargestellt.

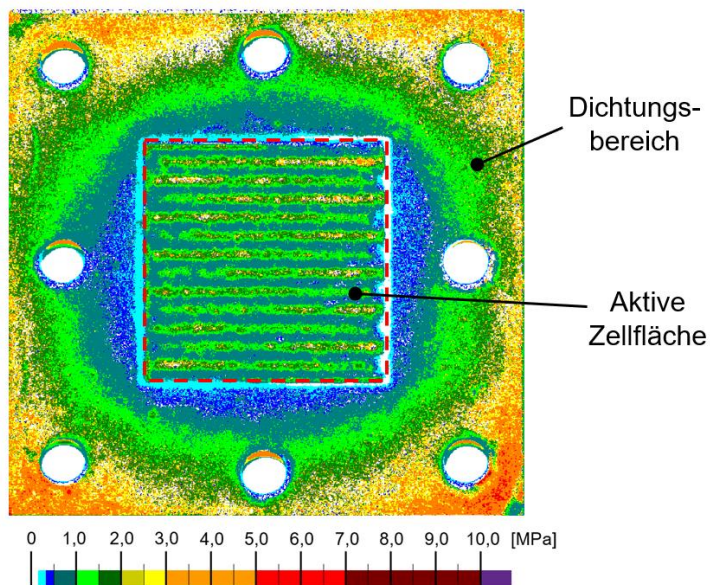


Abbildung 42: Konturbänder der Druckverteilungsmessung des Referenzaufbaus und die flächige Differenzierung zwischen den funktionalen Bereichen der aktiven Zellfläche und des Dichtungsbereichs (gestrichelte Linie).

Die resultierende Druckverteilung lässt sich in zwei Bereiche „aktive Zellfläche“ und „Dichtungsbereich“ unterteilen. Im Dichtungsbereich ist der graduelle Anstieg des Anpressdruckes vom Zellinneren zum Zellrand herauszustellen. Im Bereich um die aktive Zellfläche werden Werte unterhalb von 0,5 MPa detektiert. Der Anpressdruck steigt zirkular bis zur Kante der mittleren Schrauben-Durchgangsbohrungen auf Werte bis zu 1,5 MPa und bis zum Randbereich der Zelle auf Werte zwischen 3 und 5 MPa.

Die Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche grenzt sich von der auf der Dichtungsfläche ab. Entsprechend der Kanal-Steg-Struktur im aktiven Zellbereich ergeben sich Druckbereiche mit Druckwerten von bis zu 3,5 MPa, welche den Flächen unterhalb der Stege zuzuordnen sind. Unterhalb der Kanäle ergeben sich Drücke von ca. 0,5 bis 1 MPa, wobei hier auch ein gradueller Anstieg vom Kanalmittelpunkt bis zum Stegmittelpunkt ansatzweise zu erkennen ist. Zur genaueren Untersuchung der Kraftverteilung auf der aktiven Zellfläche kann die relative Häufigkeitsverteilung der Werte in diesem Bereich herangezogen werden. Diese ist in

Abbildung 43 dargestellt.

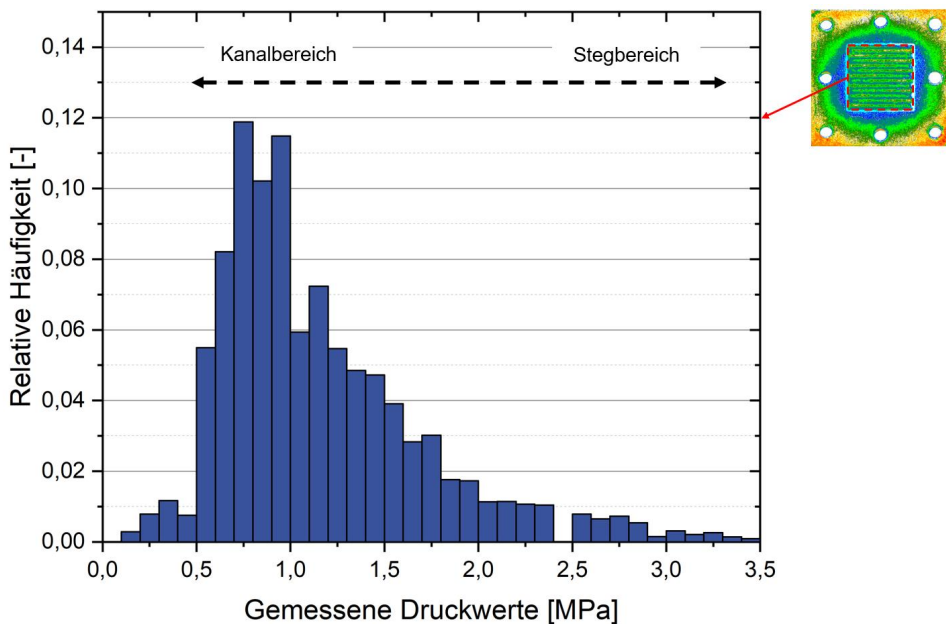


Abbildung 43: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zellfläche des Referenzaufbaus und Zuordnung der Messwerte zum Kanal- und Stegbereich.

Auch in der Häufigkeitsverteilung lassen sich Druckwerte im Kanalbereich von denen im Stegbereich unterscheiden. So steigt die Häufigkeit der gemessenen Drücke von den

Maximalwerten auf der Mitte des Kanals (bis zu 3,5 MPa) bis auf Werte von ca. 0,5 bis 1 MPa im Bereich der Kanalfäche. Der graduelle Anstieg der Kräfte erschwert die Zuordnung einzelner Kraftwerte zum Kanal- und zum Stegbereich.

Die detektierte Druckverteilung resultiert aus den unterschiedlichen Einflüssen der verwendeten Bauteile. Einer dieser Einflüsse ist die Krafteinleitung in die Bauteile. Hier kann zwischen der geometrischen und der zeitlichen Krafteinleitung unterschieden werden. Mit einer geometrischen Krafteinleitung ist in diesem Fall das Einleiten der Kraft über das Verspannen der Testzelle mittels Schrauben über die Endplattengeometrie gemeint. Die von den Schrauben aufgebrachte Klemmkraft wird über Kontaktstellen an den äußeren Rändern der Endplatten und die Flowfield-Platte (FFP) in die Zelle geleitet und über die gesamte gespannte Fläche verteilt. Die Gleichmäßigkeit der Verteilung ist hier von der Biegesteifigkeit der Endplatte bzw. vom Verbund aus Endplatte und FFP abhängig, deren Einfluss im Folgenden weiter untersucht werden soll. Die zeitliche Krafteinleitung soll näher in Abschnitt 5.1.3 betrachtet werden.

5.1.2 Mechanischer Einfluss der Endplatten und Flowfield-Platten.

Um den mechanischen Einfluss von Endplatte und FFP getrennt vom gesamten Zellsystem untersuchen zu können, wurde ein Ersatzmodell betrachtet, bei dem jeweils nur die Endplatten (Abbildung 44 a)) und nur der Verbund aus Endplatten und FFP (Abbildung 44 b)) mit den Schrauben verspannt wurden.

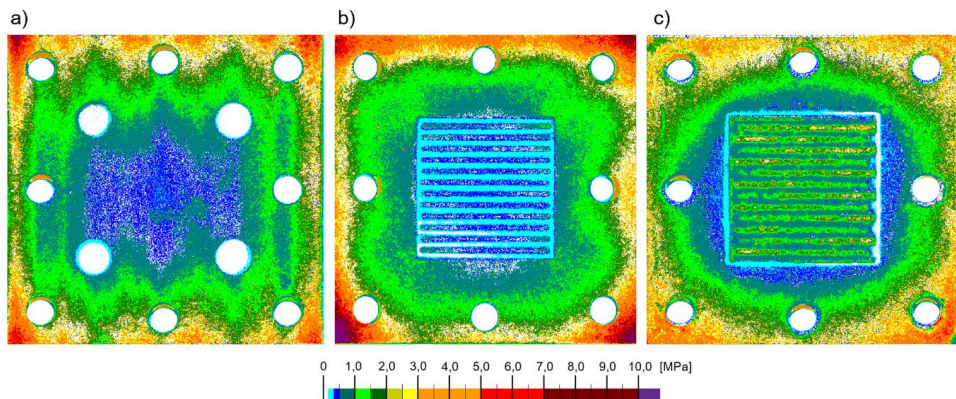


Abbildung 44: Druckverteilungsmessungen mittels drucksensitiver Folien für a) einen Verbund aus zwei Endplatten, b) einen Verbund aus Endplatte und Flowfield-Platte und c) den gesamten Zellaufbau des Referenzaufbaus.

In beiden Ersatzsystemen weist die Druckverteilung einen Gradienten vom Zentrum zum Zellenrand auf. Vergleichbar zum Referenzaufbau liegen die höchsten Drücke im Bereich der Eckschrauben vor, wobei in den Ersatzsystemen die Druckwerte um bis zu 5 MPa höher sind.

Auffällig ist, dass sowohl mit Flowfield-Platte als auch ohne, nur sehr geringe Anpressdrücke von unter 0,5 MPa in der Mitte der Zelle vorliegen. Eine mögliche Schlussfolgerung hieraus kann sein, dass die Endplatte und die Flowfield-Platte eine zu geringe Biegesteifigkeit aufweisen, um in diesem Zellaufbau eine gleichmäßige Kraftverteilung in die Zelle zu gewährleisten. Diese mechanische Insuffizienz von Endplatte und Flowfield-Platte könnte eine mögliche Erklärung für den Anpressdruckgradienten auf der Dichtungsfläche des Referenzsystems sein. Weitere, mögliche Erklärungen sind Oberflächentoleranzen oder Bauteilverformungen, wie beispielsweise eine konkave Verbiegung der Endplatten und der Flowfield-Platte.

Im Referenzaufbau ist die Diskrepanz der Anpressdrücke zwischen der Dichtungsfläche und aktiver Zellfläche zusätzlich verstärkt (s. Abbildung 44 c)). Dies liegt daran, dass sich bei dem Referenzaufbau der Effekt der ungleichmäßigen Kraftverteilung durch die Endplatten und der Effekt der Kompression des Kohlenstoffpapiers überlagern. Zur Untersuchung der Kompression des Kohlenstoffpapiers wird der zeitliche Verlauf der Krafteinleitung im Folgenden untersucht.

5.1.3 Messung des zeitlichen Kompressionsverlaufs

Da eine zeitlich aufgelöste Druckverteilungsmessung mittels der drucksensitiven Folien nicht möglich ist, wurde für eine Messung des zeitlichen Kompressionsverhaltens der Tekscan-Sensor verwendet und die Zelle mithilfe des in Abschnitt 3.2.2 beschriebenen Messaufbaus komprimiert.

Der in Abbildung 45 dargestellte zeitliche Verlauf der Kraftmessung zeigt von Beginn der Messung, bis zum Zeitpunkt T_1 einen identischen Anstieg der Gesamtkraft und der Kraft auf die aktive Zellfläche. Das mithilfe des Sensors aufgezeichnete Bild der Druckverteilung zum Zeitpunkt T_1 zeigt ebenfalls, dass bis zu diesem Zeitpunkt nahezu ausschließlich ein Anpressdruck im Bereich der aktiven Zellfläche gemessen wird. Diese Ergebnisse bestätigen das erwartete Verhalten, dass zunächst die GDL komprimiert wird, bevor die FFP in Kontakt mit der Dichtung treten. Einige geringe Druckwerte werden hier im Bereich der oberen Zellecke gemessen und resultieren aus einem geringen Verkippen der Messvorrichtung während des Assemblierungsvorgangs. Die Kompression des GDL-Materials ist zum Zeitpunkt T_1 noch nicht abgeschlossen, jedoch ereignet sich an diesem Zeitpunkt ein „Knick“ in beiden Kraftverläufen, da aufgrund des Verkippen ein Kontakt der Dichtungsfläche der FFP mit der Dichtung besteht. Somit ist der Krafteintrag ab diesem Zeitpunkt heterogen. Im Bereich nach T_1 steigt somit der Druck im Dichtungsbereich stark an, während die Kraft in der aktiven Zellfläche nur noch langsam ansteigt und den Endwert bereits früher erreicht als die Gesamtkraft. Dieser stationäre Kraftwert auf der aktiven Zellfläche charakterisiert das Erreichen der eingestellten

Kompression. Ab Zeitpunkt T_2 ist der vorgegebene Endwert, welcher durch die Presse vorgegeben wird, erreicht.

Durch die Messung lässt sich gut zeigen, dass zuerst eine Kompression des Kohlenstoffpapiers stattfindet und erst beim Schließen der Lücke zwischen der kathodenseitigen Dichtung und FFP die Kompression der Dichtung beginnt. Somit kann in diesem ersten Zeitabschnitt der Kompression eine gezielte Krafteinleitung auf die aktive Zellfläche erfolgen, die zu einer homogenen Kompression in diesem Bereich führt. Zum Zeitpunkt T_2 lässt sich vergleichbar mit den Fujifilm-Messungen ein Druckgradient auf dem Dichtungsbereich feststellen. Wird die Zelle nun weiter mit Kraft beaufschlagt, so verändert sich der Kraftwert auf der aktiven Zellfläche nicht mehr und die gesamte zusätzliche Kraft wird in die Dichtungsfläche eingeleitet (vgl. Anhang Bild 19). Zu diesem Zeitpunkt der Assemblierung liegt für die porösen Materialien gewissermaßen ein Kraftnebenschluss vor und eine weitere Kompression wird gemindert. Im Aufbau von elektrochemischen Zellen wird dieses auch als „Hard-Stop“ bezeichnet, wobei das Material eines solchen Hard-Stops über einen signifikant höheren E-Modul als die komprimierten Komponenten aufweisen muss. Eine weitere Steigerung der Gesamtkraft führt deshalb lediglich zu einem Anstieg der Kraft auf der Dichtungsfläche, jedoch kaum zu einer Steigerung der Gesamtkraft auf der aktiven Zellfläche. Somit werden die porösen Materialien kaum weiter komprimiert (vgl. Anhang Bild 19).

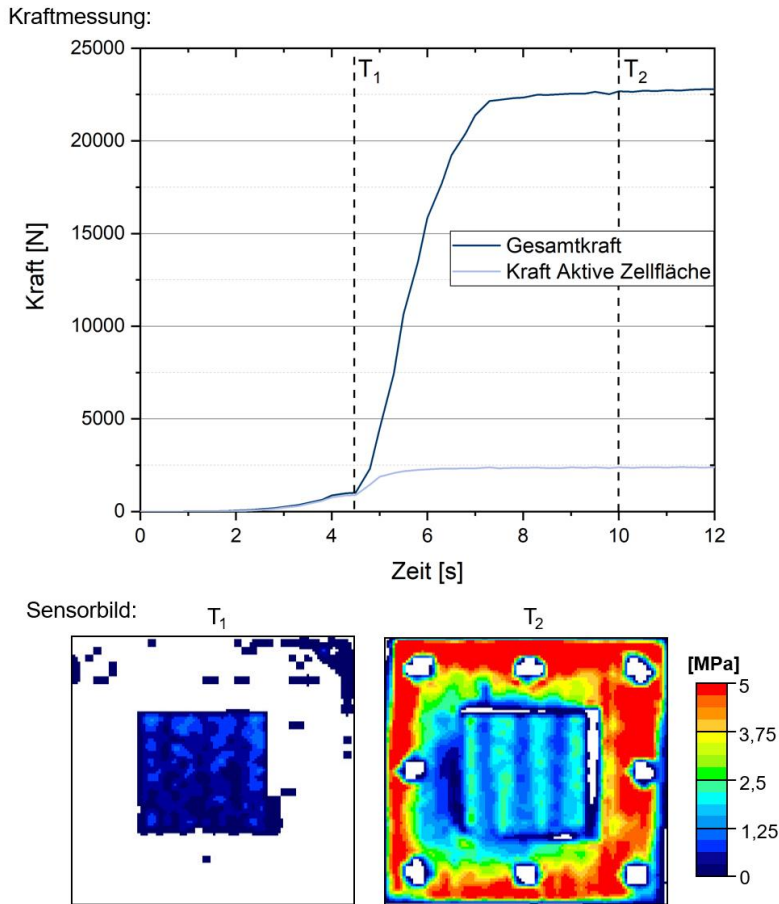


Abbildung 45: Zeitlicher Verlauf der Assemblierung einer Elektrolysetestzelle und einer Druckverteilungsmessung unter Verwendung von piezoresistiven Drucksensoren.

Die mechanische Wechselwirkung zwischen der Dichtung und den porösen Materialien ist dementsprechend entscheidend für die Druckverteilung auf der MEA. Diese hat ebenfalls einen Einfluss auf die Funktionalität der Zelle. Einerseits hat die Kompression und der damit verbundene Anpressdruck einen Einfluss auf die Kontaktwiderstände im Bereich der aktiven Zellfläche und beeinflusst somit ebenfalls die Zelleistung (vgl. Abschnitt 2.2.3). Andererseits steht die Dichtungsleistung des jeweiligen Dichtungssystems im direkten Zusammenhang mit dem Anpressdruck bzw. der Anpresskraft (vgl. Abschnitt 2.2.5). Deshalb soll im Folgenden der mechanische Einfluss auf beide Bereiche der Zelle betrachtet werden.

5.1.4 Untersuchung des mechanischen Einflusses auf die elektrochemische Leistung einer Elektrolysezelle

Zur Untersuchung des mechanischen Einflusses auf die elektrochemische Leistung einer Elektrolysezelle wurde, entsprechend der in Abschnitt 3.3 beschriebenen Versuchsreihe, sowohl die Kompression als auch das Material auf der Kathodenseite variiert. Betrachtet wurde das Kohlenstoffpapier TGP-H-120 von der Firma Toray (Toray-GDL) und das Kohlenstoffvlies H23 der Firma Freudenberg (Freudenberg-GDL), welche sich neben der Ausgangsdicke auch hinsichtlich der mechanischen Eigenschaften unterscheiden. Die gemessenen Kompressionen der einzelnen Messungen entsprachen mit einer Toleranz von ca. $\pm 3\%$ dem eingestellten theoretischen Zielwert. Diese liegt ungefähr im Bereich der Dickentoleranz der einzelnen, verwendeten Materialien.

Zur Untersuchung und Bewertung des elektrochemischen Verhaltens wurden für die unterschiedlichen Zellaufbauten jeweils unterschiedliche Kriterien herangezogen. Einerseits wurden die in Abschnitt 3.3.2 beschriebenen Polarisationskurven (UI-Kennlinien) für die einzelnen Kompressionen gemessen. Andererseits wurden ebenfalls während dieser chronoamperometrischen Messungen die Permeation des Wasserstoffs von der Kathodenseite auf die Anodenseite überwacht. Bei dieser Messung muss für jeden Potentialschritt das gesamte Gasvolumen im anodenseitigen System ersetzt werden, um den korrekten Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff („H₂ in O₂“) messen zu können.

Die aus den Messungen resultierenden Polarisationskennlinien sind in Abbildung 46 dargestellt.

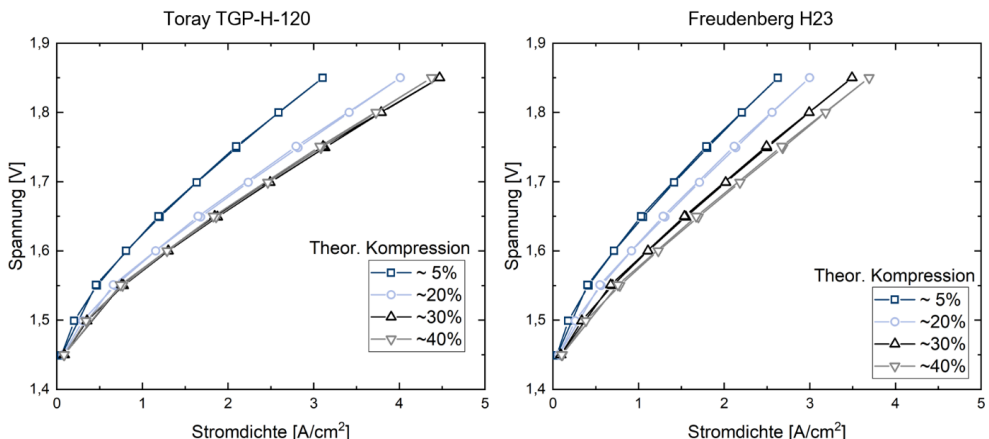


Abbildung 46: Polarisationskurven für unterschiedliche theoretische Kompressionen unterschiedlicher kathodenseitiger GDL-Materialien bei einer Versuchstemperatur von 80°C, einem atmosphärischen Betriebsdruck und einer Durchflussrate von 100 ml/min. Links: Toray TGP-H-120; Rechts: Freudenberg H23.

Die Diagramme zeigen für beide Materialien mit steigender theoretischer Kompression eine steigende Stromdichte bei konstanten Potentialwerten. Das kompressionsabhängige Verhalten beider Materialien unterscheidet sich hier jedoch sichtbar. Für die Toray-GDL ist keine zusätzliche Steigerung der Stromdichte mit einer Kompression über 30% zu verzeichnen. Im Gegensatz dazu steigt bei der Freudenberg-GDL die Stromdichte kontinuierlich mit zunehmender Kompression. Insgesamt sind jedoch die Kurvenverläufe für die Kompression der Toray-GDL flacher als für die der Freudenberg-GDL, was bedeutet, dass für diese Versuchsreihe die erreichte Zelleistung im Aufbau mit einer Toray-GDL höher liegt als mit einer Freudenberg-GDL. So werden bei gleichen Potentialen mit der Toray-GDL höhere Stromdichten erzielt. In Tabelle 11 ist exemplarisch die Stromdichte bei einem Zellpotential von 1,75 V für die unterschiedlichen theoretischen Kompressionen und GDL-Materialien dargestellt. Für die untersuchten Kompressionswerte liegt die Stromdichte für die Toray-GDL über den Werten der Freudenberg-GDL. Besonders auffällig ist, dass die Stromdichte bei einer 20-prozentigen Kompression der Toray-GDL bereits größer ist als die Stromdichte aller Freudenberg-GDL-Messungen. Dieses Verhalten kann jedoch nicht auf den mittleren Anpressdruck der einzelnen Aufbauten zurückgeführt werden, da für beide Kohlenstoffmaterialien vergleichbare Anpressdrücke für die gleiche theoretische Kompression erzielt werden. Der mittlere Anpressdruck wurde ebenfalls mithilfe der Fujifilm-Messmethode bestimmt.

Tabelle 11: Mittlerer Anpressdruck und Stromdichte bei 1,75 V der betrachteten GDL-Materialien in Abhängigkeit der theoretischen Kompressionen.

Theor. Kompression [%]	Mittlerer Anpressdruck [MPa]		Stromdichte bei 1,75 V [A/cm ²]	
Zielwert	Toray TGP-H-120	Freudenberg H23	Toray TGP-H-120	Freudenberg H23
5	0,38	0,38	2,1	1,8
20	0,81	0,63	2,82	2,13
30	1,23	1,13	3,13	2,5
40	1,9	1,9	3,13	2,67

Wie in Abschnitt 2.2.2 dargestellt, ist der Kontaktwiderstand der porösen Materialien zu den angrenzenden Geometrien abhängig vom Anpressdruck. Wie in Tabelle 11 dargestellt, verhält sich der mittlere Anpressdruck in dem hier dargestellten Aufbau proportional zur Kompression, sodass die Kompression ebenfalls einen Einfluss auf die Kontaktwiderstände hat. In der elektrochemischen Zelle haben die Kontaktwiderstände einen Einfluss auf den ohmschen Widerstand der Zelle, welche den Kurvenverlauf der Polarisationskurven im sogenannten ohmschen Bereich maßgeblich beeinflussen (vgl. Abschnitt 2.1). Über die Steigung in diesem

Bereich kann der spezifische Widerstand der elektrochemischen Zelle charakterisiert werden. Der ohmsche Widerstand einer elektrochemischen Zelle lässt sich ebenfalls, wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben, durch impedanzspektroskopische Messungen bestimmen. Die aus den EIS-Messungen bestimmten Hochfrequenzwiderstände (HFR) geben ebenfalls Rückschluss über den spezifischen ohmschen Widerstand. Die aus den Polarisationskurven und dem HFR bestimmten spezifischen Widerstände der jeweiligen Versuchsreihen sind in Abbildung 47 dargestellt.

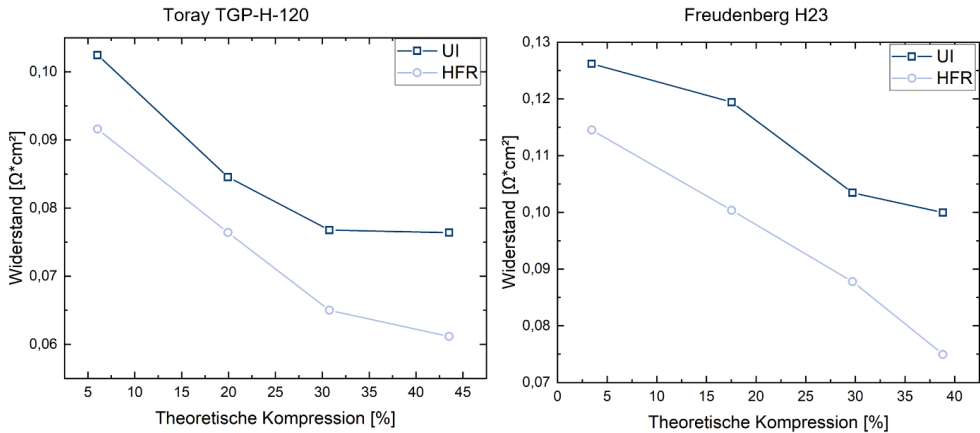


Abbildung 47: Kompressionsabhängige spezifische Widerstände bestimmt mittels Polarisationskurve und HFR.

Die mittels EIS-Messung bestimmten spezifischen Widerstände zeigen für beide Materialien einen ähnlichen Trend wie die aus den Polarisationskurven bestimmten spezifischen Widerstände. So fällt der ohmsche Widerstand der Zelle mit zunehmender Kompression. Weiterhin sind die für den Freudenberg-Zellaufbau bestimmten HFR höher als die für die Toray-GDL bei vergleichbaren Kompressionen. Der gemessene ohmsche Widerstand hängt dementsprechend nicht ausschließlich vom mittleren Anpressdruck ab.

Während der Bestimmung der Polarisationskurven, dargestellt in Abbildung 46, wurde der Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff (H_2 in O_2) gemessen. Die Ergebnisse der Messungen

des Wasserstoffvolumenanteils und damit auch der Wasserstoffpermeation durch die Membran sind in Abbildung 47 dargestellt.

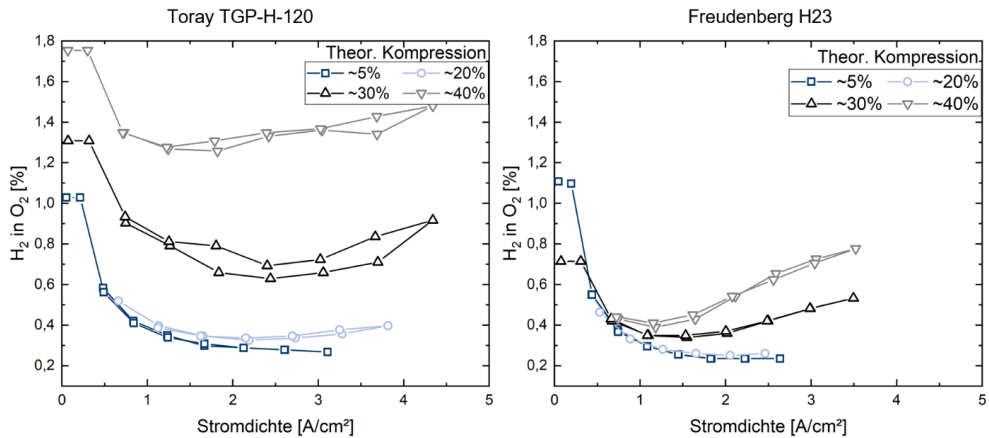


Abbildung 48: Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoffvolumen der Anode in Abhängigkeit von der Stromdichte und der theoretischen Kompression unterschiedlicher kathodischer GDL-Materialien. Rechts: Toray TGP-H-120; Links: Freudenberg H23.

Bei niedrigen Stromdichten, bei denen nur wenig Sauerstoff produziert wird, permeiert nur eine geringe Menge Wasserstoff von der Kathode zur Anode. Diese Wasserstoffmenge hängt hauptsächlich von der Membrandicke und dem Partialdruck ab [45, 124]. Folglich ist die Wasserstoffkonzentration im Sauerstoff umso höher, je weniger Sauerstoff produziert wird oder je geringer die Stromdichte ist. Bei höheren Stromdichten und höheren theoretischen Kompressionen steigt der Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff.

Der gesamtheitliche Verlauf der beiden Messungen unterscheidet sich jedoch deutlich. Für das Freudenberg-Material fällt der Wasserstoffvolumenanteil aller Messungen von den anfänglich hohen Volumenanteilen bis zu einer Stromstärke von ca. $1,25 \text{ A/cm}^2$ auf ein vergleichbares Niveau und fällt oder steigt mit zunehmenden Stromstärken entsprechend der Kompression. Das Verhalten von steigenden Wasserstoffvolumenanteilen bei höheren Stromdichten deckt sich qualitativ mit den Ergebnissen von Stähler et al. [45], die ebenfalls ein Kohlenstoffvlies in ihren Messungen verwenden. Ebenso deckt sich die Erkenntnis des nichtlinearen Zusammenhanges zwischen den permeierten Wasserstoffvolumenströmen und der Stromdichte in Abhängigkeit von der Kompression.

Für das Toray-Material hingegen steigen die Wasserstoffvolumenanteile im Produktsauerstoff mit einer theoretischen Kompression über 20% gesamtheitlich an und für höhere Kompressionen stellt sich ein qualitativ unterschiedlicher Kurvenverlauf ein. Folglich kann vermutet werden, dass die unterschiedlichen Materialien in den Aufbauten einen

unterschiedlichen Einfluss auf die Wasserstoffpermeation haben. Dieser Einfluss kann nicht ausschließlich mit der Kompression bzw. dem mittleren Anpressdruck erklärt werden.

Diese Erkenntnisse decken sich mit den Erkenntnissen aus den Polarisationskurven und aus den EIS-Messungen.

Um den Einfluss des unterschiedlichen Materialverhaltens und der unterschiedlichen Kompressionen auf das mechanische Verhalten qualitativ und quantitativ evaluieren zu können, wurde die bereits zuvor beschriebene Fujifilm-Methode verwendet.

In Abbildung 49 und Abbildung 50 sind die Druckverteilungen für die Toray-GDL und die Freudenberg-GDL-Versuchsreihe dargestellt. Beide Versuchsreihen verdeutlichen die zuvor beschriebenen mechanische Wechselwirkung zwischen der Dichtung und GDL. Da mit steigender Kompression des GDL-Materials höhere Anpressdrücke auf der aktiven Zelloberfläche gemessen werden, entfällt auch ein größerer Anteil der Gesamtkraft auf diesen Bereich. Insgesamt nimmt deshalb die Kraft auf der Dichtungsfläche ab. Qualitativ auffällig ist die Veränderung des Anpressdruckgradienten auf der Dichtungsfläche. Mit zunehmender Kompression werden geringere Anpressdrücke angrenzend zur aktiven Zelloberfläche detektiert, was zu Problemen bei der Abdichtung der Zelle führen könnte.

Im aktiven Zellbereich wird mit der Steigerung der Kompression die Kanal-Steg-Struktur des Flowfields stärker hervorgehoben, wobei die Abgrenzung zwischen Kanal- und Stegbereich für das Freudenberg-Material signifikanter ist als für das Toray-Material. Um dieses Verhalten quantitativ genauer zu evaluieren, ist in Abbildung 51 die relative Häufigkeitsverteilung auf der aktiven Zelloberfläche für beide Versuchsreihen dargestellt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde eine Liniendiagrammdarstellung gewählt, bei der die Linien als Approximation des Werteverlaufs über den gesamten Wertebereich verwendet werden. Die Aufpunkte der Linien sind dabei jeweils der Mittelwert des betrachteten Wertebereichs und der dazugehörigen relativen Häufigkeit von Werten innerhalb dieses Wertebereichs.

Erwartungsgemäß steigen mit zunehmender Kompression die gemessenen Druckwerte. Bei der Toray-GDL steigen die Drücke bis auf 5 MPa und bei der Freudenberg-GDL steigt der Druck bis auf 5,5 MPa bei einer theoretischen Kompression von 40%. Die maximalen Werte der einzelnen Messungen sind hierbei den Stegbereichen zuzuordnen. Wobei die Druckwerte hier bei der Freudenberg-GDL, wie in Abbildung 50 zu sehen, durch eine ungleichmäßige Druckverteilung auf dem Stegbereich stärker gestreut werden. Generell entspricht dieses dem aus der Literatur bekannten Materialverhalten. Irmscher [21] zeigt, dass das Freudenberg-Material eine geringere Kompressibilität aufweist als das Toray-Material, weshalb für das Kohlenstoffvlies die gemessenen Druckwerte auf den Stegbereichen die des Kohlenstoffpapiers übersteigen. Die ungleichmäßigere Druckverteilung für das Freudenberg-

Material könnte mit der geringeren Dicke des Materials zusammenhängen. Durch die geringere Ausgangsdicke des Freudenberg-Materials stellen die Bauteiltoleranzen sowie Dickenverteilungen innerhalb des Materials einen größeren relativen Anteil am gesamten Kompressionsweg dar, als dies bei einem dickeren Material der Fall wäre.

Deutlich abgrenzen von den Druckwerten auf den Stegbereichen lassen sich die Werte, welche in den Kanalbereichen detektiert werden. Diese variieren abhängig von der Kompression bei der Toray-GDL von 0,15 MPa bis zu ca. 1,5 MPa. Bei der Freudenberg-GDL ist die Streuung geringer und die Druckwerte liegen zwischen 0,15 MPa und 0,85 MPa. Somit ist die Druckverteilung der Freudenberg-GDL im Kanalbereich weniger abhängig von der Kompression als die der Toray-GDL. Dieses Verhalten könnte sich durch die Biegesteifigkeit oder das Schubmodul der beiden Kohlenstoffmaterialien erklären lassen. Nach Kleemann et al. [30] sind sowohl die Biegesteifigkeit als auch der Schubmodul der Toray-GDL 2- bis 5-mal höher als die der Freudenberg-GDL. Diese Aussage lässt sich beim praktischen Umgang mit beiden Materialien bestätigen.

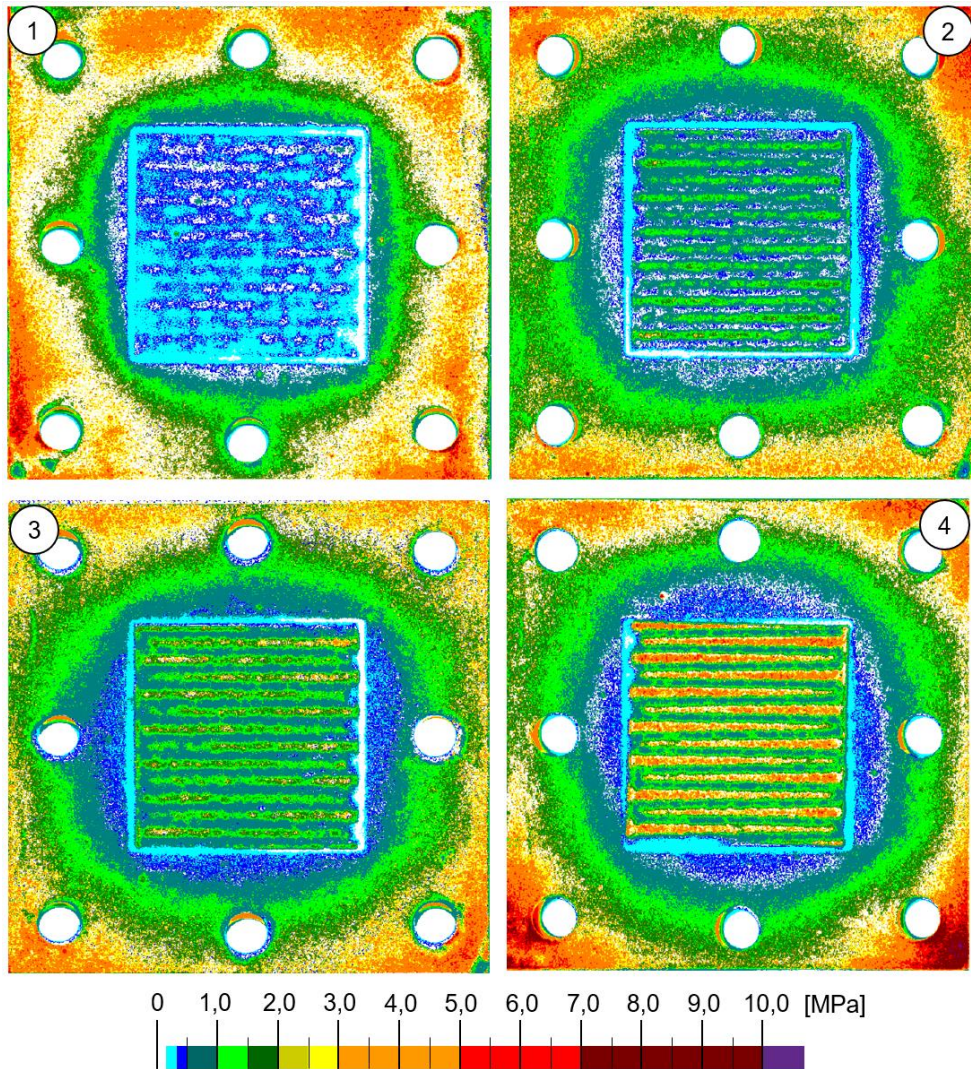


Abbildung 49: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen eines Zellaufbaus mit unterschiedlichen theoretischen Kompressionen der Toray-GDL: 1) ca. 5%; 2) ca. 20%; 3) ca. 30 %; 4) ca. 40%.

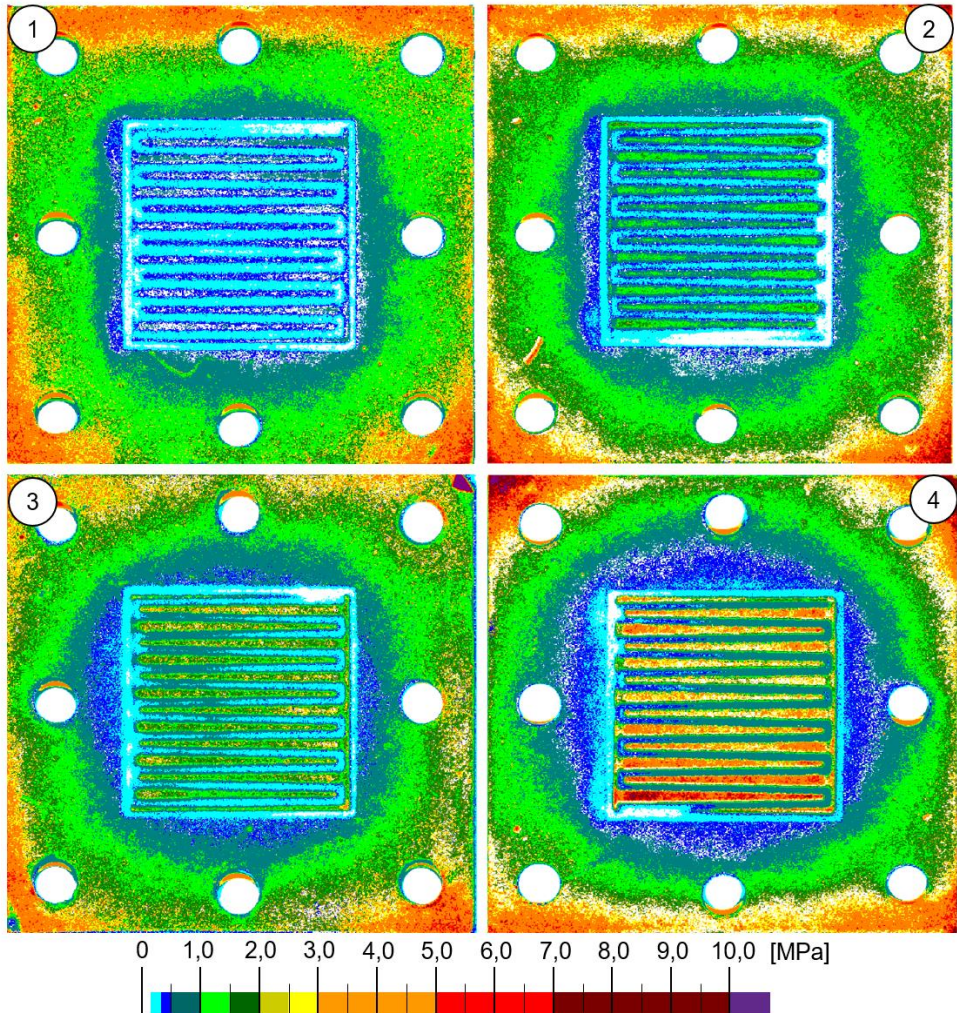


Abbildung 50: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen eines Zellaufbaus mit unterschiedlichen theoretischen Kompressionen der Freudenberg-GDL: 1) ca. 5%; 2) ca. 20%; 3) ca. 30 %; 4) ca. 40%.

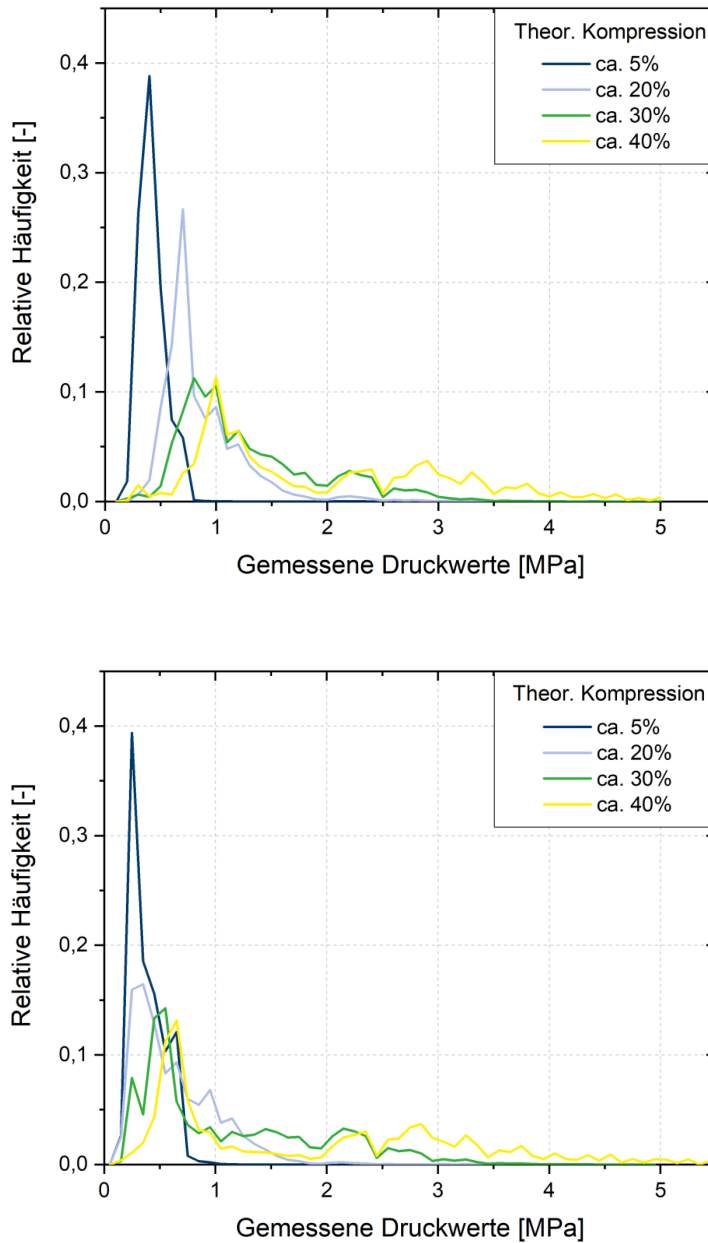


Abbildung 51: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Drücke auf der aktiven Zellfläche bei unterschiedlichen theoretischen Kompressionen und unterschiedlichen Materialien. Oben: Toray; Unten: Freudenberg.

Um die Analyse zu verdeutlichen, ist in Abbildung 52 die Druckverteilung für den Referenzfall einer 30-prozentigen theoretischen Kompression der Toray-GDL und der Freudenberg-GDL vergleichend dargestellt. Die Darstellung bestätigt die Beobachtung, dass für die Freudenberg-

GDL eine geringfügig höhere Anzahl an Druckwerten im Bereich des Steges zu messen sind und für die Toray-GDL höhere Druckwerte im Kanalbereich vorliegen. Somit sind insgesamt die Druckwerte des Freudenberg-Materials breiter gestreut und es liegen im Bereich des Kanals nur geringe Anpressdrücke vor. Die realen Werte im Kanalbereich könnten nach den Erkenntnissen aus Abschnitt 3.2.3 bedingt durch das Stapeln der Fujifilm-Folien geringer als die gemessenen Werte sein. Dies kann in Hinblick auf den Einfluss des Anpressdrucks auf den Kontaktwiderstand zwischen dem GDL-Material und der Katalysatorschicht (vgl. Abschnitt 2.2.2) durchaus relevant für die lokalen ohmschen Verluste sein.

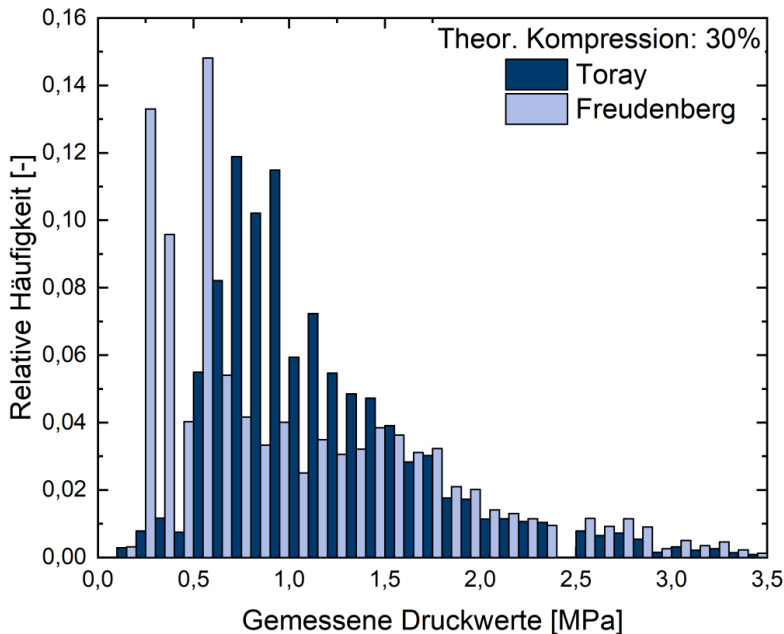


Abbildung 52: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Drücke auf der aktiven Zelloberfläche für eine theoretische Kompression des Freudenberg- und des Toray-Materials.

Insgesamt lassen die Ergebnisse darauf schließen, dass neben dem mittleren Anpressdruck bzw. der Kompression, auch die Verteilung der Drücke einen Einfluss auf die Zelleistung haben. Da bereits in der Literatur eine Anpressdruckabhängigkeit des Kontaktwiderstands zwischen der MEA und GDL beschrieben wird, lassen die hier beschriebenen Messungen die Vermutung zu, dass die Höhe und die Verteilung der Druckwerte auf dem Kanal- und Stegbereich einen Einfluss auf die gemessene Stromdichte haben. Die geringere Biegesteifigkeit und der geringere Schubmodul der Freudenberg-GDL könnten im Kanalbereich zu geringeren Anpressdrücken und somit zu erhöhten Kontaktwiderständen in diesem Bereich führen. Ebenfalls wird mit zunehmender Kompression des GDL-Materials,

verglichen mit der Toray-GDL, der Anpressdruck in diesem Bereich nur im geringen Maße gesteigert, was die Ursache für den wesentlich geringeren Anstieg in der Stromdichte sein könnte. Weiterhin führt die gleichmäßigere Kompression auch zu einer einheitlicheren Verdichtung der Porenstruktur der GDL-Materialien, was potentiell zu erhöhten Wasserstoffkonzentrationen in der Membrannähe führen könnte. Außerdem zeigt Irmischer [21], dass für Druckwerte zwischen 2 und 4 MPa die Fasern des Kohlenstoffpapiers brechen, während das Kohlenstoffvlies vergleichsweise unbeschädigt bleibt. Diese Schädigung der Struktur könnte ebenfalls den Stofftransport in der porösen Struktur beeinflussen und somit ebenfalls die Wasserstoffkonzentrationen in der Membrannähe erhöhen. Zusätzlich wird die Membran gleichmäßiger komprimiert, sodass sich flächendeckend geringere Diffusionswege über die Membran ergeben könnten. Wird nun ebenfalls mehr Wasserstoff unter den Kanalbereichen gebildet, da hier die elektrische Kontaktierung verbessert ist, könnte sich ein größeres Wasserstoffvolumen in diesem Bereich ansammeln. Diese Effekte könnten sich überlagern und zu dem unterschiedlichen Wasserstoff-Crossover der GDL-Materialien führen.

Somit könnte hieraus eine Optimierungsproblematik hinsichtlich der Anpressdruckverteilung entstehen. Eine Erhöhung des gesamten Anpressdrucks führt zu erhöhten Stromdichten bei gleichzeitiger Steigerung der Wasserstoff-Crossover auf der Anodenseite. Da ein Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoff von 2% häufig als kritisches Sicherheitskriterium definiert wird (50% der unteren Explosionsgrenze), muss somit die Permeation begrenzt werden. Andererseits ergibt sich bei der Toray-GDL kein signifikanter Anstieg der Stromdichte bei Kompressionen über 30%, sodass hier die Zunahme der Permeation mit keiner verbesserten Zelleistung aufgewogen wird. Weiterhin führt das steifere GDL-Material (Toray-GDL) zu einer verbesserten Zelleistung, sodass ebenfalls eine homogenere Druckverteilung erstrebenswert sein könnte. Dementsprechend könnte ebenfalls die krafteinleitende Flowfield-Struktur hinsichtlich der Druckverteilung weiter optimiert werden (vgl. Abschnitt 5.3.3).

Weiterhin lässt sich durch die Messungen herausstellen, dass weder die theoretische Kompression noch der mittlere Anpressdruck eine ausreichende Information hinsichtlich der elektrischen Kontaktierung der GDL liefern. Die hier vorgestellte Methode der lokal aufgelösten Druckverteilung lässt somit auch Rückschlüsse über lokal unterschiedliche Kontaktwiderstände zu.

Ebenfalls wurde eine Veränderung der Anpressdruckverteilung auf dem Dichtungsbereich festgestellt. Diese hat potentiell auch einen Einfluss auf die Dichtigkeit der Zelle. Um den Einfluss der Zellmechanik auf die Dichtungsfläche und der damit verbundenen Dichtungsleistung zu untersuchen, soll im Folgenden die theoretische Kompression des GDL-Materials, entsprechend dem Referenzaufbau, mit 30% eingestellt werden.

5.1.5 Mechanische Untersuchung von Dichtungen einer Elektrolysezelle

Wie in Abschnitt 2.2.5 beschrieben, hängt die Dichtungsleistung von Flachdichtungen maßgeblich vom Anpressdruck ab, welcher auf die Dichtungsfläche aufgebracht wird. Aus diesem Grund ist die Druckverteilung auf der Dichtungsfläche ein wichtiges Indiz für die Auslegung und Evaluation eines Dichtungssystems. Wird der in Abschnitt 3.1.1 definierte Referenzaufbau als vergleichender Standardfall angenommen, so sind für die Dichtigkeit die Druckwerte im Dichtungsbereich zwischen der aktiven Zellfläche und den Durchgangsbohrungen für die Schrauben relevant. Hier liegen maximale Anpressdrücke von bis zu 1 MPa vor (vgl. Abbildung 53 a)). Um eine Dichtigkeit der Zelle zu erzielen, ist ebenfalls eine homogene Anpressdruckverteilung entscheidend, da eine Leckage sich stets an der „schwächsten Stelle“ ereignet.

Die Dichtigkeit des Referenzaufbaus wurde gemäß dem in Abschnitt 3.4 beschriebenen Druckversuch getestet. Dabei wurde der Referenzaufbau der Elektrolysetestzelle mit Drücken von 2 bis 15 bar Überdruck beaufschlagt und ein unmittelbarer Druckabfall auf atmosphärischem Druckniveau registriert. Somit war keine Leckagerate zu ermitteln. Dementsprechend ist das Dichtungskonzept des Referenzaufbaus ungeeignet, um einen Druckbetrieb zu gewährleisten und kann für die hier dargestellten Untersuchungen zum Dichtungsverhalten der Elektrolysetestzelle nur bedingt als Referenz dienen. Weiterhin kann festgehalten werden, dass der vorhandene Zellaufbau nicht für Drücke oberhalb eines atmosphärischen Druckniveaus geeignet ist.

Eine Möglichkeit, um die Dichtwirkung des Flachdichtungsdesigns zu erhöhen, ist die Wahl eines Dichtungsmaterials, welches bereits bei geringen Anpressdrücken eine hohe Dichtigkeit erzielt. Wenn das gleiche Material beibehalten werden soll, so besteht die Möglichkeit, die Leckagerate durch höhere Anpressdrücke zu reduzieren. Herauszustellen ist hierbei, dass das Dichtungsdesign spezifisch auf das in dieser Arbeit verwendete Elektrolysezellendesign angepasst wurde und somit nur ein gewisses Maß der Allgemeingültigkeit für andere Dichtungsgeometrien abgeleitet werden kann und somit für jede Elektrolysezellgeometrie eine separate Betrachtung erfolgen sollte.

Eine Möglichkeit den Anpressdruck auf die Dichtung bei gleichbleibendem Drehmoment bzw. gleichbleibender Klemmkraft der Schrauben zu erhöhen, ist die Reduktion der Dichtungsfläche. In Abbildung 53 ist der Einfluss einer sukzessiven Verringerung der Dichtungsfläche auf die Anpressdruckverteilung dargestellt. Wie zu erwarten, steigen mit der verringerten Fläche die Drücke über den gesamten Dichtungsbereich. Bei dem in b) dargestellten Dichtungsdesign wird jedoch der Anpressdruck in den Schraubenbereichen am stärksten erhöht und der Anpressdruck im relevanten Dichtungsbereich ist weiterhin nicht ausreichend für das PTFE-Dichtungsdesign. Aus diesem Grund wurde in c) die

Dichtungsfläche weiter verringert und auf den relevanten Dichtungsbereich begrenzt. Hierdurch konnte der Druck auf der Dichtung weiter erhöht werden. Die in c) dargestellte Dichtungsgeometrie wurde deshalb für die nachfolgenden Dichtigkeitstests als Aufbau mit „verringelter Dichtungsfläche“ bezeichnet.

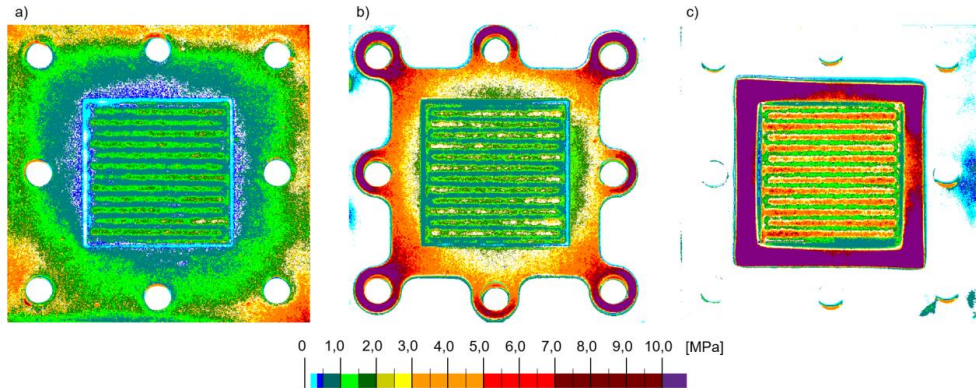


Abbildung 53: Konturbänder der Druckverteilungen der verwendeten Dichtungsdesigns. a) Referenzaufbau, b) reduziertes Dichtungsdesign Nr. 1, c) reduziertes Dichtungsdesign Nr. 2.

Eine weitere Möglichkeit den Anpressdruck auf den Dichtungsbereich zu erhöhen, ist die Steigerung der über die Schrauben aufgebrachten Klemmkraft. In Abbildung 54 ist in a) die Druckverteilung für einen Aufbau dargestellt, in dem alle Schrauben mit einem Drehmoment von 10 Nm angezogen wurden, während im Referenzaufbau 4 Nm verwendet wurden. Durch die Steigerung der Gesamtkraft um mehr als 300% wird ebenfalls der gesamte Anpressdruck auf der Dichtungsfläche erhöht. Die Steigerung der Anpressdrücke im relevanten Dichtungsbereich ist jedoch geringer als durch die Reduktion der Dichtungsfläche und durch den geometrischen Aufbau ergibt sich weiterhin eine ungleichmäßige Anpressdruckverteilung. Eine weitere Steigerung der Schraubenkräfte ist durch die Streckgrenze der Schrauben begrenzt. Der in a) dargestellte Aufbau wird in nachfolgenden Dichtigkeitstests als „erhöhtes Drehmoment (10 Nm)“ bezeichnet.

Der dritte Parameter, welcher im Rahmen dieser Arbeit betrachtet werden soll, ist eine Veränderung des Dichtungsmaterials. Für diese Versuchsreihe wurde eine silikonbasierte Dichtung der Firma Laufenberg verwendet, da klassische Elastomere wie FKM nicht in den notwendigen Schichtdicken kommerziell verfügbar sind. Silikone sind kompressibler als die zuvor verwendete PTFE-Dichtung, und weisen dementsprechend ein geringeres E-Modul und Kompressionsmodul auf. Für die Versuchsreihe wurde ein Silikonmaterial mit einer Dichtungsdicke von 250 μm verwendet, was der Dichtungsdicke der PTFE-Dichtung aus dem Referenzaufbau entspricht. Die Druckverteilung des Aufbaus mit dem Silikonmaterial ist in

Abbildung 54 b) dargestellt und wird in dieser Versuchsreihe als Aufbau mit „verringertem E-Modul“ bezeichnet.

Es ist zu erkennen, dass sich auch mit dem kompressibleren Dichtungsmaterial für die untersuchten Testzellgeometrien eine ungleichmäßige Druckverteilung ergibt und in dem relevanten Dichtungsbereich zwischen dem aktiven Zellbereich und zwei der Schraubendurchgänge nur Anpressdrücke unterhalb von 1,5 MPa erreicht werden. Obwohl ansonsten keine weiteren Parameter, wie das Drehmoment der Schrauben, geändert wurden und derselbe Zellaufbau verwendet wurde, ergibt sich insgesamt eine Steigerung der Gesamtkraft um ca. 30% im Vergleich zum Referenzaufbau. Ob dieses Verhalten durch die Messmethode, die Inkonsistenz der Schraubenkräfte oder durch das Dichtungssystem verursacht wurde, kann mit dem vorliegenden Testaufbau nicht eindeutig bestimmt werden. Jedoch ergeben sich für den relevanten Dichtungsbereich insgesamt deutlich geringere Anpressdrücke als bei den Aufbauten mit verringerter Dichtungsfläche und erhöhtem Drehmoment.

Abschließend ist für die Druckverteilung aller drei Dichtungsaufbauten ein erhöhter Druck auf dem aktiven Zellbereich zu verzeichnen, was ebenfalls auf eine erhöhte Kompression schließen lässt. Dies ist für die kompressiblere Silikondichtung erwartungsgemäß. Jedoch ist es ebenfalls ein Indiz dafür, dass die PTFE-Dichtung bei höheren Anpressdrücken (über 10 MPa im äußeren Bereich) signifikant gestaucht wird.

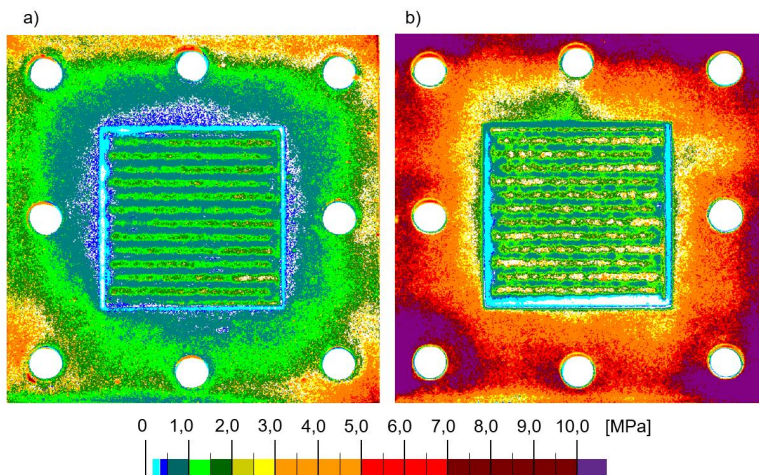


Abbildung 54: Konturbänder der Anpressdruckverteilung für unterschiedliche Dichtungssysteme. a) Dichtungssystem mit erhöhtem Drehmoment; b) Dichtungssystem mit Silikondichtung zur Realisierung eines geringeren Dichtungs-E-Moduls.

Die drei vorgestellten Änderungen des Dichtungssystems wurden mit dem in Abschnitt 3.4 vorgestellten Aufbau zur Überprüfung des Druckabfalls auf die jeweilige Dichtigkeit überprüft,

die Ergebnisse sind in Abbildung 55 dargestellt. So wurden alle drei Zellaufbauten mit einem Druck von ca. 8,5 bar beaufschlagt und der Druckabfall über die Zeit detektiert.

Alle drei Dichtungssysteme zeigen einen geringeren Druckabfall über die Zeit als der Referenzaufbau, sodass alle zu einer verbesserten Dichtungsleistung beitragen. Der Druckabfall für die verringerte Dichtungsfläche ist am geringsten, während für den Aufbau mit gesteigertem Drehmoment und dem verringerten E-Modul in den ersten Minuten der Messung ein vergleichsweise stärkerer Druckabfall detektiert wird. Für alle Aufbauten strebt der Druck asymptotisch gegen einen Druckwert um ca. 0,8 bar. Im Gegensatz zu den Messungen mit den PTFE-Dichtungen, wird ein quasistationärer Zustand für die Dichtung mit verringertem E-Modul bereits schneller erreicht. Der Druckverlauf kann folglich in zwei Bereiche unterteilt werden. Im ersten Bereich des Druckabfalls wird der Gradient durch die Menge des ausströmenden Gases bestimmt. Liegt eine ungleichmäßige Verteilung im Anpressdruck der Dichtung vor, so ergeben sich mehrere kleine Leckagestellen oder eine größere Leckagestelle, welche einen größeren Stoffmengenstrom nach außen verursachen. Aufgrund einer gleichmäßigen Verteilung des Anpressdrucks ist somit der Druckabfall für die reduzierte Dichtungsfläche kleiner. Der zweite Bereich ist der stationäre Bereich, in dem sich die Druckverläufe asymptotisch nähern. Dieser Bereich wird durch die materialspezifischen Dichtungseigenschaften bestimmt. Dieser Bereich wird durch den Punkt beschrieben, an dem auf der Dichtungsfläche fast keine Kapillaren mehr vorhanden sind, um einen Stoffmengenstrom messbar austreten zu lassen. Bei Materialien mit geringerem E-Modul ist ein geringerer Anpressdruck notwendig, um Oberflächenunebenheiten oder Rauheiten der Oberfläche auszugleichen, da sich das Material leichter in eventuelle Fehlerstellen eindrücken lässt. Dementsprechend ergibt sich, wie in Abbildung 10 dargestellt, für jedes Material eine entsprechende Anpresskraft bzw. ein Anpressdruck, für den das Material abhängig von der Oberfläche mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit dicht ist. Dies ist der Grund dafür, dass für den Aufbau mit verringertem E-Modul bereits geringere Anpressdrücke ausreichend sind, um einen zu den PTFE-Dichtungen vergleichbaren, stationären Bereich mit höheren Anpressdrücken zu erreichen.

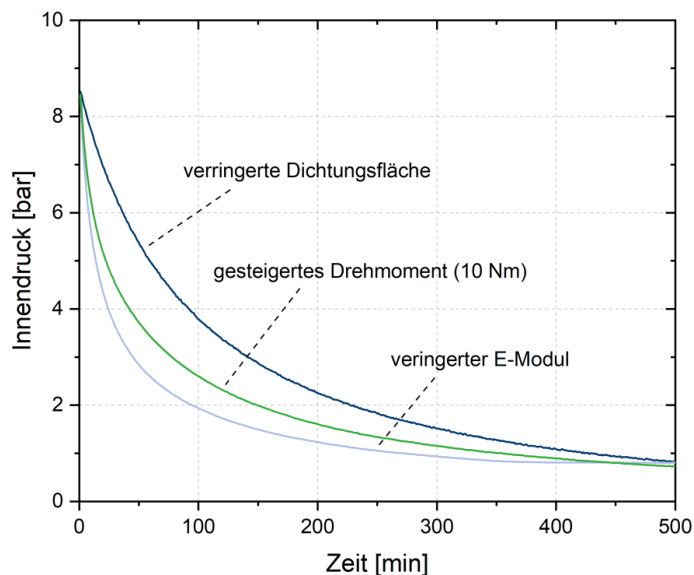


Abbildung 55: Zeitlicher Druckverlauf für unterschiedliche Dichtungssysteme der Elektrolysezelle.

Ebenfalls lässt sich aus den Messungen ableiten, dass die häufig verwendete Kenngröße der Leckagerate (vgl. Abschnitt 2.2.5) sich nur bedingt für eine verlässliche Charakterisierung der Dichtungsleistung einer Elektrolysezelle eignet. So ergeben sich je nach dem gewählten Zeitintervall Δt unterschiedliche Leckageraten. In Tabelle 12 sind die Leckageraten für unterschiedliche Zeitintervalle dargestellt.

Tabelle 12: Leckageraten der unterschiedlichen Dichtungsdesigns nach unterschiedlichen Messzeiträumen.

Dichtungssystem	Leckagerate nach 90 min $\left[\frac{\text{mbar}\cdot\text{l}}{\text{s}}\right]$	Leckagerate nach 200 min $\left[\frac{\text{mbar}\cdot\text{l}}{\text{s}}\right]$	Leckagerate nach 500 min $\left[\frac{\text{mbar}\cdot\text{l}}{\text{s}}\right]$
Verringerte Dichtfläche	0,82	0,52	0,26
Gesteigertes Drehmoment	1,05	0,57	0,26
Verringerter E-Modul	1,18	0,60	0,25

Die in Dichtungsnormen angewandte spezifische Leckagerate lässt sich weiterhin nur auf Dichtungen mit einer runden Geometrie anwenden und ist somit nicht auf die Charakterisierung der Dichtigkeit einer Elektrolysezelle übertragbar.

Insgesamt eignen sich die hier vorgestellten Methoden zur Verbesserung der Dichtigkeit einer Elektrolysezelle, jedoch unterliegen sie auch Restriktionen. So kann der Anpressdruck nicht für alle Dichtungsmaterialien beliebig gesteigert werden, da dieser auch zum Materialversagen

führen kann. Ebenfalls müssen die Festigkeiten der restlichen Bauteile, wie beispielsweise der Schrauben, beachtet werden. Weiterhin kann eine größere Dichtungsfläche auch Vorteile bieten, da mit einer größeren Dichtungsfläche eine geringere Anfälligkeit gegen Materialtoleranzen und lokalem Dichtungsversagen besteht. Wobei es hierfür keine klaren Richtlinien gibt, sondern nur anwendungsspezifische Normen [53]. Bei der Wahl des Materials muss neben der korrosiven und thermischen Beständigkeit ebenfalls das mechanische Wechselverhalten mit den porösen Materialien auf der aktiven Zelloberfläche beachtet werden. Demnach muss die Kompression der Dichtung so einstellbar sein, dass sich ebenfalls die gewünschte Kompression auf der aktiven Zelloberfläche ergibt. Je kompressibler und komplexer das Materialverhalten einer Dichtung ist, desto schwieriger ist eine solche Auslegung.

Weiterhin ist zu beachten, dass im Rahmen dieser Arbeit nicht die Druckverteilung im Betriebszustand untersucht wurde, da die hier vorgestellten Methoden zur Evaluation des Anpressdrucks nicht für die Betriebsbedingungen geeignet sind. Die Druckverteilungen im Betriebszustand können sich aufgrund der Materialeigenschaften der Bauteile wie der Wärmedehnung oder dem Schwellungsverhalten der Membran von der Druckverteilung im Einbauzustand unterscheiden. Weiterhin wurde ebenfalls die zeitliche Abhängigkeit der Anpressdruckverteilung nicht über den Assemblierungsprozess hinaus untersucht. So kann sich beispielsweise das Dichtungsverhalten durch Effekte wie der Spannungsrelaxation oder dem Setzverhalten der Bauteile noch im Betrieb über längere Zeit verändern.

5.2 Finite-Elemente-Simulation des Fujifilm-Ersatzmodells

Im Folgenden soll das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle mithilfe der Finite-Elemente-Methode statisch-mechanisch simuliert werden. Um das Modell und die Ergebnisse der Simulation experimentell validieren zu können, wird die zuvor vorgestellte Fujifilm-Methode verwendet. Um die Messung möglichst korrekt abbilden zu können, wird in diesem Abschnitt, wie in den Experimenten, im Aufbau der Elektrolysezelle die MEA mit dem Fujifilm-Folienstapel ersetzt. Da der Folienstapel aus einem anderen Material besteht und ebenfalls dicker ist als die MEA ist ein mechanischer Einfluss auf das Simulationsergebnis zu erwarten. So sollen im Folgenden der Einfluss unterschiedlicher Modellparameter auf das Simulationsergebnis überprüft und mit den experimentellen Messungen verglichen werden. So sollen neben der Kontaktsituation die Materialmodelle der porösen Materialien parametrisch untersucht werden.

Da mit der Fujifilm-Methode lediglich die Druckverteilung auf der Zellebene der MEA untersucht werden kann, wird für die Auswertung ebenfalls die zweidimensionale Druckverteilung auf den Kontaktflächen des Fujifilm-Stapels evaluiert. Die Druckverteilung lässt sich mit den Normalspannungen in Kompressionsrichtung (in diesem Modell in z-

Richtung) darstellen. Da es sich bei der Assemblierung um eine Kompression handelt, haben alle Normalspannungen, welche einen Druck darstellen, ein negatives Vorzeichen, während Normalspannungen mit positiven Vorzeichen eine Zugspannung darstellen. Mittels der Fujifilm-Methode können nur Absolutwerte gemessen werden, so wird im Folgenden davon ausgegangen, dass mit der Methode nur Druckwerte detektiert werden. Um die Normalspannungsverteilungen der Simulation mit der Messung vergleichen zu können, werden diese als positive Kräfte dargestellt. Ebenfalls wird zur Vergleichbarkeit beider Ergebnisse (Messung und Simulation) für die Darstellung der Normalspannungsskala dieselbe Farbskala gewählt.

5.2.1 Variation der Kontaktdefinition

Wie bereits in Abschnitt 4.1.2 beschrieben, ist eine Kontaktdefinition als „Verbundkontakt“ und als „reibungsbefahter Kontakt“ möglich. Lediglich der Kontakt zwischen der kathodenseitigen FFP und Dichtung muss als reibungsbefahter Kontakt dargestellt werden, um den Kompressionsvorgang simulativ darstellen zu können. Dementsprechend wurden beide Fälle betrachtet und vergleichend mit der Fujifilm-Messung in Abbildung 56 dargestellt.

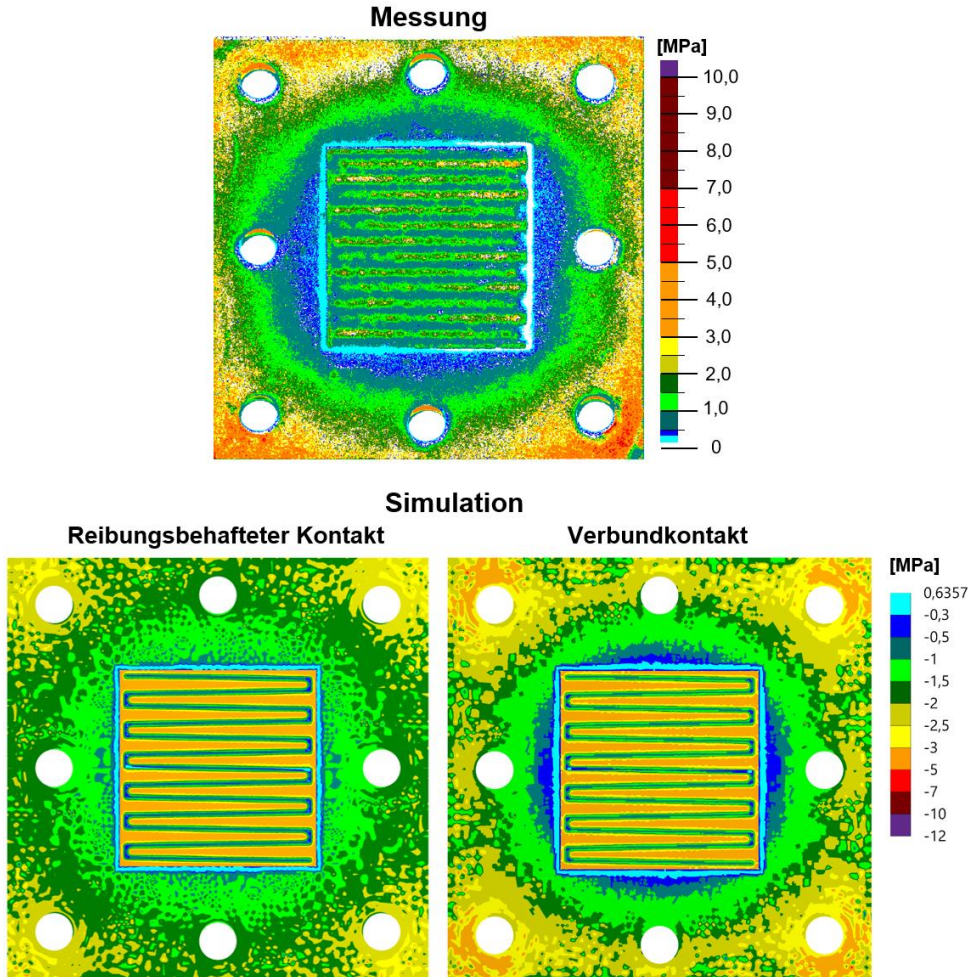


Abbildung 56: Konturbänder der Anpressdruckverteilungen resultierend aus einer Fujifilm-Messung (oben) und aus statisch-mechanischen Simulationen (unten).

Wie in der Abbildung zu sehen ist, führt eine unterschiedliche Kontaktdefinition zu deutlich unterschiedlichen Verteilungen der Normalspannungen auf dem Fujifilm-Folienstapel. So wird durch die Definition von „reibungsbefallenen Kontakten“ eine gleichmäßigere Normalspannungsverteilung erzielt und der Gradient der Normalspannungen bzw. der Anpressdrücke, welcher ebenfalls bei den experimentellen Messungen auftritt, ist weniger stark ausgeprägt als beim Vergleichsfall „Verbundkontakt“. Diese Beobachtungen lassen auf eine unterschiedliche Kraftverteilung im gesamten Zellmodell schließen. Diese Hypothese lässt sich durch das Betrachten der Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt (vgl. Abbildung 57) bestätigen. Durch die Vorgabe des Verbundkontaktes wird die durch die Schrauben eingeleitete Kraft nur im geringeren Maße in die Ebene verteilt,

wodurch die Krafteinleitung in die Zellmitte vergleichsweise reduziert ist. Die unterschiedliche Kraftverteilung in beiden Modellen lässt sich mit der abweichenden Kraftübertragung der Knotenpunkte des Simulationsmodells in den Kontaktregionen erklären. Bei Verbundkontakten sind die Knotenpunkte als fest definiert, sodass es zu keinen Relativbewegungen kommen kann und die numerischen Fehler bei der Kraftübertragung zwischen zwei Knotenpunkten gering sind. Im Gegensatz dazu kann es bei den nichtlinearen reibungsbehafteten Kontakten zu Relativbewegungen kommen und somit auch zu einer höheren Durchdringung zwischen den zwei Oberflächen. Diese können partiell zu numerischen Fehlern führen, welche durch die Inkonsistenz der Konturbänder in Abbildung 56 illustriert werden.

Ebenfalls illustriert Abbildung 57, dass die Normalspannungsverteilung gut die im Bereich der Dichtungstechnik häufig thematisierten Kraftlinien abbildet. Die Kraft in beiden Simulationen wird zuerst durch das GDL-Material im aktiven Zellbereich geführt. Sobald die Lücke zwischen der Dichtung und FFP geschlossen ist, erfolgt die Krafteinleitung in die Dichtung. Bei beiden Kontaktdefinitionen erfolgt eine höhere Einleitung der Kraft im Bereich um die Schrauben, was die zuvor getroffene Vermutung des Kraftkurzschlusses im Bereich der Schrauben bestätigt.

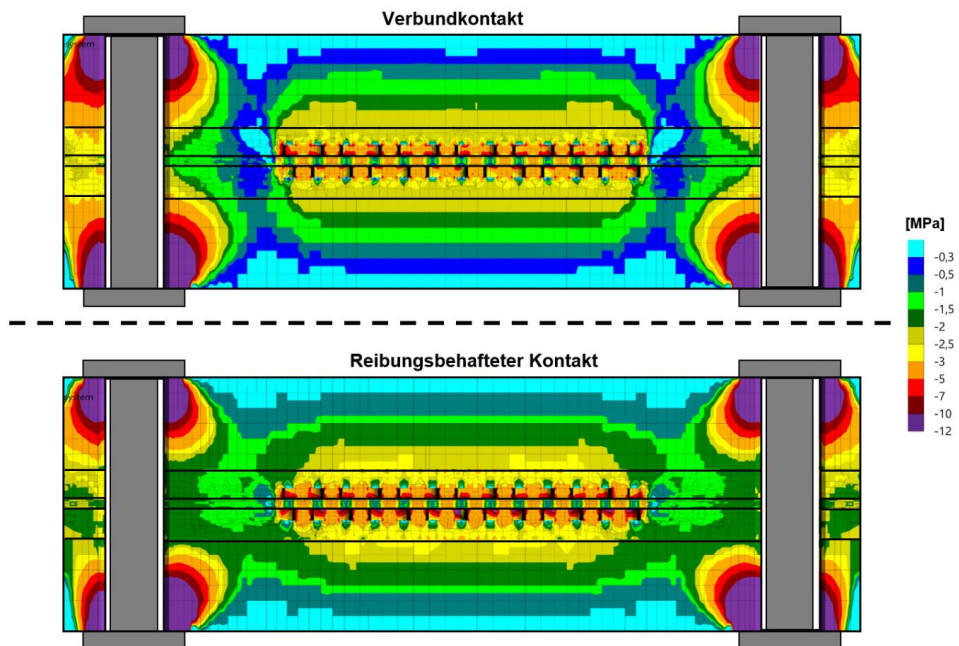


Abbildung 57: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt von Simulationen mit Verbundkontakten und reibungsbehafteten Kontakten.

Abschließend ist es schwierig zu bewerten, mit welcher Form der Kontaktdefinition die Realität besser abgebildet werden kann, da die Simulationsergebnisse der beiden Fälle ebenfalls von weiteren Faktoren, wie der Netzdefinition und den Bauteildimensionen, abhängig sind. Da im Rahmen dieser Arbeit aus Gründen der Rechenkapazität das Netz festgelegt ist, wird keine weitere Verfeinerung des Netzes betrachtet. Somit wird hier die Kontaktdefinition nach der besseren Übereinstimmung mit der experimentellen Messung ausgewählt.

Wie in Abbildung 56 zu sehen, ist die auffälligste Diskrepanz zwischen der Messung und den beiden Simulationen die Anpressdruckverteilung im Bereich der aktiven Zellfläche. Hier ist bei allen Darstellungen zwar ein klarer Unterschied zwischen dem Kanal- und Stegbereich zu erkennen, jedoch liegen die Normalspannungen auf den Steg-Stegflächen der Simulation im Bereich zwischen 3 und 5 MPa. Bei der Messung hingegen lassen sich hier nur vereinzelt Werte über 3 MPa feststellen, während der Großteil der restlichen Kraftwerte darunter liegt und kontinuierlich bis in den Kanalbereich abfällt.

Diese Beobachtungen lassen sich ebenfalls mit der relativen Häufigkeitsverteilung der Druckwerte (vgl. Abbildung 58) bestätigen. Über 40% der Druckwerte der Simulation sind größer als 3 MPa, während nur ca. 3% der Druckwerte der Messung über 3 MPa liegen. Bei den Simulationen hat die Kontaktdefinition hauptsächlich einen Einfluss auf die Häufigkeitsverteilung der höheren Druckwerte (ca. 3,0 – 4,0 MPa). Diese Druckwerte sind dem Bereich unter den Stegflächen des Flowfields zuzuordnen. So führt, wie bereits in Abbildung 57 dargestellt, die bessere Kraftverteilung der reibungsbehafteten Kontakte zu höheren Drücken auf den Stegbereichen. Weiterhin nehmen sowohl in der Messung als auch in der Simulation die Kräfte graduell vom Stegbereich zur Mitte des Kanalbereichs ab, wobei die Werte für die Simulationen jedoch weiter gestreut sind. So liegen die Kräfte im Kanalbereich eher unterhalb der gemessenen Werte. Die Unterschiede zwischen den Druckverteilungen resultieren hier vermutlich aus den Materialmodellen der porösen Materialien. Die geringen Druckwerte im Kanalbereich lassen auf einen zu geringen G-Modul der porösen Materialien schließen, während die erhöhten Kraftwerte auf dem Stegbereich durch den E-Modul der porösen Materialien bestimmt werden. Deshalb soll in Abschnitt 5.2.2 der parametrische Einfluss dieser Parameter überprüft werden.

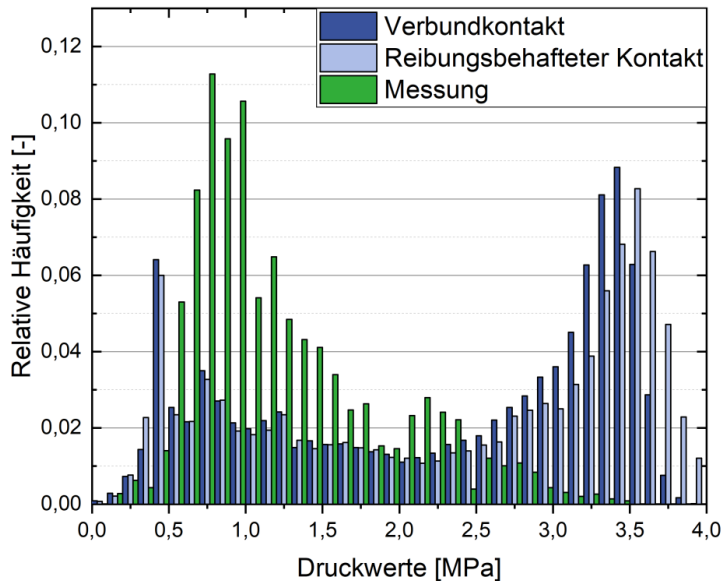


Abbildung 58: Relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf dem Bereich der aktiven Zellfläche für eine Messung mittels Fujifilm und im Bereich der aktiven Zellfläche des Fujifilm-Folienstapels (Kathodenseite) von FEM-Simulationen des Zellmodells mit unterschiedlichen Kontaktdefinitionen.

Eine größere Übereinstimmung zwischen der Messung und den Simulationen lässt sich im Bereich der Dichtungsfläche feststellen. Die Konturbänder der Verbundkontaktsimulation weisen einen mit der Messung vergleichbaren Anpressdruckgradienten auf, während der Anpressdruckgradient des reibungsbehafteten Kontakts etwas flacher ist. Um dieses quantitativ darstellen zu können, sind in Abbildung 59 die Normalspannungen entlang des eingezeichneten Auswertungspfades dargestellt. Die Druckwerte für die Messung wurden hier aus Gründen der Anschaulichkeit über den Pfad gemittelt und der aus den Daten abgeleitete linearisierte Verlauf dargestellt.

Im Bereich zwischen dem Rand und der Schraubenbohrung weisen beide Simulationen keinen erkennbaren Gradienten in der Kraftverteilung auf. Im Gegensatz dazu ist bei der Messung ein Druckgradient von 1,25 MPa zu verzeichnen und es stellt sich ein höherer Anpressdruck am Rand der Elektrolysezelle ein. Zwischen der aktiven Zellfläche und dem inneren Rand der Schraubenbohrung weist der Anpressdruckgradient der Simulation mit Verbundkontakt eine mit der Messung vergleichbare Steigung (ca. 0,7 MPa) auf. In diesem Bereich ist der mittlere Druckgradient des reibungsbehafteten Kontakts flacher (ca. 0,5 MPa) und die Druckwerte sind insgesamt zwischen ca. 0,25 MPa und 0,7 MPa höher als bei den anderen beiden Verläufen. Zusätzlich streuen die Druckwerte stärker. Die Schwankungen der Druckwerte der Simulationen resultieren aus der Netzstruktur in diesem Bereich und spiegeln die etwas ungleichmäßige Druckverteilung in den Konturbändern wider.

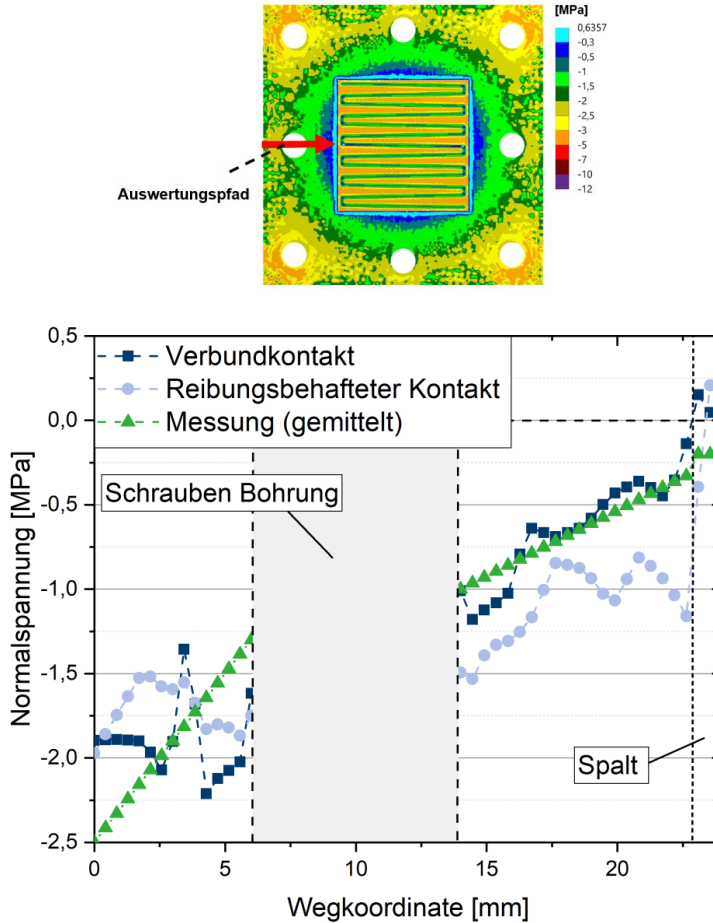


Abbildung 59: Oben: Darstellung des Auswertungspfads auf der simulierten Normalspannungsverteilung. Unten: Darstellung des Normalspannungsverlaufs entlang des dargestellten Auswertungspfads für die Messung und Simulationen mit unterschiedlichen Kontaktdefinitionen.

Insgesamt lässt sich in diesem Modell die Messung folglich besser mit einer Simulation von Verbundkontakten darstellen. So wird die Druckverteilung im inneren Dichtungsbereich mit sehr geringen quantitativen Abweichungen zur Messung dargestellt. Größere numerische Abweichungen ergeben sich in den Randbereichen und besonders in den Ecken, in denen der Druck der Messung durch das Modell unterschätzt wird. Wobei auch in diesem Bereich der Verbundkontakt die quantitative Druckverteilung besser darstellt. An dieser Stelle ist anzumerken, dass erhöhte Drücke im Randbereich der Messung ebenfalls aus einem leichten Verkippen bei der Assemblierung der Zelle resultieren könnten. Weiterhin können beide Modelle die Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche nur bedingt darstellen und es müssen parametrische Anpassungen der hier verwendeten Materialmodelle vorgenommen

werden. Die Kontaktdefinition hat hier jedoch nur einen geringen Einfluss. Insgesamt bleibt festzuhalten, dass alle Anpressdrücke in derselben Größenordnung wie die Druckwerte der Messung liegen. Im Folgenden soll deshalb die Kontaktdefinition mittels Verbundkontakten erfolgen.

Im nächsten Schritt soll ein Vergleich zwischen der simulierten Normalverteilung auf der Anodenseite und der Kathodenseite erfolgen. In Abbildung 60 sind die Konturbänder der Normalspannungen beider Seiten vergleichend mit der Messung dargestellt.

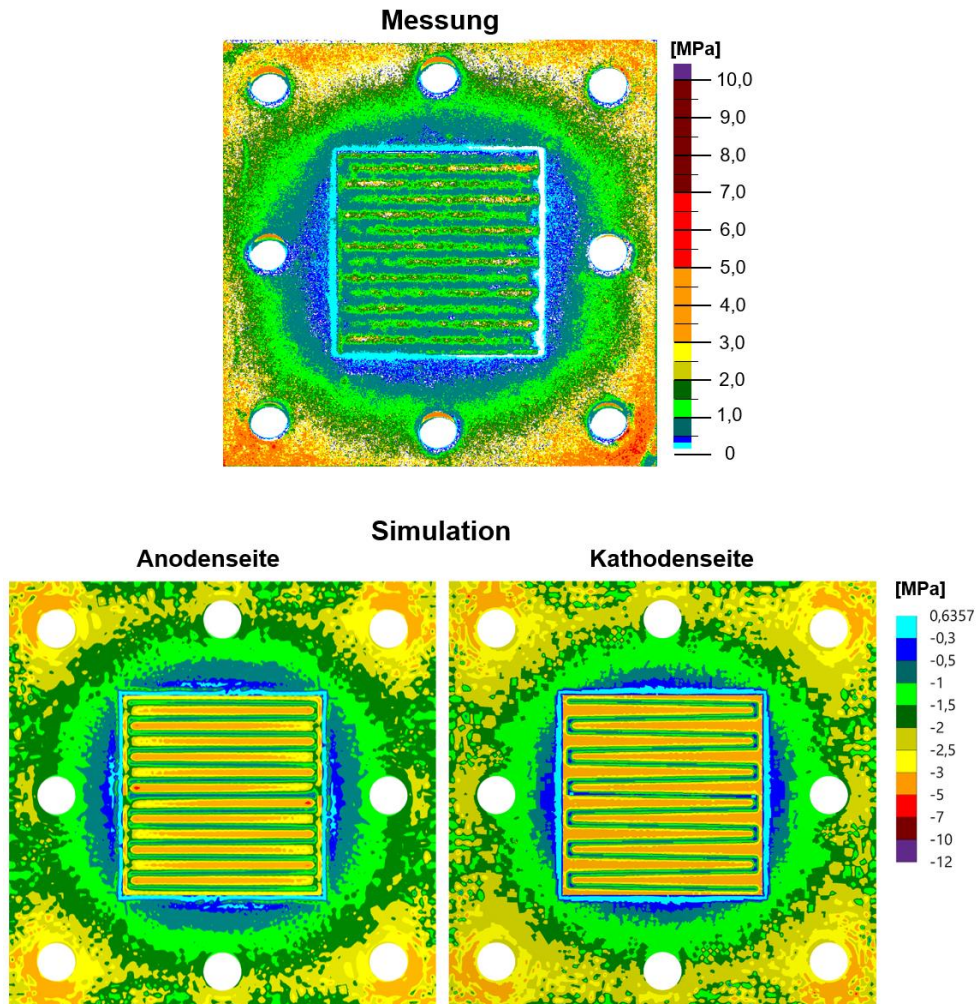


Abbildung 60: Konturbänder der Anpressdruckverteilung bzw. Normalspannungsverteilung resultierend aus einer Fujifilm-Messung (oben) und anodenseitige und kathodenseitige Oberfläche des Fujifilm-Folienstapels der FEM-Simulation des Zellmodells (unten).

Wie in der Abbildung zu sehen, weisen die beiden Seiten des Fujifilm-Stapels leichte Unterschiede in der Normalspannungsverteilung auf. So ist der Druckgradient auf der Dichtungsbereich der Anodenseite stärker als auf der Kathodenseite und die Konturbänder bilden die Messungen genauer ab. Ebenfalls sind Unterschiede der Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche zu erkennen. Während sich auf der Kathodenseite nur die Flowfield-Struktur der Kathodenseite abzeichnet, ist auf der Anodenseite eine Überlagerung der Flowfield-Strukturen beider Seiten erkennbar. Um dieses quantitativ besser bewerten zu können, ist in Abbildung 61 die relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf der aktiven Zellfläche dargestellt.

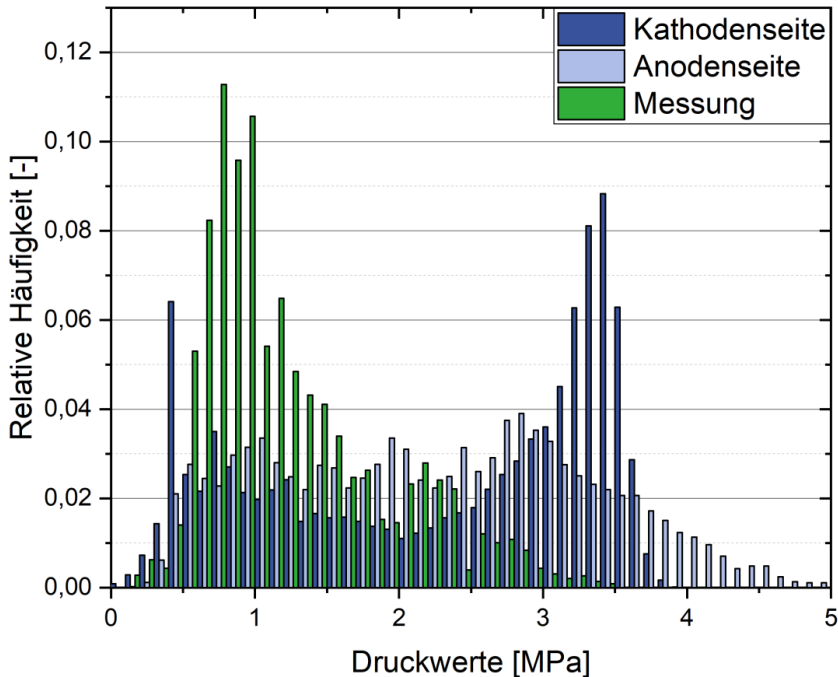


Abbildung 61: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite und der Anodenseite des Fujifilm-Folienstapels und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf dem Bereich der aktiven Zellfläche.

Der Darstellung ist zu entnehmen, dass die Kathodenseite und Anodenseite deutlich unterschiedliche Druckverteilungen aufweisen. So lassen sich die Druckwerte auf der Anodenseite im Gegensatz zur Kathodenseite nicht eindeutig dem Kanal- und Stegbereich zuweisen und die relativen Häufigkeiten schwanken für die Druckwerte zwischen 0,5 MPa und 3 MPa um 0,025. Für Druckwerte größer als 3 MPa fallen die relativen Häufigkeiten, bis zu einem Maximalwert von 5 MPa. Die Druckwerte der Anodenseite übersteigen die Druckwerte auf der Kathodenseite in der Messung folglich deutlich. Der Verlauf der abnehmenden

relativen Häufigkeiten gleicht jedoch dem Verlauf der relativen Häufigkeiten der Messung auf den Stegbereichen.

Eine Begründung für diese Diskrepanz in der Druckverteilung beider Seiten ist der asymmetrische Zellaufbau auf beiden Seiten des Fujifilm-Stapels. So wird auf der Kathodenseite das wesentlich kompressiblere GDL-Material verpresst, während auf der Anodenseite das sehr viel steifere PTL-Material auf den Fujifilm-Stapel gedrückt wird. Somit hat auf der Anodenseite die Anpressdruckverteilung auf dem PTL-Material einen größeren Einfluss auf die Anpressdruckverteilung auf dem Fujifilm-Folienstapel. Der Fujifilm-Folienstapel beeinflusst folglich ebenfalls den Druckverteilungsverlauf zwischen der Anodenseite und Kathodenseite, sodass sich innerhalb des Fujifilm-Stapels unterschiedliche Normalspannungsverteilungen einstellen. Die in Abbildung 61 dargestellten Häufigkeitsverteilungen für die Oberflächen des Folienstapels stellen folglich die Randwerte der Verteilungen für die dreidimensionale Druckverteilung innerhalb des Stapels dar. Die durchschnittliche Druckverteilung liegt folglich zwischen den beiden Druckverläufen.

Diese Erkenntnis lässt ebenfalls Rückschlüsse für die praktische Messung mit den Fujifilm-Folien zu. Diese können keine dreidimensionale Druckverteilung darstellen und können somit nur die Druckverteilung der jeweiligen Ebene darstellen. Hiermit lassen sich die in Abschnitt 3.2.3 dargestellte Abhängigkeit der Druckverteilung von der Stapelreihenfolge der Fujifilm-Folien, sowie die Unterschiede zwischen einem drei-Folienpaarstapel und einem ein-Folienpaarstapel erklären. Die einzelnen Druckmessfolien können die Druckverteilung nur in der jeweiligen Ebene messen und sind hierbei auf die spezifischen Messintervalle limitiert. Somit ergibt sich im resultierenden Druckverteilungsbild im Gegensatz zur Simulation nicht die Druckverteilung an den Oberflächen des Fujifilm-Stapels, sondern eine Komposition aus den drei Ebenen im Fujifilm-Stapel.

Für die Evaluation der Simulation bedeutet dies, dass die real messbare Druckverteilung zwischen den Druckverteilungen der Kathodenseite und der Anodenseite liegen muss, was für die Bewertung der Simulationsergebnisse und der experimentellen Messungen beachtet werden sollte.

Diese Erkenntnisse lassen sich nicht in die Literatur einordnen, da in den veröffentlichten Modellen kein quantitativer Vergleich zwischen der Messung der Anpressdruckverteilung und den Simulationsergebnissen erfolgt. Da in der Literatur FEM-Simulationen häufig hinsichtlich der Vergleichsspannungen (van Mises) evaluiert werden (vgl. Abschnitt 2.4.4), sollen im Folgenden die hier betrachtete Normalspannungsverteilung in Kompressionsrichtung und die Vergleichsspannung vergleichend betrachtet werden.

Vergleich der Normalspannung (in Kompressionsrichtung) und Vergleichsspannung

In Abbildung 62 sind die Vergleichsspannungs- (van Mises) und Normalspannungsverteilung auf der kathodenseitigen Oberfläche des Fujifilm-Folienstapels dargestellt. Zur Vergleichbarkeit ist eine ähnliche Farbskala gewählt.

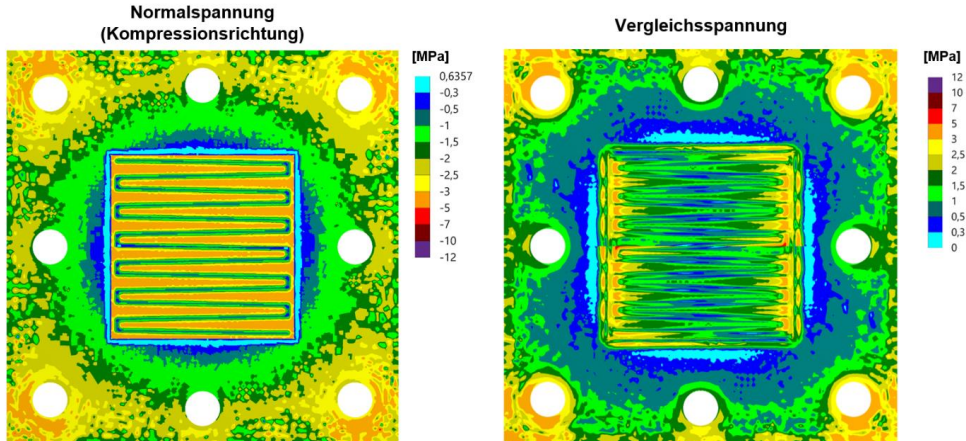


Abbildung 62: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung in Kompressionsrichtung (links) und der simulierten Vergleichsspannungsverteilung (van Mises) (rechts).

Wie zu erkennen ist, liegen beide Spannungen betragsmäßig in der gleichen Größenordnung. Die Vergleichsspannung ist bedingt durch die Berechnungsmethode immer positiv, während die Normalspannung in Kompressionsrichtung als Druckspannung negativ ist. Der Verlauf der Spannungsverteilung im Dichtungsbereich zeigt für beide Spannungsformen einen Gradienten mit steigenden Werten hin zum Randbereich, da in diesen Bereichen die Druckspannung die dominante Spannungskomponente der Vergleichsspannung ist. Im aktiven Zellbereich zeigt sich aufgrund der mehrachsigen Spannungszustände, welche unter anderem vermutlich aus der Kompression des GDL-Materials resultieren, eine Diskrepanz zwischen beiden Darstellungsweisen. Zudem nimmt die Vergleichsspannung im Gegensatz zur Normalspannung auch im aktiven Zellbereich zur Zellmitte hin ab. Ein weiterer Unterschied ergibt sich im Bereich des Spalts zwischen den porösen Materialien und den Dichtungen (zwischen der aktiven Zellfläche und dem Dichtungsbereich). In diesem Bereich sind Druckspannungen nahe Null zu verzeichnen, da hier weder die Dichtung noch die GDL auf den Fujifilm-Stapel drücken, während partiell Vergleichsspannungen über 3 MPa simuliert werden. Somit dominieren im Spaltbereich vermutlich Kräfte, welche in der Ebene wirken.

In der Praxis ist die Vergleichsspannung die entscheidende Größe zur simulativen Evaluation von Bauteilfestigkeiten und soll in Kapitel 6 als Bewertungsgrundlage für die Bauteilauslegung dienen. Jedoch kann die Vergleichsspannung nicht experimentell validiert werden, weshalb im

Folgenden die Beurteilung des Modells ausschließlich aufgrund der Normalspannung in Kompressionsrichtung erfolgt. Zudem ist der Anpressdruck, welcher durch die Normalspannung dargestellt wird, die relevante Größe zur Beurteilung der Kontaktwiderstände im Bereich der aktiven Zellfläche (vgl. Abschnitt 2.2.2) und ist ein entscheidendes Charakteristikum bei der Auslegung von Dichtungen.

Die in dieser Simulation verwendeten Materialparameter für die Toray-GDL entsprechen den in Abschnitt 4.3.1 dargestellten Annahmen, welche aus der vorhandenen Literatur abgeleitet wurden. Wie jedoch im vorherigen Abschnitt festgestellt wurde, führen diese Materialparameter zu einer Diskrepanz zwischen der Simulation und dem Messergebnis. Aus diesem Grund sollen im Folgenden die Materialparameter der Toray-GDL parametrisch verändert werden, um so die Sensitivität des Simulationsergebnisses hinsichtlich des E-Moduls und des G-Moduls des orthotropen Materialmodells zu untersuchen. Weiterhin sollen mithilfe der Betrachtungen die Parameter sinnvoll angepasst werden.

5.2.2 Einfluss der kathodischen GDL-Materialmodelle

Um den Einfluss der Materialparameter für die Toray-GDL quantifizieren zu können, wurde der E-Modul in Kompressionsrichtung (z-Richtung) zwischen Werten von 6 und 12 MPa variiert, da diese ungefähr der in der Literatur verwendeten Bandbreite an E-Modulen entspricht. Ebenso wurde in derselben parametrischen Studie der G-Modul zwischen 30 und 70 MPa variiert. Die Werte des G-Moduls resultieren hierbei aus der Erkenntnis des vorherigen Abschnittes, in dem festgestellt wurde, dass ein verwendeter G-Modul von 14 MPa zu gering ist, um das Scherverhalten der GDL gemäß der Messung zu repräsentieren. Alle weiteren Materialparameter und Randbedingungen des Fujifilm-Ersatzmodells wurden als konstant gesetzt. Zur Bewertung des Einflusses beider Parameter wurde der mittlere Anpressdruck (mittlere Normalspannung in z-Richtung) auf der aktiven Zellfläche herangezogen.

Wie in Abbildung 63 dargestellt, hat die Variation des E-Moduls der GDL einen großen Einfluss auf den mittleren Anpressdruck. Eine Verdopplung des E-Moduls führt bei den getesteten G-Modulen zu einer Erhöhung des mittleren Anpressdrucks um ca. 170 – 175%. Die Variation des G-Moduls hat hingegen nur einen geringen Einfluss auf den mittleren Anpressdruck des Simulationsergebnisses. So führt eine Veränderung des G-Moduls von 30 auf 70 MPa bei den getesteten E-Modulen zu einem Anstieg des mittleren Anpressdrucks um ca. 4 - 5%.

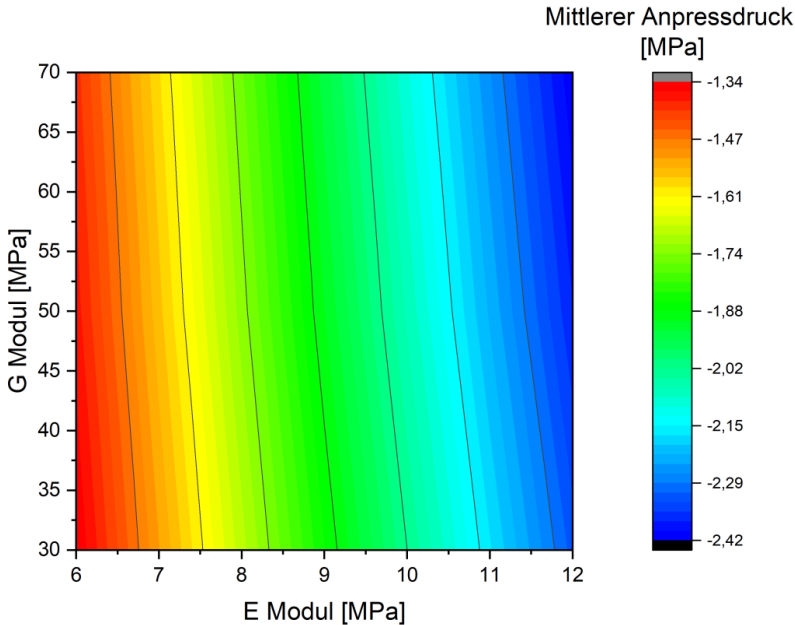


Abbildung 63: Visualisierung des simulierten mittleren Anpressdrucks auf der aktiven Zellfläche in Abhängigkeit des E-Moduls in Kompressionsrichtung und des G-Moduls des Materialmodells der GDL.

Die experimentelle Bestimmung des mittleren Anpressdrucks mithilfe der drucksensitiven Folien ergibt einen Wert von 1,16 – 1,25 MPa. Vergleicht man diese Werte mit der Parameterstudie, so müsste bei sonstiger korrekter Modelldarstellung und bei messtechnisch korrekter Bestimmung des Anpressdrucks der E-Modul theoretisch noch unterhalb des Bereichs der evaluierten E-Module liegen. Wie sich jedoch bereits in Abschnitt 5.1.4 bei der Betrachtung unterschiedlich steifer GDL-Materialien zeigte, gibt der mittlere Anpressdruck nur bedingt Informationen über die tatsächlichen Anpressdrücke auf der aktiven Zellfläche, sodass die gesamte Druckverteilung zur Beurteilung der Materialparameter herangezogen werden muss.

Dementsprechend sind die simulierten Normalspannungsverteilungen auf der kathodenseitigen Fujifilm-Folie in Abbildung 64 vergleichend für einen E-Modul des GDL-Materials von 6 und 12 MPa bei einem konstanten G-Modul von 30 MPa dargestellt. Erkennbar ist, dass bei einem E-Modul von 6 MPa geringere Druckwerte auf dem aktiven Zellbereich vorliegen und somit eine geringere Kraft auf diesen Bereich entfällt als für ein E-Modul von 12 MPa. Da in beiden Modellen, dieselbe Gesamtkraft durch die Schrauben aufgebracht wird, entfällt ein entsprechend höherer Anteil der Kraft auf den Dichtungsbereich und führt zu höheren Druckwerten. Ebenfalls führt das Verringern des E-Moduls zu einer Reduktion des Druckgradienten auf dem Dichtungsbereich.

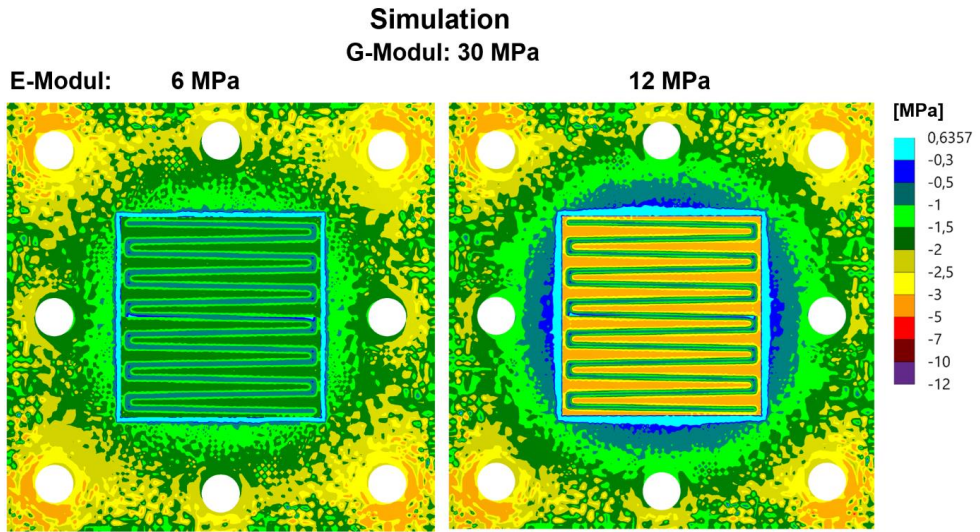


Abbildung 64: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) bei einem konstanten G-Modul für das Materialmodell der GDL.

Um den Einfluss des E-Moduls auf die Druckverteilung in der aktiven Zellfläche quantitativ betrachten zu können, sind in Abbildung 65 die Häufigkeitsverteilungen der gemessenen und simulierten Druckverteilungen dargestellt.

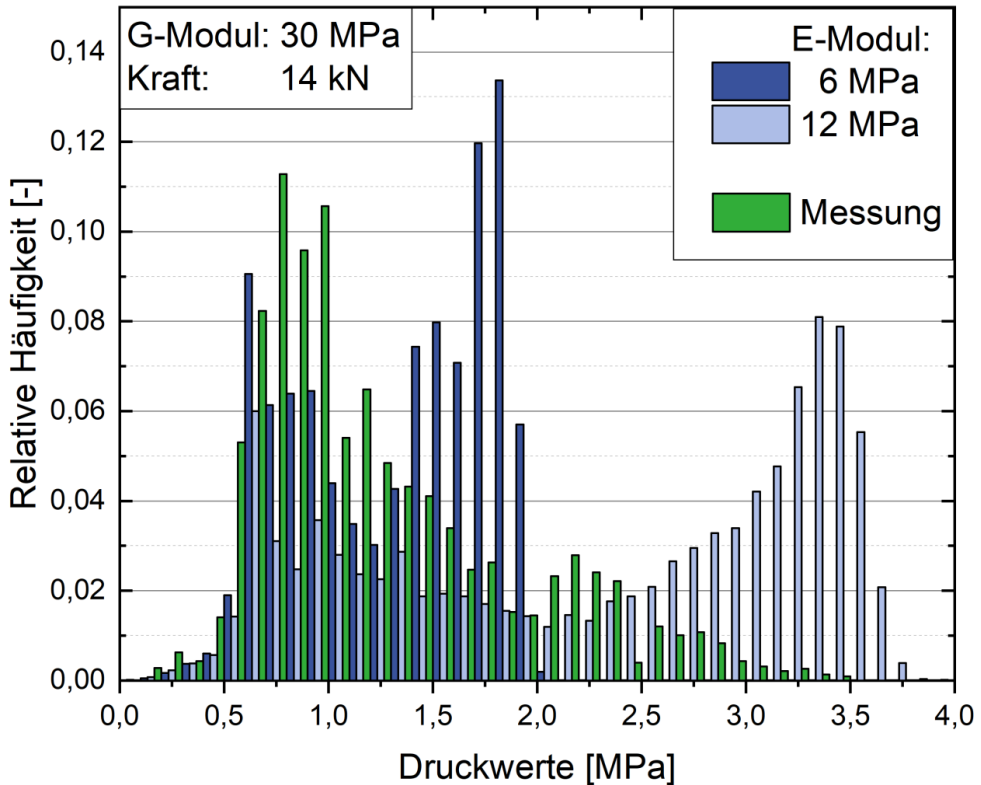


Abbildung 65: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zelloberfläche der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) der GDL und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf der aktiven Zelloberfläche.

Wie sich auch bei der Darstellung der Konturbänder feststellen lässt, liegen für einen E-Modul der GDL von 6 MPa die maximalen Druckwerte bei ca. 2 MPa und die am häufigsten detektierten Kraftwerte liegen zwischen 1,7 und 1,8 MPa. Diese Druckwerte stellen in der Simulation eine homogene Kraftverteilung auf dem Stegbereich dar. Bei einem E-Modul von 12 MPa ist die Druckverteilung über einen größeren Wertebereich verteilt und weist in der Mitte der Stegbereiche Werte von ca. 3,0 bis 3,8 MPa auf. In beiden Fällen ist, wie bereits zuvor dargestellt, der graduelle Übergang zwischen dem Kanal- und Stegbereich zu erkennen. So liegen in den mittleren Kanalbereichen für beide Fälle Druckwerte im Bereich zwischen 0,5 und 1 MPa vor. Da die Kraftübertragung im Kanalbereich nicht direkt über die Stegstruktur erfolgt, werden diese Drücke durch die Steifigkeit der Materialien verursacht und werden somit durch den G-Modul beeinflusst. Insgesamt lassen die Ergebnisse darauf schließen, dass die Druckwerte auf den Stegbereichen signifikant von einer Veränderung des E-Moduls der Toray-GDL abhängen und somit die Änderung des E-Moduls auch den mittleren Anpressdruck beeinflusst.

Vergleicht man nun die Druckwerte der Simulation mit den Werten der Messung, so weist die Druckverteilung unabhängig vom E-Modul einen unterschiedlichen Verlauf auf. Wie bereits zuvor festgestellt, ergeben sich bei der Messung lediglich wenige hohe Drücke auf der Mitte des Steges, während in der Simulation der Kathodenseite eine relativ gleichmäßige Belastung der gesamten Stegfläche zu verzeichnen ist.

Mögliche Gründe hierfür sind die Materialmodelle der porösen Materialien. Durch das linear-elastische Materialmodell des GDL-Materials in Kompressionsrichtung können die Anpressdrücke, welche aus dem heterogenen Krafteintrag resultieren, nicht vollständig korrekt berechnet werden. Außerdem wird das poröse Materialverhalten des GDL-Materials durch das Modell nicht korrekt dargestellt werden, sodass die GDL als homogener Körper angenommen wird.

Die Abweichung von der Messung könnte aber ebenfalls durch eine fehlerhafte Messung begründet sein. So ist es möglich, dass das Fujifilm-Messsystem die Anpressdrücke in den Stegbereichen nicht korrekt detektieren kann, weil die Messung durch die Porosität des Materials verfälscht wird. Wie bereits zuvor festgestellt, lässt sich durch die Fujifilm-Messung ebenfalls nicht die Diskrepanz zwischen anodenseitiger und kathodenseitiger Druckverteilung darstellen, sodass die Messergebnisse nur eine Art repräsentative Druckverteilung über den gesamten Fujifilm-Folienstapel darstellen.

Werden nun die Simulationsergebnisse hinsichtlich der physikalischen Plausibilität vergleichend mit der Messung betrachtet, so sollte ein Vergleich der Druckwerte auf der Mitte der Stege erfolgen. In der Mitte der Stegstruktur drücken im realen Aufbau beide Stegstrukturen flächig aufeinander und der erzeugte Spannungszustand ist mit dem Spannungszustand der Kompressionsversuche (vgl. Anhang F) vergleichbar. Dementsprechend sollten die in diesem Bereich gemessenen Druckwerte (mittels Fujifilm-Methode) den Druckwerten entsprechen, welche mit der Simulation eines der linear-elastischen E-Module erzeugt werden kann. Eine Simulation des Kompressionsverhaltens sollte somit Anpressdrücke zwischen 2,5 und 3,5 MPa auf der Mitte des Stegbereiches aufweisen, weshalb die Ergebnisse für die Simulation mit einem E-Modul von 6 MPa physikalisch nicht plausibel sind. Ein E-Modul von 12 MPa erscheint hingegen plausibler.

Wird nun der E-Modul der Toray-GDL konstant bei 12 MPa und der G-Modul zwischen 30 und 70 MPa variiert, so ergeben sich die in Abbildung 66 dargestellten relativen Häufigkeitsverteilungen der Druckwerte.

Obwohl der G-Modul nach Abbildung 63 nur einen vernachlässigbaren Einfluss auf den mittleren Anpressdruck hat, so wird die simulierte Druckverteilung jedoch signifikant von einer Variation des G-Moduls beeinflusst. Für eine Erhöhung des G-Moduls von 30 MPa auf 70 MPa

ergibt sich nach Abbildung 66 eine Steigerung der Anpressdrücke im Kanalbereich von ca. 0,6 MPa auf ca. 1,2 MPa. Ebenfalls werden durch einen G-Modul von 70 MPa die Druckwerte auf dem Stegbereich leicht gesenkt.

Verglichen mit den Messergebnissen werden die Anpressdrücke im Kanalbereich durch einen G-Modul von 70 MPa überschätzt, während mit einem G-Modul von 30 MPa die Druckwerte in der Kanalmitte relativ gut getroffen werden.

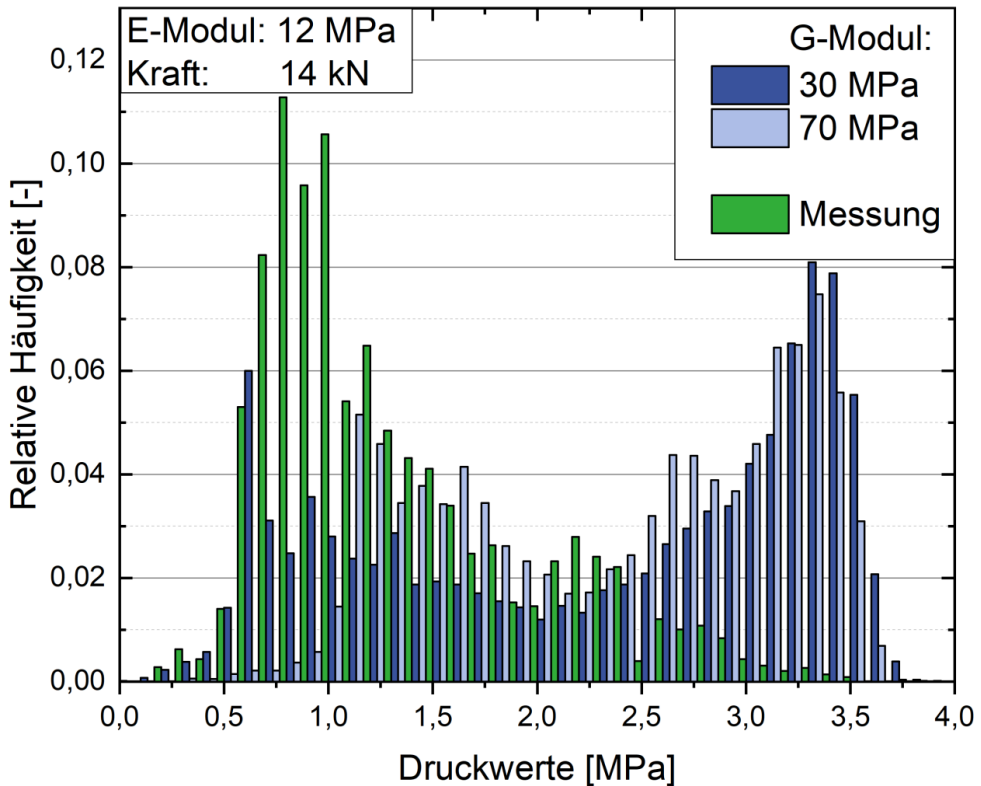


Abbildung 66: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche G-Module der GDL und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung auf der aktiven Zellfläche.

Insgesamt kann festgehalten werden, dass das mechanische Verhalten des betrachteten Zellmodells sehr sensitiv gegenüber dem E-Modul des GDL-Materials ist, sodass eine korrekte Darstellung des Materialverhaltens der GDL essentiell für eine korrekte Modellierung einer Elektrolysezelle ist. Weiterhin beeinflusst der G-Modul des Kohlenstoffmaterials zwar das mechanische Verhalten des gesamten Zellverbunds nur gering, jedoch hat dieses einen signifikanten Einfluss auf die Druckverteilung auf dem aktiven Zellbereich.

Für die folgenden parametrischen Betrachtungen wird entsprechend der dargestellten Ergebnisse für den E-Modul der Toray-GDL ein Wert von 12 MPa angesetzt und für den G-Modul ein Wert von 30 MPa angesetzt.

5.2.3 Einfluss der Dichtungsmaterialmodelle

Als weiterer, nicht vollständig aus der Literatur bekannter Modellparameter wurde ebenfalls der Einfluss des PTFE-Materialmodells untersucht. Da hier abhängig vom Anbieter die Angaben des E-Moduls schwanken, wurde der Einfluss eines für PTFE eher geringen E-Moduls von 470 MPa, welcher aus der ANSYS Datenbank zu entnehmen ist, und eines für PTFE hohen E-Moduls von 670 MPa, welcher den Herstellerangaben von DuPont zu entnehmen ist, untersucht. Zusätzlich wurde vergleichend das Modell einer multilinenaren, isotropen Verformung des Dichtungsmaterials betrachtet. Bei der multilinenaren, isotropen Verformung wird ebenfalls ein anfängliches E-Modul von 670 MPa angenommen. Die Konturbänder der Normalspannungsverteilungen aller drei Dichtungsmaterialmodelle sind in Abbildung 67 dargestellt.

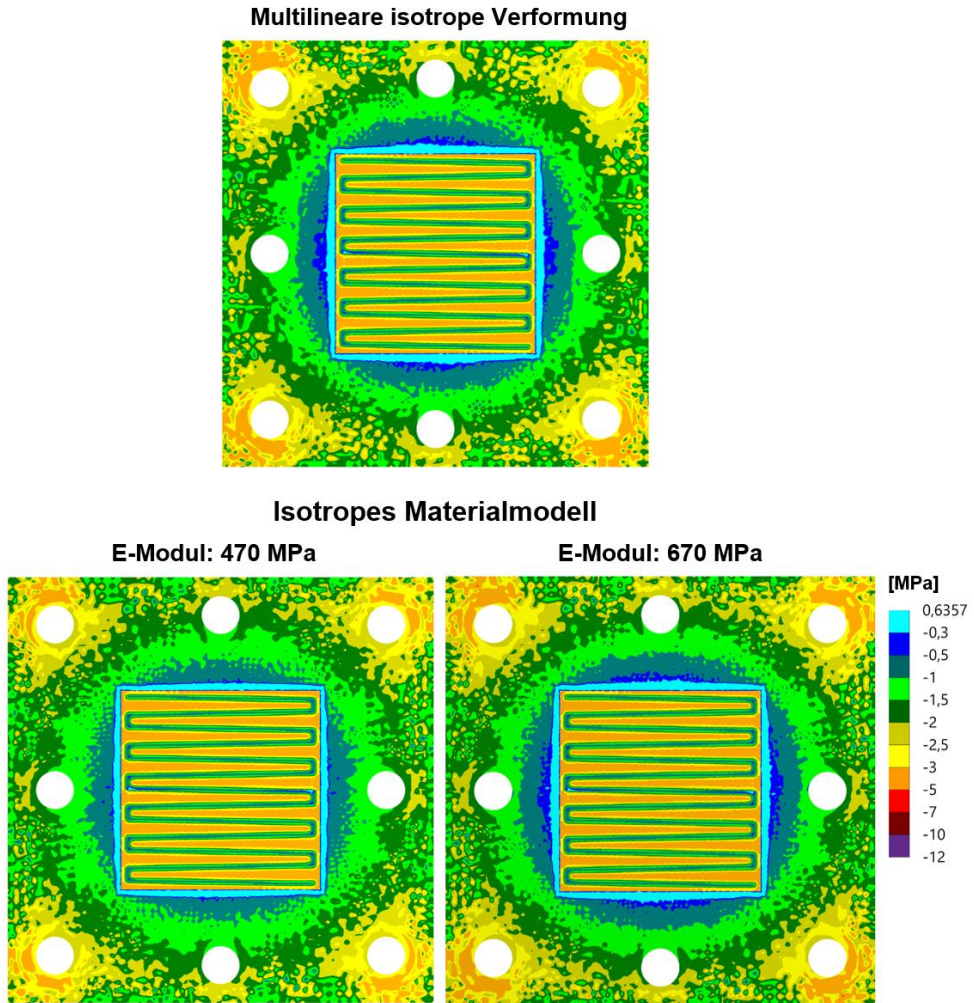


Abbildung 67: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für die Materialmodelle der multilinearen, isotropen Verformung und linear-elastischer Isotropie bei unterschiedlichen E-Modulen (in Kompressionsrichtung) für die PTFE-Dichtung.

Aus den drei Darstellungen der Normalspannungsverläufe ergeben sich nur minimale Unterschiede in der Druckverteilung auf der Dichtungsfläche, sodass hier zum besseren Vergleich die in Abbildung 59 dargestellten Auswertungspfade herangezogen werden, um den Normalspannungsverlauf auf dem Dichtungsbereich zu untersuchen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 68 dargestellt.

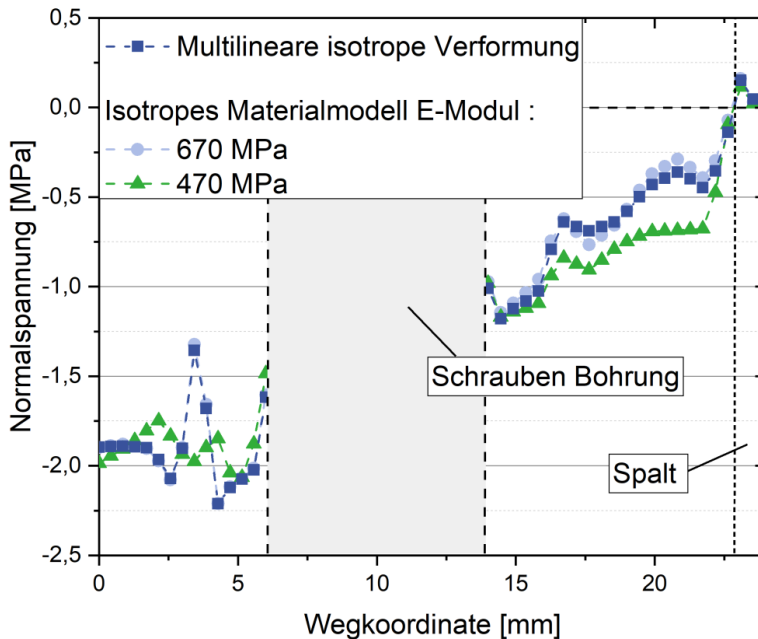


Abbildung 68: Simulierter Normalspannungsverlauf entlang des in Abbildung 59 dargestellten Auswertungspfads auf dem Dichtungsbereich für unterschiedliche Dichtungsmaterialmodelle.

Aus Abbildung 68 lässt sich gut erkennen, dass das Dichtungsmodell für eine multilineare, isotrope Verformung und für ein linear-isotropes Materialmodell mit einem E-Modul von 670 MPa nahezu deckungsgleiche Normalspannungsverläufe aufzeigt. Dies ist vermutlich damit zu begründen, dass beide Modelle mit dem gleichen E-Modul abgebildet werden und die multilineare, isotrope Verformung des Dichtungsmaterials in den simulierten Druckbereichen kaum einen Einfluss auf die Verformung des Dichtungsmaterials haben. Durch die Reduktion des E-Moduls auf 470 MPa flacht hingegen der Normalspannungsgradient auf der Dichtungsfläche ab und die Spannungsverteilung auf der Dichtungsfläche wird etwas homogenisiert. Insgesamt ist das simulierte Modell jedoch nicht sonderlich sensitiv auf das Materialmodell der Dichtung. Dies liegt vermutlich daran, dass die GDL-Materialien deutlich geringere E-Module in Kompressionsrichtung aufweisen und somit die Spannungsverteilung hauptsächlich vom Materialverhalten der GDL abhängig ist. Sollten für die Dichtung kompressiblere Materialien verwendet werden, muss der Einfluss der Dichtung neu evaluiert werden. Ebenfalls könnte das Modell bei größerem Krafteintrag und den damit verbundenen höheren Anpressdrücken sensitiver auf die Dichtungsparameter reagieren.

5.2.4 Variation Bekaert-Modell

Als letzte parametrische Betrachtung werden die für die Bekaert-PTL angenommenen Parameter überprüft. Da weder die Kompression noch der Anpressdruck auf dem Bekaert-Material bekannt waren, wurde entsprechend der Ausführungen in Abschnitt 4.3.1 ein E-Modul in Kompressionsrichtung von 214,66 MPa angenommen. Entsprechend der Betrachtungen in vorangegangenen Simulationen lässt sich für den Stegbereich ein Anpressdruck von ca. 2,5 – 3,5 MPa ableiten. Verwendet man diesen Wertebereich für die Bestimmung eines linear-elastischen E-Moduls mithilfe der in Abbildung 41 dargestellten Daten, so erhält man einen E-Modul von ca. 100 MPa. Vergleichende Simulationsergebnisse für beide E-Module bei einem konstanten G-Modul von 1100 MPa sind in Abbildung 69 dargestellt.

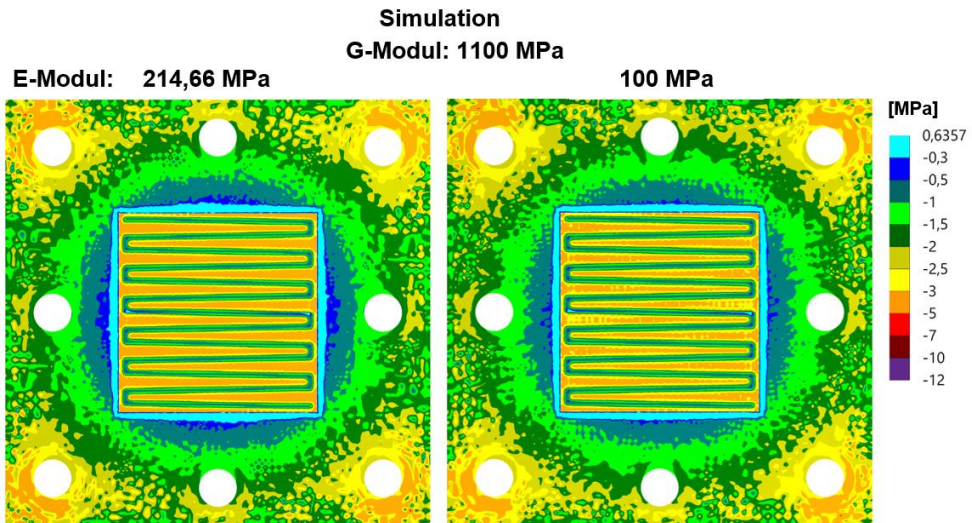


Abbildung 69: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) und einem konstanten G-Modul für das Materialmodell der PTL.

Durch den geringeren E-Modul des PTL-Materials werden die Normalspannungen auf dem aktiven Zellbereich verringert. Ebenso lässt sich eine geringe Veränderung der Normalspannungsverteilung auf dem Dichtungsbereich erkennen. Entscheidender für die Bewertung des Materialmodells der PTL ist die Normalspannungsverteilung auf der aktiven Zellfläche. Dementsprechend sind in Abbildung 70 die relativen Häufigkeitsverteilungen für unterschiedliche Parametervariationen des PTL-Materialmodells gezeigt.

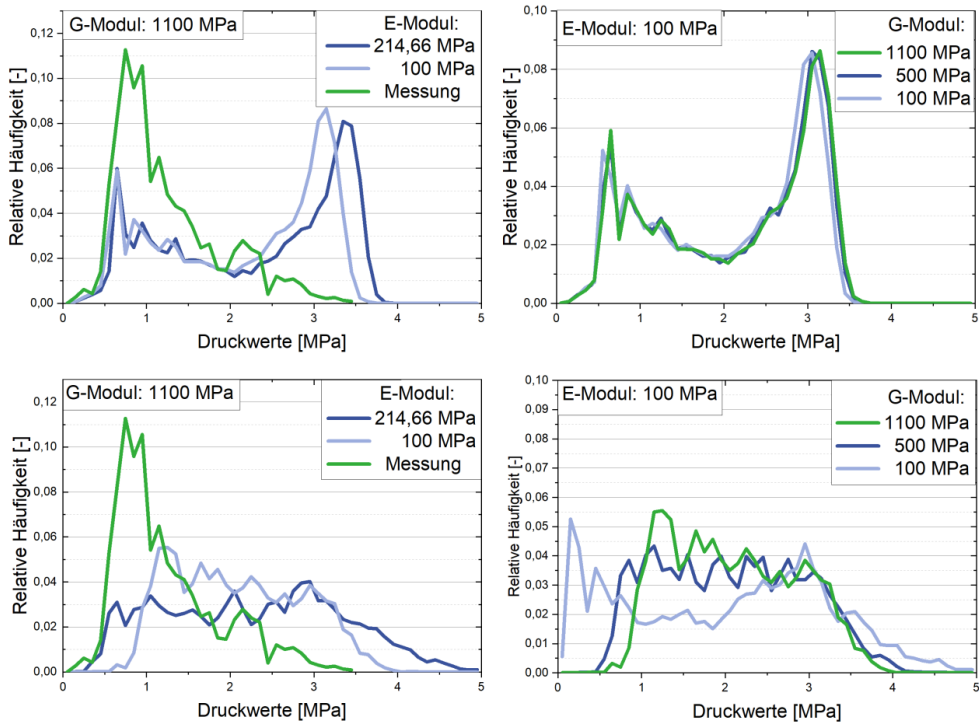


Abbildung 70: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zelfläche der Kathodenseite (Abbildungen links) und Anodenseite (Abbildungen rechts) des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (oben) und G-Module (unten) der PTL.

Durch die Reduktion des E-Moduls werden, sowohl für die kathodenseitige als auch die anodenseitige Häufigkeitsverteilung, die Druckwerte auf dem Stegbereich in Richtung der mit der Messung gemessenen Druckwerte verschoben. Dieser Effekt wirkt sich stärker auf die anodenseitigen Druckverteilung aus. So werden die maximalen Druckwerte von 5 MPa auf 4 MPa reduziert, während die für die Messung maximalen E-Module bei 3,5 MPa liegen. Ebenfalls werden auf der Anodenseite für den E-Modul von 100 MPa und einem konstanten G-Modul von 1100 MPa die Druckwerte im Kanalbereich auf Werte um 1 MPa gesteigert, sodass die Werte im Stegbereich vergleichend zur Messung überschätzt werden. Die Variation des G-Moduls zwischen dem Startparameter von 1100 MPa zu 500 MPa und 100 MPa beeinflusst die relativen Häufigkeitsverteilungen auf der Kathodenseite kaum. Auf der Anodenseite werden durch die Reduktion des G-Moduls auf 500 MPa die Druckwerte im Kanalbereich wieder auf Werte knapp oberhalb von 0,5 MPa verschoben, welche besser mit den Werten der Messung übereinstimmen. Durch eine weitere Reduktion des G-Moduls auf 100 MPa werden die Druckwerte deutlich weiter gestreut, sodass die Druckwerte auf den Stegflächen gesteigert werden und die Druckwerte im Kanalbereich reduziert werden. Folglich

ist ein G-Modul von 100 MPa deutlich zu gering, um das Materialverhalten der PTL korrekt abbilden zu können.

Entsprechend dieser parametrischen Untersuchungen wurde der E-Modul auf 100 MPa und der G-Modul auf 500 MPa festgelegt, da diese Parameter zusammen mit den zuvor festgelegten Parametern für das GDL-Material die experimentellen Daten am besten wiedergeben. Das gesamte Modell ist somit nicht besonders sensitiv gegenüber kleinen Abweichungen der Parameter. Werden die Materialparameter jedoch stark über- oder unterschätzt, wird davon auch das Simulationsergebnis deutlich beeinflusst.

5.2.5 Diskussion und Bewertung des Fujifilm-Ersatzmodells

Aufgrund der eventuell nicht ausreichenden Datenlage hinsichtlich der Materialmodelle, sowie der durch das Messverfahren limitierten Genauigkeit des experimentellen Messsystems, ist die Korrektheit des Modells hinsichtlich aller untersuchten Parameter schwierig zu beurteilen. Jedoch konnte das Modell so weit experimentell validiert werden, dass mit einiger Sicherheit qualitative Aussagen und, unter Beachtung der getroffenen Annahmen, auch quantitative Aussagen über das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle getroffen werden können. Somit ist das Modell geeignet, um simulative Untersuchungen von Zellassemblierungen durchzuführen und aufgrund dessen das mechanische Verhalten zu bewerten.

Weiterhin konnte, im Gegensatz zu allen bekannten Veröffentlichungen, die simulierte mechanische Belastung mit tolerierbaren Ungenauigkeiten validiert werden. Dies ist vor allem mit der realitätsnahen Assemblierung des Modells, sowie hinreichend genauen Materialmodellen und einer möglichst exakten geometrischen Umsetzung des Modells zu begründen.

Weiterhin konnte das Zellmodell verwendet werden, um die experimentelle Methode zu überprüfen und deren Einfluss auf das Messsystem zu bestimmen, was ebenfalls vom Ansatz her neuartig ist.

Zusammenfassend lässt sich die Aussage treffen, dass eine Validierung des Simulationsmodells eines Elektrolyseurs mittels eines Fujifilm-Ersatzsystems zu realitätsnahen Ergebnissen geführt hat. Die einzelnen Materialparameter konnten hinsichtlich ihres Einflusses auf das Modell untersucht werden und auf Grundlage der Messung konnten Parameter gefunden werden, welche das mechanische Zellverhalten möglichst gut abbilden. So stellen sich für die GDL ein E-Modul in Kompressionsrichtung von 12 MPa und ein G-Modul von 30 MPa als geeignet dar, das Materialverhalten hinreichend genau für die hier betrachtete Kompression zu beschreiben. Für das PTL-Material wurden entsprechend der Untersuchungen ein E-Modul von 100 MPa und ein G-Modul von 500 MPa definiert. Für das Dichtungsmaterial soll im Folgenden das Modell der multilinen, isotropen Verformung mit

einem E-Modul von 670 MPa für das PTFE-Material verwendet werden. Aus diesen Materialparametern ergeben sich die in Abbildung 71 dargestellten relativen Häufigkeitsverteilungen auf der aktiven Zelloberfläche. Das hier untersuchte Modell und die abgeleiteten Materialparameter sollen im Folgenden für alle weiteren Simulationen des mechanischen Verhaltens verwendet werden.

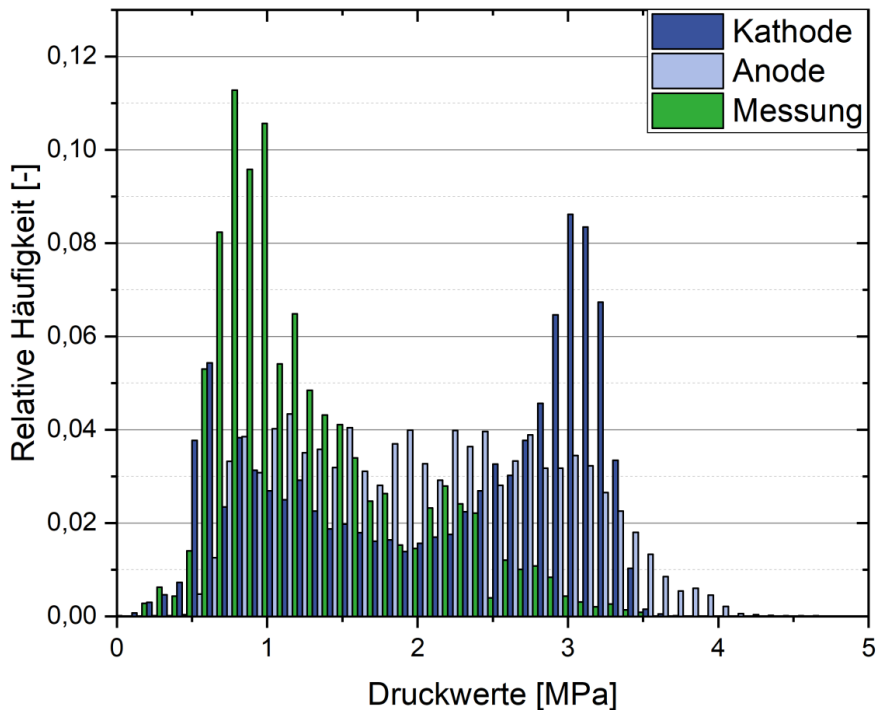


Abbildung 71: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zelloberfläche der Kathodenseite und der Anodenseite des Fujifilm-Folienstapels für die festgelegten Materialparameter von GDL, PTL und Dichtung, sowie mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung auf der aktiven Zelloberfläche.

Im Folgenden soll nun der in diesem Modell verwendete Fujifilm-Folienstapel durch die MEA substituiert werden, um das mechanische Verhalten realer Zellaufbauten simulativ genauer evaluieren zu können.

5.3 Finite-Elemente-Simulation einer Elektrolysetestzelle

Durch das Substituieren des zuvor betrachteten Fujifilm-Folienstapels mit der im realen Aufbau einer Elektrolysezelle verwendeten MEA kann nun das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle entsprechend den zuvor evaluierten Annahmen evaluiert werden. Weiterhin kann der mechanische Einfluss der Fujifilm-Folien auf den Aufbau evaluiert werden und dadurch ebenfalls die Messmethode weiter bewertet werden. Dementsprechend ist in

Abbildung 72 die Normalspannungsverteilung des Fujifilm-Ersatzmodells und des hier betrachteten MEA-Modells dargestellt. Weiterhin sind in Abbildung 73 die relativen Häufigkeitsverteilungen auf der aktiven Zelfläche der Kathodenseite und Anodenseite beider Simulationen dargestellt.

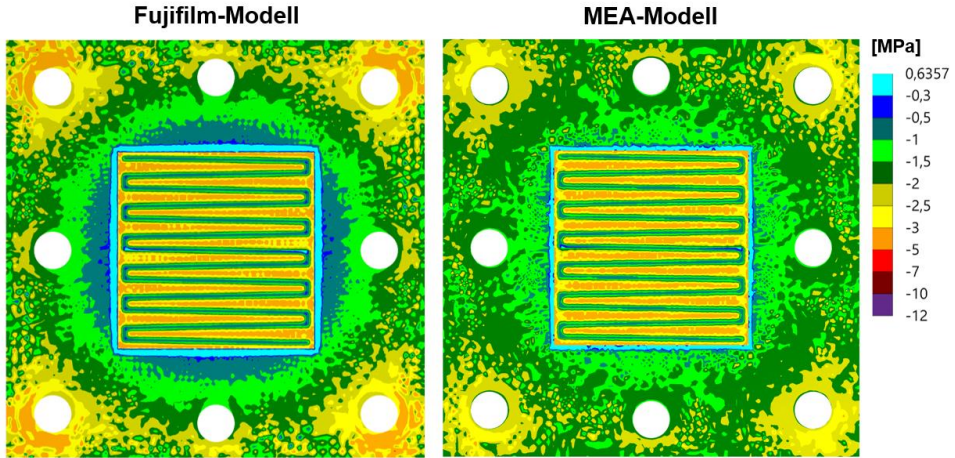


Abbildung 72: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels des Fujifilm-Ersatzmodells und der MEA des MEA-Modells.

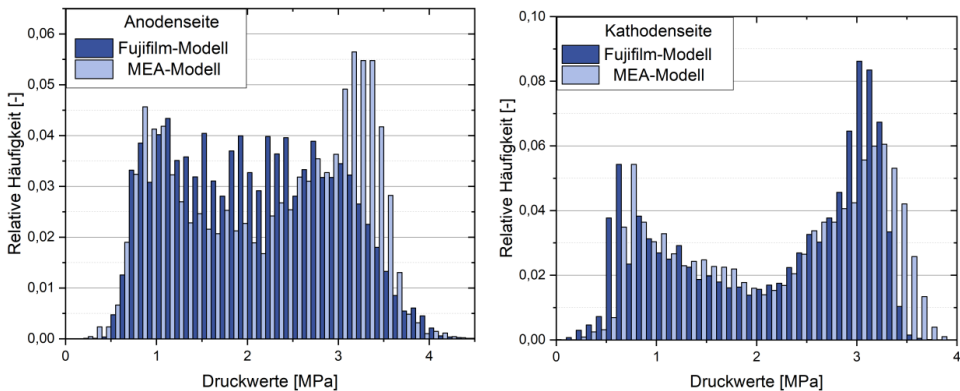


Abbildung 73: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zelfläche der Anodenseite (links) und der Kathodenseite (rechts) des Fujifilm-Folienstapels des Fujifilm-Ersatzmodells und der MEA des MEA-Modells.

Insgesamt lassen die Simulationsergebnisse den Einfluss der Fujifilm-Folien auf den Versuchsaufbau deutlich erkennen. So weisen die Anpressdrücke auf der Dichtungsfläche bei dem MEA-Modell geringere Normalspannungsgradienten zwischen der Zellmitte und dem

Zellrand auf als bei der Simulation des Fujifilm-Modells. Ebenfalls sind die Normalspannungswerte um die Schraubenlöcher erhöht. Auf der Kathodenseite der aktiven Zellfläche sind die relativen Häufigkeitsverteilungen vergleichbar und die Druckwerte auf der aktiven Zellfläche des Fujifilm-Modells sind etwas geringer als beim Membranmodell. Auf der Anodenseite sind hingegen die Häufigkeitsverteilungen beider Modelle unterschiedlicher, so sind bei dem MEA-Modell wie auf der Kathodenseite die Druckwerte auf dem Kanal- und Stegbereich deutlich unterschiedlich. Werden nun die anodenseitige und kathodenseitige Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche des MEA-Modells verglichen, wie in Abbildung 74 dargestellt, so ist deutlich zu erkennen, dass sich die relativen Häufigkeiten beider Seiten angleichen und somit ebenfalls die Druckverteilung auf beiden Seiten vergleichbar ist.

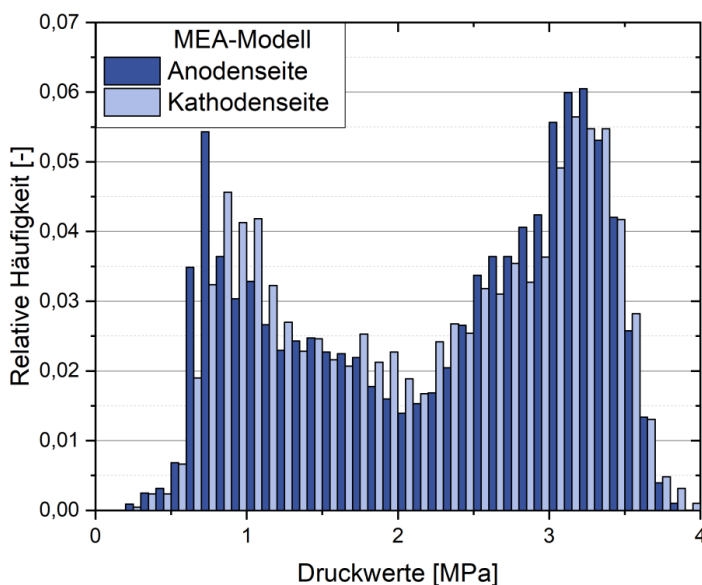


Abbildung 74: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Anodenseite und der Kathodenseite der MEA des MEA-Modells.

Mithilfe des MEA-Modells lässt sich nun das mechanische Verhalten der gesamten Elektrolysezelle untersuchen. Somit können Aussagen getroffen werden, die nicht messtechnisch in der Zelle evaluiert werden können. So ist in Abbildung 75 die Dehnung der porösen Materialien unter dem Kanal- und Stegbereich abgebildet. Für das GDL-Material stellt sich die erwartete Kompression unter den Stegen ein, während diese im Kanalbereich lediglich um wenige Prozente gestaucht wird. Verglichen mit dem GDL-Material werden das MEA- und PTL-Material kaum komprimiert, was mit den deutlich höheren E-Modulen der Materialien zu erklären ist.

An den Kanten der Stegstruktur überschreiten die simulierten Kompressionen einen Wert von 0,3 MPa. Dies ist vermutlich mit Randeffekten der Finite-Elemente-Methode zu erklären, da es an den Kontaktstellen zwischen den Stegkanten und dem GDL-Material zu lokalen Eindringungen (Penetrationen) in der Simulation kommen kann. Diese Eindringungen führen zu geringen numerischen Fehlern.

Weiterhin wird im Kanalbereich sogar eine positive Dehnung zwischen 0 und 0,1 mm/mm simuliert. Ob dieses physikalisch der Realität entspricht, ist fraglich. Vermutlich resultiert dieses Verhalten aus dem linear-elastischen, volumenkonstanten Materialmodell des GDL-Materials. Durch dieses Materialmodell wird die Porosität und die Faserstruktur nicht abgebildet, weshalb die Stauchung unter dem Steg zu einer Dehnung des Volumens im Kanal führt.

Diese Erkenntnisse sollten für die Betrachtung und Bewertung von Simulationsmodellen stets beachtet werden und decken sich mit den Vermutungen aus Abschnitt 5.2, dass die Druckverteilung auf den Stegen aufgrund des Materialmodells nicht vollständig korrekt dargestellt werden kann.

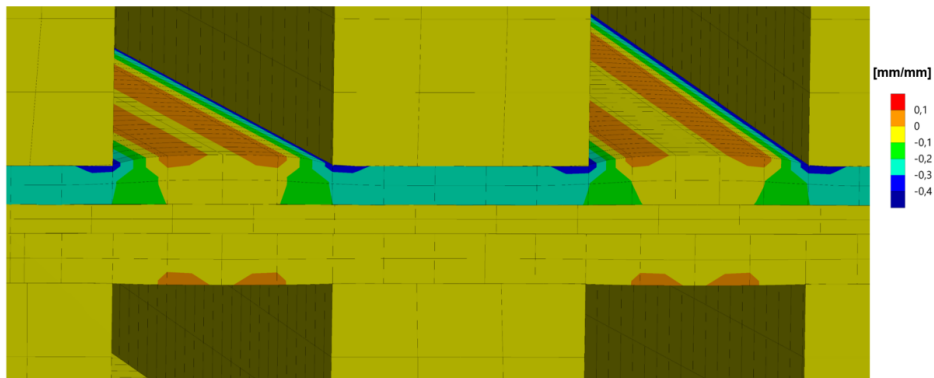


Abbildung 75: dreidimensionale Darstellung der simulierten Stauchungen und Dehnungen im Kanal-Stegbereich des Zellmodells.

Mithilfe des Simulationsmodells lassen sich ebenfalls die zuvor aufgestellten Vermutungen zur Kraftübertragung des GDL-Materials auf die MEA prüfen. Hierfür sind in Abbildung 76 die Druckverteilungen auf beiden Seiten des GDL-Materials dargestellt. Wie erwartet, wird auf der dem Flowfield zugewandten Seite (FFP-Seite) lediglich ein Einpressdruck auf den Kontaktflächen zu den Stegen simuliert, während im Kanalbereich keine Drücke vorliegen. Die aufgenommenen Kräfte werden durch das GDL-Material auch auf die Kanalbereiche verteilt, sodass die zuvor für die MEA-Oberfläche dargestellte Druckverteilung auch auf der MEA zugewandten Seite der GDL festzustellen ist.

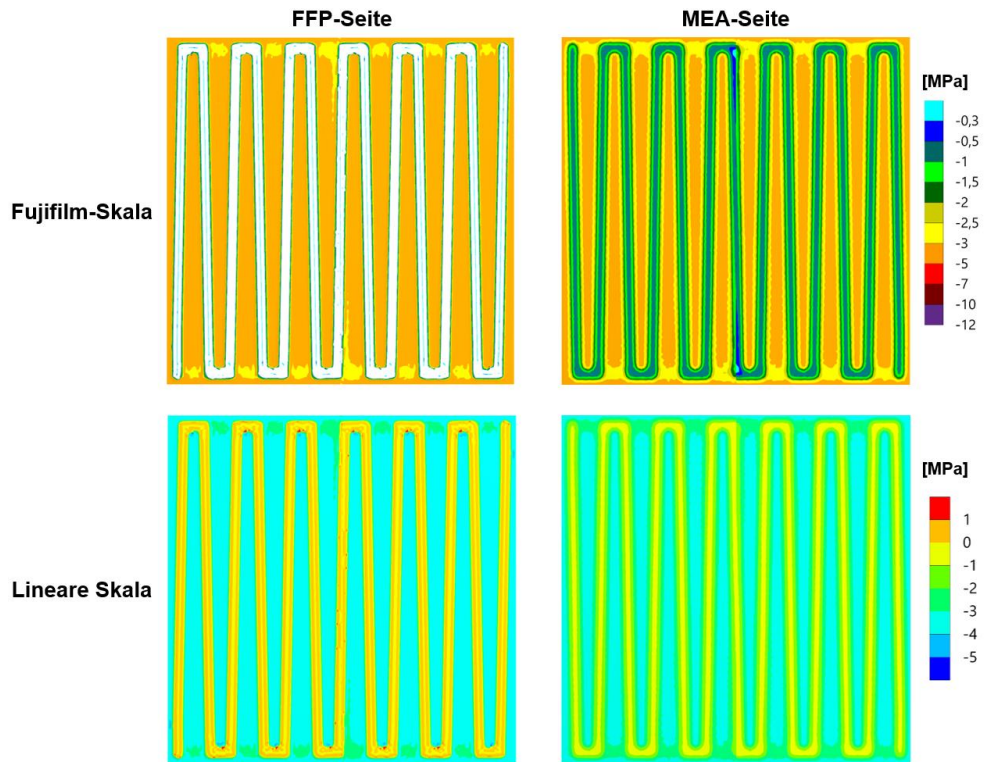


Abbildung 76: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der FFP-Seite und der MEA-Seite der GDL dargestellt mit der Fujifilm-Skala (oben) und einer linearen Skala (unten).

Für die Bewertung der Kraftverteilung in einer Elektrolysezelle kann die Normalspannungsverteilung in Kompressionsrichtung innerhalb des Zellverbunds herangezogen werden. Diese Normalspannungsverteilung ist für eine Schnittdarstellung des MEA-Modells in Abbildung 77 dargestellt.

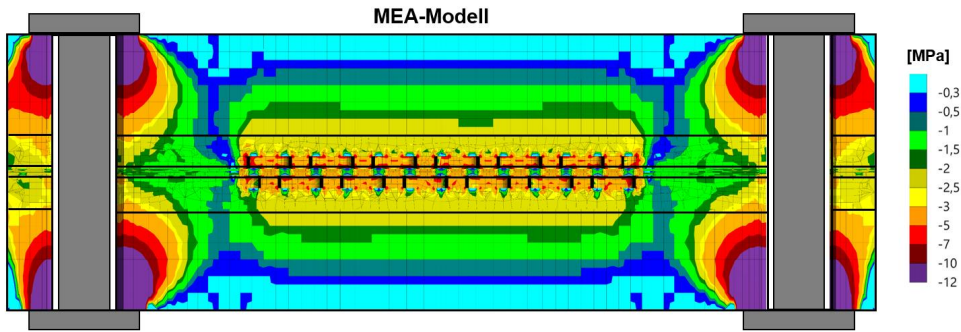


Abbildung 77: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells.

Die Normalspannungsverteilung in der Schnittansicht ähnelt der in Abbildung 57 dargestellten Spannungsverteilung für den Fujifilm-Aufbau mit Verbundkontakten, jedoch liegen, wie auch in den Druckverteilungen in Abbildung 72 zu sehen, höhere Normalspannungen in Richtung der Zellmitte vor. Somit lässt sich die Vermutung bestätigen, dass die Krafteinleitung, die sich in Abbildung 77 durch die Normalspannungen illustrieren lässt, im MEA-Modell gleichmäßiger ist als im Fujifilm-Modell. Insgesamt jedoch gestaltet sich auch hier die Krafteinleitung auf dem Dichtungsbereich nicht optimal und die größten Kräfte entfallen auf den Dichtungsbereich um die Schrauben. Die Kraftverteilung in diesem Bereich lässt sich deshalb mit einer Art Kraftkurzschluss beschreiben.

Weiterhin lassen sich mithilfe des hergeleiteten MEA-Modells auch parametrisch konstruktive Einflüsse auf das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle untersuchen. Hierfür werden in dem Modell einzelne Parameter, wie die Kraft oder die geometrischen Dimensionen der Bauteile, angepasst. Der Vorteil ist hierbei, dass keine aufwendigen experimentellen Untersuchungen vorgenommen werden müssen, um Informationen über den zu untersuchenden Aufbau zu erhalten. Zudem müssen konstruktive Bauteiländerungen nicht realisiert werden, um diese bewerten zu können. Im Folgenden soll das MEA-Modell verwendet werden, um einige konstruktive Untersuchungen an der Elektrolysezelle vorzunehmen und um diese mit den experimentellen Untersuchungen zum Dichtungsdesign und zum Einfluss unterschiedlicher Kompressionen in Abschnitt 5.1.5 und Abschnitt 5.1.4 vergleichend betrachten zu können. Abschließend sollen mithilfe der parametrischen Untersuchungen zum MEA-Modell konstruktive Empfehlungen für die Auslegung von Elektrolysezellen und -stacks abgeleitet werden.

5.3.1 Variation der Schraubenkraft

Im ersten Schritt soll der Einfluss der zum Verspannen verwendeten Kraft auf die Mechanik untersucht werden. Hierfür wird die auf die Zelle wirkende verspannende Kraft auf 7 kN halbiert

und auf 28 kN verdoppelt. Die Druckverteilungen auf der MEA sind in Abbildung 78 vergleichend für die drei unterschiedlichen Kräfte dargestellt.

Die Ergebnisse decken sich mit den Erkenntnissen aus den experimentellen Untersuchungen zur Druckverteilung. So wird unabhängig von der Kraft bei der Simulation zuerst die Kompression der GDL stattfinden, sodass sich vergleichbare Druckverteilungen auf der aktiven Zellfläche einstellen. Weitere Erhöhungen der Kräfte führen zu einem Anstieg der Drücke auf dem Dichtungsbereich. Ebenfalls ist für alle drei Kräfte der Gradient der Anpressdrücke auf dem Dichtungsbereich zu erkennen. Gut zu erkennen ist, dass mit einer Kraft von 7 kN fast kein Druck auf die Dichtung zwischen den Schraubenlöchern und der aktiver Zellfläche aufgebracht wird. Mit dieser Konfiguration ist folglich eine Abdichtung der Zelle unmöglich, während durch eine Verdopplung der Kraft lediglich eine Steigerung des Drucks auf maximal 5 MPa im relevanten Dichtungsbereich erzielt wird. Dieser Druck ist in Hinblick auf die Dichtigkeitsmessungen in Abschnitt 5.1.5 weiterhin kaum ausreichend für eine benötigte Dichtungsleistung im Differenzdruckbetrieb. Folglich müsste die Schraubenkraft theoretisch weiterhin signifikant gesteigert werden. Weiterhin sind für alle Kraftwerte, wie bereits zuvor beobachtet, deutlich erhöhten Anpressdrücke in den Ecken der Elektrolysezelle zu erkennen. Anpressdrücke in diesem Bereich der Zelle haben jedoch keinen funktionellen Mehrwert.

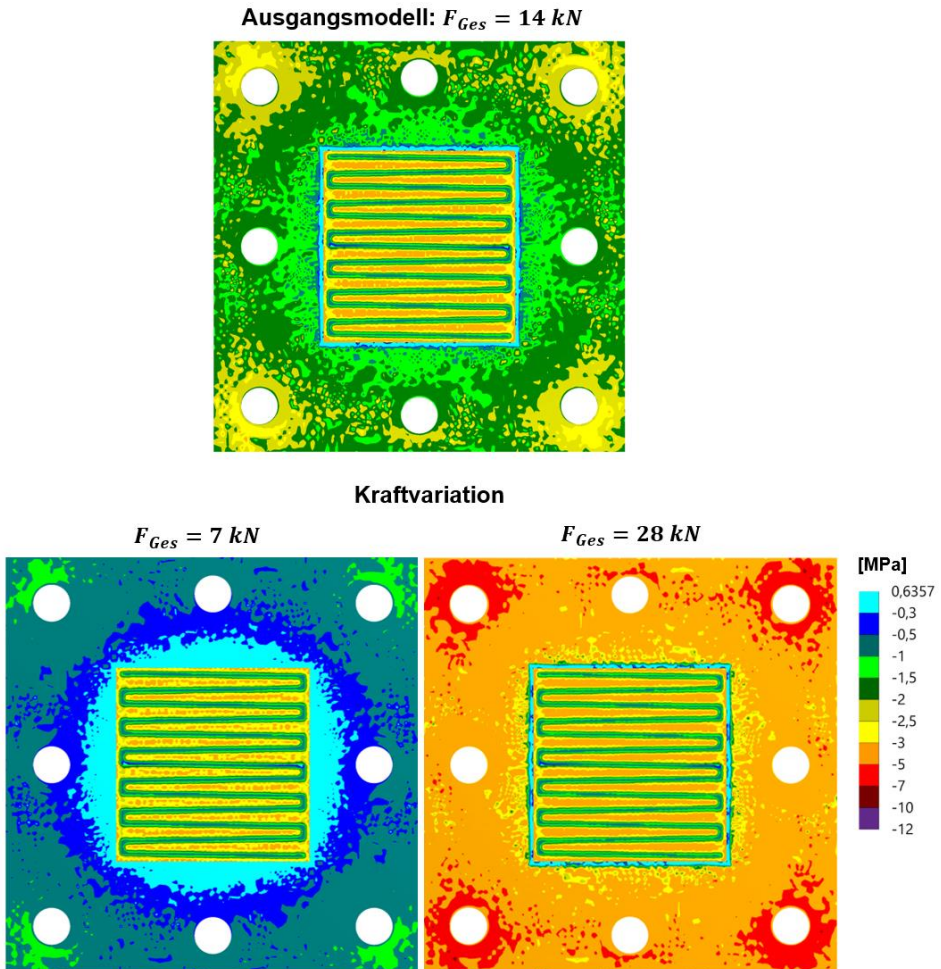


Abbildung 78: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche in der Simulation aufgebrachten Gesamtkräfte F_{Ges} .

Der mechanische Einfluss der Kräfte lässt sich, wie in Abbildung 79 dargestellt, ebenfalls durch die Normalspannungsverteilung im Zellquerschnitt verdeutlichen. So ist zu erkennen, dass die halbierte Kraft nicht ausreichend ist, um eine Kompression in der Zellebene zu erreichen. Die Normalspannungen im aktiven Zellbereich werden somit fast ausschließlich durch die Kompression des GDL-Materials bewirkt.

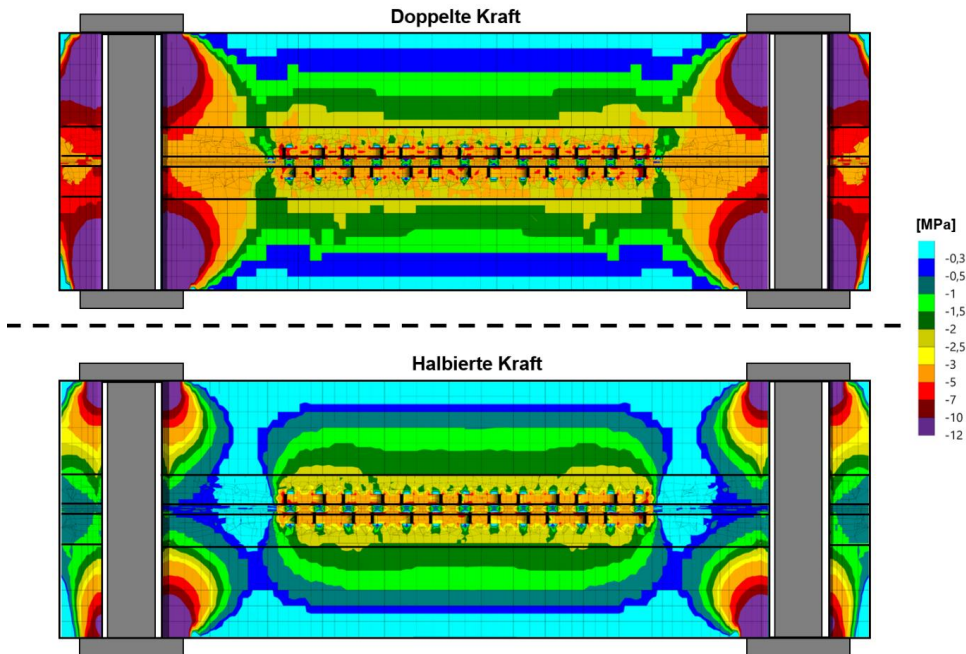


Abbildung 79: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells mit einer verdoppelten (oben) und einer halbierten (unten) Gesamtkraft.

Um den Einfluss der Schraubenkräfte auf die Kraftverteilung im aktiven Zellbereich näher beurteilen zu können, ist die relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte in Abbildung 80 dargestellt. Diese verdeutlichen, dass die vorgegebene Kraft, verglichen mit dem Einfluss auf die Druckverteilung, auf der Dichtungsfläche einen relativ geringen Einfluss auf die Druckverteilungen der aktiven Zellfläche hat. So ist hauptsächlich eine vergleichsweise geringe Steigerung der Druckwerte auf dem Stegbereich zu vermerken. Die Verdopplung der Kraft führt somit lediglich zu einer Steigerung des mittleren Anpressdrucks auf der aktiven Zellfläche von ca. 4%. Durch die Halbierung der Kraft wird der mittlere Anpressdruck um 7% reduziert. Dies verdeutlicht die zuvor beschriebene Funktion der Dichtung als Hard-Stop. So wird nach Erreichen der eingestellten Kompression eine weitere Kompression durch die Dichtung stark reduziert. Da das Dichtungsmaterial ebenfalls leicht komprimiert wird, lässt sich mit steigender Kraft die GDL ebenfalls um diesen Betrag komprimieren. Hierdurch steigen ebenfalls die Druckwerte auf den Stegbereichen etwas an.

Insgesamt kann zusammengefasst werden, dass eine minimale Kraft notwendig ist, um die erforderlichen Anpressdrücke auf dem Dichtungsbereich zu erzielen. Das präsentierte Zelldesign ist jedoch sehr ineffizient zur Krafteinleitung in die Zelle. Wird der Anpressdruck im

aktiven Zellbereich durch die Kompression der GDL eingestellt, ist die Druckverteilung in diesem Bereich fast unabhängig von der eingeleiteten Kraft.

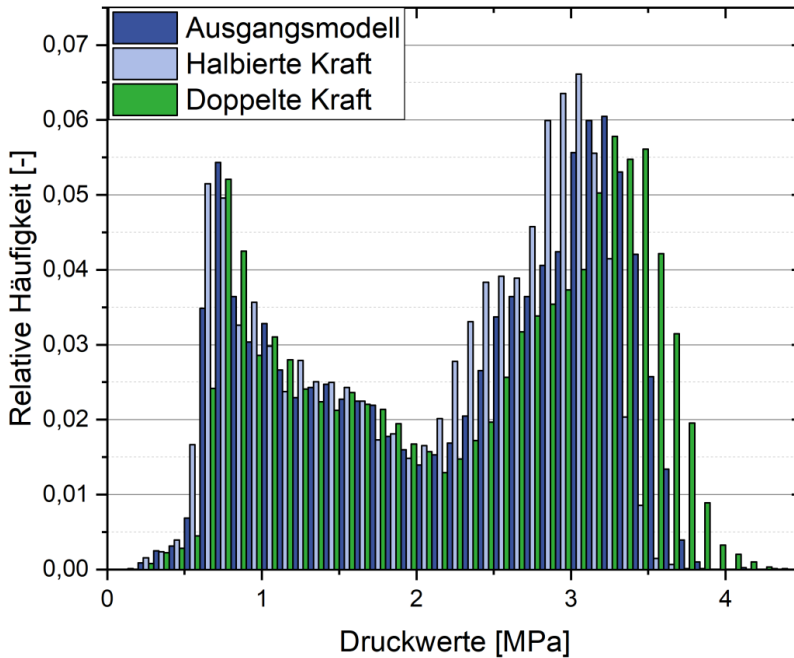


Abbildung 80: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche, in der Simulation aufgebraachte Gesamtkräfte.

5.3.2 Variation der GDL-Kompression

Weiterhin soll der Einfluss der GDL-Kompression vergleichend zu den experimentellen Untersuchungen in Abschnitt 5.1.4 untersucht werden. Dementsprechend wurden für diese Betrachtungen ebenfalls theoretische Kompressionen der GDL von 5%, 20%, 30% und 40% mithilfe der Dichtungen eingestellt. Die auf der Oberfläche der MEA simulierten Druckverteilungen sind in Abbildung 81 dargestellt.

Qualitativ entsprechen die Simulationen den Ergebnissen der experimentellen Untersuchungen (vgl. Abschnitt 5.1.4). So wird mit Steigerung der Kompression ebenfalls eine Steigerung der Normalspannungen auf der aktiven Zellfläche verursacht. Dementsprechend steigt die Gesamtkraft auf dem aktiven Zellbereich und die Gesamtkraft auf dem Dichtungsbereich nimmt ab. Weiterhin lässt sich ebenso feststellen, dass mit steigender theoretischer Kompression der Normalspannungsgradient auf dem Dichtungsbereich ansteigt. Als zusätzliche Illustration dieses Effekts sind in Anhang Bild 20 und in Anhang Bild 21 die Normalspannungsverteilungen im Zellquerschnitt dargestellt.

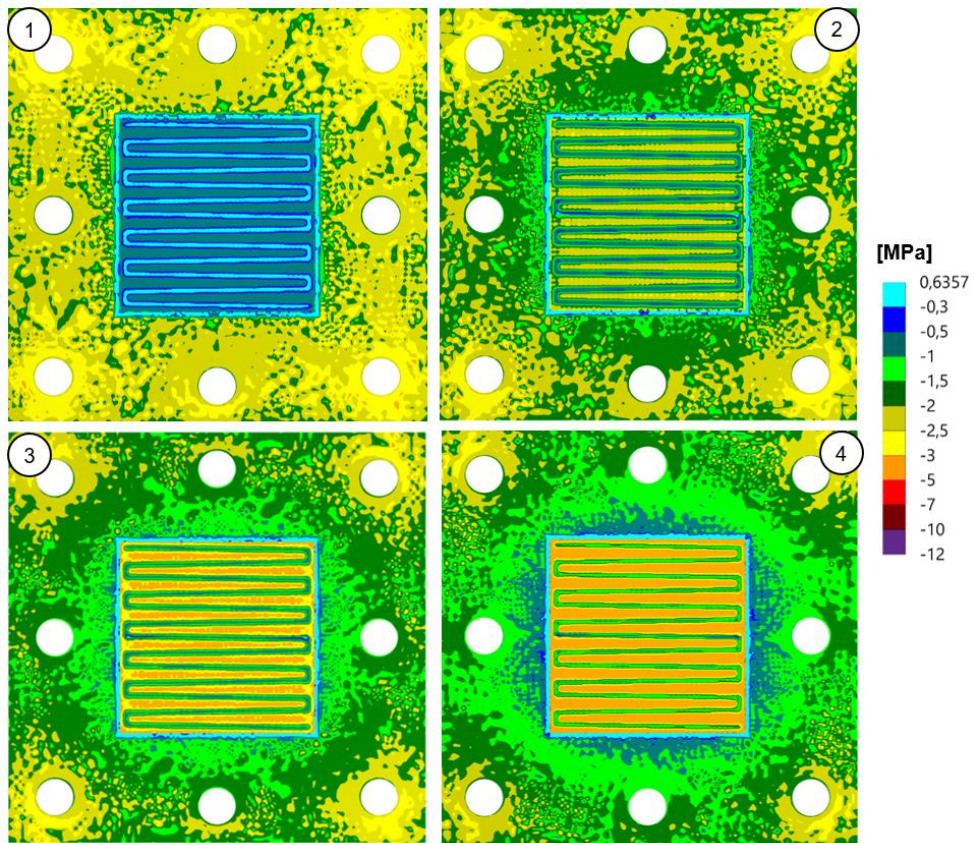


Abbildung 81: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche theoretische Kompressionen des GDL-Materials: 1) 5% 2) 20%; 3) 30%; 4) 40%.

Vergleichbar mit den in Abschnitt 5.1.4 vorgestellten Ergebnissen wird in Abbildung 82 ebenfalls die relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf der aktiven Zelloberfläche dargestellt. Ein direkter Vergleich der Häufigkeitsverteilungen ist aufgrund der zuvor diskutierten Gründe schwierig, jedoch lassen sich die gleichen Trends in den Verteilungen erkennen. So steigen mit zunehmender Kompression die Druckwerte auf dem Kanal- und Stegbereich, wobei der Anstieg der Drücke auf dem Stegbereich signifikanter ist. Vergleichbar mit den praktischen Messungen werden auf den Stegen ebenfalls Druckwerte von bis zu 5 MPa für eine Kompression von 40% erzielt, während die Druckwerte auf den Stegbereichen bei Kompressionen von 20% und 30% etwas überschätzt werden. Der Anstieg der Druckwerte im Kanalbereich wird für die verschiedenen Kompressionen vergleichbar mit der experimentellen Messung simuliert. So steigen für beide Betrachtungen die Druckwerte von

ca. 0,5 MPa bei einer Kompression von 20% auf ca. 1 MPa bei einer Kompression von 40%. Herausstechend ist die Druckverteilung für eine Kompression von 0%. Hier liegen fast alle gemessenen Druckwerte in einem sehr schmalen Wertebereich zwischen 0 und 1 MPa vor, was die hohen relativen Häufigkeiten der einzelnen Druckwerte erklärt. Im Gegensatz zu den experimentellen Messungen lassen sich die Druckwerte trotzdem relativ eindeutig dem Kanal- und Stegbereich zuordnen.

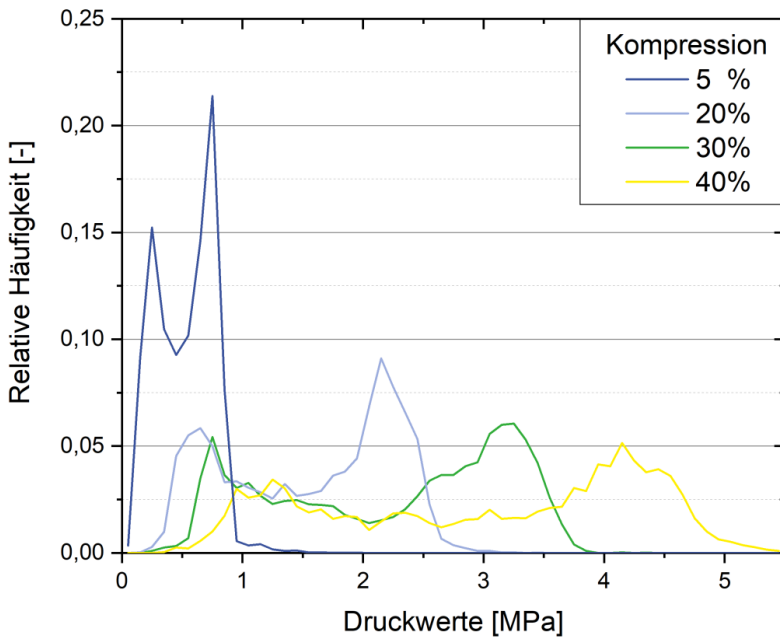


Abbildung 82: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche theoretische Kompressionen des GDL-Materials (repräsentative Liniendiagramm-Darstellung).

Durch die relativ akkurate Darstellung des Einflusses der Kompression lässt sich das Modell ebenfalls verwenden, um weitere Einflüsse der porösen Materialien auf die Druckverteilung zu untersuchen. So kann das kompressible grafitische Material auf der Kathodenseite durch ein steiferes Material wie einem Titanvlies ersetzt werden. In der Literatur kommen Titanvliese ebenfalls auf der Kathoden- und Anodenseite zum Einsatz. Ein Vorteil von der beidseitigen Verwendung kann die bessere Druckverteilung durch das Material sein. Jedoch müssen bei derartig inkompressiblen Materialien mögliche Materialtoleranzen beachtet werden. Dementsprechend wurde ebenfalls die beidseitige Verwendung eines Titanvlieses untersucht. Hierfür wurde das Materialmodell des in dieser Arbeit verwendeten Titanvlieses der Firma Bekaert verwendet. Da das Titanvlies vergleichsweise inkompressibel ist, wurden

Kompressionen von 0% und 5% betrachtet und vergleichend mit einer gleichen Kompression des Toray-Materials in Abbildung 83 dargestellt.

Bereits bei einer Kompression von 0% beider Materialien ist der mittlere Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche des Aufbaus mit dem Bekaert-Material mit ca. 0,7 MPa erwartungsgemäß größer als beim Toray-Material mit ca. 0,2 MPa. Durch die Steigerung der Kompression um 5% steigt der mittlere Anpressdruck des Toray-Aufbaus auf 0,5 MPa, während der mittlere Anpressdruck für den Bekaert-Aufbau auf ca. 1,8 MPa ansteigt. Die Anpressdrücke auf den Stegbereichen der Bekaert-Aufbauten sind ebenfalls deutlich höher als in den vorherigen Simulationen für das Toray-Material.

Die Ergebnisse lassen einige Aussagen für die Auslegung der porösen Medien zu. So führt ein deutlich steiferes Material wie die Bekaert-PTL zu einer besseren Anpressdruckverteilung über den Kanal- und Stegbereich. Außerdem muss bei der Auslegung die Kompressibilität der Materialien beachtet werden. Der E-Modul des Bekaert-Materials übersteigt den E-Modul des Toray-Materials um eine Größenordnung. Dies führt bereits bei sehr geringen Kompressionen zu deutlich höheren Anpressdrücken. Ein weiterer Effekt des inkompressibleren Verhaltens der Bekaert-PTL ist die höhere Toleranzanfälligkeit. So führt in einem Aufbau mit zwei Bekaert-PTLs eine Toleranz von 18 μm (Kompression von 5%) zu einer Steigerung des mittleren Anpressdrucks von über 1 MPa, weshalb bei einer solchen Ausführung besonders auf die Maßhaltigkeit der Schichtdicken geachtet werden muss. Das Toray-Material wirkt durch seine hohe Kompressibilität als Puffer für Toleranzen in den Oberflächen- oder Materialdicken.

Weiterhin muss darauf geachtet werden, dass sich bei der Kompression des Bekaert-Materials der eingestellte Wert von 5% auf der anoden- und kathodenseitige PTL aufteilt und es somit zu Scherungen an der Dichtung kommen kann, sollte diese nicht gleichmäßig ausgelegt sein.

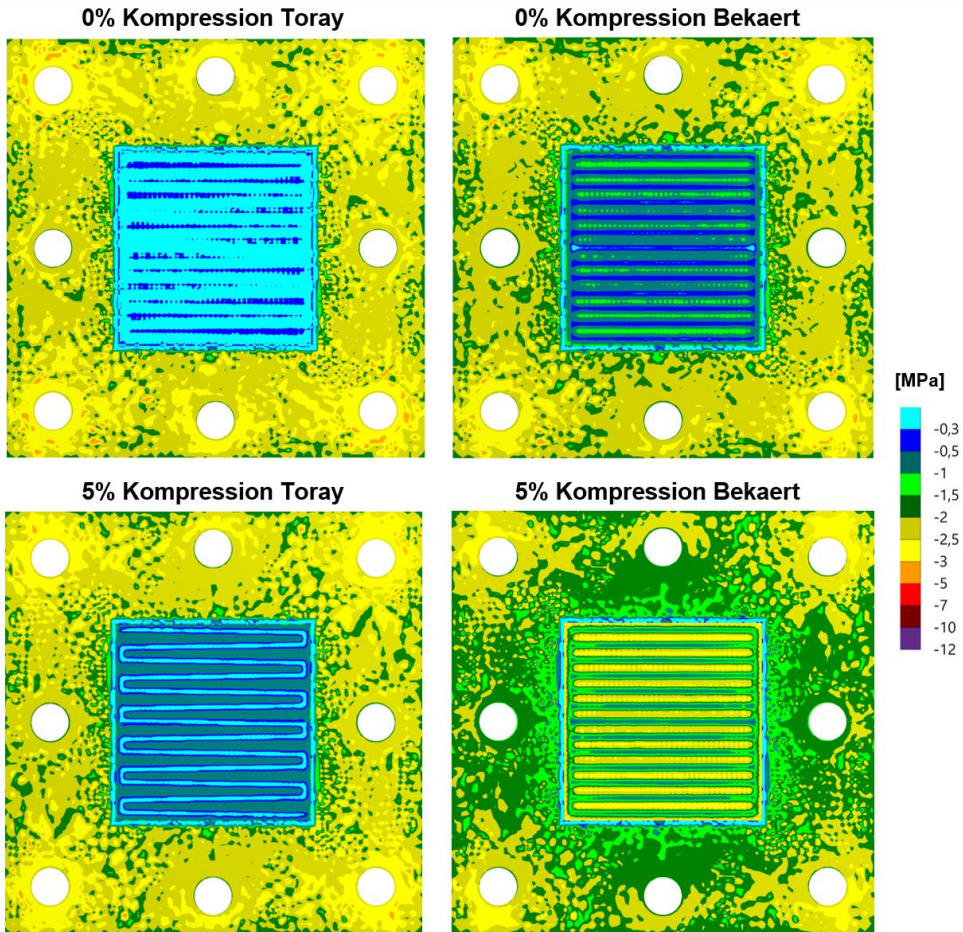


Abbildung 83: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche kathodenseitige poröse Materialien (Toray und Bekaert) und unterschiedliche theoretische Kompressionen (0% und 5%).

5.3.3 Variation der Flowfield-Struktur

Eine weitere Möglichkeit die Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche zu homogenisieren ist eine geometrische Anpassung der Flowfield-Struktur. Hierfür wurde das in Abschnitt 4.1.5 beschriebene Modell für eine Streckmetallzelle (Streckmetalldesign) vergleichend mit der mäanderförmigen Kanal-Steg-Struktur (Ausgangsmodell) betrachtet. Die auf der Oberfläche der MEA simulierten Druckverteilungen beider Zellaufbauten sind in Abbildung 84 dargestellt.

Bei der Druckverteilung des Streckmetalldesigns ist eine deutlich gleichmäßigere Verteilung der Normalspannungen im Bereich der aktiven Zellfläche zu erkennen. So lässt sich ein Anpressdruckmuster entsprechend der Netzweite des „feinen“ Streckmetalls erkennen. Der

Einfluss der darunterliegenden Streckmetalle („mittleres“ und „grobes“ Streckmetall) ist nur bedingt zu sehen. Die Druckverteilung auf dem Dichtungsbereich ist schwierig vergleichend zu bewerten, da sich in diesem Bereich für die Streckmetallgeometrie größere Inkonsistenzen in den simulierten Normalspannungskonturbändern zeigten. Der Grund für dieses unterschiedliche Simulationsverhalten ist vermutlich das Fehlen der anodenseitigen Dichtung bei Verwendung des Streckmetalldesigns, wie in Abschnitt 4.1.5 beschrieben. So drückt in diesem Bereich die verhältnismäßig dicke Bauteilgeometrie der FFP direkt auf die verhältnismäßig dünne MEA. Durch den großen Unterschied der Bauteilgeometrie kann es bei den Simulationen zu lokalen numerischen Fehlern kommen, sodass die Druckwerte für einige Knotenpunkte unter- oder überschätzt werden. Insgesamt ist der mittlere Anpressdruck auf dem aktiven Zellbereich des Streckmetalldesigns um ca. 5% höher als im Ausgangsmodell, sodass die Gesamtkraft auf dem Dichtungsbereich etwas reduziert ist. Tendenziell lässt sich jedoch auf dem Dichtungsbereich der Streckmetallzelle ein etwas größerer Anpressdruckgradient zwischen der Zellmitte und dem Zellrand und erhöhte Kräfte im Bereich der Eckschrauben erkennen.

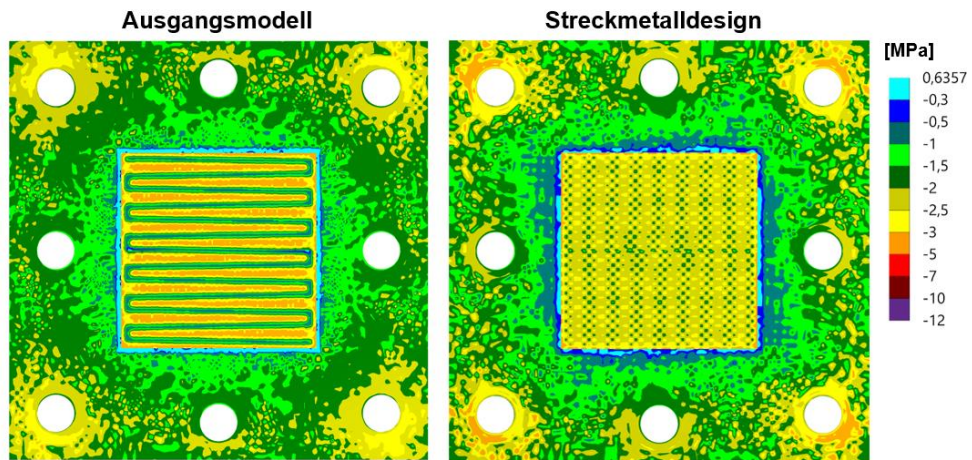


Abbildung 84: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Flowfield-Designs: Mäanderstruktur (links) und Streckmetallstruktur (rechts).

Um die Druckverteilung auf dem Bereich der aktiven Zellfläche besser quantitativ bewerten zu können, sind in Abbildung 85 die relativen Häufigkeiten der simulierten Druckwerte dargestellt. Die Häufigkeitsverteilungen bestätigen die Vermutung, dass das Streckmetall zu einer gleichmäßigeren Anpressdruckverteilung führt. Die Druckwerte sind über einen deutlich geringeren Wertebereich gestreut und es liegen ca. 80% der Druckwerte im Wertebereich zwischen 2 und 3 MPa. Ebenfalls werden kaum Druckwerte unterhalb von 1,5 MPa simuliert und die Werte im Bereich über 3 MPa sind deutlich reduziert. Da im Streckmetalldesign die

Werte oberhalb von 3 MPa den Druck auf dem mittleren Stegbereich wiedergeben, repräsentieren diese Werte ebenfalls die Kompression von 30% des Toray-Materials. Dementsprechend entsprechen auch für das Streckmetalldesign die Druckwerte von über 3 MPa Kompressionen von ca. 30%. Folglich ist der Bereich auf den Stegen des Streckmetalls sehr viel geringer und der Großteil der Druckwerte wird durch die komplexe Streckmetallgeometrie angrenzend zu den Stegbereichen bestimmt. Ebenfalls führt die geringe Maschenweite kombiniert mit dem steifen Materialverhalten der Toray-GDL zu erhöhten Druckwerten in nicht direkt kontaktierten Bereichen der GDL. Aus der Normalspannungsverteilung des Streckmetalls lässt sich somit nur schwer eine Zuordnung zu den Steckmetallbereichen vornehmen.

Da das Streckmetalldesign zu einer gleichmäßigeren Druckverteilung führt, könnte es ebenfalls, wie in Abschnitt 5.1.4 dargestellt, zu einer Verbesserung der Zelleistung führen. Die simulierten Druckverteilungen lassen auf mechanische Vorteile des Designs für Kontaktwiderstände zwischen der GDL und MEA schließen und deuten auch auf eine ausreichende Kontaktierung zwischen der GDL und dem Streckmetall hin. Aufgrund der unterschiedlichen Druckverteilung müssen jedoch praktische Untersuchungen für das Design des optimalen Anpressdrucks erfolgen, zumal die Simulation, wie in Abschnitt 5.2 gezeigt, einige Druckwerte und somit ebenfalls den mittleren Anpressdruck überschätzt.

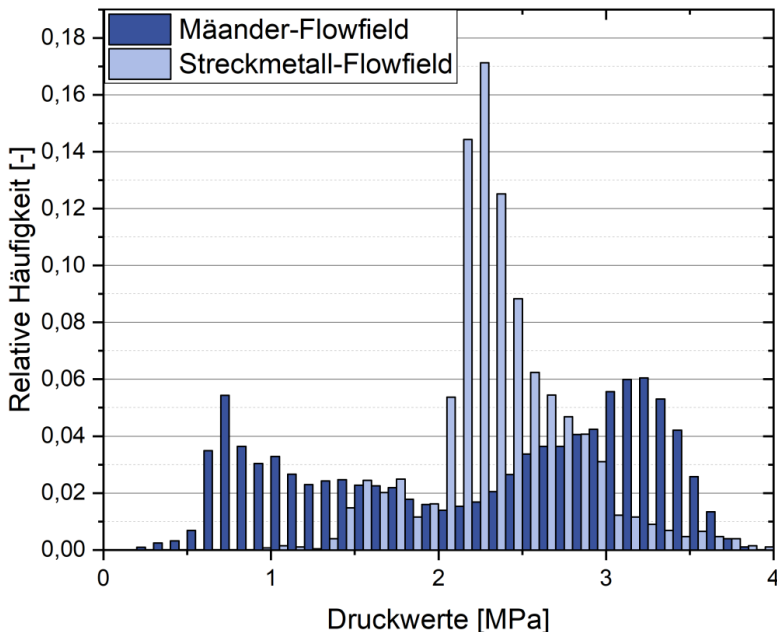


Abbildung 85: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Flowfield-Designs: Mäanderstruktur und Streckmetallstruktur.

5.3.4 Variation des Dichtungsdesigns

In der Literatur (vgl. Abschnitt 2.2.5) wird für die Auslegung von Dichtungssystemen eine mechanische Simulation der Einbausituation empfohlen.

Dementsprechend wurden in dieser Arbeit die Dichtungsdesigns aus Abschnitt 5.1.5 ebenfalls simulativ untersucht, um eine vergleichbare numerische Auslegung von Dichtungsdesigns aufzeigen zu können. Ebenfalls lassen die Simulationen mehr Aussagen über das gesamte mechanische Verhalten der Zelle zu und das mechanische Verhalten des untersuchten Systems wird nicht durch eine Messmethode wie die Fujifilm-Folien beeinflusst.

Wie in Abschnitt 5.1.5 dargestellt, wurde auch im MEA-Modell die Form der Dichtungsgeometrie verändert und die Fläche in den zwei vorgestellten Dichtungsausführungen (Dichtungsdesign 1 und 2) verkleinert. Die Konturbänder der Normalspannungsverteilungen auf der MEA-Oberfläche sind in Abbildung 86 dargestellt.

Wie in den experimentellen Untersuchungen festgestellt, führt die Verkleinerung der Dichtungsfläche erwartungsgemäß zu einem signifikanten Anstieg der Anpressdrücke auf der Dichtungsfläche. Ebenfalls stellt sich beim Dichtungsdesign 1 ein Gradient der Normalspannungen zwischen der Zellmitte und dem Zellrand ein. Dieser wird jedoch durch das Modell unterschätzt. So sind die Druckwerte in den Schraubenbereichen deutlich geringer als in der Messung und angrenzend zur aktiven Zellfläche sind die Werte höher. Wie zuvor festgestellt kann diese Diskrepanz jedoch teilweise auch durch den Einfluss der Fujifilm-Folien auf das Messsystem erzeugt werden. Generell ist ebenfalls festzuhalten, dass die hier simulierte Gesamtkraft unterhalb der mittels Fujifilm-Folien ermittelten Gesamtkraft für die Messungen der Dichtungssysteme liegt. Dementsprechend liegen die hier simulierten Druckwerte auch unterhalb der gemessenen Druckwerte.

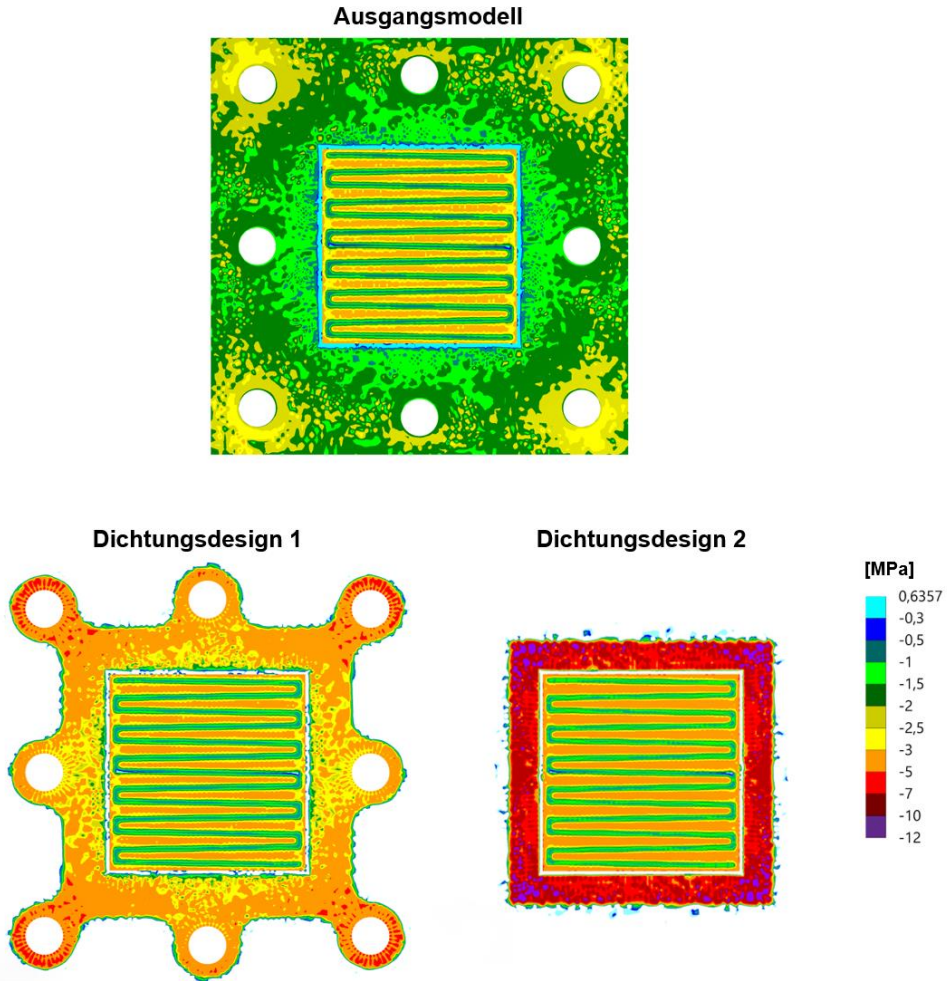


Abbildung 86: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.

Ein weiterer Effekt, der sich ebenfalls bei den experimentellen Messungen feststellen ließ, ist die Steigerung der Anpressdrücke im aktiven Zellbereich. Auch für die hier durchgeführten Simulationen ergibt sich eine Steigerung des mittleren Anpressdrucks um 3% für das Dichtungsdesign 1 und eine Steigerung des mittleren Anpressdrucks um ca. 20% für das Dichtungsmodell 2 im Vergleich zum Ausgangsmodell. Die relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte für alle drei Modelle sind in Abbildung 87 dargestellt.

Die relativen Häufigkeitsverteilungen zeigen, dass durch die beiden Dichtungsdesigns die Anpressdrücke auf dem Stegbereich zu höheren Druckwerten verschoben werden. Hierbei fällt die Verschiebung der Druckwerte für das Dichtungsdesign 2 deutlich stärker aus, sodass

in diesem Modell das GDL-Material vermutlich deutlich stärker komprimiert wird. Die Druckwerte im Kanalbereich hingegen werden nur geringfügig verschoben, da hier keine direkte Kompression des Materials stattfindet. Da die Kompression auf den Stegbereichen deutlich stärker ist, als durch den zusätzlichen Kompressionsweg vermutet, könnte eventuell die unterschiedliche Krafteinleitung ebenfalls den Anpressdruck auf der aktiven Zelloberfläche beeinflussen.

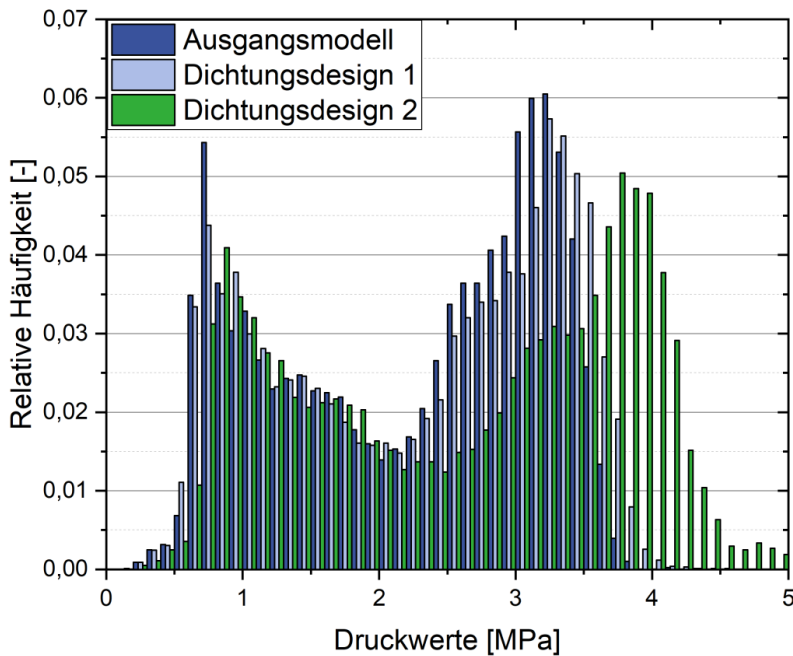


Abbildung 87: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zelloberfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.

Wie bereits zuvor beschrieben, hat vermutlich die Krafteinleitung durch die Endplatten und somit auch die Durchbiegung der Endplatten einen signifikanten Einfluss auf die Anpressdruckverteilung auf der Dichtungsfläche. Der Einfluss der Kräftigung auf den Bereich der aktiven Zelloberfläche ist deutlich geringer, da in diesem Bereich der Anpressdruck hauptsächlich über die Kompression der GDL eingestellt wird. Jedoch sind die Druckverteilungen ein Indiz dafür, dass sich auch in diesem Bereich eine unterschiedliche Krafteinleitung einstellt.

Um die Krafteinleitung in die Zelle detaillierter betrachten zu können, sind in Abbildung 88 die Normalspannungsverteilungen (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt für beide Dichtungsdesigns dargestellt.

Für das Dichtungsdesign 1 zeigt sich ein mit den zuvor dargestellten Zellquerschnitten vergleichbarer Verlauf der Normalspannungen innerhalb der Zellkomponenten. Die Kraftverteilung über den Dichtungsbereich ist leicht verbessert. Ebenfalls ergeben sich durch die geringere Dichtungsfläche höhere Kraftwerte auf dem Dichtungsbereich. Für das Dichtungsdesign 2 hingegen zeigt sich eine stark abweichende Normalspannungsverteilung im Zellquerschnitt. Durch die veränderte Form der Dichtung ist der zuvor beschriebene Kraftkurzschluss entlang der Schraubenbohrungen nicht mehr möglich und die Krafteinleitung durch die Dichtungsgeometrie wird erzwungen. Dementsprechend sind die Normalspannungen an diesen Stellen signifikant erhöht. Als zusätzlicher Effekt wird ebenfalls die Krafteinleitung in die Mitte der Zelle und damit auch im aktiven Zellbereich verbessert.

Die Ergebnisse lassen darauf schließen, dass neben der Reduktion der Dichtungsfläche auch die Form und Position der Dichtung Einfluss auf die Verspannung einer Elektrolysezelle haben. So ist es für einen funktionellen Aufbau einer Elektrolysezelle nachteilig, Dichtungen im Bereich der Krafteinleitung (um die Schrauben herum) zu positionieren. Die Dichtungsgeometrie sollte in Form einer möglichst minimalen Fläche nur in den notwendigen Dichtbereichen eingebracht werden.

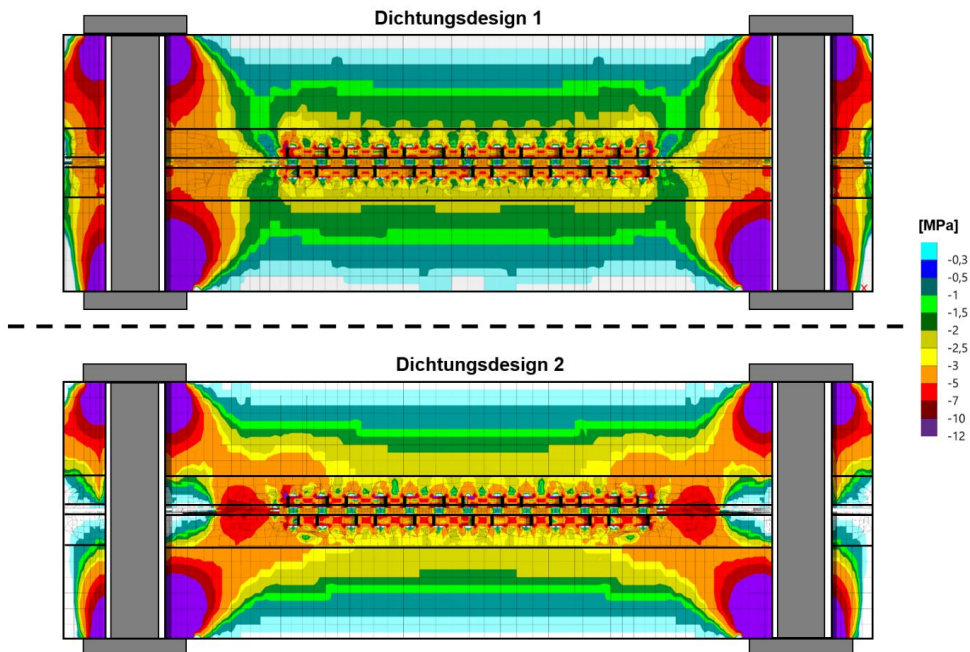


Abbildung 88: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.

Durch das Dichtungsdesign wird jedoch ebenfalls die Belastung der Endplatte geändert. Durch das Verschieben der Krafteinleitung ins Zellinnere wird der Hebelarm der Krafteinleitung vergrößert und der gesamte Zellverbund erfährt eine größere Biegebelastung. Die Endplatte ist hier das entscheidende Element für die mechanische Stabilität und die Krafteinleitung. Dementsprechend sind in Abbildung 89 Verschiebungen der Endplatten in Kompressionsrichtung gezeigt. Diese werden entlang der in Abbildung 59 dargestellten Auswertungspfade ausgelesen, sodass sich ein Pfad diagonal über die Zelle a) und ein Pfad quer über die Zelle b) ergibt.

Entsprechend der Kompression der Zelle werden alle drei Endplatten in Kompressionsrichtung verschoben. Durch die höhere Belastung der Dichtungsmaterialien in Dichtungsdesign 1, wird der Zellverbund im Vergleich zum Ausgangsmodell stärker komprimiert. Da die Krafteinleitung jedoch vergleichbar ist, ergibt sich ein nahezu identischer Biegeverlauf der Endplatte. In Dichtungsdesign 2 werden durch die weitere Reduktion der Dichtungsfläche die Komponenten noch stärker komprimiert als in den anderen beiden Designs und es ergeben sich generell höhere Verschiebungen. Durch die zuvor beschriebene Biegebelastung ergeben sich jedoch auch unterschiedliche Biegeverläufe der Endplatte. Während sich diagonal über die Zelle eine Durchbiegung von ca. 12 und ca. 14 μm für das Ausgangsmodell und das Dichtungsdesign 1 ergeben, ergibt sich für das Dichtungsdesign 2 eine Durchbiegung von 25 μm . Quer über die Zelle ergeben sich Durchbiegungen von ca. 6, 8 und 12 μm . Ein weiterer Einflussfaktor auf die Durchbiegung ist hier ebenfalls das Dichtungsmaterial an den Rändern des Ausgangsmodells, welches der Durchbiegung entgegenwirkt.

Aus diesen Erkenntnissen lässt sich ableiten, dass bei der Auslegung der Dichtung ebenfalls auf die Krafteinleitung in die Zelle und in die darunterliegenden Zellkomponenten, wie der Dichtung, geachtet werden muss. Die zentralen Elemente sind hier die Endplatten, deren korrekte mechanische Auslegung somit eine große Bedeutung zukommt. Der Einfluss der Endplatten auf das hier verwendete Elektrolyseurdesign soll näher in Abschnitt 5.3.5 betrachtet werden.

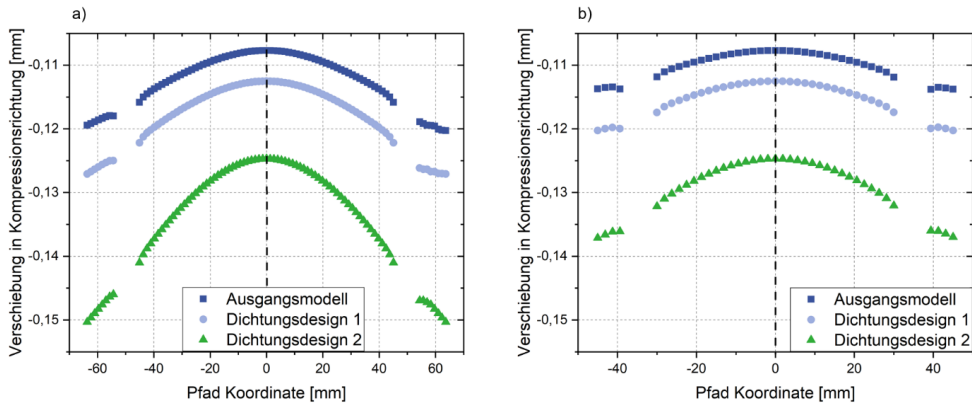


Abbildung 89: Simulierte Verschiebung der Oberseite der Endplatten entlang der in Anhang Bild 22 dargestellten Auswertungspfade für unterschiedliche Dichtungsdesigns: a) diagonal über die Zelle; b) quer über die Zelle.

Analog zu Abschnitt 5.1.5 kann ebenfalls das Dichtungsmaterial in einer Elektrolysezelle variiert werden. Für die Dichtigkeit sind hier weichere Dichtungsmaterialien wie Elastomere vorteilhaft. Ein Vergleich zwischen den Dichtungsmaterialien mit stark unterschiedlichen mechanischen Eigenschaften, wie dem FKM und PTFE, ist für Elektrolysesysteme jedoch schwierig, da das Kompressionsverhalten auch einen Einfluss auf die porösen Materialien hat. Wie zuvor beschrieben, müssen in einem Flachdichtungsdesign die mechanische Verspannung von den porösen Materialien und der Dichtung aufeinander abgestimmt werden. Durch eine höhere Kompressibilität der Dichtung muss ebenfalls die Dicke der porösen Materialien entsprechend ausgelegt werden. Um diesen Effekt zu verdeutlichen werden Zellaufbauten betrachtet, in dem alle Dichtungen mit den gleichen Dicken wie die porösen Materialien ausgelegt werden (theoretische Kompression von 0%). In Abbildung 90 sind die Normalspannungsverteilungen auf der Oberfläche der MEA für beide Dichtungssysteme gezeigt.

Für beide Zelldesigns zeigen sich vergleichbare Druckwerte auf den Dichtungsflächen. Für die PTFE-Dichtung treten vereinzelt Spannungsspitzen im Bereich der Eckschrauben auf, während bei der FKM-Dichtung die Druckwerte zum Inneren der Schraubenlöcher und an den Kanten der Zelle abnehmen. Dieses Verhalten widerspricht ebenfalls den zuvor vorgestellten Druckverteilungen mit PTFE-Dichtungen, bei denen stehts die Druckwerte in diesen Bereichen erhöht waren. Der Druckabfall in den Randbereichen lässt sich mit der Dehnung des Dichtungswerkstoffes erklären. Dieser wird zu den Rändern nicht begrenzt und kann sich frei in diese Richtung ausdehnen, was zu einer Entlastung führt.

Weiterhin sind die Druckwerte auf der aktiven Zellfläche für die FKM-Dichtung deutlich erhöht und somit werden ebenfalls die porösen Materialien in diesem Bereich mehr komprimiert.

Grund hierfür ist die deutlich höhere Kompressibilität der FKM-Dichtung, welche ebenfalls zulässt, dass die umschlossenen Komponenten um den gleichen Betrag wie die Dichtung komprimiert werden. Diese Kompression wird durch die PTFE-Dichtung verhindert.

Die genaue Abstimmung zwischen dem Dichtungsmaterial und GDL-Material wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht und unterliegt einem Optimierungsprozess bei genauer Abstimmung zwischen den Höhen der Materialien, dem gewünschten Anpressdruck bei der Zellausmontierung und der eingeleiteten Kraft. Ebenfalls muss beachtet werden, dass Elastomere deutlich veränderte Materialeigenschaften für höhere Temperaturen aufweisen. Dementsprechend muss bei der Auswahl eines Elastomers, auch die Anpressdruckverteilung im Betriebszustand genauer untersucht werden, um ebenfalls die gewünschten Anpressdrücke auf dem Dichtungsbereich und im aktiven Zellbereich zu erreichen.

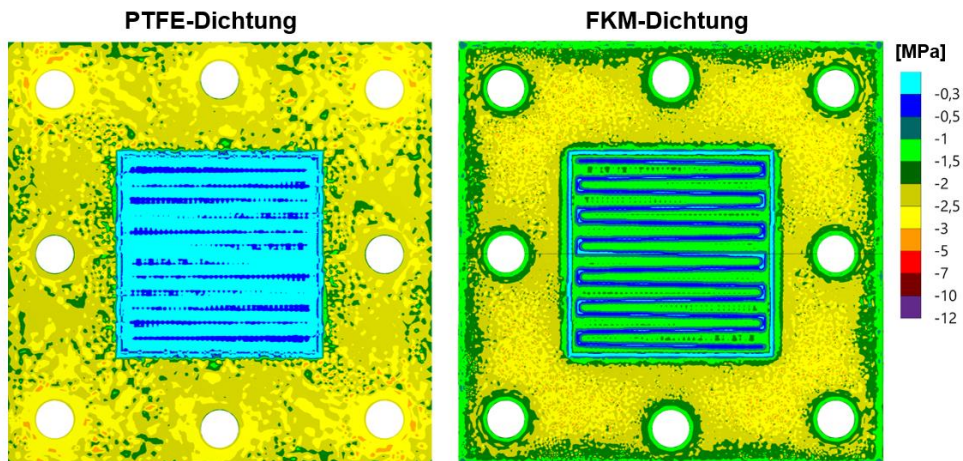


Abbildung 90: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsmaterialien und einer theoretischen Kompression des GDL-Materials von 0%.

5.3.5 Variation des Endplattendesigns

Um den Einfluss der Endplatte auf die Verspannung der Testzelle zu untersuchen, wurde in einer weiteren Untersuchung die Dicke der Endplatte auf 6 mm halbiert. Ein entscheidendes Kriterium bei der Auslegung der Endplatten ist die Durchbiegung der Endplatten. In Abbildung 91 ist dementsprechend die Verschiebung der Endplatten in Kompressionsrichtung entlang der in Abbildung 59 veranschaulichten Auswertungspfade dargestellt.

Wie zuvor beschrieben, stellt sich aufgrund der Kompression der Zelle für beide Assemblierungen eine Verschiebung in Kompressionsrichtung ein. Es zeigt sich jedoch ein deutlich unterschiedlicher Verlauf der Verschiebung der unterschiedlichen Endplatten entlang

der Auswertungspfade. So ist die Biegung der Endplatten mit einer Dicke von 6 mm quer über die Zelle mehr als dreimal größer als die der Endplatten mit einer Dicke von 12 mm und beträgt ca. 19 μm . Die Durchbiegungen diagonal zur Zelle betragen ca. 12 und 32 μm . Somit sind die Durchbiegungen sogar deutlich höher als die der in Abbildung 5.3.4 dargestellten Dichtungsdesigns. Zudem ist die Verschiebung der Endplatte in der Mitte der Zelle (gekennzeichnet durch die gestrichelte Linie) für ein Endplattendesign mit 6 mm deutlich geringer als für den Ausgangszustand mit Endplattendicken von 12 mm. Die geringere Verschiebung deutet auf geringere Kompressionen und damit verbunden auch auf geringere Anpressdrücke in dem Bereich hin.

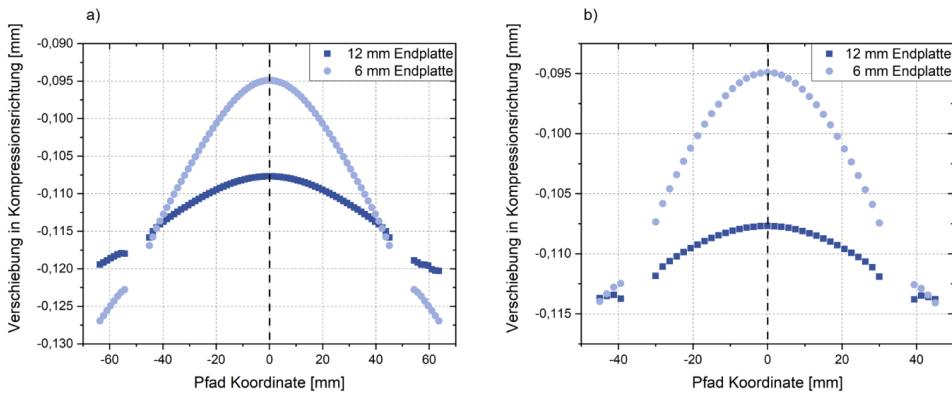


Abbildung 91: Simulierte Verschiebung der Oberseite der Endplatten entlang der in Anhang Bild 22 dargestellten Auswertungspfade für unterschiedliche Endplattendicken: a) diagonal über die Zelle; b) quer über die Zelle.

Um den Einfluss der Verschiebung bzw. der Durchbiegung auf den Zellverbund zu evaluieren, sind in Abbildung 92 die entsprechenden Normalspannungsverteilungen in Kompressionsrichtung auf der Oberfläche der MEA dargestellt.

Aus den Normalspannungsverteilungen ist gut zu erkennen, dass eine stärkere Verschiebung der Endplatten im Bereich der Eckschrauben zur Erhöhung der Anpressdrücke in den Eckbereichen führt. Ebenfalls führt eine leicht erhöhte oder vergleichbare Verschiebung in den Randbereichen zu leicht erhöhten Druckwerten. In den Zellbereichen innerhalb der Schraubenlöcher ergeben sich für die dünnere Endplatte geringere Verschiebungen und ein größerer Gradient in der Verschiebung. Dieser verstärkte Gradient führt ebenfalls zu einem stärkeren Anpressdruckgradienten auf dem Bereich der Dichtungsfläche. So werden nur sehr geringe Normalspannungen angrenzend zum aktiven Zellbereich simuliert. Entsprechend der stärkeren Durchbiegung der 6 mm Endplatten werden folglich die Anpressdrücke deutlich ungleichmäßiger verteilt. Ebenso führt die ungleichmäßige Druckverteilung durch die dünnere Endplatte zu geringeren Anpressdrücken auf der aktiven Zellfläche. So wird der mittlere

Anpressdruck der Simulation im Vergleich zum Ausgangsmodell mit 12 mm Endplatten um ca. 12% reduziert.

Mit der Verteilung der Normalspannungen im Zellquerschnitt (vgl. Anhang Bild 23) lässt sich ebenfalls bestätigen, dass die dünneren Endplatten die Kraft nicht ausreichend in die Zelle einleiten können und kaum Drucknormalspannungen bis zur aktiven Zellfläche simuliert werden.

Die Druckverteilung auf dem Dichtungsbereich würde vermutlich nach den Ergebnissen aus Abschnitt 5.1.5 zu einer Undichtigkeit der Zelle führen. Ebenfalls wird der Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche und damit die Leistung der Zelle negativ beeinflusst. Ebenfalls lässt sich festhalten, dass bereits geringe Durchbiegungen im Bereich von ca. 19 μm (quer) bzw. ca. 32 μm (diagonal) zu einer deutlich inhomogenen Anpressdruckverteilung führen. Dieses muss ebenfalls hinsichtlich der Oberflächentoleranzen einer Endplatte beachtet werden.

Weiterhin bleibt festzuhalten, dass eine korrekte mechanische Auslegung der Endplatte essentiell für die Funktionalität einer Elektrolysezelle ist.

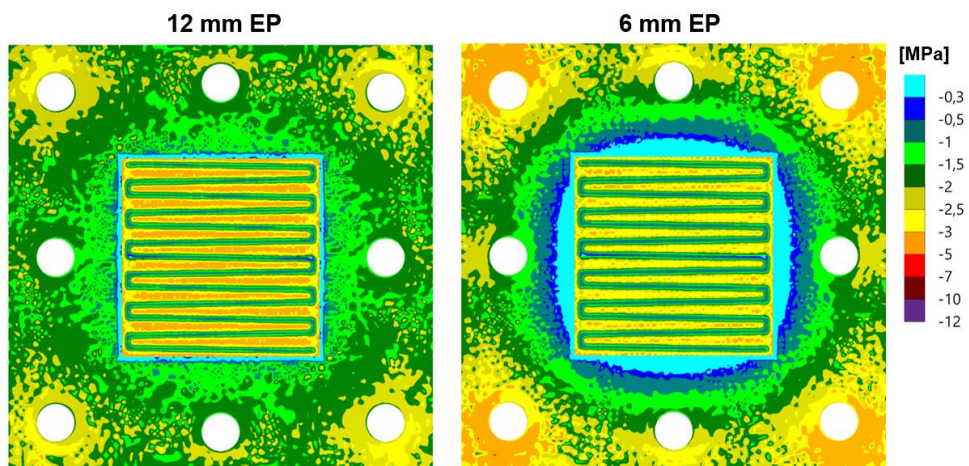


Abbildung 92: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Endplattendicken (EP).

5.3.6 Kurzzusammenfassung zum MEA-Zellmodell

Durch die Substitution des Fujifilm-Folienstapels aus dem zuvor betrachteten Modell für die Simulation des Fujifilm-Messsystems konnten realitätsnähere Untersuchungen zum mechanischen System der Elektrolysezelle erfolgen. Im ersten Schritt konnte festgestellt werden, dass die Fujifilm-Folien einen größeren Einfluss auf das mechanische System nehmen als die MEA. Dies ist mit der höheren Steifigkeit und der geringeren Kompressibilität

sowie der größeren Komponentendicke des Fujifilm-Stapels zu begründen. Dementsprechend müssen auch die praktischen Untersuchungen gemäß diesen Erkenntnissen eingeordnet werden. Durch die MEA wird ebenfalls die räumliche Druckverteilung innerhalb des Bauteils weniger beeinflusst als bei den Fujifilm-Folien.

Ebenfalls konnte mithilfe des MEA-Modells die physikalisch korrekte Abbildung einiger Bauteile sowie die zuvor aus den Fujifilm-Messungen abgeleiteten mechanischen Verhalten der Komponenten überprüft werden. So konnte das Eindringen der GDL in den Kanalbereich simulativ dargestellt werden. Die dabei auftretenden Dehnungen der GDL werden jedoch eher einer nicht ganz korrekten Abbildung des Materialverhaltens durch das Modell zugeschrieben. Sollten Dehnungen jedoch auch in der Realität auftreten, könnten diese zu Brüchen der Kohlenstofffasern an diesen Stellen führen, welche auch in der Literatur beobachtet wurden. Weiterhin konnte dargestellt werden, dass die PTL und die MEA vergleichsweise kaum komprimiert werden. Wie auch beim Fujifilm-System festgestellt wurde, führt die nicht ganz korrekte Darstellung der Materialmodelle der porösen Materialien hauptsächlich zu einer Überschätzung der Kraftwerte auf den Stegbereichen und so werden auch die mittleren Anpressdrücke in den darauffolgenden Simulationen überschätzt. Dieses Problem könnte durch weitere Untersuchungen der Materialparameter und deren richtige physikalische Darstellung gelöst werden. Essentiell wäre hierbei die Darstellung des nichtlinearen Kompressionsverhaltens der porösen Materialien in Kompressionsrichtung und die Modellierung der Porosität.

Das MEA-System wurde verwendet, um die mechanischen Einflüsse einiger Zellkomponenten oder Parameter simulativ untersuchen zu können und mithilfe der Erkenntnisse Rückschlüsse für eine mechanische Auslegung von Elektrolysezellen ziehen zu können.

Während die Steigerung der Gesamtkraft einen vergleichsweise geringen Einfluss auf die aktive Zellfläche hat, sollte bei der Auslegung aller weiterer Komponenten stets die Kraft als Einflussparameter beachtet werden und bei der Auslegung der Kraft auf ein mögliches Materialversagen geachtet werden.

Durch die Variation der Kompression des GDL-Materials kann, wie bereits in Abschnitt 5.1.4 dargestellt, der mittlere Anpressdruck auf die aktive Zellfläche beeinflusst werden. Vergleichbar zu den Versuchen zeigt sich mit zunehmender Kompression, neben der Steigerung der Normalspannungen auf den Stegbereichen, ebenfalls ein Anstieg der Normalspannungen auf den Kanalbereichen. Durch den Einsatz mechanisch biegesteifer Materialien, wie dem in dieser Arbeit verwendeten Titanvlies auf beiden Zellseiten, können die Anpressdrücke in den Kanalregionen zusätzlich erhöht werden. Jedoch muss bei derartigen Materialsystemen ebenfalls die gesteigerte Anfälligkeit für Toleranzabweichungen beachtet

werden, sodass eine genaue Maßhaltigkeit der gewünschten Materialdicken oder der FFP-Oberfläche sichergestellt werden sollte.

Als weitere Möglichkeit zur Homogenisierung der Anpressdrücke auf dem aktiven Zellbereich zeigt sich das in Abschnitt 5.3.3 vorgestellte Streckmetalldesign. In dem Streckmetalldesign, in dem das mäanderförmige Flowfield durch Streckmetalle ersetzt wird, wird eine deutlich geringere Streuung der Kraftwerte erzielt und es werden kaum Werte unterhalb 1 MPa simuliert. Dies könnte vorteilhaft für die Kontaktierung der Katalysatorschicht der MEA sein. Jedoch muss dieses Design noch praktisch hinsichtlich der strömungstechnischen Funktionalität und den gewünschten Anpressdrücken untersucht werden. Somit kann für eine Simulation kein Zielwert ermittelt werden.

Bei der Simulation unterschiedlicher Dichtungsgeometrien ließen sich die Erkenntnisse zur reduzierten Dichtungsfläche aus Abschnitt 5.1.5 qualitativ bestätigen. So stellt sich eine reduzierte Dichtungsfläche als vorteilhaft heraus, da hierdurch in den relevanten Dichtungsbereichen der Anpressdruck effektiv erhöht werden kann. Weiterhin führt der Krafteintrag in die Dichtung zu einer stärkeren Kompression der Dichtung, sodass ebenfalls ein höherer Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche erzielt wird. Weiterhin kann aus den Ergebnissen die Empfehlung abgeleitet werden, eine Dichtung nicht direkt in den Bereich der Schrauben einzubringen, da somit die Kraft nicht effektiv in die relevanten Teile der Zelle eingeleitet werden kann. Die Anpassung des Dichtungsdesigns führt ebenfalls zu einer veränderten Belastungssituation der Durchbiegung der Endplatten.

Weiterhin wurde festgestellt, dass die Durchbiegung der Endplatten einen signifikanten Einfluss auf die mechanische Verspannung der einzelnen Zellkomponenten hat. Hierdurch können die Funktionalitäten vom Dichtungssystem oder die Kontaktierung der MEA negativ beeinflusst werden. Somit muss bei der Auslegung von Elektrolysezellen und -stacks die Endplatte mit ausreichender mechanischer Stabilität ausgelegt werden. Zudem muss hierbei die mechanische Verschaltung von den Zellkomponenten und dem Dichtungssystem beachtet und zusammen mit der erforderlichen Gesamtkraft abgestimmt werden.

6 Evaluation des mechanischen Einflusses auf die Komponenten eines PEM-Elektrolysestacks

Im Kapitel 5 wurde eine Elektrolysetestzelle hinsichtlich ihres mechanischen Verhaltens und dessen Einfluss auf die Zelleistung und Dichtungsleistung untersucht. Hierbei stellte sich neben der Materialauswahl und Bauteilgeometrie auch die Krafteinleitung über die Endplatten als wichtiger Einflussfaktor heraus. Da in Elektrolysestacks üblicherweise die Oberflächen der Zellgeometrien signifikant größer sind als die Oberflächen einer Elektrolysetestzelle, kommt hier dem Krafteintrag und der gleichmäßigen Kraftverteilung mechanisch noch mehr Bedeutung zu. Das zentrale Element der Krafteinleitung und der Stack-Verspannung sind die Endplatten. Bei der Auslegung dieser Bauteile überwiegt neben den Kosten die mechanische Funktionalität. Im Folgenden soll deshalb ein repräsentatives, quadratisches Stack-Design eines Elektrolyseurs vordergründig hinsichtlich der mechanischen Eigenschaften der Endplatte untersucht werden. Die Evaluation der mechanischen Eigenschaften wird in Abschnitt 6.1 vorgenommen. Die gewonnenen Erkenntnisse sollen in Abschnitt 6.2 als Grundlage für konstruktive Untersuchungen eines adaptierten, quadratischen Endplattendesigns dienen. Die Zielsetzung soll hierbei sein, ein in mechanischer Weise optimiertes Endplattendesign abzuleiten, welches in Abschnitt 6.3 Grundlage für die Entwicklung eines neuartigen Stack-Designs darstellt. Die Ergebnisse der Untersuchungen werden in Abschnitt 6.4 diskutiert und ein Zwischenresultat für die mechanischen Einflüsse auf den Elektrolysestack gezogen.

6.1 Mechanische Evaluation eines quadratischen Stack-Designs

In diesem Abschnitt sollen die Simulationsergebnisse des in Abschnitt 4.2 vorgestellten Stack-Modells dargestellt und analysiert werden. Besonderer Fokus wird hierbei auf die Endplatte und das Endplattendesign gelegt. Ebenso soll der Einfluss des mechanischen Verhaltens der Endplatte auf die mittels Endplatten verspannten Bauteile untersucht werden. In Abbildung 93 ist die simulierte Verschiebung der Endplatte in Kompressionsrichtung (z-Richtung) mithilfe von Konturbändern (oben) visualisiert und entlang eines Auswertungspfades quer über die Platte (unten) dargestellt. Anhand der Pfadauswertung ist gut zu erkennen, dass durch die Verspannung die gesamte Platte relativ zum Ausgangszustand in Kompressionsrichtung verschoben wird und somit der gesamte Stack verpresst wird. Durch das quadratische Design sind die inneren acht Schrauben äquidistant zum Stack-Mittelpunkt und nähern sich somit in der Kraftaufbringung einem runden Stack-Design an. Resultierend daraus ergeben sich auch annähernd runde Verschiebungskonturbänder, welche auf eine gleichmäßige, parabelförmige Durchbiegung der Endplatte bis zu den Löchern hindeuten (vgl. Abbildung 93; unten). Im

Bereich um die Löcher ergibt sich ein erwarteter linearer Abfall der Durchbiegung, da in diesem Bereich keine weitere Krafteinleitung in die darunterliegenden Komponenten stattfindet.

An den Ecken des Stack-Designs stellt sich jedoch eine größere Verschiebung von bis zu ca. 160 μm ein. Dies entspricht relativ zur Plattenmitte einer Verschiebung um ca. 90 μm und ist mit dem zusätzlichen Krafteintrag durch die äußeren Schrauben, welche mit einem größeren Hebelarm auf die Zellkomponenten wirken, zu erklären.

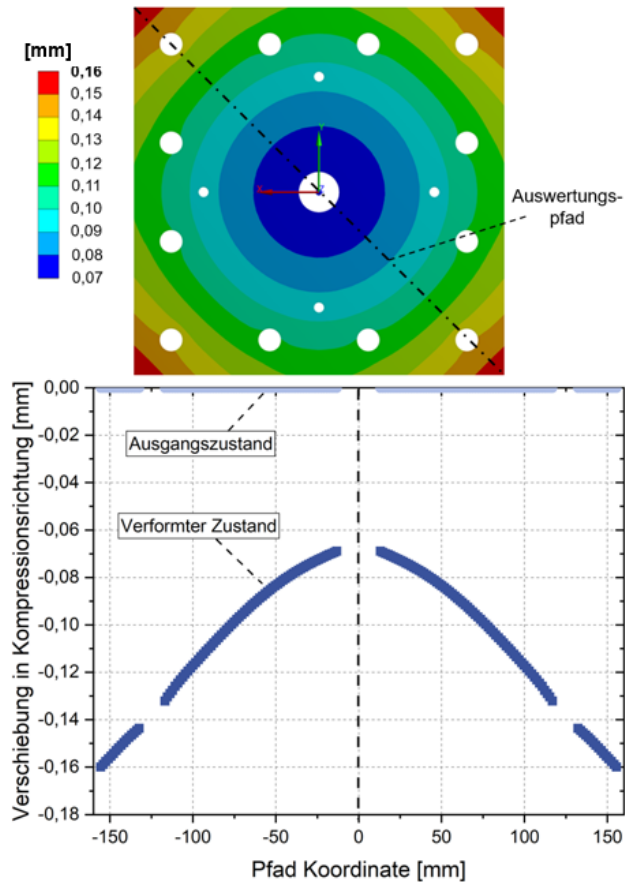


Abbildung 93: Simulierte mechanische Verformung der Endplatte in Verspannungsrichtung. Oben: zweidimensionale Darstellung der Konturbänder. Unten: Verformung der Endplatte entlang des eingezeichneten Auswertungspfades.

Die Verformung resultiert in einer ungleichmäßigen Spannungsverteilung auf den verspannten Zellkomponenten. Hiervon betroffen ist vor allem der Dichtungsbereich der Zellen. In Abbildung 94 ist die simulierte Normalspannungsverteilung für die Oberfläche der verspannten Monopolarplatte dargestellt. Aufgrund der gewählten Materialmodelle für den aktiven Zellbereich und der Dichtungsfläche wird der Dichtungsbereich stärker belastet. Ebenfalls wird

die Kompression des Kohlenstoffmaterials nicht simuliert, sodass die in Abschnitt 5.3 beschriebenen Phänomene nicht durch diese Simulation abgebildet werden. Jedoch ist auch hier auffällig, dass im Dichtungsbereich die Normalspannung zum Zellinneren abnimmt. Dies kann, wie bereits beschrieben, zu Problemen bei der Abdichtung der Zelle führen. Der Effekt der Endplattenverformung wirkt sich in dieser Simulation eher weniger auf die Druckverteilung auf der aktiven Zelloberfläche aus, da die Durchbiegung zum äußeren Rand der Platte zunimmt und somit eine verhältnismäßig geringere Durchbiegung im Zellinneren vorliegt. Außerdem folgt der hauptsächliche Kraftfluss durch die Dichtung, sodass die aktive Zelloberfläche quasi im Kraftnebenschluss vorliegt. Analog zur größeren Verformung der Endplatte im Bereich der Ecken sind ebenfalls die Spannungen im Bereich der Ecken der Dichtungen am höchsten. Die erhöhten Spannungen in den Randbereichen können, abhängig vom Dichtungsmaterial, zu einer Schädigung des Dichtungsmaterials führen.

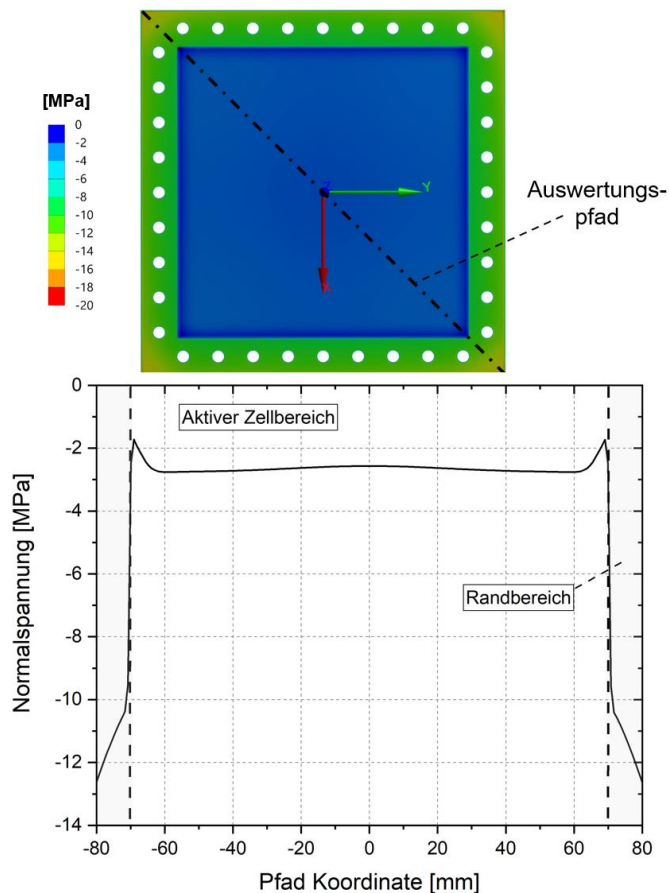


Abbildung 94: Simulierte Normalspannungsverteilung in z-Richtung auf der Zelloberfläche (Monopolarplatte). Oben: Konturbänder. Unten: Normalspannung entlang des eingezeichneten Auswertungspfades.

Die diskutierten Erkenntnisse aus der Endplattenverformung und Normalspannungsverteilung auf der Zelle lassen folgende Überlegungen zu:

Die starke Biegung der Endplatte wirkt sich negativ auf die Funktionalität der Zelle aus und kann zu einem Dichtungsversagen führen. Dieses Durchbiegen resultiert vermutlich aus einem ungenügenden mechanischen Verhalten der Endplatte, da diese eine zu geringe Steifigkeit aufweist. Eine mögliche Erklärung ist, dass die Endplatte zu dünn ausgelegt ist. Als weitere Erkenntnis führt die Belastung durch die Schrauben in den Ecken des Stacks zusätzlich zu einem stärkeren Durchbiegen, wodurch sich deren Funktionalität beeinträchtigt werden kann. Diese Überlegungen sollen im Folgenden näher untersucht werden. So soll in Abschnitt 6.1.1 die Vergleichsspannung der Endplatte untersucht werden, da diese Aufschluss über die Bereiche der höchsten Belastungen auf die Endplatte geben und somit auch die Bereiche kritischen Materialversagens aufzeigen kann. Ebenso soll in Abschnitt 6.1.2 der Einfluss der Eckschrauben genauer parametrisch untersucht werden. Abschließend soll in Abschnitt 6.1.3 der Einfluss der Dicke der Endplatten und der Schraubenkräfte auf das Stack-Design betrachtet werden.

6.1.1 Einfluss der Schrauben auf die Spannungsverteilung in der Endplatte

Um die Spannungsverteilung in der Endplatte näher zu evaluieren, ist in Abbildung 95 (oben) die Vergleichsspannungsverteilung (van Mises) in der Endplatte als Schnittansicht dargestellt.

Durch die Biegung der Platte zeigt sich ein annähernd symmetrischer Zug- und Druckbereich in der oberen beziehungsweise unteren Hälfte der Platte mit zunehmender Spannung zur Ober- bzw. Unterseite hin. Die Maximalspannung liegt beim größten Abstand von der neutralen Faser auf den Außenflächen vor. Die maximale Vergleichsspannung an der mittleren Bohrung für den Stromabnehmer beträgt im Modell 90,03 MPa. Abweichungen von der Symmetrie in z-Richtung liegen nur im Bereich der Lasteinleitung durch die Schrauben vor. In Abbildung 95 (unten) ist die Spannungsverteilung auf der Oberfläche des Stacks entlang der Schnittebene dargestellt. Die Vergleichsspannung nimmt von den Rändern der Endplatte hin zur Plattenmitte zu. Trotz der eingeleiteten Last der Eckschrauben, ist die Vergleichsspannung in den Ecken der Endplatten minimal (unter 10 MPa). Nur im Bereich direkt um die Auflageflächen der Schrauben sind die Vergleichsspannungen erhöht, da hier die Kraft in die Endplatte eingeleitet wird. Die Spannungswerte liegen bei Maximalwerten von 50 - 60 MPa. Daher bieten die Eckbereiche Potential für eine Optimierung der Materialausnutzung. Ebenso kann die Funktionalität der Eckschrauben in Frage gestellt werden, weshalb im Folgenden der Einfluss der Eckschrauben genauer untersucht werden soll.

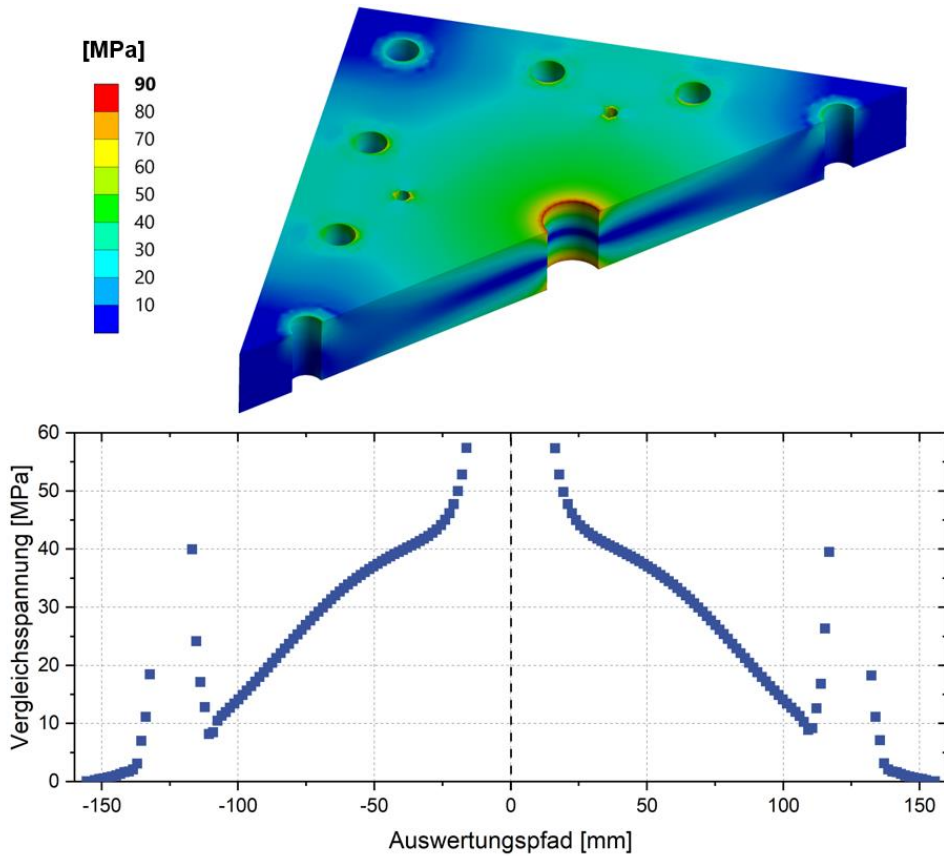


Abbildung 95: Vergleichsspannungsverteilung der simulierten Endplatte. Oben: Schnittdarstellung der Endplatte und Vergleichsspannungskonturbänder. Unten: Vergleichsspannungsverlauf entlang der Schnittebene auf der Oberseite der Endplatte.

6.1.2 Einfluss der Eckschrauben auf das mechanische Verhalten des Stacks

Zur Untersuchung des Einflusses der Eckschrauben auf das mechanische Verhalten des Stacks wurde die Kraft, welche in der Simulation auf die Schrauben aufgebracht wurde, variiert. Die gewählten Schraubenkräfte sind zusammen mit dem daraus resultierenden mechanischen Einfluss auf die Endplatten in Abbildung 96 dargestellt. Wie bereits zuvor vermutet, führt eine Reduktion der Schraubenkraft zu einer Reduktion der Durchbiegung der Endplatten. Ebenso wird durch die reduzierte Schraubenkraft die maximale Vergleichsspannung verringert, da eine geringere Gesamtkraft in das System eingeleitet wird.

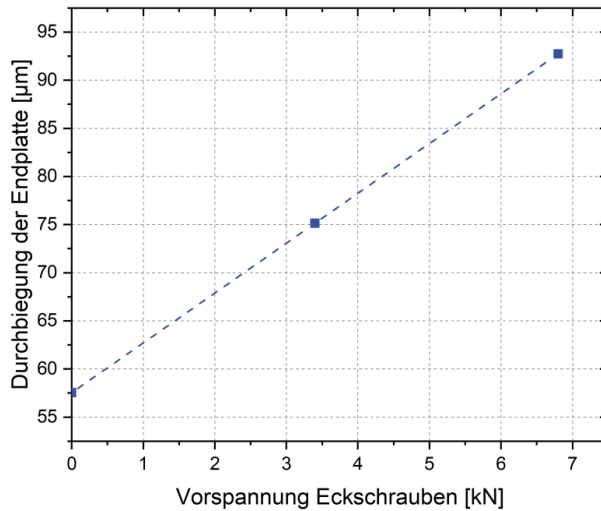


Abbildung 96: Einfluss der Vorspannkraft der Eckschrauben auf die maximale Durchbiegung der Endplatte.

Durch eine Reduktion der Gesamtkraft wird folglich auch die Kraft auf die einzelnen Zellen reduziert, was zu einer veränderten Vorspannungssituation führen kann. In Abbildung 97 ist die Durchbiegung für unterschiedliche Vorspannkräfte der Eckschrauben, bei gleichbleibender Kraft der restlichen Schrauben, dargestellt. Während durch eine Reduktion der Schraubenkraft die Verschiebung entlang des diagonalen Auswertungspfads erwartungsgemäß vermindert wird, ist ein vernachlässigbar geringer Einfluss auf die Verformung quer entlang der Endplatte zu verzeichnen. Da sich die Verschiebung in der Plattenmitte kaum verändert, wird ebenfalls die Belastung des Zellstapels kaum beeinflusst und es sind konstante Normalspannungen auf der aktiven Zellfläche zu verzeichnen. Diese Erkenntnisse lassen darauf schließen, dass die Eckschrauben vermutlich nur einen geringen positiven Einfluss auf die mechanische Vorspannung des quadratischen Stack-Designs haben, und somit nur wenig zum benötigten Anpressdruck der Dichtung beitragen. Andererseits können die Eckschrauben jedoch durch die hohen Durchbiegungen an den Ecken einen negativen Einfluss auf die Funktionalität des Stacks haben.

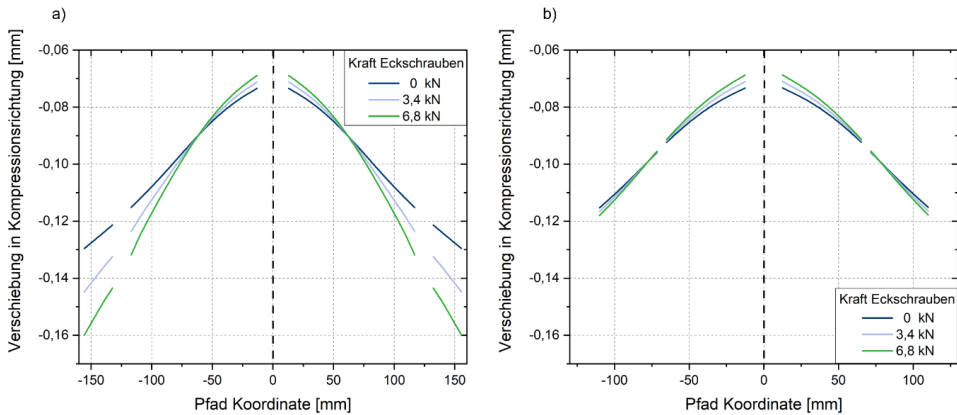


Abbildung 97: Simulierte Verschiebung der Endplatte in Abhängigkeit unterschiedlicher Krafteinleitungen in die Eckschrauben. a) Diagonaler Auswertungspfad über die Endplatte nach Abbildung 93; b) Auswertungspfad quer zur Endplatte (entlang der Mitte).

Aus Abbildung 97 geht hervor, dass ohne Eckschrauben, dargestellt mit einem Kraftwert von 0 kN, weiterhin eine starke Durchbiegung von 0,13 mm an den Ecken der Endplatten vorliegt. Dies verdeutlicht, dass eine nähere Untersuchung der Endplattengeometrie notwendig ist, um eventuell unzulässige Verformungen beim Verspannen des Elektrolysestacks vermeiden zu können. Deshalb soll im nächsten Schritt der Einfluss der Endplattendicke auf die Durchbiegung betrachtet werden.

6.1.3 Parametrische Untersuchungen von Einflussgrößen

Um den Einfluss der Endplattendicke zu evaluieren, wurde der Ausgangswert von 30 mm parametrisch verändert. Wie in Abbildung 98 dargestellt, führt eine Reduktion der Endplattendicke auf 20 mm zu einer Steigerung der maximalen Durchbiegung um einen Faktor von über drei auf ca. 313 μm . Eine Steigerung der Plattendicke um 10 mm reduziert die Durchbiegung hingegen nur um etwas mehr als die Hälfte auf ca. 49 μm . Die Endplattendicke hat folglich keinen linearen Einfluss auf die maximale Durchbiegung, während Gewicht und damit auch der Preis von Endplatten linear mit der Dimension der Endplatte skalieren. Aufgrund der nichtlinearen Zunahme der Verformung mit abnehmender Endplattendicke kann bereits eine geringe Unterdimensionierung der Endplatte zu großen negativen Auswirkungen bei der Verspannung des Stacks führen. Dies wird sich vermutlich in erster Linie negativ auf ein Dichtungskonzept, welches auf Flachdichtungen beruht, auswirken. Da jedoch eine starke Überdimensionierung zu stark ansteigenden Materialkosten führt, ergeben sich für die Auslegung der Endplatten Optimierungspotentiale hinsichtlich des Einhaltens der benötigten Steifigkeiten gegenüber Verformungen in Verspannungsrichtung, den Materialkosten und Fertigungskosten der Endplatten. Zusätzlich spielt das Gewicht der Endplatten eine weitere

Rolle bei der Montage des Stacks, weswegen die Endplattendicke selbst bei untergeordneten ökonomischen Zielen genauer betrachtet werden muss.

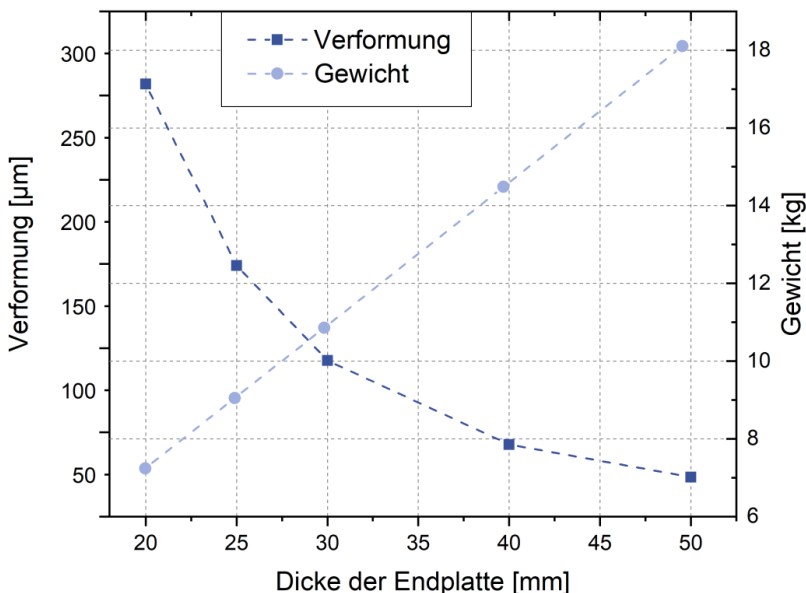


Abbildung 98: Einfluss der Dicke einer Endplatte auf das Gewicht und die Verformung der Endplatte

Die in Abbildung 99 dargestellte Variation der Schraubenkräfte, veranschaulicht den zuvor beschriebenen Effekt abfallender Normalspannungen (in z-Richtung) auf dem Dichtungsbereich. So nimmt mit größer werdender Schraubenkraft einerseits der gesamte Druck auf dem Dichtungsbereich zu, andererseits wird aber auch der Gradient zwischen dem Normalspannungswert an der Innenseite der Dichtung und am äußeren Dichtungsrand größer. Ebenfalls ist deutlich zu erkennen, dass nicht nur der Druck auf dem Dichtungsbereich, sondern auch der Druck auf der aktiven Zellfläche zunimmt. Dies verdeutlicht, dass bei einer Reihenschaltung von Flachdichtung und GDL-Material stets auch die Anpresskraft bei der Auslegung hinsichtlich des Anpressdrucks auf der aktiven Zellfläche zu beachten ist. Bezüglich des Anpressdrucks auf die Dichtungsfläche ist festzuhalten, dass in diesem Fall mit dem Dichtungsmaterial PTFE theoretisch hohe Anpressdrücke benötigt werden, um eine Dichtigkeit zu erzielen, weshalb die in Abbildung 99 dargestellten Kraftfälle von 10 oder 15 kN pro Schraube realistischer sind.

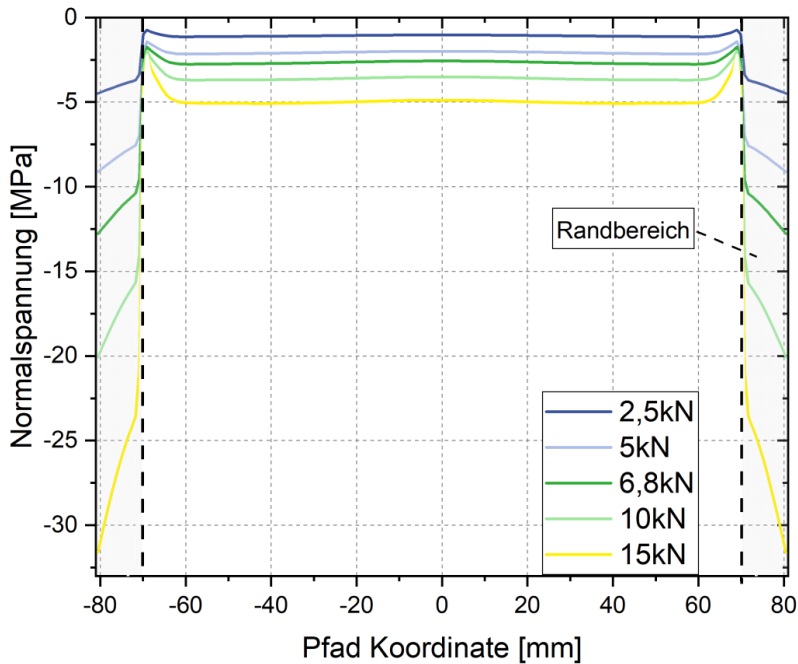


Abbildung 99: Einfluss unterschiedlicher Schraubenkräfte auf die Normalspannungsverteilung auf der Monopolarplatte entsprechend des in Abbildung 94 dargestellten Auswertungspfads.

6.1.4 Kurzzusammenfassung

Aus den vorliegenden Untersuchungen zum mechanischen Verhalten des betrachteten Stack-Designs geht hervor, dass die Auslegung der Endplatte wie erwartet einen starken Einfluss auf die Druckverteilung innerhalb des Stacks hat. Eine entscheidende Ergebnisgröße ist hier die Verformung der Endplatte, welche von der geometrischen Form der Platte abhängt. Folglich kann eine Optimierung der Plattendicke unter Betrachtung benötigter Steifigkeiten, Sicherheitsfaktoren und ökonomischen Aspekten durchgeführt werden, um eine optimale Dicke für ein bestimmtes Stack-Design bestimmen zu können. Weitere Einflussfaktoren sind die Position der Schrauben und der mithilfe der Schrauben eingeleitete Kraftbetrag. Die Untersuchungen zeigten hier, dass Schrauben in den Ecken einer quadratischen Endplatte nur einen geringen mechanischen Mehrwert für die Verspannung des Stacks, und somit für die Anpressdrücke der Dichtungen liefern und sogar negative Einflüsse aufgrund einer hohen Endplattenverformung auf die Verspannung haben könnten. Daher wird im Folgenden zur Auslegung eines neuen Endplattendesigns vollständig auf die Eckschrauben verzichtet.

6.2 Konstruktive Untersuchungen zu Endplattendesigns

Für die konstruktive Untersuchung und Neuauslegung der Endplatten für das hier vorgestellte Stack-Design kommen unterschiedliche Ansätze in Frage. Vordergründiges Ziel ist es, eine möglichst gleichmäßige Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche und der angrenzenden Dichtungsfläche zu erzielen. Hierfür müssen Konzepte gefunden werden, bei welchen die Endplattendurchbiegung reduziert wird, oder dieser entgegengewirkt wird.

Im Folgenden werden die Konzepte der „topologieoptimierten Endplatte“, der „gebogenen Endplatte“ und der „verstellbaren Endplatte“ vorgestellt und deren Einfluss auf die Zellmechanik simulativ überprüft.

6.2.1 Topologieoptimierte Endplatte

Bei der Topologieoptimierung werden in dem zu optimierenden Bauteil eines statisch-mechanischen Systems die Elemente mit den geringsten Spannungswerten mithilfe eines Algorithmus entfernt. Das resultierende System wird erneut mechanisch simuliert und hinsichtlich der auftretenden Spannungen vergleichend zum Ausgangsmodell analysiert. In einem Iterationsprozess werden so lange Elemente hinzugefügt oder reduziert, bis gewisse Abbruchkriterien erfüllt sind. Die verbleibenden Elemente stellen in dem Modell das mechanisch notwendige Material zur Gewährleistung eines äquivalenten Kraftauftrags dar. Die dabei gewählten Abbruchkriterien sind eine maximal zulässige Vergleichsspannung von 133 MPa, was einem werkstoffspezifischen Kennwert von 200 MPa mit einem Sicherheitsfaktor von 1,5 entspricht, und eine maximale Durchbiegung der Endplatte von 92,7 μm . Für die zu optimierende Endplatte wird eine Ausgangsdicke von 50 mm gewählt, da ansonsten bei einer Reduktion von Material die Abbruchkriterien nicht erfüllt werden können. Eine weitere Restriktion für die Optimierung ist die unveränderliche Position der Schrauben.

Das Ergebnis der Topologieoptimierung ist in Abbildung 100 dargestellt. Erwartungsgemäß befindet sich das verbleibende Material an den Stellen, bei denen zuvor eine hohe Vergleichsspannung berechnet wurde und das Material in den Eckbereichen wird erheblich reduziert.

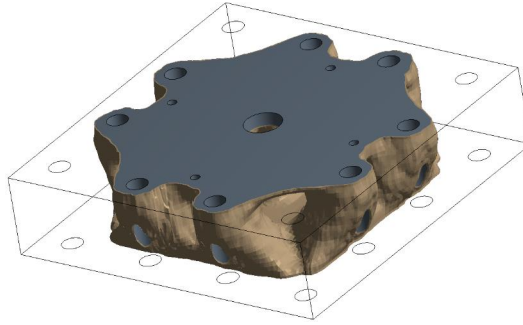


Abbildung 100: Ergebnis der Topologieoptimierung.

Da diese rein numerisch berechnete, optimierte Topologie komplexe geometrische Strukturen aufweist, ist ein derartiges Bauteil fertigungstechnisch nicht realisierbar. Deshalb wird aus dem Optimierungsergebnis und aus den in Abschnitt 2.3.1 dargestellten Konzepten zu topologisch optimierten Endplatten in der Literatur das Endplattenkonzept der „sternförmigen Endplatte“ abgeleitet.

Die „sternförmige Endplatte“ ist in Abbildung 101 dargestellt. Entsprechend der Topologieoptimierung wurde das Material in den Eckbereichen reduziert, was zu einer achteckigen Form der Endplatte führt, wodurch ein rundes Endplattendesign noch besser angenähert wird. Die Rippenstruktur auf der Rückseite der Endplatten kann entweder aus der Endplatte herausgefräst werden oder auf die Grundplatte aufgeschweißt werden und ist Studien aus der Literatur (vgl. Abschnitt 2.3.1) nachempfunden. Ein weiteres mögliches Herstellungsverfahren wäre eine Gussanfertigung der Bauteilgeometrie.



Abbildung 101: Geometrische Realisierung der „sternförmigen Endplatte“.

6.2.2 Gebogene Endplatte

Das Konzept der gebogenen Endplatte basiert auf dem Ansatz, die Endplatte bereits vor dem Assemblieren entsprechend der erwarteten Verformung der Endplatte vorzubiegen oder fertigungstechnisch diese entgegengesetzte Verbiegung in die Endplatte einzubringen. Durch das Ausgleichen der Verbiegung wird eine homogenere Verteilung des Anpressdrucks auf die verpressten Zellkomponenten erwartet. Ein vergleichbares Konzept wurde bereits von Evertz et al. [74] vorgestellt.

Da die plastische Vorverformung von Endplatten mit einer Bauteildicke von 30 mm schwierig zu realisieren ist, wird im betrachteten Ausführungsbeispiel der Endplatte an der Unterseite der erwartete Verformungsweg kugelförmig abgetragen. Das Prinzip ist in Abbildung 102 illustriert, wobei der schraffierte Bereich das fertigungstechnisch entfernte Material darstellt. Da auch dieses Konzept ohne die Eckschrauben umgesetzt wird, wird aus den vorherigen Ergebnissen die maximale Verformung ohne Eckschrauben von ca. 58 μm herangezogen. Das Konzept ähnelt im Ansatz den Erkenntnissen aus Abschnitt 2.3.1, bei dem eine Wölbung in der Mitte der Endplatte die Druckverteilung auf die verpressten Zellkomponenten positiv beeinflusste.



Abbildung 102: Schematische Darstellung zur Realisierung einer gebogenen Endplatte. Schraffierter Bereich: Reduziertes Material zur Realisierung der Endplatten-Vorbiegung (nicht maßstabsgetreu).

6.2.3 Verstellbare Endplatte

Das Prinzip der verstellbaren Endplatte ist ein neuartiges Konzept, welches den Ansatz verfolgt, aktiv die Anpressdruckverteilung auf die verspannten Komponenten beeinflussen zu können. Die geometrische Realisierung ist in Abbildung 103 dargestellt. In der dargestellten Baugruppe wird der Stack klassisch über die äußeren Schrauben/Zuganker mit einer Kraft F_1 über die Endplatten verspannt. Zusätzlich sind Gewindebohrungen im inneren Bereich der Endplatte eingebracht. Über diese kann mithilfe von Feingewindeschrauben/Einstellschrauben eine Kraft F_2 auf den Stromstempel aufgebracht werden, welcher wiederum direkt auf die verspannten Zellkomponenten drückt. Hierdurch kann über die inneren Schrauben direkt Einfluss auf den Anpressdruck, der auf das innere der Monopolarplatten wirkt, genommen werden. Durch den Krafteintrag kann einer, gegebenenfalls durch die Endplatten induzierten, Verformung der Zellen entgegengewirkt werden. Die restlichen Komponenten des Stack-Aufbaus müssen an das Wirkprinzip angepasst werden. Das resultierende Design ist in Abbildung 103 dargestellt und wird in Abschnitt 6.3 näher

vorgestellt. Für die Endplatten wird eine Dicke von 40 mm gewählt. Der Vorteil dieses Designs liegt vor allem in der designbedingten und auf die Einbausituation anpassbaren Einstellbarkeit der Druckverteilung. So kann beispielsweise auch mechanisch auf wechselnde Betriebspunkte im Druckbetrieb eines Elektrolyseurs reagiert werden. Ein weiterer Vorteil ist die Möglichkeit, Bauteiltoleranzen wie vorgegebene Endplatten ausgleichen zu können.

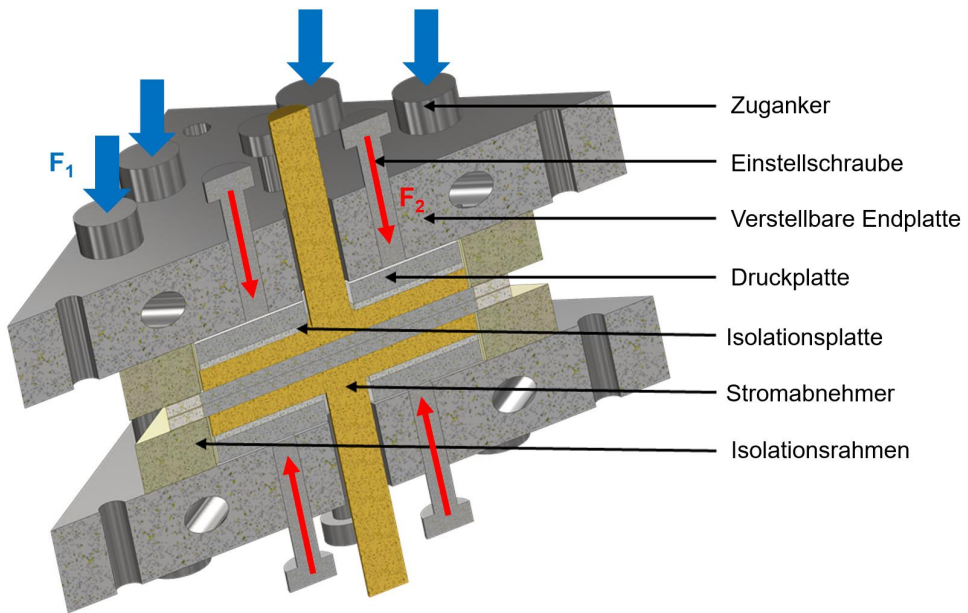


Abbildung 103: Geometrische Realisierung des verstellbaren Endplattendesigns.

6.2.4 Vergleich der vorgestellten Endplattenkonzepte

Ein Vergleich der Konzepte ist mitunter schwierig, da die vorgestellten Endplattendesigns teilweise unterschiedliche Zielsetzungen adressieren. Deshalb soll hier lediglich ein Vergleich hinsichtlich der mechanischen Funktionalität und des Gewichts erfolgen. Zusätzlich zu den drei betrachteten Fällen wird vergleichend die simple Erhöhung der Endplattendicke betrachtet. Die für diese Arbeit relevanten Ergebnisse der simulativen Betrachtung sind in Tabelle 13 dargestellt.

Das Design der gebogenen Endplatte erzielt hier die geringste Durchbiegung der Endplatten im verspannten Zustand. Zusätzlich ist das Gewicht dieser Variante vergleichbar mit dem Gewicht der 30 mm Ausgangsplatte. Das sehr gute Abschneiden der gebogenen Endplatte im Vergleich zu den anderen beiden vorgeschlagenen Varianten ist aufgrund der eingebrachten Vorkenntnisse über die erwartete Verformung bei einer Simulation der Endplatte zu erwarten. Da unter realen Verhältnissen eine exakte Bestimmung der tatsächlichen Durchbiegung ein

kompliziertes Unterfangen darstellt, sowie eine individuell für einen bestimmten Versuchsaufbau angefertigte Endplatte bei einer Veränderung der Randbedingungen bereits schlechtere Resultate erzielen könnte, sind die sehr guten Ergebnisse für diesen Fall noch nicht aussagekräftig dafür, ob dieses Endplattendesign tatsächlich praktisch am besten umzusetzen ist. Dahingegen ist die Sternplatte eine sehr leichte und auch auf größere Endplatten übertragbares Design, welche weniger genaue Abschätzungen über die verwendeten Bauteildicken benötigt. Die verstellbare Endplatte hingegen hat wie bereits erwähnt den Vorteil, dass diese nicht für einen einzigen Fall ausgelegt werden muss, sondern einen weiten Bereich an Möglichkeiten bietet, auf unterschiedliche Randbedingungen und Betriebspunkte, wie einen Druckbetrieb, zu reagieren.

Tabelle 13: Vergleich der unterschiedlichen Endplattendesigns hinsichtlich der Durchbiegung an der Innenseite und des Gewichts.

Variante	Max. Durchbiegung Endplatte (Innenseite) [μm]	Gewicht der Endplatte [kg]
Endplatte 30 mm	53,2	10,9
Endplatte 40 mm	25,3	14,5
Endplatte 50 mm	14,6	18,1
Sternförmige Endplatte	30,7	7,5
Gebogene Endplatte	14,4	10,9
Verstellbare Endplatte	20,4	14,3

6.2.5 Kurzzusammenfassung

Die vorgestellten Konzepte für ein neues Endplattendesign erfüllen das jeweilige Designkriterium. So kann mit der sternförmigen Endplatte eine Einsparung des Gewichtes bei annehmbarer Plattenverformung erzielt werden. Da jedoch die mobile Anwendung von Elektrolyseuren hier keine Bedeutung hat, ist die Gewichtsersparnis kein gewichtiges Kriterium. Mit der gebogenen Endplatte kann entsprechend des Auslegungspunktes die Durchbiegung der Endplatte stark verringert werden, ohne zusätzliches Material dafür aufwenden zu müssen. Ein Nachteil an diesem Design ist jedoch die Abhängigkeit von dem Auslegungspunkt. So ist die gebogene Endplatte genau auf einen betrachteten Designpunkt ausgelegt. Durch betriebsbedingte Spannungen, wie bei einem Druckbetrieb oder der Wärmeausdehnung von Komponenten, müssen jedoch verschiedene Betriebspunkte in Betracht gezogen werden. Dieses Endplattendesign könnte Anwendung in der

Serienproduktion für einen auf einen Betriebspunkt ausgelegten Stack finden. Wobei für eine Serienproduktion das fertigungstechnische Einbringen der rundlichen Struktur weiter untersucht werden muss. Durch die simple Erhöhung der Endplattendicke kann ebenfalls die Durchbiegung der Endplatte materialineffizient verringert werden. Durch diesen Designschritt kann durch wenig Auslegungs- und Berechnungsaufwand ein ausreichender Kraftübertrag der Endplatten auf die Zellebene gewährleistet werden. Das in dieser Arbeit vorgestellte neue Design der verstellbaren Endplatte bietet im Vergleich zu den anderen Endplattendesigns einen Freiheitsgrad variabler Krafteinleitung während des Betriebs. Über die gesonderte Krafteinleitung durch die mittleren Feingewindeschrauben kann somit im Betrieb auf zusätzliche Gegenkräfte wie beispielsweise einen Druckbetrieb reagiert werden. Ebenfalls kann durch das gezielte Aufbringen der Kraft in den relevanten Zellbereich eventuellen Toleranzen der Bauteile entgegnet werden. Da aus Abschnitt 5.1.4 hervorgeht, dass der Anpressdruck auf den aktiven Zellbereich gegebenenfalls auch ein Optimierungsproblem darstellen kann, ist es für den Forschungsbereich ebenfalls interessant, durch das neue Endplattendesign diesen zu einem gewissen Maße parametrisch beeinflussen zu können. Die Funktionsweise ist hierbei mit der gebogenen Endplatte vergleichbar. Da die Krafteinleitung über eine verstellbare Höhe eines Stempels in der Mitte der Endplatte erfolgt, wird dadurch das theoretische Höhenprofil der kraftübertragenden Fläche verändert und kann so auf das gewünschte Maß eingestellt werden.

Aus diesen Gründen soll im Folgenden das Konzept der verstellbaren Endplatte weiter untersucht und technisch realisiert werden. Ebenfalls wurde aus diesem Konzept im Rahmen dieser Arbeit ein Patent für die verstellbare Endplatte mitentwickelt und angemeldet [125].

6.3 Ableitung eines neuartigen Stack-Designs unter mechanischen und konstruktiven Gesichtspunkten

Aus den in dieser Arbeit gesammelten Erkenntnissen zum mechanischen Verhalten der einzelnen Komponenten eines Elektrolyseurs soll im Folgenden ein neues Elektrolyseurkonzept entwickelt werden.

Die geometrischen Dimensionen des Stacks werden anhand der Zieldimension der aktiven Zellfläche ausgelegt. So wird für die aktive Zellfläche ein Zielmaß von 100 cm^2 definiert, was einem Skalierungsfaktor von ca. 5,7 gegenüber der vorgestellten Elektrolysetestzelle entspricht. Wie in Abschnitt 5.3.3 dargestellt, stellt das Streckmetalldesign mechanisch eine vielversprechende Möglichkeit dar, einen möglichst homogenen Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche zu erzielen. Ein homogener Anpressdruck kann nach den Ergebnissen dieser Arbeit ebenfalls einen positiven Einfluss auf die elektrochemische Leistung einer Elektrolysezelle

haben. Aus diesem Grund wird ein Flowfield-Plattendesign mit einem Streckmetallverbund als Strömungsverteiler nach dem Vorbild von Janßen et al. [116] gewählt. Die Endplatten und Strömungsverteilerplatten werden gemäß den simulativen Untersuchungen zu quadratischen Stacks ebenfalls quadratisch ausgelegt. In dem gewählten FFP-Design ist das poröse Titanmedium auf der Anodenseite bereits im Plattenverbund bündig mit dem Randbereich verschweißt. Aus diesem Grund wird auf der Anodenseite keine zusätzliche Dichtung benötigt. Auf der Kathodenseite soll das zuvor verwendete Kohlenstoffpapier der Firma Toray zum Einsatz kommen, welches sich in dieser Arbeit als vorteilhaft gegenüber einem Grafitvlies erwies. Als Dichtungsmaterial wurde entsprechend der Erkenntnisse zum Materialverhalten unterschiedlicher Dichtungen (vgl. Abschnitt 5.1.5 und Abschnitt 5.3.4) ein Material gewählt, welches die vorteilhaften Eigenschaften der elastischen und steifen Dichtungen vereint. So wurde ein Dichtungsmaterial der Firma Frenzelit gewählt. Dieses weist die erforderliche korrosive Beständigkeit gegen die vorliegenden Betriebsbedingungen auf. Ebenfalls weist das Dichtungsmaterial aufgrund der Struktur ein relativ elastisches Verhalten bei niedrigen Drücken auf. Somit ist eine geringe Anpresskraft notwendig, um Dichtigkeit zu erzielen. Bei hohen Anpressdrücken verhärtet sich das Material und die GDL wird vor einer Überkompression geschützt. Die Geometrie der Dichtung wird gemäß den Erkenntnissen aus Abschnitt 5.1.5 an die Geometrie der FFP angepasst und auf eine möglichst geringe Dichtungsfläche reduziert, um hier den aktiv wirkenden Anpressdruck auf den relevanten Dichtungsbereich zu erhöhen.

Um diese Zellgeometrien mechanisch zu verspannen, werden die Endplatte und die Strömungsverteilerplatte gemäß dem Konzept der verstellbaren Endplatte ausgelegt. Für die Realisierung des Konzepts werden die quadratischen Endplatten mit 8 Zugankern versehen. In einem äquidistanten Abstand von 39 mm zum Zellmittelpunkt werden die Endplatten mit Durchgangsbohrungen für die Zuganker versehen. Durch diese mit einem Feingewinde versehenen Durchgangsbohrungen können entsprechende Schrauben durch die Endplatte geführt werden und auf eine an die Endplattengeometrie angrenzende metallische Druckplatte drücken. Über die Feingewindeschrauben kann über den Schraubenweg eine definierte Kraft auf die Druckplatte gebracht werden. Die Druckplatte verteilt diese punktuelle Kraft auf die Zellebene. Unterhalb der Druckplatte isoliert eine Kunststoffplatte (Isolationsplatte) die Druckplatte gegenüber dem Stromstempel und überträgt den Anpressdruck von der Druckplatte auf den Stromstempel. Der Stromstempel stellt in diesem Aufbau folglich nicht nur den elektrischen Kontakt zu den Monopolarplatten her, sondern überträgt ebenfalls den mechanischen Druck auf diese. Der Stromstempel besteht aus Gründen der elektrischen Leitfähigkeit aus vergoldetem Kupfer. Um einen Druckbetrieb mit dem Stack-Design sicher realisieren zu können, muss die Fluidanschlussgeometrie metallisch ausgeführt werden. Da aus den Simulationen in Abschnitt 6.1 hervorgeht, dass in der mittleren Ebene der Endplatte

kaum Spannungen auftreten, wird in diesem Design der Strömungsverteiler, wie in Abbildung 104 dargestellt, in die Endplatte integriert. Um die Endplatten gegen den Zellverbund zu isolieren, wird der druckübertragende Verbund aus Druckplatte, Isolationsplatte und Stromstempel in einen Isolationsrahmen aus Polyetheretherketon (PEEK) eingefasst. Da bei den Endplatten und Isolationsrahmen jeweils keine Restriktionen hinsichtlich spannenden Fertigungsverfahren bestehen, können diese mit Nuten zur Aufnahme von O-Ringen versehen werden. Für die O-Ringe wird der Dichtungswerkstoff FKM gewählt und sowohl O-Ringdimensionen und Nutdimensionen werden nach DIN 3771 [126] ausgelegt.

Um die Assemblierung eines solchen Stacks praktisch handhabbar zu machen, werden die Endplatte und der Isolationsrahmen mit Geometrien zur Aufnahme von Führungsstiften versehen. Solche Führungsgeometrien werden ebenfalls in den Ecken der Flowfield-Platten, MEA und Isolationsplatten realisiert. Alle Oberflächen müssen für einen gleichmäßigen Kraftauftrag mit einer Toleranz von wenigen μm gefertigt werden.

Der gesamte Stack-Aufbau ist in Abbildung 104 dargestellt.

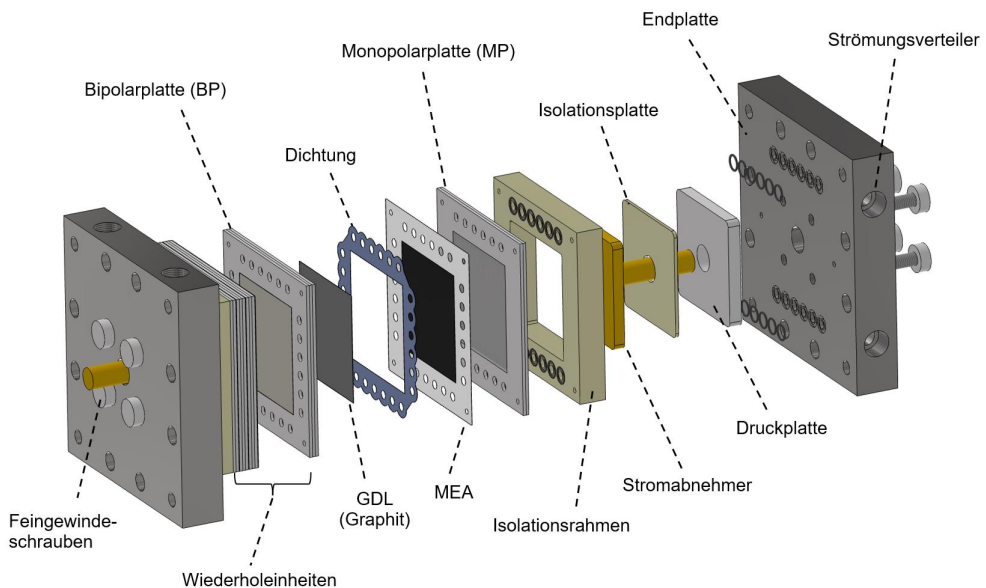


Abbildung 104: Geometrischer Aufbau des neu entworfenen Stack-Designs.

6.4 Diskussion

In diesem Kapitel wurde im ersten Schritt das mechanische Verhalten eines quadratischen Elektrolysestacks numerisch untersucht. Besonderes Augenmerk wurde bei den Untersuchungen auf die Endplatten gelegt. Die Verformung bzw. Durchbiegung der Endplatte stellt hierbei eine sinnvolle Größe dar, um die Gleichmäßigkeit der Krafteinleitung über die Endplatten in den Stack zu charakterisieren. So ergaben die durchgeführten Untersuchungen, dass die Eckschrauben nachteilig für das mechanische Verhalten eines quadratischen Elektrolyseurdesigns sein können. Weiterhin sollte die mechanische Stabilität gemäß der Dichtungsauslegung und der damit verbundenen erforderlichen Krafteinleitung ausgelegt werden. Im Zuge dessen wurden exemplarisch unterschiedliche Endplattendesigns simuliert und hinsichtlich der Durchbiegung und des Endplattengewichtes bewertet. Dabei stellte sich heraus, dass eine Endplatte mit einer genau auf die zu erwartende Verformung vorgefertigten Biegung dazu verwendet werden kann, eine besonders ebene Endplatte nach der Kraftaufbringung durch die Verschraubung zu erzielen. Da dieses Vorgehen jedoch genaueste Auslegungen und Berechnungen der Endplattenverformung erfordern, wurden ebenfalls die Konzepte einer dickeren Endplatte, einer Endplatte mit einer sternförmigen Verstärkung sowie ein neuartiges Konzept mit einer verstellbaren Endplatte untersucht. Untersuchungen mit verschiedenen Endplattendicken ergaben, dass eine Endplattenverformung nichtlinear mit einer Abnahme der Endplattendicke zunimmt. Daher sind Konzepte mit zusätzlichen Designelementen eine vielversprechende Alternative zu einer steigenden Dicke der Endplatte, um die benötigten Steifigkeitswerte zu erzielen. Zur weiteren quantitativen Untersuchung der neuartigen Methode einer verstellbaren Endplatte wurde ein kompletter Stack entworfen. Weiterhin wurden für den Stack die aus den vorherigen Kapiteln erlangten Erkenntnisse in Bezug auf die Flowfield-Platten und Geometrien der Dichtungen beachtet und umgesetzt. Somit kann in den weiteren Kapiteln eine Validierung der in dieser Arbeit erlangten Erkenntnisse anhand eines realen Systems durchgeführt werden.

7 Spannungsoptimiertes, neuartiges Stack-Design

Das in Abschnitt 6.3 vorgestellte theoretische Stack-Design wurde im Rahmen dieser Arbeit praktisch realisiert. Der assemblierte Stack ist in Abbildung 105 dargestellt. Weitere Abbildungen, die den realen Stack-Aufbau zeigen, sind im Anhang zu finden. Das mechanische Verhalten des neuen Stack-Designs wurde mithilfe der in Abschnitt 3.2 vorgestellten Methoden zur Untersuchung der Anpressdruckverteilung analysiert. Die Ergebnisse der Anpressdruckverteilung werden in Abschnitt 7.1.1 und Abschnitt 7.1.2 vorgestellt. Abschließend werden die Ergebnisse dieses Kapitels in Abschnitt 7.2 diskutiert.

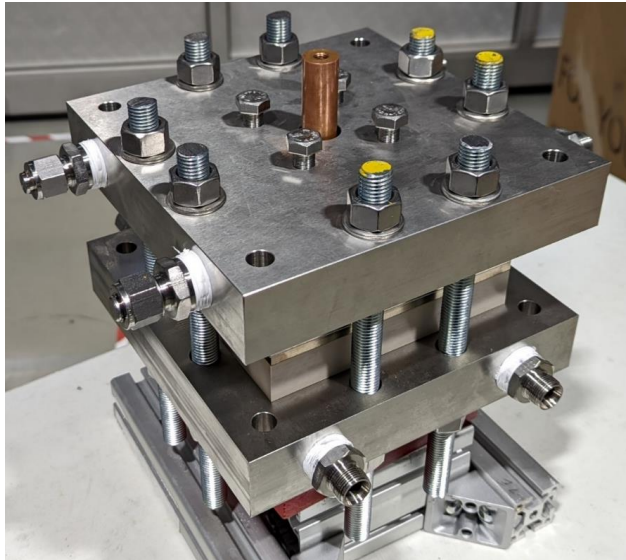


Abbildung 105: Assemblierter Stack mit verstellbarem Endplattendesign.

7.1 Untersuchung des Anpressdrucks

Das mechanische Verhalten wurde mithilfe der in Abschnitt 3.2 vorgestellten Methode zur Evaluation des Anpressdrucks untersucht. Hierfür wurde der Elektrolysestack wie in Abbildung 106 dargestellt assembliert. Der reale Aufbau ist in Abbildung 105 dargestellt.

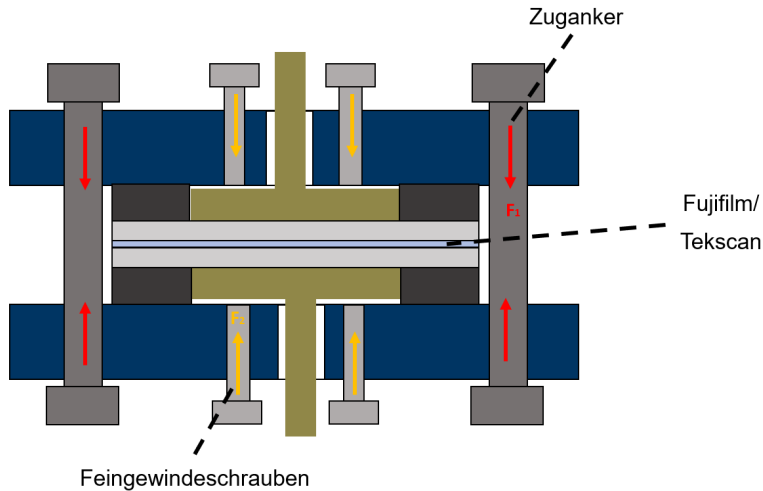


Abbildung 106: Schematische Darstellung des Aufbaus für die Druckverteilungsuntersuchung mit drucksensitiven Folien (Fujifilm) und piezoresistivem Drucksensor (Tekscan).

In dem dargestellten Aufbau wurde der in Abbildung 104 dargestellte Stack-Aufbau zu einem Aufbau mit einer Zelle vereinfacht. Hierfür wurden als Flowfield-Platten zwei Monopolarplatten eingesetzt. Die Membran wurde jeweils durch die drucksensitiven Folien der Firma Fujifilm oder dem piezoresistiven Drucksensor der Firma Tekscan ersetzt. Alle restlichen Komponenten stimmen mit dem in Abschnitt 6.3 erläuterten Stack-Aufbau überein.

Zur Versuchsdurchführung wurde der Stack mithilfe der Zuganker verspannt. Die Kraft (F_1) bzw. das Drehmoment wurde vergleichbar zum Aufbau der Testzellen schrittweise und über Kreuz erhöht. Nach dem äußeren Verspannen des Stacks wurde über die Feingewinde mithilfe eines Drehmoments die zweite Kraft (F_2) direkt auf den Bereich der aktiven Zellfläche aufgebracht. Alle folgenden Versuche wurden mit diesem Aufbau und den beschriebenen Verfahren zum Anziehen des Stacks assembliert, wenn nicht explizit anders beschrieben.

7.1.1 Drucksensitive Folien – Fujifilm

Die in Abbildung 107 dargestellten Druckverteilungen entstammen einem Versuchsaufbau, bei dem die äußeren Zuganker mit einem Drehmoment von 70 Nm und die inneren Feingewindeschrauben mit unterschiedlichen Drehmomenten angezogen wurden. Bei der in Abbildung 107 a) dargestellten Einbausituation wurden die Feingewindeschrauben nicht angezogen, während in der Abbildung 107 b) die Feingewindeschrauben mit einem Drehmoment von 40 Nm pro Schraube gegen die Druckvorrichtung gespannt wurden.

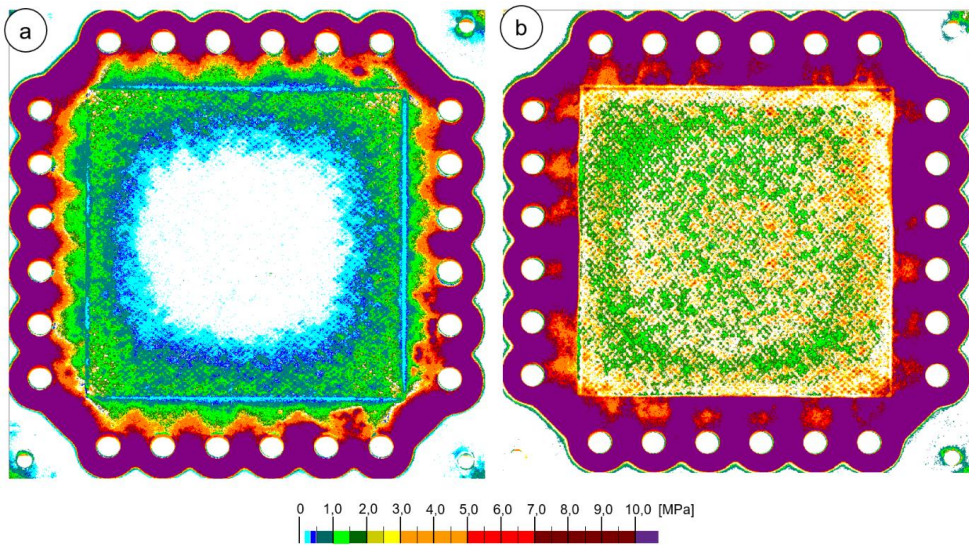


Abbildung 107: Konturbänder der mittels Fujifilm-Methode gemessenen Anpressdruckverteilung des Stack-Aufbaus mit einer Zelle und einem Anziehdrehmoment der äußeren Schrauben von 70 Nm. Bei a) kein Anziehen der Feingewindeschrauben; b) Anziehen der Feingewindeschrauben mit 40 Nm.

Die Ergebnisse bestätigen die Funktionsweise des verstellbaren Endplattenkonzepts. Ohne eine Verspannung durch den integrierten Druckmechanismus ist die auf den drucksensitiven Folien gemessene Druckverteilung vergleichsweise inhomogen. Es bildet sich ein starker Anpressdruckgradient auf der aktiven Zellfläche und im Dichtungsbereich aus. Die geometrische Ausdehnung des Druckgradienten ist analog zu der in Abschnitt 6.1 simulierten Durchbiegung der Endplatte und weist einen parabelförmigen Verlauf zur Zellmitte hin auf. Durch das Verhältnis der Dicke von der Dichtung und dem GDL-Material soll in dem Aufbau eigentlich eine Kompression des Dichtungsmaterials von 30% eingestellt werden. Jedoch erfolgt diese Kompression nur an den Rändern der aktiven Zellfläche und resultiert hier in einem messbaren Anpressdruck. Dementsprechend ist der Krafteintrag über die Endplatte derart ungleichmäßig, dass die Monopolarplatten eine zum Zellinneren gerichtete konkave Wölbung aufweisen und das GDL-Material in den inneren Bereichen der Zelle nicht komprimiert werden. Der ebenfalls durch den ungleichmäßigen Krafteintrag resultierende Anpressdruckgradient auf der Dichtungsfläche führt zu sehr geringen Anpressdrücken auf der zum Zellinneren gerichteten Dichtungsfläche. Dies kann zu Undichtigkeiten in Form von Querundichtigkeiten führen. Das dargestellte Druckbild lässt jedoch vermuten, dass keine Undichtigkeiten zur äußeren Umgebung auftreten.

Durch das Anziehen der Feingewindeschrauben (vgl. Abbildung 107 b)) wirkt, wie durch das Design beabsichtigt, die Druckvorrichtung dem ungleichmäßigen Krafteintrag auf die Monopolarplatte entgegen und die Verformung dieser wird vermindert. Somit gewährleisten

die Monopolarplatten eine wesentlich homogenere Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche und der Dichtungsfläche. Einzelne Inhomogenitäten des Anpressdrucks auf dem Dichtungsbereich sind mit den produktionsbedingten Toleranzen in diesem Bereich zu erklären. Weiterhin ist zu beobachten, dass das Streckmetall-Flowfield, vergleichbar mit der Simulation in Abschnitt 5.3.3, eine homogene Anpressdruckverteilung auf dem Bereich der aktiven Zellfläche bewirkt. Der Großteil der Anpressdrücke liegt zwischen Werten von über 1 MPa bis zu Werten von 5 MPa. Eine Art optimaler Anpressdruck oder eine optimale Kompression, wie sie in Abschnitt 5.1.4 für eine Kanal-Steg-Struktur untersucht wurde, ist derzeit noch eine offene Forschungsfrage, weshalb aktuell kein konkreter Zielwert für den mittleren Anpressdruck oder die Anpressdruckverteilung formuliert werden kann.

7.1.2 Zeitabhängige Druckverteilungsevaluation – Tekscan

Zur parametrischen Untersuchung der Druckverteilung eignet sich die Methode der zeitabhängigen Druckverteilungsmessung mit Hilfe des piezoresistiven Drucksensors der Firma Tekscan besser als die Methode der drucksensitiven Folien, da hier ebenfalls der zeitliche Verlauf der Druckverteilung wiedergegeben werden kann.

Da der vorhandene Sensor nicht die gesamte Zelloberfläche abdeckt, wurde der Sensor wie in Abbildung 108 dargestellt in den Messaufbau gebracht. Durch den Aufbau wird der gemessene Kraftwert vermutlich leicht beeinflusst, jedoch liefert der Messaufbau trotzdem qualitativ repräsentative Ergebnisse über die Assemblierung.

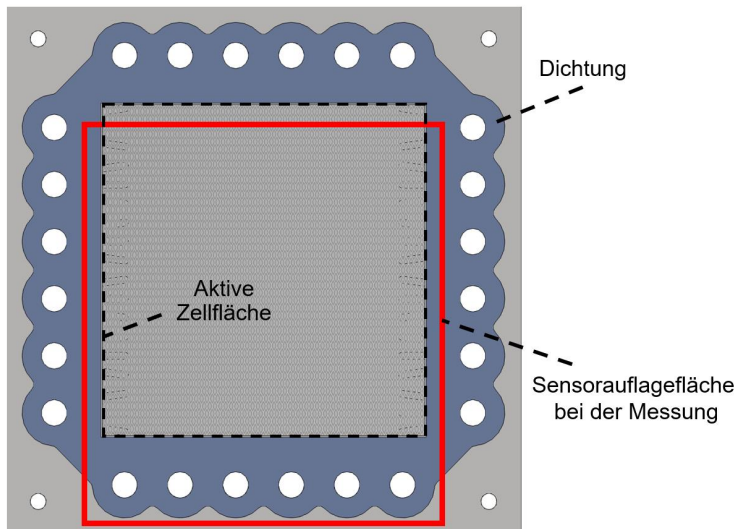


Abbildung 108: Schematische Darstellung der Sensorauflagefläche im Stack-Aufbau.

In Abbildung 109 ist der zeitliche Verlauf der gemessenen Kräfte in den einzelnen Bereichen des Kraftsensors dargestellt. Die Abbildung 109 links dargestellte Kraftsensorfläche wird für die Auswertung in drei Bereiche unterteilt. So werden auf der „Gesamtfläche“ die Kraft auf der gesamten Sensorfläche und mit den Messungen der „aktiven Zellfläche“ und „Dichtungsfläche“ jeweils die Kräfte auf den in Abbildung 109 links dargestellten Flächen auf dem Dichtungsbereich und dem aktiven Zellbereich gemessen. Die eingezeichneten Zeitpunkte T_1 - T_4 stellen jeweils den Moment einer Bildaufnahme der Druckverteilungen dar, welche in Abbildung 110 dargestellt sind, und stellen repräsentativ den Zeitpunkt dar, an dem alle Gewindestangen gleichermaßen mit einem definierten Drehmoment angezogen sind. Das Anziehen der Gewindestangen erfolgte hier analog zu dem Anziehen der Testzellen (vgl. Anhang Bild 11) über Kreuz. Um das Zieldrehmoment von 70 Nm zu erreichen, wurde das Drehmoment jeweils in Schritten von 20 Nm erhöht. Für das erste Drehmoment bei T_1 wurde ein Wert von 10 Nm gewählt.

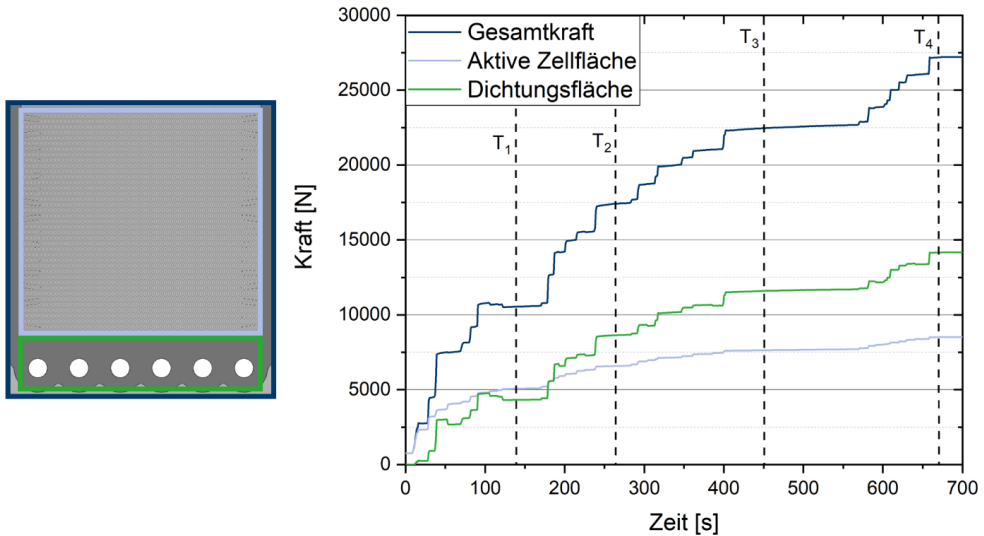


Abbildung 109: Zeitabhängige Kraftmessung mittels Piezoresistivem Kraftsensor bei der Assemblierung des präsentierten Stack-Designs: Anziehen der äußeren Schrauben auf 70 Nm. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.

Durch das schrittweise Anziehen der einzelnen Schrauben steigt die Gesamtkraft stufenweise an. Während die Kraft auf der Dichtungsfläche parallel zur Gesamtkraft ansteigt, weicht der Kraftanstiegsverlauf auf der aktiven Zellfläche ab. Nach anfänglich starkem Anstieg auf 5000 N bei T_1 flacht der Kraftanstieg auf der aktiven Fläche ab. Diese Beobachtung ist vergleichbar mit dem in Abschnitt 5.1.3 beschriebenen Kompressionsverhalten einer Elektrolysetestzelle. Innerhalb der ersten Sekunden der Messung findet die Kompression des Kohlenstoffpapiers

statt. Sobald ein Kontakt zur Dichtung hergestellt ist, wird die Kraft über beide Bauteile entsprechend der Elastizität verteilt. Diese Beobachtung lässt sich durch die Druckverteilung in Abbildung 110 veranschaulichen. Während zum Zeitpunkt T_0 (Zeit= 0s) nur das Gewicht des Stacks auf die Zellfläche wirkt und hier nur Kraftwerte aufgrund der Kompression des Kohlenstoffpapiers gemessen werden, ist zum Zeitpunkt T_1 der Kontakt zur Dichtungs- und aktiven Zellfläche vorhanden. Im Gegensatz zu den Zellmessungen ist im Stack-Aufbau die Dichtung kompressibler. Wie in Abbildung 110 dargestellt, wird die komprimierte Kontaktfläche im aktiven Zellbereich über die Messungsdauer größer. Deshalb lässt sich im Kraftverlauf auch bei gleichzeitiger Kompression von Dichtung und aktiver Zellfläche ein weiterer Kraftanstieg verzeichnen.

Die in Abbildung 110 dargestellten Druckverteilungen zeigen ein qualitativ vergleichbares Verhalten mit den in Abbildung 107 dargestellten Ergebnissen der drucksensitiven Folien. Der zeitliche Verlauf der Druckverteilung illustriert ebenfalls gut die Vermutung einer gekrümmten Monopolarplatte, durch welche mit zunehmender Messdauer entlang einer konkaven Geometrie der größte Teil der Krafteinleitung über die am Rand liegende Dichtungsgeometrie erfolgt.

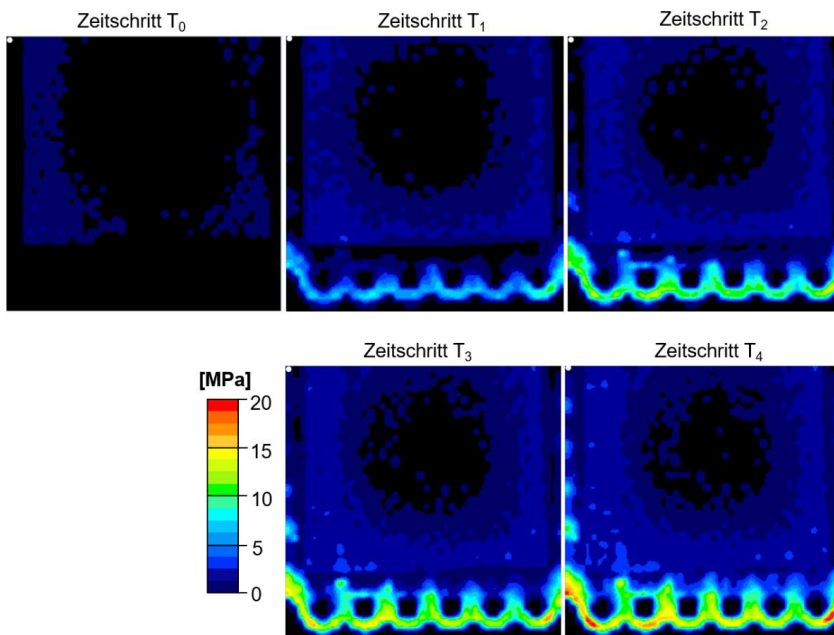


Abbildung 110: Momentaufnahmen der Druckverteilungen beim Anziehen der äußeren Schrauben zu den in Abbildung 109 dargestellten Zeitintervallen.

Im Anschluss an die äußere Verspannung des Stacks mittels der Zuganker wurden die Feingewindeschrauben ebenfalls über Kreuz in Schritten von 10 Nm bis zu einem finalen Drehmoment von 40 Nm pro Schraube verspannt. Der zeitliche Messungsverlauf ist in Abbildung 111 dargestellt. Die in der Messung ausgewerteten Flächen auf dem Drucksensor wurden gegenüber der Messung in Abbildung 110 nicht verändert. Der zusätzliche Krafteintrag über die Feingewindeschrauben führt zu einem weiteren Anstieg der Gesamtkraft. Im Vergleich zum Anziehen der äußeren Zuganker ist jedoch kaum ein Anstieg der Kraft auf dem Bereich der Dichtungsfläche zu verzeichnen, während die Kraft auf der aktiven Zellfläche quasi parallel zur Gesamtkraft ansteigt.

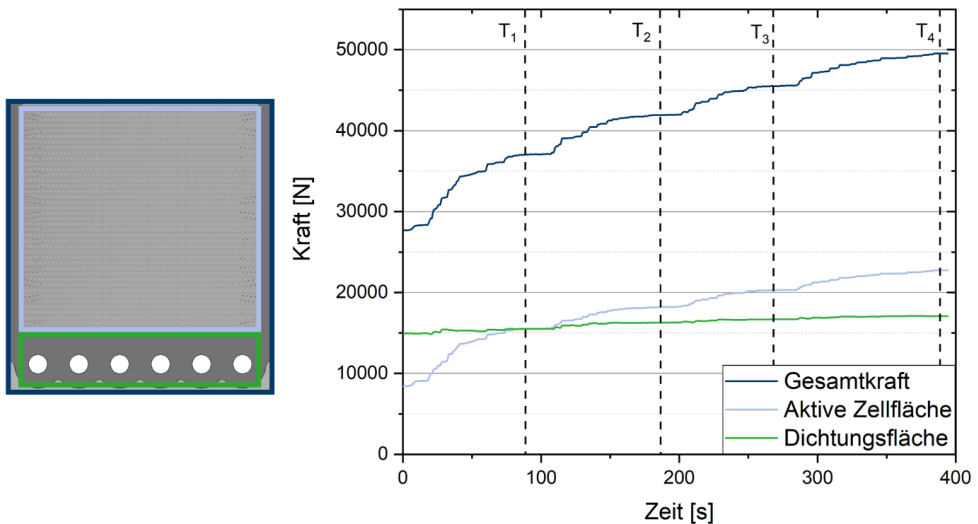


Abbildung 111: Zeitabhängige Kraftmessung mittels piezoresistivem Kraftsensor bei der Assemblierung des präsentierten Stack-Designs: Anziehen der Feingewindeschrauben auf 40 Nm. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.

Wie in Abbildung 112 zu sehen, steigen die Drücke auf der aktiven Zellfläche mit fortschreitender Messung und die Kontaktfläche zwischen der Monopolarplatte und dem Kohlenstoffpapier vergrößert sich. Die wachsende Kontaktfläche ist neben der zusätzlichen Kompression vermutlich ein Hauptfaktor für den Anstieg der Kraft auf der aktiven Zellfläche. Die kreisförmigen Druckkonturen auf der aktiven Zellfläche verringern sich zunehmend mit der auf dem Druckstempel aufgebraachten Kraft. Zwischen Zeitpunkt T_0 und T_1 ist die zusätzliche Kraft auf die Zellmitte bereits ausreichend, um einen Großteil der ungleichmäßigen Verteilung effektiv auszugleichen. Mit weiterem Krafteintrag werden die Drücke gleichmäßig erhöht und ermöglichen eine gezielte Einstellung des Anpressdrucks auf dem Bereich der aktiven Zellfläche.

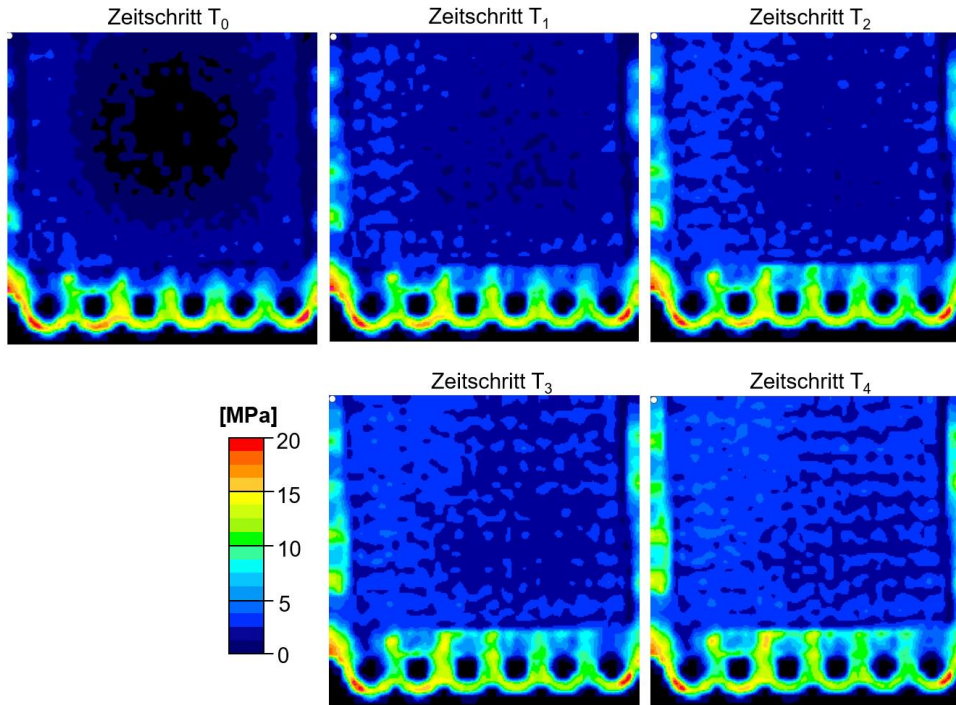


Abbildung 112: Momentaufnahmen der Druckverteilungen beim Anziehen der Feingewindeschrauben zu den in Abbildung 111 dargestellten Zeitintervallen.

Ein weiterer in der Abbildung 112 nur bedingt optisch erkennbarer Effekt ist die veränderte Belastungssituation auf der Dichtungsfläche. Hierfür wurde in Abbildung 113 zwischen der inneren und der äußeren Dichtungsfläche unterschieden, wobei die innere Dichtungsfläche der aktiven Zellfläche zugewandt ist. Interessant ist bei dieser Darstellung der zeitlichen Druckverläufe die abnehmende Kraft auf der äußeren Dichtungsfläche und der im Gegensatz dazu steigende Druck auf der inneren Druckfläche. Dieses bestätigt ebenfalls die Hypothese, dass eine Durchbiegung der Monopolarplatte durch die Druckvorrichtung ausgeglichen wird. Die Anpressdruckverteilung wird hierdurch theoretisch vergleichmäßigt und mithilfe einer parametrischen Optimierung könnten potentiell gleiche Anpressdrücke auf innerer und äußerer Dichtungsfläche erzielt werden.

In der in Abbildung 112 dargestellten Messung sind jedoch im Bereich der Strömungskanäle, welche unterhalb der inneren Dichtungsfläche im inneren der Monopolarplatte ausgeführt sind, nur geringe Anpressdrücke zu messen und es ergibt sich eine inhomogene Anpressdruckverteilung. In diesen Bereich liegen Oberflächentoleranzen im Bauteil vor, sodass es für diese Bauteile nicht möglich ist eine homogene Druckverteilung zu erzielen ohne Dichtungen mit einem sehr geringen E-Modul zu verwenden. Trotzdem sollte die Steigerung

der Kraft auf der inneren Dichtungsfläche die Dichtigkeit des untersuchten Stacks theoretisch erhöhen, weshalb im Folgenden das Dichtungsverhalten des Stacks untersucht werden soll.

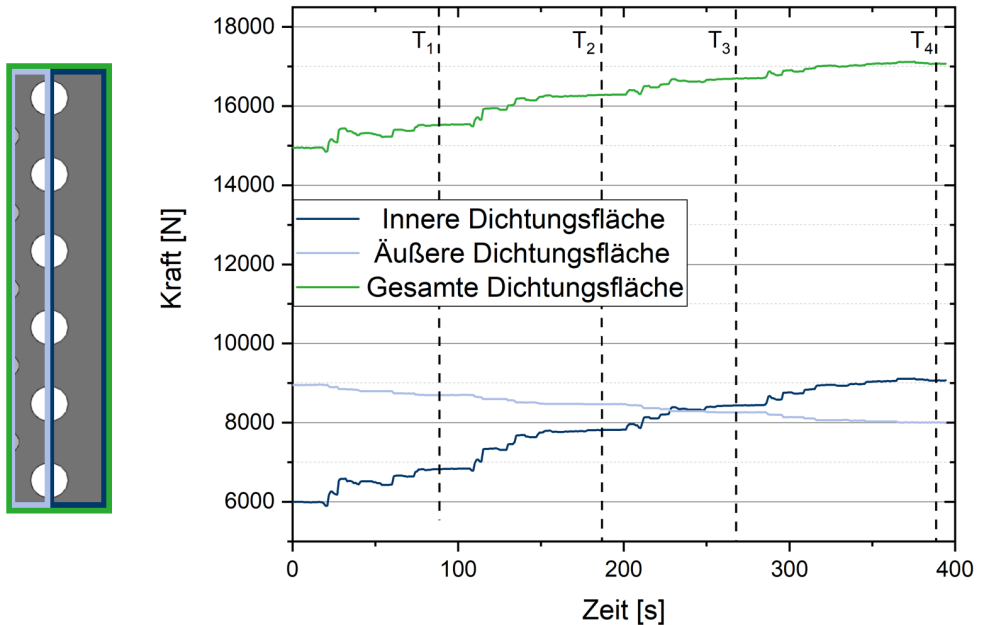


Abbildung 113: Zeitabhängiger Kraftverlauf auf dem Dichtungsgebiet der in Abbildung 108 dargestellten Messung. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.

7.2 Zusammenfassung und Diskussion

Mithilfe unterschiedlicher Methoden zur Untersuchung der Druckverteilung konnte das neu entwickelte Stack-Design hinsichtlich des mechanischen Verhaltens untersucht werden. Hierdurch konnte die Funktionalität des in Abschnitt 6.2 entwickelten Konzepts der verstellbaren Endplatte nachgewiesen werden. Mithilfe der Druckvorrichtung kann auch im assemblierten Zustand gezielt Kraft auf den aktiven Zellbereich der verspannten Zellen eingeleitet werden. Hierdurch kann einerseits eine Homogenisierung der Druckverteilung erzielt werden und andererseits gezielt die Gesamtkraft auf der aktiven Zellfläche erhöht werden. Weiterhin kann ebenfalls die Kraftverteilung auf der Dichtungsfläche gezielt beeinflusst und damit den Anpressdruck gemäß eines gewählten Dichtungsdesigns ausgelegt werden. Dies macht es auch möglich mithilfe des neuen Endplattendesigns die Krafteinleitung in die Zellen entsprechend des Betriebszustandes einzustellen.

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass mithilfe der Streckmetall-Flowfield-Strukturen bei gleichmäßiger Krafteinleitung eine homogene Druckverteilung auf der aktiven Zellfläche erzielt

werden. So können niedrige Anpressdrücke wie in den Kanalbereichen vermieden werden. Die Messungen können somit die Simulationsergebnisse aus Abschnitt 5.3.3 qualitativ bestätigen.

Der Vergleich der unterschiedlichen Dichtungsdesigns zeigt ebenfalls, dass die an die Geometrie angepasste und minimierte Dichtungsfläche zu einem verbesserten Dichtungsverhalten im Zellaufbau führt.

8 Diskussion

Zur Untersuchung des mechanischen Verhaltens von PEM-Elektrolyseuren wurden Methoden zur Evaluation der Anpressdruckverteilung vorgestellt und validiert. Ein Messsystem aus drucksensitiven Folien stellte sich hierbei als zweckmäßig heraus, die Anpressdrücke mit hoher örtlicher Auflösung und für ein weites Anpressdruckspektrum zu ermitteln. Das verwendete Messsystem wurde bereits in der Literatur in diversen Studien zur quantitativen und qualitativen Evaluation der Druckverteilung verwendet. Jedoch erst mit dem von Irmischer [21] präsentierten System, unter Verwendung mehrerer Druckmessfolien in einem Stapel, konnten verlässliche Aussagen über das gesamte Spektrum der Anpressdrücke in einem Zellaufbau getroffen werden. Diese Methode wurde im Rahmen dieser Arbeit experimentell, quantitativ hinsichtlich der Messfehler evaluiert. Mithilfe eines numerisch - mechanischen Modells wurde der Einfluss auf das mechanische Verhalten des Messsystems festgestellt. So konnte festgestellt werden, dass die numerischen Werte der Messung entsprechend der gewählten Auswertungsmethode variierten. Dies liegt vor allem an den Grenzwerten des messbaren Druckwertespektrums der drucksensitiven Folien, sodass sich für diese Bereiche Fehler ergeben können. Ebenso hat der Aufbau im Folienstapel einen Einfluss auf das Messergebnis und die Stapelreihenfolge muss bei der Assemblierung des Messsystems ebenfalls beachtet werden. Zusätzlich beeinflussen die mechanischen Eigenschaften des Folienstapels die Mechanik des Messaufbaus. Diese Erkenntnis konnte sowohl experimentell als auch mithilfe einer statisch-mechanischen Simulation des Messsystems gezeigt werden. In den Simulationen wurde ebenfalls die Erkenntnis gewonnen, dass die drucksensitiven Folien lediglich ein repräsentatives, zweidimensionales Druckbild einer eigentlich dreidimensional gemessenen Anpressdruckverteilung wiedergeben. Da jede Schicht innerhalb des Folienstapels eine leicht unterschiedliche Anpressdruckverteilung liefert, misst jeder Folientyp ebenfalls eine veränderte Druckverteilung.

Weiterhin muss die Wechselwirkung der drucksensitiven Folien mit den porösen Materialien genauer untersucht werden. Besonders in den Stegbereichen kam es zu signifikanten Abweichungen zwischen der Simulation und Messung. Dies kann einerseits mit der nicht korrekten Darstellung der Eigenschaften durch die verwendeten Materialmodelle erklärt werden, jedoch könnte die Porosität der Materialien ebenso dazu führen, dass die farbgebenden Kugeln in der drucksensitiven Folie nicht dem Anpressdruck entsprechend auslösen. Dies könnte ebenfalls ein Grund für das Abweichen der gemessenen Gesamtkraft vom Sollwert bei den Validierungsmessungen sein. Insgesamt unterschätzt das Messsystem die Anpressdrücke um ca. 10%. Jedoch ist die hier vorgestellte Methode die qualitativ und quantitativ bestbekannte Möglichkeit, um die Anpressdruckverteilung und somit das mechanische Verhalten von Elektrolysezellen und -stacks experimentell zu untersuchen.

Das in dieser Arbeit vorgestellte mechanische Modell einer Elektrolysezelle repräsentiert eine möglichst realitätsnahe Abbildung des Messsystems sowie der realen Elektrolysezelle während der mechanischen Assemblierung. Während in der Literatur mechanische Brennstoffzellenmodelle oder -teilmodelle vorgestellt wurden, wird hier der erste Ansatz einer mechanischen Modellierung einer PEM-Elektrolysezelle präsentiert. Besonderer Fokus bei der Modellbildung und Evaluation wird auf die möglichst korrekte Abbildung der Materialmodelle gelegt. Jedoch mussten Vereinfachungen für die Materialmodelle der porösen Materialien getroffen werden, da in der verwendeten Software weder die Porosität noch ein nichtlineares Materialverhalten dieser Materialien korrekt abgebildet werden können. Unter Berücksichtigung dieser Einschränkungen konnte das Modell mithilfe des vorgestellten experimentellen Messsystems validiert werden. So konnte eine qualitative Übereinstimmung der Messungen zum Realsystem festgestellt werden. Lediglich im Bereich der porösen Materialien kam es zu stärkeren Abweichungen beim mittleren Anpressdruck (1,23 MPa experimentell und 2,15 MPa in der Simulation). Jedoch konnten gute numerische Übereinstimmungen für die simulierten Maximal- und Minimaldrücke in diesem Bereich erzielt werden (Anpressdrücke von ca. 3-3,5 MPa auf den Stegbereichen und 0,5-1 MPa in den Kanalbereichen). Somit muss bei der experimentellen Validierung des Elektrolyseurmodells zwischen den mittleren Anpressdruckwerten und der physikalisch sinnvollen Validierung einzelner Druckwerte unterschieden werden. So überschätzt das Zellmodell die mittleren Anpressdrücke auf der aktiven Zellfläche deutlich. Jedoch ist dies vordergründig auf die Anpressdrücke auf den Stegflächen zurückzuführen. In diesem Bereich tritt ein deutlich geringerer, gradueller Abfall der Anpressdrücke von der Stegmitte zu dem Stegrand auf als in der Validierungsmessung. Dies könnte mit dem vereinfachten Materialmodell der porösen Materialien und insbesondere mit dem des Kohlenstoffpapiers zusammenhängen. Durch das Materialmodell wird einerseits das nichtlineare Kompressionsverhalten nicht korrekt abgebildet und andererseits ebenfalls der Einfluss der Porositätsveränderung vernachlässigt. Jedoch müssen ebenfalls bei der Bewertung des Zellmodells die gemessenen Maximalwerte auf dem Stegmittelpunkt beachtet werden. In diesem Bereich entspricht der Spannungszustand dem Spannungszustand von den Kompressionstests, mit denen das Materialverhalten untersucht wird. Somit müssen zur physikalisch korrekten Darstellung der Kompression die simulierten Spannungen in diesem Bereich den gemessenen Spannungen entsprechen. Das vorgestellte Modell einer Elektrolysezelle bildet somit im Rahmen der getroffenen Vereinfachungen das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle korrekt ab und kann dazu dienen das mechanische Verhalten einer Elektrolysezelle zu analysieren und parametrisch den Einfluss konstruktiver Gestaltungen von Zellkomponenten zu untersuchen.

Um jedoch eine Aussage über den Einfluss der Mechanik auf die Funktion der einzelnen Zellkomponenten treffen zu können, wurden die in der Literatur vorgestellten Einflüsse der

Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche und dem Dichtungsbereich experimentell ergänzend untersucht. Ebenso wurde der Einfluss der Endplatten auf die Druckverteilung in einer Testzelle näher mithilfe der Methode der drucksensitiven Folien betrachtet.

So konnte festgestellt werden, dass die Endplatten und die Flowfield-Platten einen starken Einfluss auf die Verteilung der Kraft in einer Elektrolysezelle haben und dazu dienen, die durch die Schrauben eingeleitete Kraft in die Mitte der Zelle zu verteilen. Auffällig bei den Messungen war hier die deutlich schlechtere Verteilung der Anpressdrücke in der Zellmitte. Neben der mechanischen Insuffizienz, in Form von zu geringer Bauteilsteifheit, könnte ein weiterer Grund für die schlechte Druckverteilung die Oberflächentoleranzen der untersuchten Bauteile sein. So könnten die Endplatten eine Wölbung zur Zellmitte aufweisen. Dieser Effekt muss bei der Betrachtung aller weiteren experimentellen Untersuchungen und bei der Validierung des Testzellmodells beachtet werden.

Weiterhin beeinflusst das Höhenverhältnis von der Dichtung und GDL die Anpressdruckverteilung in der Zelle. Dementsprechend wurde in einer Versuchsreihe der Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche verändert, indem das Dickenverhältnis der GDL und Dichtung verändert wurden. Hierdurch wurde eine unterschiedliche, theoretische Kompression erzeugt, welche einen direkten Einfluss auf den Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche hat. In der Versuchsreihe wurden zwei unterschiedliche GDL-Materialien untersucht. So wurden ein Kohlenstoffpapier der Firma Toray sowie das Kohlenstoffvlies der Firma Freudenberg betrachtet, die beide unterschiedliche, mechanische Eigenschaften aufweisen. Das Kohlenstoffpapier verhält sich bedingt durch die geraden Kohlenstofffasern steifer als das Kohlenstoffvlies mit einer ineinander verschlungenen Faserstruktur aus gebogenen Kohlenstofffasern. Die elektrochemischen Untersuchungen zeigten, dass die Materialeigenschaften nicht nur einen Einfluss auf die Polarisationskurven der Zellen haben, sondern auch den Wasserstoff-Crossover von der Kathodenseite auf die Anodenseite beeinflusst. Entsprechend der unterschiedlichen Anpressdrücke verbessert sich die Polarisationskurve vermutlich aufgrund der Reduktion der elektrischen Widerstände zwischen den Materialien im Bereich der aktiven Zellfläche und der ohmsche Widerstand der Zelle wird verringert. Mit steigender Kompression steigt jedoch ebenfalls der Wasserstoff-Crossover. Da sich die Effekte für beide betrachteten GDL-Materialien unterschieden, wurde ebenfalls die Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche für beide Materialien untersucht.

Als signifikantester Unterschied zwischen den beiden Materialien stellten sich die Anpressdrücke in den Kanalregionen beider Materialien heraus. Das steifere Kohlenstoffpapier konnte die Anpressdrücke besser über die gesamte Fläche verteilen, sodass bereits bei geringen Kompressionen höhere Anpressdrücke in den Kanalbereichen erzielt wurden. Somit ist eine mögliche Erklärung für das unterschiedliche elektrochemische

Verhalten die Struktur der GDL-Materialien. So können durch das steife Verhalten des Kohlenstoffpapiers die Anpressdrücke besser auf der Katalysatoroberfläche verteilt werden. Hierdurch reduzieren sich vermutlich auch in den Kanalbereichen die Kontaktwiderstände der Mäanderstruktur und die ohmschen Verluste zwischen dem Katalysator und der GDL werden reduziert. Andererseits wird durch die strukturelle Schädigung der Toray-GDL die Porosität des Materials vermindert, was dazu führen kann, dass sich Wasserstoff an der Kathodenseite anreichert und zu einem verstärkten Wasserstoff-Crossover zwischen den Zellkompartimenten führt. Dieses Verhalten ist deutlich stärker bei der Toray-GDL und könnte, neben der stärkeren, strukturellen Beschädigung des Papiers, auch mit den erhöhten Anpressdrücken und damit verbesserten Wasserstoffproduktion begründet werden. Dementsprechend liegt bei der Auslegung des Anpressdrucks und der Kompression der GDL-Materialien ein Optimierungsproblem zwischen dem Wasserstoff-Crossover und der Zelleistung vor. In dieser Arbeit wurde eine optimale Kompression des Kohlenstoffpapiers von 30% bestimmt. Diese Kompression entspricht bei der Assemblierung der vorgestellten Zelle mit einem Mäander-Flowfield einem experimentell ermittelten, mittleren Anpressdruck von ca. 1,23 MPa mit maximalen Druckwerten auf dem Stegbereich von ca. 3 - 3,5 MPa und minimalen Druckwerten im Kanalbereich von ca. 0,5 - 1 MPa. Ebenso erwies sich das Kohlenstoffpapier als vorteilhafter zur Anpressdruckverteilung. Diese Erkenntnisse decken sich ebenfalls mit den Erkenntnissen von Kleemann [49] im Brennstoffzellenbereich, bei dem sich ebenfalls ein gesteigerter Anpressdruck in den Stegbereichen als vorteilhaft herausstellte.

Bei diesen Ergebnissen muss jedoch die gesamte Zellkonfiguration betrachtet werden, so muss bei einer abweichenden Flowfield-Struktur vermutlich ein neuer optimaler Anpressdruck ermittelt werden. Als Konstruktionsempfehlung lässt sich jedoch ableiten, dass eine gleichmäßige Druckverteilung konstruktiv erzielt werden sollte und in einem Elektrolysezellaufbau stehts eine Optimierung hinsichtlich der maximalen und minimalen Anpressdrücke erfolgen sollte.

Weiterhin verursachte eine größere Dickendifferenz zwischen dem GDL-Material und Dichtungsmaterial eine Änderung der Anpressdruckverteilung im Dichtungsbereich direkt angrenzend zur aktiven Zellfläche. So wurden mit sukzessiver Vergrößerung der Dickendifferenz die Anpressdrücke in diesem Dichtungsbereich verringert. Da üblicherweise in Zellkonzepten dieser Dichtungsbereich signifikant für die Dichtigkeit einer Zelle ist, kann die Dichtigkeit einer Elektrolysezelle negativ durch diesen Kompressionseffekt beeinflusst werden. Bei der Betrachtung der Messungen mithilfe der drucksensitiven Folien muss an dieser Stelle jedoch beachtet werden, dass die Mechanik des Folienstapels die Messung beeinflusst und der Effekt durch das steife Materialverhalten verstärkt wird. Jedoch konnte der Kompressionseffekt ebenfalls in der statisch-mechanischen Simulation der Elektrolysezelle mit einer MEA beobachtet werden. Wie zu erwarten, fiel dieser in den Simulationen jedoch

deutlich geringer aus. Eine mögliche mechanische Erklärung hierfür ist, dass die Endplatten eine inhomogene Druckverteilung über die Zelle verursachen. Da jedoch die GDL zuerst komprimiert wird, entfällt in diesem Bereich der Effekt nahezu. Somit wird die aus der Durchbiegung der Endplatten resultierende, ungleichmäßige Druckverteilung in den zur aktiven Zellfläche angrenzenden Regionen verstärkt. Ebenso entfällt mit zunehmender Kompression des GDL-Materials ein geringerer Anteil der Gesamtkraft auf die Dichtungsfläche, sodass die Gesamtkraft auf der Dichtungsfläche reduziert wird.

Insgesamt sollte deshalb bei der Konzeptionierung von Elektrolysezellen dieser Effekt hinsichtlich der erforderlichen Dichtigkeit und damit dem erforderlichen Anpressdruck berücksichtigt werden.

Um den Einfluss des Anpressdrucks auf die Dichtigkeit einer Elektrolysezelle weiter zu untersuchen, wurden unterschiedliche Parameter des Dichtungskonzepts variiert. Durch eine Anpassung des Dichtungsdesigns und eine Verringerung der Dichtungsfläche konnten im relevanten Dichtungsbereich des Zelldesigns die Anpressdrücke ohne Steigerung der Schraubenkräfte von ca. 1 MPa im Ausgangsdesign zu über 10 MPa gesteigert werden. So konnte durch das Steigern des Anpressdrucks die Dichtigkeit der Zelle gesteigert werden. Eine weitere Steigerung der Dichtigkeit konnte durch eine elastische Dichtung erzielt werden. Als Konstruktionsempfehlung lässt sich aus den Untersuchungen und der Literatur ableiten, dass bei der Auswahl des Dichtungsmaterials neben der Beständigkeit bei den Betriebsbedingungen ebenfalls die mechanischen Eigenschaften des Materials beachtet werden sollten. Bei der Auslegung der Dichtungsgeometrie einer Flachdichtung sollte die Geometrie auf die relevante Dichtungsfläche der Zellgeometrie angepasst werden und die Dichtungsfläche möglichst weit reduziert werden, um mit geringeren Kräften bereits eine hohe Dichtigkeit zu erzielen.

So sollte bei der Auslegung von Dichtungen im ersten Schritt der erforderliche Anpressdruck zum Erreichen der erwünschten Dichtigkeit eines bestimmten Dichtungsmaterials ermittelt werden. Zum Vorbild kann die hier vorgestellte Flanschnorm DIN EN 13555 [55] dienen. Jedoch muss eine solche Prüfung an die Eigenschaften der Dichtungsfläche der Elektrolysezelle oder des Elektrolysestacks angepasst werden. So ist die in der Norm vorgestellte Rauheit der Dichtungsfläche deutlich höher als in einer Elektrolysezelle. Die höhere Rauheit kann je nach Ausführung (in der Norm kreisförmige Gravuren) zu einer Verbesserung der Dichtigkeit führen. Weiterhin hat bei gleichem Anpressdruck eine größere Dichtungsfläche einen positiven Effekt auf die Dichtigkeit, weil die Anfälligkeit für Fehlerstellen in der Dichtung reduziert wird. Derartige Untersuchungen sind für den Bereich der Elektrolyse noch nicht erfolgt und sollten zur weiteren Entwicklung von verlässlichen Dichtungskonzepten vorangetrieben werden.

Weiterhin ist bei den hier betrachteten Untersuchungen zur Anpressdruckverteilung zu beachten, dass lediglich die Anpressdruckverteilung bei der Assemblierung gemessen werden konnte. Nach Borgardt et al. [44] tritt bei der Inbetriebnahme einer Elektrolysezelle durch das Zuführen von Wasser eine starke Membranschwellung auf. Dieses Membranschwellen führt zu einem Anstieg des Anpressdrucks in den hydrierten Bereichen der Membran. Weiterhin wird in den hier betrachteten Untersuchungen die thermische Erwärmung der Elektrolysezelle und die damit verbundene thermische Ausdehnung der einzelnen Zellkomponenten nicht beachtet. Dies kann ebenfalls zusätzliche Spannungen in die Zelle einbringen und die Anpressdruckverteilung beeinflussen. Die hier gemessenen Anpressdrücke sowie der optimale Anpressdruck bzw. die optimale Kompression charakterisieren somit den Zustand der Assemblierung und dienen zur mechanischen Auslegung eines Elektrolyseurs, jedoch nicht zur Beschreibung des Betriebszustands. Dies gilt ebenfalls für die Untersuchung der Dichtungsdesigns. Besonders relevant sind hier die thermischen Einflüsse auf die Dichtungsmaterialien. So ändert sich das mechanische Verhalten wie beispielsweise der E-Modul der Dichtungsmaterialien, sodass diese kompressibler werden, was zu einer Veränderung der Anpressdruckverteilung in der gesamten Ebene der Dichtungen führen kann. Dieses gilt besonders für elastische Dichtungsmaterialien wie Elastomere, sodass dieser Einfluss bei der Auslegung eines Elektrolyseurs beachtet werden muss.

Die experimentellen Ergebnisse zum mechanischen Verhalten konnten ebenfalls durch die Simulation des mechanischen Verhaltens einer Elektrolysezelle bestätigt werden. So konnte festgestellt werden, dass durch ein zweckmäßiges Dichtungsdesign die Kraftverteilung in die relevanten Zellbereiche sichergestellt wird. Durch das hier vorgestellte, reduzierte Dichtungsdesign, welches nicht mehr direkt unterhalb der Wirkfläche der Schraubenkräfte liegt, wird ein Hebelarm zwischen der Dichtung und dem Schraubenkraftansatzpunkt erzeugt. Durch diesen Hebelarm wird die mechanische Belastung der Endplatten vergrößert, was zu einem stärkeren Durchbiegen der Endplatten führt.

Weiterhin bestätigt das mechanische Modell der Elektrolysezelle die experimentellen Ergebnisse hinsichtlich den ansteigenden Anpressdrücken auf dem Bereich der reduzierten Dichtungsfläche und die damit verbundene Steigerung der Anpressdrücke auf der aktiven Zellfläche.

Eine Variation der Endplatten zeigte, dass durch eine verringerte Dicke der Endplatte das Durchbiegen der Endplatte verstärkt wird, was zu einer ungleichmäßigeren Anpressdruckverteilung in den verspannten Zellen führte. Hierdurch können die Funktionalität der Dichtung sowie die Zelleistung negativ beeinflusst werden. Weiterhin konnten simulativ unterschiedliche Dichtungsmaterialien sowie der Einsatz unterschiedlicher kathodenseitiger, poröser Materialien betrachtet werden. Hier stellte sich heraus, dass beim Ersetzen des

kompressiblen, grafitischen Materials durch ein titanbasiertes, poröses Material bereits geringe Änderungen in der Dicke des Materials, wie beispielsweise über die Dickentoleranzen, einen deutlichen Einfluss auf die Anpressdruckverteilung haben. Der Einfluss von Oberflächentoleranzen soll deshalb am Ende des Kapitels näher diskutiert werden.

Ein Vorteil bei der Verwendung von titanbasierten, porösen Materialien ist hingegen die bessere Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche. Außerdem führt die geringe Stauchung vermutlich ebenfalls zu einer geringen Reduktion des Porenvolumens, sodass die Porosität des Materials erhalten bleibt. Nachteilig ist jedoch die Notwendigkeit einer zusätzlichen Beschichtung, um mit den grafitischen Materialien vergleichbare Kontaktwiderstände zu erreichen [39].

Als weitere Möglichkeit eine gleichmäßigere Anpressdruckverteilung auf der aktiven Zellfläche zu erzielen, stellte eine Veränderung der Flowfield-Struktur dar. Hier wurde in dem Zellmodell das mäanderförmige Flowfield durch ein Streckmetalldesign ersetzt. Die dreidimensionale Struktur der Streckmetalle weist zwar einerseits geringere Stegflächen auf, jedoch sind die Abstände zwischen den Stegen ebenfalls deutlich geringer als bei der betrachteten Kanal-Steg-Struktur. Ein weiterer Einflussfaktor auf die simulierte Druckverteilung ist die gekrümmte Struktur der Maschen eines Streckmetalls, hierdurch ergeben sich vergleichbar zu den Kanal-Steg-Strukturen mit Radien steigende Kontaktflächen mit steigender Kompression. Wie zuvor ermittelt, kann die verbesserte Anpressdruckverteilung zu einer verbesserten Zelleistung führen, jedoch wurde der optimale Anpressdruck bzw. die optimale Anpressdruckverteilung für die verwendete Kombination aus einem Kohlenstoffpapier und einer Kanal-Steg-Struktur bestimmt und kann somit für ein Streckmetalldesign abweichen. So sind vor allem die Grenzflächen zwischen dem Streckmetall und dem Kohlenstoffvlies unterschiedlich und das Kohlenstoffvlies erfährt eine deutlich gleichmäßigere Kompression, was vorteilhaft für den Wasserstoff-Crossover sein könnte. Weiterhin ist ebenfalls das Strömungsverhalten in den Streckmetallen unterschiedlich zu einer Mäanderstruktur und ähnelt der Strömungsverteilung einer Füßchenstruktur. Insgesamt muss somit der optimale Anpressdruck für das neue Flowfield-Design erneut überprüft werden. Borgardt et al. [8] stellten für einen unterschiedlichen Aufbau und unter Verwendung einer dickeren Membran einen optimalen Anpressdruck von 2,5 MPa im Betriebszustand fest. Dies kann als Anhaltspunkt dienen, muss jedoch auch aufgrund der unterschiedlichen Zellkonfiguration für die Anwendung im verwendeten Design überprüft werden.

Insgesamt ist ein Vorteil der Simulation des mechanischen Zellverhaltens die Möglichkeit konstruktive Anpassungen am Elektrolysezellendesign ohne eine technische Realisierung auf ihre mechanische Funktionalität überprüfen zu können und somit Designentscheidungen bereits vor der technischen Realisierung bewerten zu können.

So wurde in einem weiteren Schritt ebenfalls die mechanische Verspannung eines PEM-Elektrolysestacks untersucht. Aus den Betrachtungen zu Elektrolysezellen im Labormaßstab ging hervor, dass die Endplatte einen signifikanten Einfluss auf die Spannungsverteilung innerhalb eines Elektrolyseurs hat. Da PEM-Elektrolysestacks über deutlich größere Zellflächen verfügen und ebenfalls mit höheren Gasdrücken betrieben werden, kommt den Endplatten durch die größere mechanische Beanspruchung eine größere Bedeutung für das mechanische Verhalten der Assemblierung zu. Dementsprechend wurden quadratische Elektrolysestacks hinsichtlich des Endplattendesigns mittels Simulation evaluiert. Mit der statisch-mechanischen Simulation konnte bestätigt werden, dass die hohen Kräfte auf dem Elektrolysestack zu einem deutlich stärkeren Durchbiegen führen (ca. 90 μm bzw. 3% der Endplattendicke), als dies bei Elektrolysezellen der Fall war (12 μm bzw. 1% der Endplattendicke). Auch in diesen Untersuchungen zeigte sich ein starker Einfluss der Endplattenverformung auf die Druckverteilung im Dichtungsbereich. So wurden unterschiedliche, konstruktive Maßnahmen zur Reduktion der Endplattenverformung untersucht:

So stellte sich eine Reduktion der Schraubenanzahl in den Ecken der Endplatten als vorteilhaft für die Spannungsverteilung im Elektrolysestack heraus. Durch den erhöhten Krafteintrag in den Ecken der Endplatten wird die diagonale Biegung der Endplatten deutlich erhöht und somit die Anpressdrücke in den Eckbereichen gesteigert und fallen stark zum Zellinneren ab. Die erhöhten Anpressdrücke in den Ecken liegen nicht im relevanten Dichtungsbereich eines Stacks und sind somit nicht zweckmäßig für den Aufbau. So verdeutlicht auch diese Erkenntnis, dass eine Optimierung der Schraubenposition für verschiedene Elektrolysestack-Designs ein wichtiger Faktor für eine homogene Krafteinleitung ist.

Weiterhin kann, wie bei den Elektrolysezellen im kleinen Maßstab festgestellt wurde, durch eine Steigerung der Endplattendicke Verformungen entgegengewirkt werden. Hierbei stellten sich besonders zu dünn ausgelegte Endplatten als kritisch für die mechanische Spannungsverteilung des Aufbaus heraus, da die Durchbiegung mit zunehmender Verringerung der Endplattendicke exponentiell ansteigt.

Zusätzlich wurden weitere Konzepte von Endplatten untersucht, um der Durchbiegung entgegenzuwirken. So konnte das, in der Literatur vorgestellte, Konzept der gebogenen Endplatte dazu führen, die Durchbiegung der Endplatten gewichtseffizient auszugleichen. Eine weitere Möglichkeit, das Gewicht der Endplatten unter geringen Einbußen der mechanischen Stabilität der Endplatten zu reduzieren, ist das ebenfalls in der Brennstoffzellenliteratur vorgestellte Konzept einer topologieoptimierten Endplatte. Als besonders vielversprechend für einen dynamischen Ausgleich der Endplattenverformung stellte sich das Konzept der verstellbaren Endplatte heraus. Dieses Konzept ist vergleichbar mit dem in der Literatur

vorgestellten Konzept der „dynamischen Flüssigkeitsdruckplatte“. Im Vergleich zu diesem Konzept wird jedoch die zusätzliche Kraft über Feingewindeschrauben in den Endplatten auf einen Druckstempel aufgebracht und ist somit deutlich praktikabler als ein hydraulisches System, welches viele zusätzliche Systemkomponenten mit sich bringt. So kann durch einen geringen fertigungstechnischen Aufwand der Anpressdruck im Zellinneren variabel und aktiv beeinflusst werden und somit auf variable Betriebspunkte wie beispielsweise einen Druckbetrieb reagiert werden.

Auf Basis dieses neu abgeleiteten Endplattendesigns, wurde ein neuartiges Stack-Design abgeleitet. Hierzu wurden ebenfalls die Erkenntnisse und Konstruktionsempfehlungen aus den Elektrolysezelluntersuchungen auf das neue PEM-Elektrolysestack-Design mit einer Zellfläche von 100 cm² übertragen.

Zur Realisierung der Streckmetallstruktur als Flowfield wurde ein am Forschungszentrum Jülich und im Rahmen dieser Arbeit entwickeltes Konzept für eine Mono- und Bipolarplatte angewendet [116]. Als Dichtungsmaterial wurde eine Dichtung mit kompressiblen Eigenschaften bei geringer Stauchung und inkompressiblen Verhalten bei hohen Stauchungen ausgewählt. Hierdurch können einerseits höhere Dichtungsleistungen und der Ausgleich von Toleranzen erzielt werden und andererseits bei zu hoher mechanischer Belastung das GDL-Material vor Überkompression geschützt werden. Mithilfe der Dichtung sollte eine Kompression von 30% des, in dieser Arbeit untersuchten, Kohlenstoffpapiers eingestellt werden. Ebenso wurde die Dichtungsfläche geometrisch auf die Oberfläche der Dichtungsstruktur angepasst und dabei die Dichtungsfläche möglichst verringert.

Bei der mechanischen Überprüfung des realisierten Designs anhand der Anpressdruckverteilung konnte die mechanische Funktionalität des neuen Endplattenkonzepts nachgewiesen werden. So konnte der Anpressdruck auf der aktiven Zellfläche aktiv durch das Verstellen der Feingewindeschrauben beeinflusst werden. Ebenso konnte dem Anpressdruckgradienten auf dem Dichtungsbereich durch das Erhöhen des Anpressdrucks in der Zellmitte entgegengewirkt werden. Mithilfe der drucksensitiven Folien konnte ebenfalls eine homogene Anpressdruckverteilung auf dem Bereich der aktiven Zellfläche gezeigt werden, was die Funktionalität des Streckmetall-Flowfields bekräftigt. So wurden Anpressdrücke im Bereich von über 1 MPa bis zu Anpressdrücken unter 5 MPa gemessen. Im Vergleich für die optimalen Anpressdrücke eines Mäander-Flowfields sollte somit eine erneute Betrachtung für die Kompression einer GDL durch ein Streckmetall-Flowfield und deren Auswirkung auf das elektrochemische Verhalten der Zelle durchgeführt werden. Als größte Schwachstelle in der Anpressdruckverteilung stellten sich die Bereiche auf der Dichtungsfläche heraus, in dem die Strömungszuführung in diesem Design liegt. Die

deutlich niedrigeren Anpressdrücke ergeben sich hier durch Oberflächentoleranzen, welche fertigungsbedingt in die Komponenten gebracht wurden.

Somit muss als weiterer wichtiger Einflussparameter auf das mechanische Verhalten von Elektrolysezellen und -stacks die Oberflächentoleranzen von Bauteilen betrachtet werden. Wie bei den praktischen Untersuchungen von neuen Elektrolysestacks festgestellt werden konnte, können Oberflächentoleranzen die Anpressdruckverteilung in den betroffenen Zellebenen signifikant beeinflussen und somit die Funktionalität der Zellkomponenten negativ beeinflussen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss von Oberflächentoleranzen nicht weiter untersucht, jedoch können aus den vorangegangenen Untersuchungen theoretische, konstruktive Maßnahmen abgeleitet werden, um den Oberflächentoleranzen entgegenzuwirken. So können durch den Einsatz kompressibler Materialien größere Kompressionswege erzielt werden. Tritt eine Oberflächentoleranz in Form einer Vertiefung auf, so kann die Höhendifferenz durch den Kompressionsweg teilweise ausgeglichen werden. Für Elektrolysezellen und -stacks mit hohen Toleranzen empfehlen sich deshalb ebenfalls dickere, poröse Materialien und Dichtungen, um einen größeren Kompressionsweg zu erzielen. Somit sind aufgrund der kompressiblen Eigenschaften für den aktiven Zellbereich kohlenstoffbasierte Materialien und für den Dichtungsbereich elastische Materialien zu empfehlen, um den Bauteiltoleranzen entgegenwirken zu können.

9 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde das mechanische Verhalten von PEM-Elektrolysezellen und -stacks experimentell und simulativ mittels der Finite Elemente Methode untersucht, um Aussagen zu der mechanischen Auslegung von PEM-Elektrolyseuren treffen zu können und hieraus ein mechanisch optimiertes Elektrolyseurdesign abzuleiten. So wurde das Messsystem der drucksensitiven Folien zur numerischen Analyse von Anpressdrücken weiterentwickelt und dazu verwendet, ein realitätsnahes, mechanisches Modell einer Elektrolysezelle zu validieren. So wurde sowohl ein neuartiges Modell zur Abbildung des mechanischen Verhaltens einer Elektrolysezelle vorgestellt, als auch zum ersten Mal die Möglichkeit aufgezeigt, dieses Modell vollends numerisch mit dem mechanischen Verhalten eines Realsystems zu vergleichen. Somit wurde der Grundstein für die mechanische Auslegung von Elektrolysezellen und -stacks geschaffen, was die Möglichkeit eröffnet, konstruktive Elemente bei der mechanischen Auslegung eines Elektrolyseurs noch vor der Prototypenrealisierung hinsichtlich ihres Einflusses auf den Gesamtaufbau zu bewerten.

Um Aussagen über die mechanisch sinnvolle Auslegung der einzelnen Komponenten treffen zu können, wurden im ersten Teil dieser Arbeit der Einfluss der Anpressdruckverteilung auf die Funktionalität der einzelnen Komponenten untersucht. Explizit wurden hierbei das Dichtungssystem in Form von Flachdichtungen und die porösen Materialien zur elektrischen Kontaktierung des Katalysators auf der aktiven Zellfläche, sowie die Verspannung der gesamten Zelle durch die Endplatten experimentell untersucht. Die gemessenen, mechanischen Einflüsse der Bauteile wurden ebenfalls mithilfe des neuartigen, FEM-Modells bestätigt und um parametrische Studien weiterer konstruktiver Einflüsse der einzelnen Zellbauteile auf das mechanische Verhalten erweitert. Weiterhin wurde mithilfe eines mechanischen Modells zur gezielten Simulation des mechanischen Verhaltens von Endplatten eines PEM-Elektrolysestacks der Einfluss des Endplattendesigns auf die mechanische Verspannung skalierter Zellflächen untersucht. Auf Basis der Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Elektrolysezellen und -stacks erfolgte die Auslegung eines neuartigen und mechanisch optimierten Stack-Designs.

Insgesamt lassen sich folgende wesentliche Ergebnisse dieser Arbeit zusammenfassen:

- Zur numerischen Untersuchung der Anpressdruckverteilung wurde ein Messsystem basierend auf drucksensitiven Folien experimentell und simulativ validiert. Quantitativ unterschätzt das Messsystem die Anpressdrücke um ca. 10% und das Messsystem beeinflusst ebenfalls die Mechanik des untersuchten Messaufbaus. Jedoch ist die hier vorgestellte Methode die qualitativ und quantitativ bestbekannte Möglichkeit, um die

Anpressdruckverteilung und somit das mechanische Verhalten von Elektrolysezellen und -stacks experimentell zu untersuchen.

- Es konnte mithilfe eines neuartigen, mechanischen Modells einer Elektrolysezelle eine realitätsnahe Abbildung des mechanischen Verhaltens einer Elektrolysezelle gezeigt werden. Derartige Modelle können in Zukunft zur mechanischen Auslegung von Elektrolyseuren dienen, wie es bereits in anderen Fachgebieten der Stand der Technik ist.
- Neben der Steigerung der Anpresskraft gibt es verschiedene konstruktive Möglichkeiten, um mit einem Flachdichtungsdesign die Dichtigkeit einer Zelle zu erhöhen: Durch eine an das Zelldesign angepasste Dichtungsform, sowie eine sinnvolle Reduktion der Dichtungsfläche kann der Anpressdruck in den relevanten Bereichen erhöht werden. Ebenfalls kann durch den Einsatz elastischer Dichtungsmaterialien die Dichtkraft erhöht werden.
- Bei der Kontaktierung der aktiven Zellfläche ergibt sich ein Optimierungsproblem zwischen einer Steigerung der elektrischen Leistung und einem zu großen Wasserstoff-Crossover. Für das, in dieser Arbeit untersuchte, Mäander-Flowfield stellte sich ein Optimum bei einer Kompression eines kathodenseitigen Kohlenstoffpapiers von ca. 30% bzw. einem Anpressdruck von ca. 1,23 MPa im Assemblierungszustand heraus. Ebenso stellte sich ein Kohlenstoffpapier gegenüber einem Kohlenstoffvlies als vorteilhaft heraus und erreichte eine gleichmäßigere Anpressdruckverteilung auf der Kanal-Steg-Struktur.
- Gleichmäßigere Anpressdruckverteilungen auf der aktiven Zellfläche können durch das Anpassen der Flowfield-Struktur erreicht werden. Mithilfe einer simulativen Untersuchung wurde in dieser Arbeit eine gleichmäßigere Verteilung des Anpressdruckes durch das Verwenden eines Streckmetall-Flowfields berechnet.
- Entscheidend für das gleichmäßige Verspannen aller Komponenten ist ebenfalls die Endplatte, welche eine ausreichende Steifheit besitzen sollte und an das mechanische Design der Elektrolysezelle oder des Elektrolysestacks angepasst sein muss. Eine zu gering ausgelegte Endplattendicke führt zu einer deutlich erhöhten Verformung der Endplatte und damit zu einer deutlich ungleichmäßigeren Druckverteilung auf dem Dichtungsbereich, was zu einem kritischen Dichtungsversagen führen kann.
- Aus den Erkenntnissen zur Endplattenverformung konnte ein neues Design einer verstellbaren Endplatte abgeleitet werden, mit dem sowohl einem Durchbiegen einer Endplatte entgegengewirkt werden kann, als auch die Anpresskraft in der Mitte eines Elektrolysestacks situativ angepasst werden kann. Hierdurch eröffnet sich die Möglichkeit, die Endplatte auf Betriebszustände wie z.B. einem Druckbetrieb einzustellen.

- Aus Erkenntnissen über die mechanischen Eigenschaften von Dichtungen, den porösen Materialien und der Flowfield-Struktur konnte basierend auf dem Konzept der verstellbaren Endplatte ein neues, mechanisch optimiertes Stack-Design mit einer aktiven Zellfläche von 100 cm² abgeleitet und fertigungstechnisch realisiert werden. Ebenfalls konnte die mechanische Funktionalität des Stack-Konzepts erfolgreich experimentell überprüft und validiert werden.

10 Literaturverzeichnis

- [1] A. Godula-Jopek, *Hydrogen Production by Electrolysis*: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2015.
- [2] M. Klell, H. Eichlseder, and A. Trattner, *Wasserstoff und Fahrzeugtechnik*: Springer, 2018.
- [3] M. Carmo, D. L. Fritz, J. Mergel, and D. Stolten, "A comprehensive review on PEM water electrolysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 12, pp. 4901–4934, 2013.
- [4] J. Töpler and J. Lehmann, *Wasserstoff und Brennstoffzelle*: Springer Vieweg, 2017.
- [5] J. Mergel, D. L. Fritz, and M. Carmo, "Stack Technology for PEM Electrolysis," in *Hydrogen Science and Engineering : Materials, Processes, Systems and Technology*, P. D. Stolten and D. B. Emonts, Eds., Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2016, pp. 331–358.
- [6] C. Liu, M. Carmo, G. Bender, A. Everwand, T. Lickert, J. L. Young, T. Smolinka, D. Stolten, and W. Lehnert, "Performance enhancement of PEM electrolyzers through iridium-coated titanium porous transport layers," *Electrochemistry Communications*, vol. 97, pp. 96–99, 2018.
- [7] S. S. Lafmejani, M. Müller, A. C. Olesen, and S. K. Kær, "Experimental and numerical study of flow in expanded metal plate for water electrolysis applications," *Journal of Power Sources*, vol. 397, pp. 334–342, 2018.
- [8] E. Borgardt, L. Giesenberger, M. Müller, K. Wippermann, W. Lehnert, and D. Stolten, "Impact of clamping pressure and stress relaxation on the performance of different polymer electrolyte membrane water electrolysis cell designs," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 44, no. 42, pp. 23556–23567, 2019.
- [9] A. Fallisch, L. Schellhase, J. Fresko, M. Zechmeister, M. Zedda, J. Ohlmann, L. Zielke, N. Paust, and T. Smolinka, "Investigation on PEM water electrolysis cell design and components for a HyCon solar hydrogen generator," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 42, no. 19, pp. 13544–13553, 2017.
- [10] T. Lickert, M. L. Kiermaier, K. Bromberger, J. Ghinaiya, S. Metz, A. Fallisch, and T. Smolinka, "On the influence of the anodic porous transport layer on PEM electrolysis performance at high current densities," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 45, no. 11, pp. 6047–6058, 2020.
- [11] S. Stiber, N. Sata, T. Morawietz, S. A. Ansar, T. Jahnke, J. K. Lee, A. Bazylak, A. Fallisch, A. S. Gago, and K. A. Friedrich, "A high-performance, durable and low-cost proton exchange membrane electrolyser with stainless steel components," *Energy Environ. Sci.*, vol. 15, no. 1, pp. 109–122, 2022.

- [12] O. F. Selamet and M. S. Ergoktas, "Effects of bolt torque and contact resistance on the performance of the polymer electrolyte membrane electrolyzers," *Journal of Power Sources*, vol. 281, pp. 103–113, 2015.
- [13] Ö. F. Selamet, M. C. Acar, M. D. Mat, and Y. Kaplan, "Effects of operating parameters on the performance of a high-pressure proton exchange membrane electrolyzer," *Int. J. Energy Res.*, vol. 37, no. 5, pp. 457–467, 2013.
- [14] Wolf Vielstich, Hubert A. Gasteiger, Ed., *Handbook of fuel cells: Fundamentals, technology and applications*. Hoboken, NJ: Wiley Interscience, 2010.
- [15] G. Gaiselmann, C. Tötze, I. Manke, W. Lehnert, and V. Schmidt, "3D microstructure modeling of compressed fiber-based materials," *Journal of Power Sources*, vol. 257, pp. 52–64, 2014.
- [16] G. Gaiselmann, D. Froning, C. Tötze, C. Quick, I. Manke, W. Lehnert, and V. Schmidt, "Stochastic 3D modeling of non-woven materials with wet-proofing agent," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 20, pp. 8448–8460, 2013.
- [17] D. Qiu, H. Janßen, L. Peng, P. Irmischer, X. Lai, and W. Lehnert, "Electrical resistance and microstructure of typical gas diffusion layers for proton exchange membrane fuel cell under compression," *Applied Energy*, vol. 231, pp. 127–137, 2018.
- [18] T. J. Mason, J. Millichamp, T. P. Neville, A. El-kharouf, B. G. Pollet, and D. J. Brett, "Effect of clamping pressure on ohmic resistance and compression of gas diffusion layers for polymer electrolyte fuel cells," *Journal of Power Sources*, vol. 219, pp. 52–59, 2012.
- [19] C. Tötze, G. Gaiselmann, M. Osenberg, J. Böhner, T. Arlt, H. Markötter, A. Hilger, F. Wieder, A. Kupsch, B. R. Müller, M. P. Hentschel, J. Banhart, V. Schmidt, W. Lehnert, and I. Manke, "Three-dimensional study of compressed gas diffusion layers using synchrotron X-ray imaging," *Journal of Power Sources*, vol. 253, pp. 123–131, 2014.
- [20] R. W. Atkinson, Y. Garsany, B. D. Gould, K. E. Swider-Lyons, and I. V. Zenyuk, "The Role of Compressive Stress on Gas Diffusion Media Morphology and Fuel Cell Performance," *ACS Appl. Energy Mater.*, vol. 1, no. 1, pp. 191–201, 2018.
- [21] P. Irmischer, "Mechanische Eigenschaften von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen," Dissertation, RWTH Aachen, Aachen, 2019.
- [22] T. J. Mason, J. Millichamp, P. R. Shearing, and D. J. Brett, "A study of the effect of compression on the performance of polymer electrolyte fuel cells using electrochemical impedance spectroscopy and dimensional change analysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 18, pp. 7414–7422, 2013.
- [23] E. Hoppe, H. Janßen, M. Müller, and W. Lehnert, "The impact of flow field plate misalignment on the gas diffusion layer intrusion and performance of a high-temperature polymer electrolyte fuel cell," *Journal of Power Sources*, vol. 501, p. 230036, 2021.

- [24] G. Gaiselmann, C. Tötze, I. Manke, W. Lehnert, and V. Schmidt, "3D microstructure modeling of compressed fiber-based materials," *Journal of Power Sources*, vol. 257, pp. 52–64, 2014.
- [25] W. R. Chang, 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*, vol. 166, no. 1, pp. 149–154, 2007.
- [26] S. A. Grigoriev, P. Millet, S. A. Volobuev, and V. N. Fateev, "Optimization of porous current collectors for PEM water electrolyzers," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, no. 11, pp. 4968–4973, 2009.
- [27] O. Panchenko, E. Borgardt, W. Zwaygardt, F. J. Hackemüller, M. Bram, N. Kardjilov, T. Arlt, I. Manke, M. Müller, D. Stolten, and W. Lehnert, "In-situ two-phase flow investigation of different porous transport layer for a polymer electrolyte membrane (PEM) electrolyzer with neutron spectroscopy," *Journal of Power Sources*, vol. 390, pp. 108–115, 2018.
- [28] P. D. Stolten and D. B. Emons, Eds., *Hydrogen Science and Engineering : Materials, Processes, Systems and Technology*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2016.
- [29] NV Bekaert SA, *Bekipor® Titanium - Specifications*. Belgien.
- [30] J. Kleemann, F. Finsterwalder, and W. Tillmetz, "Characterisation of mechanical behaviour and coupled electrical properties of polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers," *Journal of Power Sources*, vol. 190, no. 1, pp. 92–102, 2009.
- [31] E. Sadeghi, N. Djilali, and M. Bahrami, "Effective thermal conductivity and thermal contact resistance of gas diffusion layers in proton exchange membrane fuel cells. Part 1: Effect of compressive load," *Journal of Power Sources*, vol. 196, no. 1, pp. 246–254, 2011.
- [32] P. A. Gigos, Y. Faydi, and Y. Meyer, "Mechanical characterization and analytical modeling of gas diffusion layers under cyclic compression," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 40, no. 17, pp. 5958–5965, 2015.
- [33] X. Wang, J. Li, R. Hu, H. Kou, and L. Zhou, "Mechanical properties of porous titanium with different distributions of pore size," *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, vol. 23, no. 8, pp. 2317–2322, 2013.
- [34] T. Imwinkelried, "Mechanical properties of open-pore titanium foam," *Journal of biomedical materials research. Part A*, vol. 81, no. 4, pp. 964–970, 2007.
- [35] E. Borgardt, O. Panchenko, F. J. Hackemüller, J. Giffin, M. Bram, M. Müller, W. Lehnert, and D. Stolten, "Mechanical characterization and durability of sintered porous transport layers for polymer electrolyte membrane electrolysis," *Journal of Power Sources*, vol. 374, pp. 84–91, 2018.

- [36] C. J. Netwall, B. D. Gould, J. A. Rodgers, N. J. Nasello, and K. E. Swider-Lyons, "Decreasing contact resistance in proton-exchange membrane fuel cells with metal bipolar plates," *Journal of Power Sources*, vol. 227, pp. 137–144, 2013.
- [37] B. Avasarala 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*, vol. 188, no. 1, pp. 225–229, 2009.
- [38] D. Ye, E. Gauthier, J. B. Benziger, and M. Pan, "Bulk and contact resistances of gas diffusion layers in proton exchange membrane fuel cells," *Journal of Power Sources*, vol. 256, pp. 449–456, 2014.
- [39] C. Liu, K. Wippermann, M. Rasinski, Y. Suo, M. Shviro, M. Carmo, and W. Lehnert, "Constructing a Multifunctional Interface between Membrane and Porous Transport Layer for Water Electrolyzers," *ACS applied materials & interfaces*, vol. 13, no. 14, pp. 16182–16196, 2021.
- [40] V. Radhakrishnan and P. Haridoss, "Effect of cyclic compression on structure and properties of a Gas Diffusion Layer used in PEM fuel cells," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, no. 20, pp. 11107–11118, 2010.
- [41] A. C. Bhosale and R. Rengaswamy, "Interfacial contact resistance in polymer electrolyte membrane fuel cells: Recent developments and challenges," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 115, p. 109351, 2019.
- [42] S. Al Shakhshir, X. Cui, S. Frensch, and S. K. Kær, "In-situ experimental characterization of the clamping pressure effects on low temperature polymer electrolyte membrane electrolysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 42, no. 34, pp. 21597–21606, 2017.
- [43] S. H. Frensch, A. C. Olesen, S. S. Araya, and S. K. Kær, "Model-supported characterization of a PEM water electrolysis cell for the effect of compression," *Electrochimica Acta*, vol. 263, pp. 228–236, 2018.
- [44] E. Borgardt, *Mechanische Eigenschaften von katalysatorbeschichteten Membranen für die Polymer-Elektrolyt-Membran Elektrolyse.*, 2020.
- [45] M. Stähler, A. Stähler, F. Scheepers, M. Carmo, W. Lehnert, and D. Stolten, "Impact of porous transport layer compression on hydrogen permeation in PEM water electrolysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 45, no. 7, pp. 4008–4014, 2020.
- [46] M. Stähler, A. Stähler, F. Scheepers, M. Carmo, and D. Stolten, "A completely slot die coated membrane electrode assembly," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 44, no. 14, pp. 7053–7058, 2019.
- [47] S. A. Grigoriev, P. Millet, S. V. Korobtsev, V. I. Porembskiy, M. Pepic, C. Etievant, C. Puyenchet, and V. N. Fateev, "Hydrogen safety aspects related to high-pressure

- polymer electrolyte membrane water electrolysis," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, no. 14, pp. 5986–5991, 2009.
- [48] P. Irmischer, D. Qui, H. Janßen, W. Lehnert, and D. Stolten, "Impact of gas diffusion layer mechanics on PEM fuel cell performance," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 44, no. 41, pp. 23406–23415, 2019.
- [49] J. Kleemann, *Einflüsse der Gasdiffusionslage auf Leistungsdichte und Kosten der PEM-Brennstoffzelle*. Berlin: mbvberlin, 2012.
- [50] G. Tjarks, A. Gibelhaus, F. Lanzerath, M. Müller, A. Bardow, and D. Stolten, "Energetically-optimal PEM electrolyzer pressure in power-to-gas plants," *Applied Energy*, vol. 218, pp. 192–198, 2018, doi: 10.1016/j.apenergy.2018.02.155.
- [51] F. Scheepers, M. Stähler, A. Stähler, E. Rauls, M. Müller, M. Carmo, and W. Lehnert, "Improving the Efficiency of PEM Electrolyzers through Membrane-Specific Pressure Optimization," *Energies*, vol. 13, no. 3, p. 612, 2020.
- [52] G. Tjarks, *PEM-Elektrolyse-Systeme zur Anwendung in Power-to-Gas Anlagen*. Jülich: Forschungszentrum Jülich GmbH, Zentralbibliothek, 2017.
- [53] A. Riedl, *Handbuch Dichtungspraxis*, 4th ed.: Vulkan Verlag GmbH, 2017.
- [54] D. Bathen and C. Hummelt, *Diffuse Emissionen an Flanschverbindungen: Einfluss der Flächenpressung*, 72nd ed. Weinheim: Wiley-VCH GmbH, 2000.
- [55] *Flansche und ihre Verbindungen – Dichtungskennwerte und Prüfverfahren für die Anwendung der Regeln für die Auslegung von Flanschverbindungen mit runden Flanschen und Dichtungen*., 13555, DIN Deutsches Institut für Normung e. V.
- [56] P. Thompson and G. Lannewehr, *10 Schritte zur optimalen, auf Dauer technisch dichten Dichtverbindung*: PP PUBLICO Publications, 2014.
- [57] H. Wittel, D. Jannasch, J. Voßiek, and C. Spura, *Roloff/Matek Maschinenelemente: Normung, Berechnung, Gestaltung*, 23rd ed.: Springer Vieweg, 2017.
- [58] J. Tan, Y. J. Chao, J. W. van Zee, and W. K. Lee, "Degradation of elastomeric gasket materials in PEM fuel cells," *Materials Science and Engineering: A*, 445-446, pp. 669–675, 2007, doi: 10.1016/j.msea.2006.09.098.
- [59] R. K. Flitney, *Seals and sealing handbook*, 5th ed. Oxford, Burlington, MA: Elsevier/Butterworth-Heinemann, 2007. [Online]. Available: <http://www.engineeringvillage.com/controller/servlet/OpenURL?genre=book&isbn=9781856174619>
- [60] KLINGER GmbH, *Leckagerate von PTFE Flachdichtungen nach DIN EN 13555*. [Online]. Available: <https://gasketdata.org/en/KLINGER-GmbH/KLINGER-top-chem2000soft/detail/143/> (accessed: May 15 2022).

- [61] Kroll + Ziller GmbH & Co, *Leckagerate von G-ST-P/S FPM Flachdichtungen nach DIN EN 13555*. [Online]. Available: <https://gasketdata.org/en/Kroll-Ziller-GmbH-Co.-KG/G-ST-P-S-FPM/detail/78/> (accessed: May 15 2022).
- [62] Werner Große Bley, "Wie dicht ist dicht? oder: suchst Du noch oder misst Du schon?,"
- [63] Wolfgang Jitschin, "Genaue Messung von Durchfluss und Leckrate beliebiger Gase über einen weiten Bereich," *VIP*, vol. 20, no. 5, pp. 31–39, 2008, doi: 10.1002/vipr.200800365.
- [64] D. Qiu, P. Liang, L. Peng, P. Yi, X. Lai, and J. Ni, "Material behavior of rubber sealing for proton exchange membrane fuel cells," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 45, no. 8, pp. 5465–5473, 2020.
- [65] L. Shen, L. Xia, T. Han, H. Wu, and S. Guo, "Improvement of hardness and compression set properties of EPDM seals with alternating multilayered structure for PEM fuel cells," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, no. 48, pp. 23164–23172, 2016.
- [66] C.-W. Lin, C.-H. Chien, J. Tan, Y.-J. Chao, and J. W. van Zee, "Dynamic mechanical characteristics of five elastomeric gasket materials aged in a simulated and an accelerated PEM fuel cell environment," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 11, pp. 6756–6767, 2011.
- [67] J. Tan, Y. J. Chao, M. Yang, W.-K. Lee, and J. W. van Zee, "Chemical and mechanical stability of a Silicone gasket material exposed to PEM fuel cell environment," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 2, pp. 1846–1852, 2011.
- [68] D. Ye and Z.-G. Zhan, "A review on the sealing structures of membrane electrode assembly of proton exchange membrane fuel cells," *Journal of Power Sources*, vol. 231, pp. 285–292, 2013.
- [69] R. Moreno Soriano, N. Rojas, E. Nieto, R. de Guadalupe González-Huerta, and J. M. Sandoval-Pineda, "Influence of the gasket materials on the clamping pressure distribution in a PEM water electrolyzer: Bolt torques and operation mode in pre-conditioning," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 46, no. 51, pp. 25944–25953, 2021.
- [70] P. Liang, D. Qiu, L. Peng, P. Yi, X. Lai, and J. Ni, "Structure failure of the sealing in the assembly process for proton exchange membrane fuel cells," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 42, no. 15, pp. 10217–10227, 2017.
- [71] D. Qiu, L. Peng, P. Liang, P. Yi, and X. Lai, "Mechanical degradation of proton exchange membrane along the MEA frame in proton exchange membrane fuel cells," *Energy*, vol. 165, pp. 210–222, 2018.

- [72] M. Habibnia, M. Shakeri, and S. Nourouzi, "Determination of the effective parameters on the fuel cell efficiency, based on sealing behavior of the system," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, no. 40, pp. 18147–18156, 2016.
- [73] M. Sterner and I. Stadler, *Energiespeicher - Bedarf, Technologien, Integration*. Berlin: Springer Berlin Heidelberg, 2017.
- [74] J. Evertz, "'Zum Kopfnicken werden wir nicht engagiert'." Zürich, 2007.
- [75] M. Jo, H.-S. Cho, and Y. Na, "Comparative Analysis of Circular and Square End Plates for a Highly Pressurized Proton Exchange Membrane Water Electrolysis Stack," *Applied Sciences*, vol. 10, no. 18, p. 6315, 2020.
- [76] E. Alizadeh, M. M. Barzegari, M. Momenifar, M. Ghadimi, and S. Saadat, "Investigation of contact pressure distribution over the active area of PEM fuel cell stack," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, no. 4, pp. 3062–3071, 2016.
- [77] M. D. Ruge, *Entwicklung eines flüssigkeitsgekühlten PEMFC-Stacks mit einer Leistung von 6,5kW*.
- [78] J. Millichamp, T. J. Mason, T. P. Neville, N. Rajalakshmi, R. Jervis, P. R. Shearing, and D. J. Brett, "Mechanisms and effects of mechanical compression and dimensional change in polymer electrolyte fuel cells – A review," *Journal of Power Sources*, vol. 284, pp. 305–320, 2015.
- [79] D. Qiu, L. Peng, P. Yi, W. Lehnert, and X. Lai, "Review on proton exchange membrane fuel cell stack assembly: Quality evaluation, assembly method, contact behavior and process design," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 152, p. 111660, 2021.
- [80] E. Alizadeh, M. Ghadimi, M. M. Barzegari, M. Momenifar, and S. Saadat, "Development of contact pressure distribution of PEM fuel cell's MEA using novel clamping mechanism," *Energy*, vol. 131, pp. 92–97, 2017.
- [81] R. Montanini, G. Squadrito, and G. Giaccoppo, "Measurement of the clamping pressure distribution in polymer electrolyte fuel cells using piezoresistive sensor arrays and digital image correlation techniques," *Journal of Power Sources*, vol. 196, no. 20, pp. 8484–8493, 2011.
- [82] M. Habibnia, M. Shirkhani, and P. G. Tamami, "Optimization of proton exchange membrane fuel cell's end plates," *SN Appl. Sci.*, vol. 2, no. 8, 2020.
- [83] M. Merkel and A. Öchsner, *Eindimensionale Finite Elemente: Ein Einstieg in die Methode*, 3rd ed. Berlin: Springer Vieweg, 2020.
- [84] M. Wagner, *Lineare und nichtlineare FEM*: Springer Vieweg, 2019.
- [85] L. Nasdala, *FEM-Formelsammlung Statik und Dynamik*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag, 2012.

- [86] N. Nagl, *Komplexe Kontakt- und Materialmodellierung am Beispiel einer Dichtungssimulation*. [Online]. Available: <http://nbnresolving.de/urn:nbn:de:bsz:ch1-qucosa-141636> (accessed: May 15 2022).
- [87] ANSYS, Inc., *Explicit Dynamics Analysis Guide - Hyperelasticity*. [Online]. Available: https://ansyshelp.ansys.com/account/secured?returnurl=/Views/Secured/corp/v195/exd_ag/ds_non_linear.html
- [88] P. A. García-Salaberri, M. Vera, and R. Zaera, "Nonlinear orthotropic model of the inhomogeneous assembly compression of PEM fuel cell gas diffusion layers," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 18, pp. 11856–11870, 2011.
- [89] I. Taymaz and M. Benli, "Numerical study of assembly pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell," *Energy*, vol. 35, no. 5, pp. 2134–2140, 2010, doi: 10.1016/j.energy.2010.01.032.
- [90] S. Escribano, J.-F. Blachot, J. Ethève, A. Morin, and R. Mosdale, "Characterization of PEMFCs gas diffusion layers properties," *Journal of Power Sources*, vol. 156, no. 1, pp. 8–13, 2006.
- [91] T. Matsuura, M. Kato, and M. Hori, "Study on metallic bipolar plate for proton exchange membrane fuel cell," *Journal of Power Sources*, vol. 161, no. 1, pp. 74–78, 2006.
- [92] P. Yi, L. Peng, X. Lai, and J. Ni, "A Numerical Model for Predicting Gas Diffusion Layer Failure in Proton Exchange Membrane Fuel Cells," *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, vol. 8, no. 1, 2011.
- [93] V. Norouzifard and M. Bahrami, "Deformation of PEM fuel cell gas diffusion layers under compressive loading: An analytical approach," *Journal of Power Sources*, vol. 264, pp. 92–99, 2014.
- [94] Z. Zhang, P. He, Y.-J. Dai, P.-H. Jin, and W.-Q. Tao, "Study of the mechanical behavior of paper-type GDL in PEMFC based on microstructure morphology," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 45, no. 53, pp. 29379–29394, 2020.
- [95] A. Bates, S. Mukherjee, S. Hwang, S. C. Lee, O. Kwon, G. H. Choi, and S. Park, "Simulation and experimental analysis of the clamping pressure distribution in a PEM fuel cell stack," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, no. 15, pp. 6481–6493, 2013.
- [96] S.-J. Lee, C.-D. Hsu, and C.-H. Huang, "Analyses of the fuel cell stack assembly pressure," *Journal of Power Sources*, vol. 145, no. 2, pp. 353–361, 2005.
- [97] D. Liu, L. Peng, and X. Lai, "Effect of dimensional error of metallic bipolar plate on the GDL pressure distribution in the PEM fuel cell," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, no. 2, pp. 990–997, 2009.

- [98] L. Zhang, Y. Liu, H. Song, S. Wang, Y. Zhou, and S. J. Hu, "Estimation of contact resistance in proton exchange membrane fuel cells," *Journal of Power Sources*, vol. 162, no. 2, pp. 1165–1171, 2006.
- [99] Uzundurukan, "Examination of compression effects on PEMFC performance by numerical and experimental analyses," *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020.
- [100] M. Mikkola, T. Tingelöf, and J. K. Ihonen, "Modelling compression pressure distribution in fuel cell stacks," *Journal of Power Sources*, vol. 193, no. 1, pp. 269–275, 2009.
- [101] C. Carral and P. Mélé, "A numerical analysis of PEMFC stack assembly through a 3D finite element model," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, no. 9, pp. 4516–4530, 2014.
- [102] J. de La Cruz, U. Cano, and T. Romero, "Simulation and in situ measurement of stress distribution in a polymer electrolyte membrane fuel cell stack," *Journal of Power Sources*, vol. 329, pp. 273–280, 2016.
- [103] G. Hu, "Finite element analysis of PEMFC assembling based on ANSYS," *Int. J. Electrochem. Sci.*, pp. 2080–2089, 2018.
- [104] I. Gatto, F. Urbani, G. Giacoppo, O. Barbera, and E. Passalacqua, "Influence of the bolt torque on PEFC performance with different gasket materials," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 20, pp. 13043–13050, 2011.
- [105] H. Kang, Z.-G. Zhan, and M. Pan, "Numerical Study on the Stress Concentration Phenomenon in the Membranes of PEMFCs in an Assembled State," *Journal of Energy Engineering*, vol. 2020.
- [106] Z. Zhou and X. Lai, "Investigation of the assembly for high-power proton exchange membrane fuel cell stacks through an efficient equivalent model," *Applied Energy*, vol. 2020.
- [107] D. Qiu, P. Yi, L. Peng, and X. Lai, "Channel Dimensional Error Effect of Stamped Bipolar Plates on the Characteristics of Gas Diffusion Layer Contact Pressure for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stacks," *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, vol. 12, no. 4, 2015.
- [108] Fujifilm Holdings K. K., *Druckmessfolie PRESCALE Produktübersicht*. Japan.
- [109] CMV hoven GmhH, *Tekscan industrial sensor catalog*.
- [110] S.-Z. Yuan, C. Song, H. Wang, and J. Zhang, *Electrochemical impedance spectroscopy in PEM fuel cells: fundamentals and applications*.: Springer Science & Business Media, 2009.
- [111] X. Yuan, H. Wang, J. Sun, and J. Zhang, "AC impedance technique in PEM fuel cell diagnosis—A review.," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 2007.

- [112] J. Bonet and R. D. Wood, *Nonlinear Continuum Mechanics for Finite Element Analysis.*, 1997.
- [113] H. Czichos and Habig K. H, *Tribologie-Handbuch*: Springer Vieweg, 2015.
- [114] CADFEM, *Strukturmechanische Simulation mit ANSYS Mechanical*. Deutschland.
- [115] G. Jacobs, *Maschinengestaltung Band I*.
- [116] H. Janßen, S. Holtwerth, M. Müller, D. Federmann, W. Beer, and W. Zwygardt, "Bipolarplattenanordnung, Verwendung einer Bipolarplattenanordnung und Elektrolyse- oder Brennstoffzellenstapel mit einer Vielzahl von Bipolarplattenanordnungen," 102020109430.2.
- [117] Toray Industries, Inc., *Toray Carbon Fiber Paper „TGP-H“*. Japan.
- [118] Chemours, *Nafion™ N115, N117, N1110 Ion Exchange Materials*. Vereinigte Staaten.
- [119] DuPont, *Teflon™ PTFE fluoropolymer resin Properties Handbook*. Vereinigte Staaten.
- [120] ANSYS, Inc., *ANSYS Workbench Materialdatenbank*. Accessed: May 16 2022.
- [121] J. D. Ellhard, A. Duguid, and M. Heinrichs, *Research on Safety Technology Verification for Materials and Corrosions in the U.S. Outer Continental Shelf (OCS), High Pressure High Temperature (HPHT) Material Evaluation*. Vereinigte Staaten.
- [122] D. Yang, J. Ma, Q. Zhang, B. Li, P. Ming, and C. Zhang, "Accelerated Test of Silicone Rubbers Exposing to PEMFC environment," *Progress in Natural Science: Materials International*, vol. 30, no. 6, pp. 882–889, 2020.
- [123] Thyssenkrupp AG, *Titan Grade 1*. Schweiz.
- [124] P. Trinke, P. Haug, J. Brauns, B. Bensmann, R. Hanke-Rauschenbach, and T. Turek, "Hydrogen Crossover in PEM and Alkaline Water Electrolysis: Mechanisms, Direct Comparison and Mitigation Strategies," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 165, no. 7, F502-F513, 2018, doi: 10.1149/2.0541807jes.
- [125] H. Janßen, S. Holtwerth, L. Ritz, and M. Müller, "Vorrichtung zur Verspannung eines Brennstoffzellenstapels oder Elektrolysezellenstapels," 102021004963.2.
- [126] *Fluidtechnik; O-Ringe; Werkstoffe, Einsatzbereich*, 3771, DIN Deutsches Institut für Normung e. V., 1984.
- [127] Y.-H. Lai, P. A. Rapaport, C. Ji, and V. Kumar, "Channel intrusion of gas diffusion media and the effect on fuel cell performance," *Journal of Power Sources*, vol. 184, no. 1, pp. 120–128, 2008.
- [128] S. Freunberger, M. Reum, J. Evertz, and F. Büchi, "Measuring the Current Distribution in PEFCs with Sub-Millimeter Resolution," *Journal of The Electrochemical Society*, 2006.

- [129] D. Qiu, L. Peng, P. Yi, and X. Lai, "A micro contact model for electrical contact resistance prediction between roughness surface and carbon fiber paper," *International Journal of Mechanical Sciences*, 124-125, pp. 37–47, 2017.
- [130] G. Jacobs, Ed., *Maschinengestaltung*, 04th ed. Aachen: Verlag-Mainz, 2016.

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Polarisationskurve (grün), die Anteile der Überspannungen an der Zellspannung und Unterteilung der Polarisationskurve in Bereiche der dominierenden Verlustmechanismen (adaptiert nach [2]).....	5
Abbildung 2: Schematischer Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle.....	7
Abbildung 3: Schematische Darstellung einer a) mäanderförmigen, b) parallelen und c) „pin-type“- Struktur von Strömungsverteilern (adaptiert nach [5]).....	8
Abbildung 4: Darstellung der dreidimensionalen Struktur des Streckmetalls und der technischen Parameter zur Beschreibung der Streckmetallstruktur: Maschenbreite, Maschenlänge, Stegbreite, Steglänge und Gesamtdicke des Streckmetalls (adaptiert nach [5]).....	9
Abbildung 5: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen a) - c) unterschiedlicher Sintertitane und d) eines Titanvlieses (adaptiert nach [28, 29]).....	11
Abbildung 6: Elektrischer Widerstand von verschiedenen porösen Materialien in Abhängigkeit des Anpressdrucks. a) Grafitpapier des Typs Toray TGP-H-60; b) Titanvlies des Typs Bekipor® ST Titanium Grade 1 der Firma Bekaert unbeschichtet und mit unterschiedlichen Iridium Beladungen (adaptiert nach [17] [39]).....	15
Abbildung 7: Zellspannungen (links) und der Wasserstoffvolumen im Sauerstoff als Funktion der Stromdichte und in Abhängigkeit von verschiedenen theor. Kompressionen des kathodenseitigen GDL-Materials (adaptiert nach [45]).....	16
Abbildung 8: Prinzipskizze des a) Krafthauptschlusses und des Kraftnebenschlusses b). Die roten Linien symbolisieren die Kraftlinien, während das blau dargestellte Bauteil die Dichtung repräsentiert (adaptiert nach [53]).....	20
Abbildung 9: Schematische Darstellung des Kapillarmodells einer Flachdichtung (adaptiert nach [53]).....	21
Abbildung 10: Abhängigkeit der erforderlichen Dichtkraft einer Flachdichtung vom Systeminnendruck (adaptiert nach [57]).....	22
Abbildung 11: Spezifische Leckageratemessungen für eine a) PTFE-Flachdichtung mit einer Dichtungsstärke von 2 mm und eine b) FKM-Flachdichtung mit einer Dichtungsstärke von 4 mm nach DIN EN 13555 für einen Betriebsdruck von 40 bar (adaptiert nach [60, 61]).....	24
Abbildung 12: Linearisierung des realen Druckverlaufs durch die Leckagerate.	25
Abbildung 13: Darstellung unterschiedlicher Dichtungskonzepte der von Ye et al. [68] definierten Typen: a) PEM-Direktdichtungsstruktur, b) MEA-ummantelte Rahmen-Dichtungsstruktur und c) rahmengestütztes Dichtungsdesign (adaptiert nach [68]).....	26
Abbildung 14: Geometrischer Aufbau eines repräsentativen, quadratischen Stack-Designs mit Beschriftung der verwendeten Komponenten.	28

Abbildung 15: Illustration einer gleichmäßigen Spannungsverteilung durch eine vorgebogene Endplatte (adaptiert nach [74]).	29
Abbildung 16: Kompressionsversuche unterschiedlicher Publikationen für Kohlenstoffpapiere TGP-H-Reihe der Firma Toray für eine einmalige Kompression (adaptiert nach [14, 21, 30, 90, 91]).	37
Abbildung 17: Porositätsfeld $f(x,y)$, GDL-Intrusion in den Kanal und Druckspannung an der Steggeometrie, ermittelt mit dem nichtlinearen, orthotropen Modell und zwei linear-isotropen Modellen für eine aufgezwungene Stegverschiebung von 60 μm (adaptiert nach [88]).	40
Abbildung 18: Darstellung einer Standardelektrolysetestzelle des Forschungszentrum Jülichs.	47
Abbildung 19: Schematisches Funktionsprinzip drucksensitive Folien (adaptiert nach [108]).	49
Abbildung 20: Mithilfe der Mapping-Software „FPD-8010E“ der Firma Fujifilm ausgewertete Druckverteilung und die beispielhafte Darstellung der Überlagerung der Druckspektren zu einer gesamten Druckverteilung inklusive dazugehöriger Scala.	51
Abbildung 21: Darstellung des Pressure Mapping Sensor 5101 und der lokalen Realisierung der piezoresistiven Drucksensoren (adaptiert nach [109]).	52
Abbildung 22: Messaufbau für Assemblierungsversuche in einer Presse. Links: Schematischer Aufbau der Assemblierung. Rechts: Darstellung des realen Aufbaus.	54
Abbildung 23: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zellfläche des Referenzaufbaus ausgewertet mit dem Kriterium „mit Grenzen“ und „ohne Grenzen“.	56
Abbildung 24: Konturbänder der Druckverteilungsmessung des Referenzaufbaus bei unterschiedlichen Varianten des Folienstapelns: (links) Folientyp einzeln in einem separaten Messaufbau gemessen; alle drei Folientypen zusammen im Stapel gemessen (mitte) mit Stapeln der LW-Folie auf der Toray-GDL und (rechts) mit Stapeln der LLLW-Folie auf dem Toray.	57
Abbildung 25: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der in Abbildung 24 dargestellten Messdaten und den drei betrachteten Fällen zum Stapeln der Folien („mit Grenzen“).	58
Abbildung 26: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen mittels piezoresistivem Drucksensor der Firma Tekscan (links) und drucksensitiver Folien der Firma Fujifilm (rechts) gemessen im selben Zellaufbau.	61
Abbildung 27: Darstellung der Impedanz im Nyquist-Diagramm eines einfachen elektrochemischen Systems. (adaptiert nach [110]).	64
Abbildung 28: Schematischer Aufbau der Drucktests.	65
Abbildung 29: Schematische Darstellung des Höhenunterschieds im Testzellmodell (unkomprimiert, Ausgangssituation für die Simulation).	67
Abbildung 30: Explosionsansicht des geometrischen Modells.	68

Abbildung 31: Darstellung der Vernetzung des Modells mit Detailansicht auf den Bereich am Rand der aktiven Zelfläche.....	71
Abbildung 32: Randbedingungen für das Elektrolysezellmodell.....	73
Abbildung 33: Aufbau der Streckmetall-Flowfield-Platte	74
Abbildung 34: Geometrischer Aufbau des Streckmetallzellenmodells.....	75
Abbildung 35: Darstellung der Vernetzung (a)) und Randbedingungen (b)) des Streckmetallzellenmodells	76
Abbildung 36: Vereinfachter geometrischer Aufbau für das Stackmodell.....	78
Abbildung 37: Geometrischer Aufbau der Dummy-Zelle.....	79
Abbildung 38: Vernetzung des Stack-Modells mit Detailansicht auf eine Kante des Zelldummys und die Dichtung.....	80
Abbildung 39: Randbedingungen des Stackmodells.....	81
Abbildung 40: Druck-Kompressions-Kurve und der von der Kompression abhängige E-Modul [14, 21, 30, 90, 91].....	83
Abbildung 41: Kompressions-Versuch und abgeleiteter, linear-elastischer E-Modul für Titanvlies.....	86
Abbildung 42: Konturbänder der Druckverteilungsmessung des Referenzaufbaus und die flächige Differenzierung zwischen den funktionalen Bereichen der aktiven Zelfläche und des Dichtungsbereichs (gestrichelte Line).....	93
Abbildung 43: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Druckwerte auf der aktiven Zelfläche des Referenzaufbaus und Zuordnung der Messwerte zum Kanal- und Stegbereich.....	94
Abbildung 44: Druckverteilungsmessungen mittels drucksensitiver Folien für a) einen Verbund aus zwei Endplatten, b) einen Verbund aus Endplatte und Flowfield-Platte und c) den gesamten Zellaufbau des Referenzaufbaus.....	95
Abbildung 45: Zeitlicher Verlauf der Assemblierung einer Elektrolysetestzelle und einer Druckverteilungsmessung unter Verwendung von piezoresistiven Drucksensoren.....	98
Abbildung 46: Polarisationskurven für unterschiedliche theoretische Kompressionen unterschiedlicher kathodenseitiger GDL-Materialien bei einer Versuchstemperatur von 80°C, einem atmosphärischen Betriebsdruck und einer Durchflussrate von 100 ml/min. Links: Toray TGP-H-120; Rechts: Freudenberg H23.....	99
Abbildung 47: Kompressionsabhängige spezifische Widerstände bestimmt mittels Polarisationskurve und HFR.....	101
Abbildung 48: Wasserstoffvolumenanteil im Sauerstoffvolumen der Anode in Abhängigkeit von der Stromdichte und der theoretischen Kompression unterschiedlicher kathodischer GDL-Materialien. Rechts: Toray TGP-H-120; Links: Freudenberg H23.....	102

Abbildung 49: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen eines Zellaufbaus mit unterschiedlichen theoretischen Kompressionen der Toray-GDL: 1) ca. 5%; 2) ca. 20%; 3) ca. 30 %; 4) ca. 40%.....	105
Abbildung 50: Konturbänder der Anpressdruckverteilungsmessungen eines Zellaufbaus mit unterschiedlichen theoretischen Kompressionen der Freudenberg-GDL: 1) ca. 5%; 2) ca. 20%; 3) ca. 30 %; 4) ca. 40%.....	106
Abbildung 51: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Drücke auf der aktiven Zellfläche bei unterschiedlichen theoretischen Kompressionen und unterschiedlichen Materialien. Oben: Toray; Unten: Freudenberg.	107
Abbildung 52: Relative Häufigkeitsverteilung der gemessenen Drücke auf der aktiven Zellfläche für eine theoretische Kompression des Freudenberg- und des Toray-Materials.	108
Abbildung 53: Konturbänder der Druckverteilungen der verwendeten Dichtungsdesigns. a) Referenzaufbau, b) reduziertes Dichtungsdesign Nr. 1, c) reduziertes Dichtungsdesign Nr. 2.....	111
Abbildung 54: Konturbänder der Anpressdruckverteilung für unterschiedliche Dichtungssysteme. a) Dichtungssystem mit erhöhtem Drehmoment; b) Dichtungssystem mit Silikondichtung zur Realisierung eines geringeren Dichtungs-E-Moduls.	112
Abbildung 55: Zeitlicher Druckverlauf für unterschiedliche Dichtungssysteme der Elektrolysezelle.....	114
Abbildung 56: Konturbänder der Anpressdruckverteilungen resultierend aus einer Fujifilm-Messung (oben) und aus statisch-mechanischen Simulationen (unten).	117
Abbildung 57: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt von Simulationen mit Verbundkontakten und reibungsbehafteten Kontakten.....	118
Abbildung 58: Relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf dem Bereich der aktiven Zellfläche für eine Messung mittels Fujifilm und im Bereich der aktiven Zellfläche des Fujifilm-Folienstapels (Kathodenseite) von FEM-Simulationen des Zellmodells mit unterschiedlichen Kontaktdefinitionen.....	120
Abbildung 59: Oben: Darstellung des Auswertungspfads auf der simulierten Normalspannungsverteilung. Unten: Darstellung des Normalspannungsverlaufs entlang des dargestellten Auswertungspfads für die Messung und Simulationen mit unterschiedlichen Kontaktdefinitionen.....	121
Abbildung 60: Konturbänder der Anpressdruckverteilung bzw. Normalspannungsverteilung resultierend aus einer Fujifilm-Messung (oben) und anodenseitige und kathodenseitige Oberfläche des Fujifilm-Folienstapels der FEM-Simulation des Zellmodells (unten).	122
Abbildung 61: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite und der Anodenseite des Fujifilm-Folienstapels und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf dem Bereich der aktiven Zellfläche.	123

Abbildung 62:	Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung in Kompressionsrichtung (links) und der simulierten Vergleichsspannungsverteilung (van Mises) (rechts).	125
Abbildung 63:	Visualisierung des simulierten mittleren Anpressdrucks auf der aktiven Zellfläche in Abhängigkeit des E-Moduls in Kompressionsrichtung und des G-Moduls des Materialmodells der GDL.	127
Abbildung 64:	Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) bei einem konstanten G-Modul für das Materialmodell der GDL.	128
Abbildung 65:	Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) der GDL und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung der Druckwerte auf der aktiven Zellfläche.	129
Abbildung 66:	Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche G-Module der GDL und mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung auf der aktiven Zellfläche.	131
Abbildung 67:	Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für die Materialmodelle der multilinenaren, isotropen Verformung und linear-elastischer Isotropie bei unterschiedlichen E-Modulen (in Kompressionsrichtung) für die PTFE-Dichtung.	133
Abbildung 68:	Simulierter Normalspannungsverlauf entlang des in Abbildung 59 dargestellten Auswertungspfads auf dem Dichtungsbereich für unterschiedliche Dichtungsmaterialmodelle.	134
Abbildung 69:	Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (in Kompressionsrichtung) und einem konstanten G-Modul für das Materialmodell der PTL.	135
Abbildung 70:	Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite (Abbildungen links) und Anodenseite (Abbildungen rechts) des Fujifilm-Folienstapels für unterschiedliche E-Module (oben) und G-Module (unten) der PTL.	136
Abbildung 71:	Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite und der Anodenseite des Fujifilm-Folienstapels für die festgelegten Materialparameter von GDL, PTL und Dichtung, sowie mittels Fujifilm gemessene relative Häufigkeitsverteilung auf der aktiven Zellfläche.	138
Abbildung 72:	Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite des Fujifilm-Folienstapels des Fujifilm-Ersatzmodells und der MEA des MEA-Modells.	139
Abbildung 73:	Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Anodenseite (links) und der Kathodenseite (rechts) des Fujifilm-Folienstapels des Fujifilm-Ersatzmodells und der MEA des MEA-Modells.	139

Abbildung 74: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Anodenseite und der Kathodenseite der MEA des MEA-Modells.	140
Abbildung 75: dreidimensionale Darstellung der simulierten Stauchungen und Dehnungen im Kanal-Stegbereich des Zellmodells.	141
Abbildung 76: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der FFP-Seite und der MEA-Seite der GDL dargestellt mit der Fujifilm-Skala (oben) und einer linearen Skala (unten)...142	
Abbildung 77: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells.	143
Abbildung 78: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche in der Simulation aufgebrachten Gesamtkräfte F_{Ges}	145
Abbildung 79: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells mit einer verdoppelten (oben) und einer halbierten (unten) Gesamtkraft.	146
Abbildung 80: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche, in der Simulation aufgebrachte Gesamtkräfte.....	147
Abbildung 81: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche theoretische Kompressionen des GDL-Materials: 1) 5% 2) 20%; 3) 30%; 4) 40%.	148
Abbildung 82: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche theoretische Kompressionen des GDL-Materials (repräsentative Liniendiagramm-Darstellung).	149
Abbildung 83: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche kathodenseitige poröse Materialien (Toray und Bekaert) und unterschiedliche theoretische Kompressionen (0% und 5%).	151
Abbildung 84: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Flowfield-Designs: Mäanderstruktur (links) und Streckmetallstruktur (rechts).	152
Abbildung 85: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Flowfield-Designs: Mäanderstruktur und Streckmetallstruktur.....	153
Abbildung 86: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.	155

Abbildung 87: Relative Häufigkeitsverteilung der simulierten Druckwerte auf der aktiven Zellfläche der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.	156
Abbildung 88: Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) im Zellquerschnitt des MEA-Modells für unterschiedliche Dichtungsdesigns/ Dichtungsgeometrien.	157
Abbildung 89: Simulierte Verschiebung der Oberseite der Endplatten entlang der in Anhang Bild 22 dargestellten Auswertungspfade für unterschiedliche Dichtungsdesigns: a) diagonal über die Zelle; b) quer über die Zelle.	159
Abbildung 90: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Dichtungsmaterialien und einer theoretischen Kompression des GDL-Materials von 0%.	160
Abbildung 91: Simulierte Verschiebung der Oberseite der Endplatten entlang der in Anhang Bild 22 dargestellten Auswertungspfade für unterschiedliche Endplattendicken: a) diagonal über die Zelle; b) quer über die Zelle.	161
Abbildung 92: Konturbänder der simulierten Normalspannungsverteilung (in Kompressionsrichtung) auf der Kathodenseite der MEA für unterschiedliche Endplattendicken (EP).	162
Abbildung 93: Simulierte mechanische Verformung der Endplatte in Verspannungsrichtung. Oben: zweidimensionale Darstellung der Konturbänder. Unten: Verformung der Endplatte entlang des eingezeichneten Auswertungspfads.	166
Abbildung 94: Simulierte Normalspannungsverteilung in z-Richtung auf der Zelloberfläche (Monopolarplatte). Oben: Konturbänder. Unten: Normalspannung entlang des eingezeichneten Auswertungspfads.	167
Abbildung 95: Vergleichsspannungsverteilung der simulierten Endplatte. Oben: Schnittdarstellung der Endplatte und Vergleichsspannungskonturbänder. Unten: Vergleichsspannungsverlauf entlang der Schnittebene auf der Oberseite der Endplatte.	169
Abbildung 96: Einfluss der Vorspannkraft der Eckschrauben auf die maximale Durchbiegung der Endplatte.	170
Abbildung 97: Simulierte Verschiebung der Endplatte in Abhängigkeit unterschiedlicher Krafteinleitungen in die Eckschrauben. a) Diagonaler Auswertungspfad über die Endplatte nach Abbildung 93; b) Auswertungspfad quer zur Endplatte (entlang der Mitte).	171
Abbildung 98: Einfluss der Dicke einer Endplatte auf das Gewicht und die Verformung der Endplatte	172
Abbildung 99: Einfluss unterschiedlicher Schraubenkräfte auf die Normalspannungsverteilung auf der Monopolarplatte entsprechend des in Abbildung 94 dargestellten Auswertungspfads.	173
Abbildung 100: Ergebnis der Topologieoptimierung.	175
Abbildung 101: Geometrische Realisierung der „sternförmigen Endplatte“.	175

Abbildung 102: Schematische Darstellung zur Realisierung einer gebogenen Endplatte. Schraffierter Bereich: Reduziertes Material zur Realisierung der Endplatten-Vorbiegung (nicht maßstabsgetreu).	176
Abbildung 103: Geometrische Realisierung des verstellbaren Endplattendesigns.	177
Abbildung 104: Geometrischer Aufbau des neu entworfenen Stack-Designs.	181
Abbildung 105: Assemblierter Stack mit verstellbarem Endplattendesign.	183
Abbildung 106: Schematische Darstellung des Aufbaus für die Druckverteilungsuntersuchung mit drucksensitiven Folien (Fujifilm) und piezoresistivem Drucksensor (Tekscan).....	184
Abbildung 107: Konturbänder der mittels Fujifilm-Methode gemessenen Anpressdruckverteilung des Stack-Aufbaus mit einer Zelle und einem Anziehdrehmoment der äußeren Schrauben von 70 Nm. Bei a) kein Anziehen der Feingewindeschrauben; b) Anziehen der Feingewindeschrauben mit 40 Nm.....	185
Abbildung 108: Schematische Darstellung der Sensorauflagefläche im Stack-Aufbau.	186
Abbildung 109: Zeitabhängige Kraftmessung mittels Piezoresistivem Kraftsensor bei der Assemblierung des präsentierten Stack-Designs: Anziehen der äußeren Schrauben auf 70 Nm. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.	187
Abbildung 110: Momentaufnahmen der Druckverteilungen beim Anziehen der äußeren Schrauben zu den in Abbildung 109 dargestellten Zeitintervallen.	188
Abbildung 111: Zeitabhängige Kraftmessung mittels piezoresistivem Kraftsensor bei der Assemblierung des präsentierten Stack-Designs: Anziehen der Feingewindeschrauben auf 40 Nm. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.	189
Abbildung 112: Momentaufnahmen der Druckverteilungen beim Anziehen der Feingewindeschrauben zu den in Abbildung 111 dargestellten Zeitintervallen.	190
Abbildung 113: Zeitabhängiger Kraftverlauf auf dem Dichtungsbereich der in Abbildung 108 dargestellten Messung. (links) Darstellung der Messbereiche auf der Sensorfläche; (rechts) Zeitabhängige Kraftverläufe der Messbereiche.	191

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Berechnete mittlere Anpressdrücke der einzelnen Methoden zum Folienstapeln und die Abweichung von der "Einzel-Folienmessung".	59
Tabelle 2: Gemessene Probendicken der GDL-Materialien und der Dichtungen für die Versuchsreihe und die sich daraus ergebende theoretische Kompression....	62
Tabelle 3: Geometrische Abmessung der Modellgeometrien, verwendete Vernetzungsmethoden, maximale Elementgröße und gewählte Elementansatzfunktion. Abkürzungen: K: Kathode; A: Anode; aZ: Bereich der aktiven Zellfläche; D: Dichtungsbereich.	71

Tabelle 4: Dimensionen der Streckmetalle gemäß den in Abbildung 4 dargestellten Parametern.....	74
Tabelle 5: Geometrische Dimensionen des Stackmodells.	78
Tabelle 6: Darstellung der ermittelten, linearisierten E-Module für eine Kompression von 30%, den für die Messung verwendeten Probenotypen und der verwendeten Probenanzahl in der Prüfmethode.....	84
Tabelle 7: Verwendete Materialeigenschaften für das isotrope, linear-elastische Materialmodell der MEA.....	87
Tabelle 8: Materialparameter für das Yeoh-Modell dritter Ordnung zur Beschreibung des Materialverhaltens von Viton® mit einer Shore-Härte von 75A.	88
Tabelle 9: Materialparameter der restlichen Testzell- und Stack-Bauteile [120].	90
Tabelle 10: Verwendete Materialparameter für das Ersatzbauteil.	91
Tabelle 11: Mittlerer Anpressdruck und Stromdichte bei 1,75 V der betrachteten GDL-Materialien in Abhängigkeit der theoretischen Kompressionen.	100
Tabelle 12: Leckageraten der unterschiedlichen Dichtungsdesigns nach unterschiedlichen Messzeiträumen.	114
Tabelle 13: Vergleich der unterschiedlichen Endplattendesigns hinsichtlich der Durchbiegung an der Innenseite und des Gewichts.	178

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bedeutung
BPP	Bipolarplatten
bzw.	beziehungsweise
ca.	circa
CCM	catalyst coated membrane
DIN EN	deutsche Norm/ europäische Norm
E-Modul	Elastizitätsmodul
EPDM	Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk
EIS	elektrochemische Impedanzspektroskopie
engl.	Englisch
EP	Endplatten
EPDM	Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk
FEM	Finite-Elemente-Methode
FFP	engl. flowfield plate/ Flowfield-Platten
FKM/ FPM	Fluor-Kautschuk
G-Modul	Schubmodul
GDL	engl. gas diffusion layer/ Gasdiffusionslage
HFR	high frequency resistance/ Hochfrequenzwiderstände
IrO ₂	Iridiumoxid
LW	Fujifilm Prescale Folie - low pressure (Niederdruck)
LLW	Fujifilm Prescale Folie - super low pressure (Superniederdruck)
LLLW	Fujifilm Prescale Folie - ultra super low pressure (Ultrasuperniederdruck)
Max.	maximal
MEA	engl. membrane electrode assembly / Membran-Elektroden-Einheit
MPP	Monopolarplatten
NaN	engl. not a number
PEEK	Polyetheretherketon
PEM	Polymer-Elektrolyt-Membran
PET	Polyethylenterephthalat
PI	Polyimid
PSFA	engl. perfluorinated sulfonic acids
PTFE	Polytetrafluorethylen
PTL	engl. porous transport layer/ poröse Transportschicht
vgl.	vergleiche

Formelzeichen und Indizes

Lateinische Buchstaben

Zeichen	Bedeutung	Einheit
a_{H_2}	Aktivität von Wasserstoff	-
a_{O_2}	Aktivität von Sauerstoff	-
a_{H_2O}	Aktivität von Wasser	-
$c_{10,20,30}$	Materialkonstanten im Yeoh-Modell	MPa
C_σ	Elastizitätsmatrix	-
C_{ijkl}	elastische Konstanten	MPa
d_i	Inkompressibilitätsparameter im Yeoh-Modell	MPa ⁻¹
E	Elastizitätsmodul	MPa
E_N	Nernst-Spannung	V
E_{th}^0	reversible Zellspannung	V
E_{th}	Thermoneutralspannung	V
E_{Zell}	Zellspannung	V
F	Faraday-Konstante	$\frac{C}{mol}$
F_D	Dichtkraft	N
F_{DV}	Dichtkraft am kritischen Punkt	N
F'_{DV}	erforderliche Dichtkraft	N
F_V	Schraubenvorspannkraft	N
F_{Ges}	Gesamtkraft	N
ΔG_R^0	freie Reaktionsenthalpie	$\frac{kJ}{mol}$
G_{ij}	Schubmodul	MPa

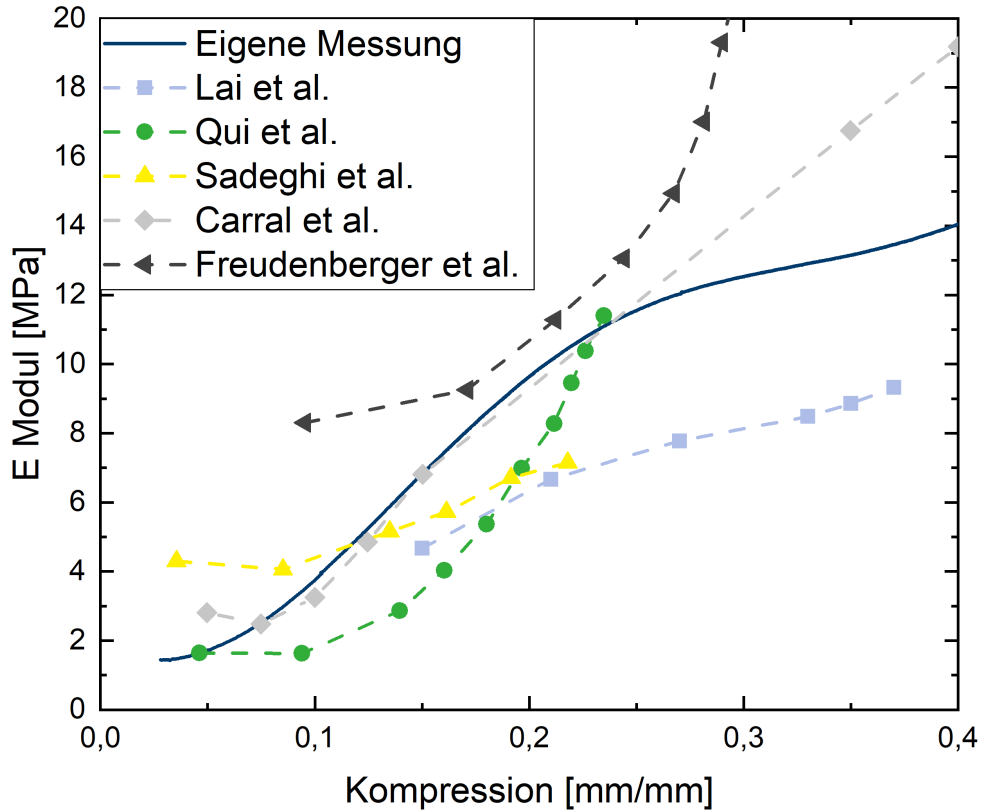
h_i	relativen Häufigkeit im Wertebereich	-
K	Kompressionsmodul im Yeoh-Modell	MPa
l	Länge der Kapillare	m
$\dot{m}$	Massenstrom	$\frac{kg}{s}$
M	molare Masse	$\frac{g}{mol}$
n_i	Anzahl Werte der Matrix M im Wertebereich	-
p_a	äußerer Druck	bar
p_{H_2}	Partialdruck von Wasserstoff	bar
p_{H_2O}	Partialdruck von Wasser	bar
p_i	innerer Druck	bar
p_{O_2}	Partialdruck von Sauerstoff	bar
Q	Leckagerate	$\left[\frac{mbar \cdot l}{s} \right]$
r	Radius der Kapillare	m
R	ideale Gaskonstante	$\frac{J}{mol \cdot K}$
T	Temperatur	K
V	Volumen	m^3
w_i	Wertebereich	-
ΔW	Schrittgröße der relativen Häufigkeit	-
z	Anzahl ausgetauschter Elektronen	-
Z	Impedanz	Ω
Z_{im}	Imaginärteil der Impedanz	Ω
Z_{Re}	Realteil der Impedanz	Ω

Griechische Buchstaben

Zeichen	Bedeutung	Einheit
γ_{ij}	Verzerrungen durch Schubspannungen	-
Δp	Druckabfall	<i>MPa</i>
Δt	Zeitdifferenz	<i>s</i>
ε	Verzerrungen durch Normalspannungen/ Dehnungen	-
η	Viskosität eines Fluids	<i>Pa · s</i>
η_{act}	Aktivierungsüberspannung	<i>V</i>
η_{ohm}	Widerstandsüberspannungen/ ohmsche Verluste	<i>V</i>
$\eta_{ohm,e}$	elektronische Widerstandüberspannung	<i>V</i>
$\eta_{ohm,m}$	protonische Widerstandüberspannung	<i>V</i>
η_{ST}	Stofftransportüberspannung	<i>V</i>
μ	Reibungszahl	-
ν	Querkontraktionszahlen	-
σ_i	Normalspannungen	<i>Pa</i>
τ_{ij}	Schubspannungen	<i>Pa</i>
ω	Frequenz	$\frac{1}{s}$

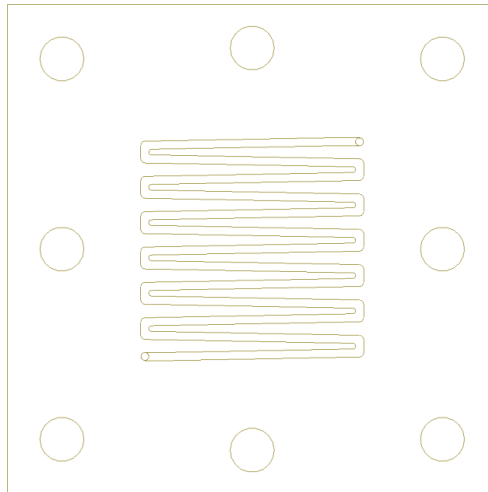
Anhang

Anhang A Weitere Materialmessungen in der Literatur



Anhang Bild 1: Darstellung weiterer in der Literatur verwendeter Kompressionsmessungen für Kohlenstoffpapiere bei Raumtemperatur [31, 101, 127–129].

Anhang B Mäander-Flowfield



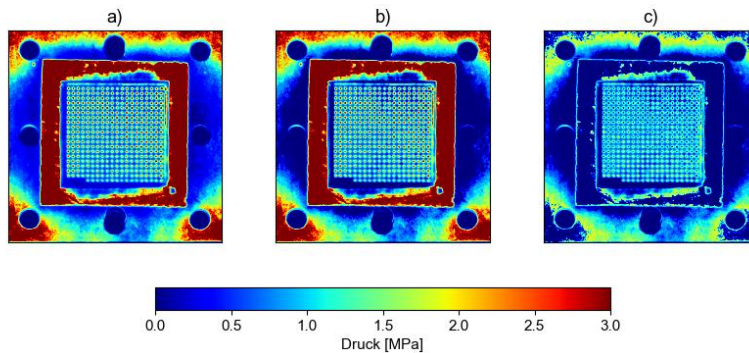
Anhang Bild 2: Draufsicht auf die Flowfield-Platte der verwendeten Elektrolysezelle mit Konturen des Flowfields.

Anhang C Berechnung der wirkenden Kraft aus Experimenten mit drucksensitiven Folien

Zur Berechnung der auf einen Bereich wirkenden Kraft mittels der Ergebnisse aus einem Experiment mit einer drucksensitiven Folie, werden die aus der Mapping-Software „FPD-8010E“ berechneten Druckwerte mittels der Programmiersprache Python zunächst eingelesen und in einer Matrix abgespeichert. Alle Druckwerte werden dabei von der Mapping-Software in N/mm^2 angegeben und können somit direkt über die bekannte Pixelgröße von 0.015625 mm^2 in eine lokal wirkende Kraft umgerechnet werden. Durch das Aufsummieren aller Kraftwerte, die sich pro Pixel ergeben, lässt sich eine gesamte Kraft ermitteln, welche durch diese Folie detektiert wurde.

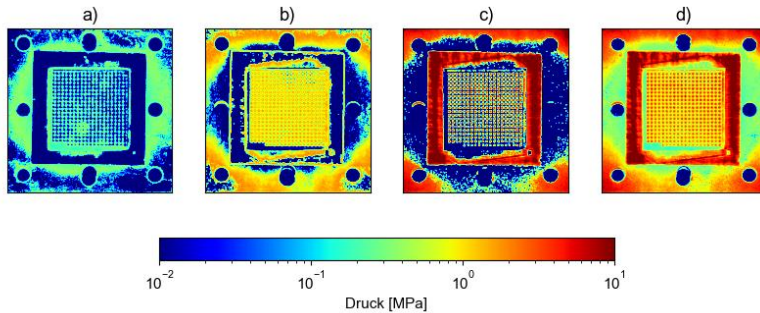
Für die Berechnung der gesamten Kraft werden drei verschiedene Folien verwendet werden, welche jeweils einen unterschiedlichen Druckbereich möglichst überlappungsfrei abdecken sollen. Dementsprechend können Druckwerte, welche von der Mapping-Software als außerhalb des zulässigen Bereichs angegebenen werden bei der Berechnung entfernt werden. Dies Annahme begründet sich dadurch, dass diese Werte bereits durch eine andere Folie, welche für den Druckwertebereich ausgelegt ist, erfasst worden sind. Die Grenzen des Druckbereichs können im Auswertungstool optional für jede Folie vorgegeben werden, sodass ein Vergleich zwischen Berechnungen mit und ohne Grenzen möglich ist. Eine Verbildlichung

des Einflusses der Verwendung von Grenzen ist in Anhang Bild 3 dargestellt. Anhang Bild 3 a) zeigt die Ergebnisse der Mapping-Software für die Folie des Typs LLW ohne jegliche Anpassungen der Werte. Es ist klar zu erkennen, dass einige Werte außerhalb des vorgesehenen Wertebereichs von 0,5 – 2,5 MPa liegen, und damit von der Folie des Typs LLLW oder des Typs LW abgedeckt werden. In b) wurden alle Werte unterhalb des Messbereiches zu null gesetzt, um keinen Einfluss auf die Berechnung der Gesamtkraft zu haben, da diese Werte bereits von der LLLW-Folie mit höherer Genauigkeit abgedeckt werden. In c) wurden zusätzlich alle Werte oberhalb von 2.5 MPa zu null gesetzt, da diese bereits von der LW-Folie abgedeckt werden.



Anhang Bild 3: Darstellung der Anpassung des Wertebereichs der Ergebnisse der Folie des Typs LLW. a) zeigt die unbearbeiteten Ergebnisse, in b) wurden alle Werte unterhalb des zulässigen Wertebereichs entfernt, in c) wurden zusätzlich alle zu hohen Druckwerte entfernt.

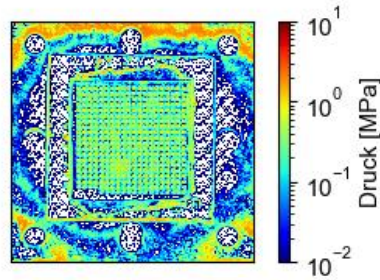
Im idealen Fall würde somit auf jedem einzelnen Pixel ausschließlich ein einziger Druckwert durch die jeweilige Folie entstehen, welche für diesen Druckbereich ausgelegt ist. Jedoch ist dies unter realen Umständen nicht immer der Fall. Daher ist es möglich, dass an einigen Stellen zwei oder mehr Werte detektiert werden, welche sich unter Umständen widersprechen. Um eine solche Überlappung von widersprüchlichen Werten zu berücksichtigen, lässt sich im Auswertungstool optional eine neue Matrix erstellen, welche sich aus den Werten der Folien des Typen LLLW, LLW und LW zusammensetzt, jedoch jeweils für jeden Punkt im Raum nur einen einzigen Wert zulässt. Zur Erstellung dieser „kombinierten“ Matrix werden die Werte der drei Folien an jedem Punkt im Raum verglichen und der größte Wert in die entstehende Matrix geschrieben.



Anhang Bild 4: Kombination der Matrizen der einzelnen Folien in eine Matrix des gesamten, wirkenden Drucks. In a) bis c) sind die unterschiedlichen Folientypen in der Reihenfolge a) LLLW, b) LLW c) LW abgebildet. In d) ist der gesamtwirkende Druck abgebildet.

Eine Verbildlichung des Kombinierens der Werte ist in Anhang Bild 4 gezeigt. In a) ist die Druckverteilung gemessen durch die Folie des Typs LLLW unter Einhaltung der Druckgrenzen abgebildet. In b) und c) sind jeweils die, durch die Folien des Typs LLW und LW gemessenen, Druckwerte abgebildet. Abschließend wird in d) die entstehende, kombinierte Matrix abgebildet.

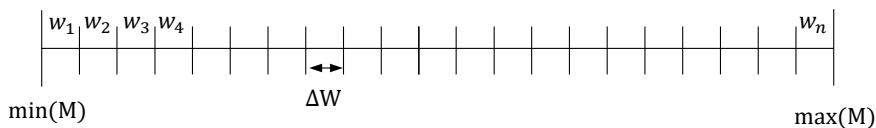
Theoretisch sollte das Kombinieren der Druckfolienwerte zu einer genaueren Auswertung der Gesamtkraft führen, da somit unphysikalische Doppelmessungen eines Punktes vermieden werden. Da es jedoch bei der Auswertung zu minimalen translatorischen Verschiebungen der Folien kommen kann, ist diese Annahme nicht allgemein gültig. Aufgrund der Verschiebungen kann es beim Scannen der Folien dazu kommen, dass der Kraftwert eine von der Realität abweichende Koordinate zugewiesen bekommt und somit möglicherweise fälschlicherweise vom Auswertungstool entfernt wird. Dementsprechend ist bei der Bestimmung des Kraftwertes Apriori nicht zu bestimmen, ob eine Verwendung von „kombinierten“ Kraftwerten oder „separaten“ Kraftwerten zu einem Ergebnis führt, das die Realität genauer abbildet. Für den in Anhang Bild 5 abgebildeten Fall ist der Unterschied zwischen den aufsummierten Werten der verschiedenen Druckfolien und der kombinierten Matrix in Anhang Bild 5 dargestellt.



Anhang Bild 5: Darstellung der Werteunterschiede für jeden Pixel zwischen der Summe aller Druckfolienwerte und der kombinierten Matrix.

Berechnung der relativen Häufigkeit

Ein weiteres Mittel, um verschiedene Druckversuche quantitativ miteinander zu vergleichen, ist die Berechnung der relativen Häufigkeit des Auftretens eines Druckwertes. Die theoretische Wahrscheinlichkeit für das Einnehmen eines bestimmten Druckwertes bei einer kontinuierlichen Druckverteilung ist stets null, da der Druckwertebereich unendlich teilbar ist, jedoch nur eine finite Anzahl an Messpunkten vorhanden ist. Daher wird für die Bestimmung von relativen Wahrscheinlichkeitswerten stets ein Werteintervall verwendet, für welches die relative Häufigkeit des Auftretens eines Wertes in diesem Werteintervall bestimmt wird. Für die Bestimmung der Wertebereiche kann eine Anzahl n an Wertebereichen $w = \{w_1, w_2, \dots, w_n\}$ vorgegeben werden, welche verwendet wird, um den gesamten Wertebereich in äquidistante Schritte der Größe ΔW einzuteilen. Dafür wird der maximale Wert $\max(M)$ und der minimale Wert $\min(M)$ der betrachteten Matrix M verwendet, um die Grenzen des gesamten Wertebereichs zu bestimmen. Die entstehende Aufteilung des Wertebereichs ist in Anhang Bild 6 verbildlicht.



Anhang Bild 6: Darstellung der Einteilung des gesamten Wertebereichs in n Wertebereiche.

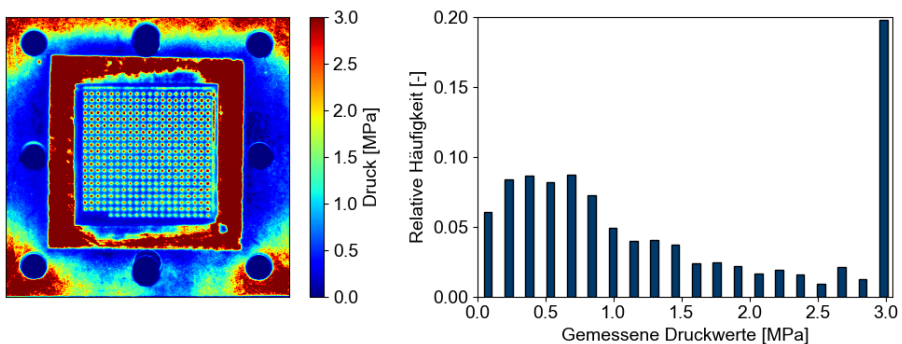
Mithilfe der Grenzen der Wertebereiche w kann die Anzahl $\#n_i$ an Werten der Matrix M , welche in den betrachteten Wertebereich w_i fallen, bestimmt werden. Wenn die Anzahl an Werten für jeden Wertebereich in w bestimmt wurde, so lässt sich die relative Häufigkeit eines bestimmten Bereiches h_i mit

$$h_i = \frac{\#n_i}{\sum_{j=1}^n \#n_j} \quad (25)$$

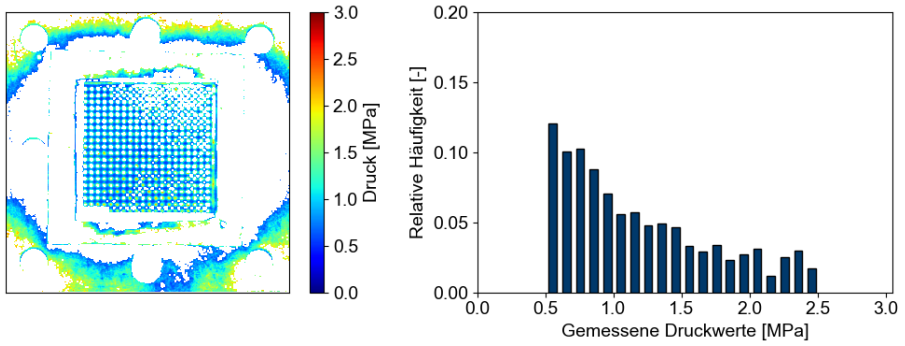
bestimmen.

Für die Berechnung der relativen Häufigkeiten wird bewusst nicht die Anzahl an Datenpunkten in der Matrix M verwendet sondern die Summe einzelner Wertebereiche, um ein Berechnen der relativen Häufigkeiten mit Ausschluss von bestimmten Bereichen, sowohl räumlichen Bereichen als auch Wertebereichen, zu ermöglichen. Durch Setzen von Werten außerhalb des gewünschten Betrachtungsbereichs auf den Wert „not a number“ oder NaN werden diese Werte bei der Bestimmung der relativen Häufigkeiten nicht mitberücksichtigt. Somit kann stets die Eigenschaft eingehalten werden, dass alle relativen Häufigkeiten aufsummiert einen Wert von 1 ergeben. Anhang Bild 7 bis Anhang Bild 10 stellen einige Beispiele für die zuvor beschriebenen Anwendungsfälle dar.

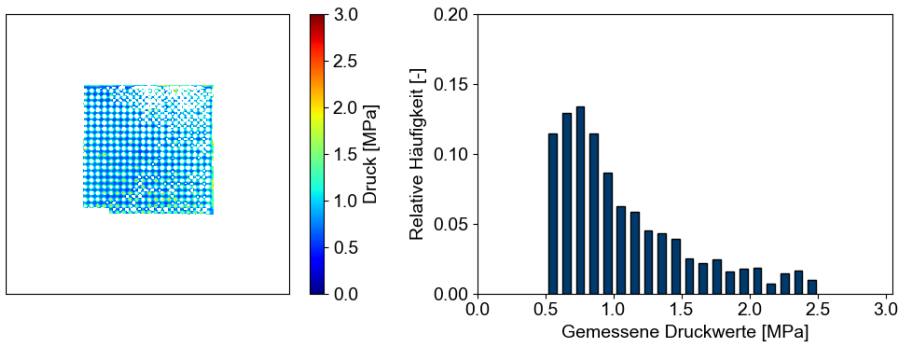
Anhang Bild 7 zeigt die Ergebnisse eines Druckfolientests mit Folien des Typs LLW ohne jegliche Nachbearbeitung der Daten und die dazugehörige Verteilung der relativen Häufigkeiten. Wie klar zu erkennen ist, gibt es viele Werte außerhalb des zulässigen Bereiches der Folie. Werte außerhalb des zulässigen Bereichs werden in einem ersten Schritt durch NaN Werte ersetzt. Dies führt zu der Druckverteilung und der zugehörigen Verteilung der relativen Häufigkeiten abgebildet in Anhang Bild 8. Weiterhin kann ebenfalls eine räumliche Aufteilung in aktive Zellfläche und Dichtungsbereich für die Untersuchungen von Interesse sein, da durch das Berechnen der relativen Häufigkeit jede Information über die räumliche Position der Datenpunkte verloren geht. Eine Aufteilung in aktive Zellfläche und Dichtungsbereich mit den jeweilig zugehörigen relativen Häufigkeiten ist in Anhang Bild 9 und Anhang Bild 10 dargestellt.



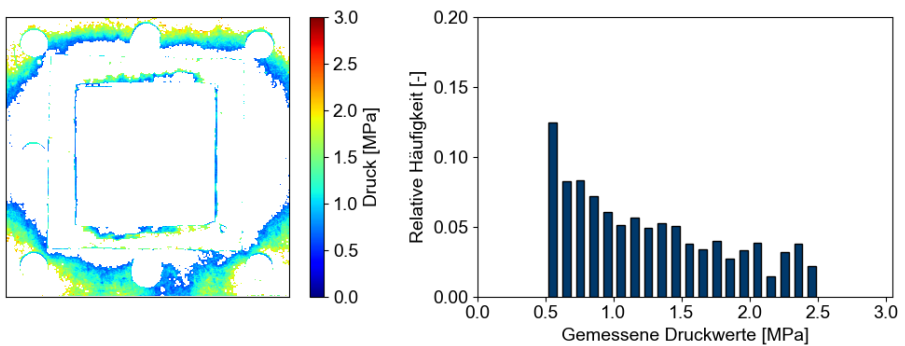
Anhang Bild 7: Ergebnis eines Druckfolientests mit einer Folie des Typs LLW ohne Nachbearbeitung und der dazugehörigen Verteilung der relativen Häufigkeiten.



Anhang Bild 8: Ergebnis eines Druckfolientests mit einer Folie des Typs LLW mit Druckgrenzen und der dazugehörigen Verteilung der relativen Häufigkeiten.

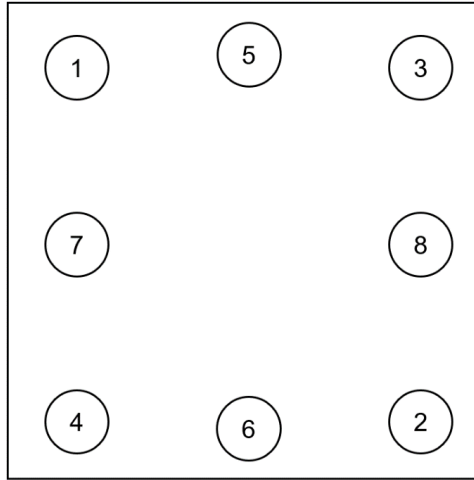


Anhang Bild 9: Ergebnis eines Druckfolientests für den aktiven Zellbereich mit einer Folie des Typs LLW mit Druckgrenzen und der dazugehörigen Verteilung der relativen Häufigkeiten.



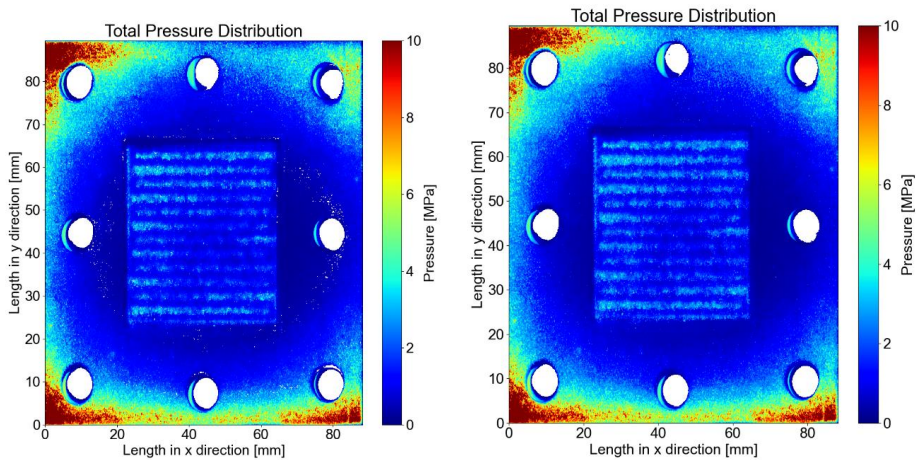
Anhang Bild 10: Ergebnis eines Druckfolientests für den Dichtungsbereich mit einer Folie des Typs LLW mit Druckgrenzen und der dazugehörigen Verteilung der relativen Häufigkeiten.

Anhang D Assemblierung des Zellaufbaus

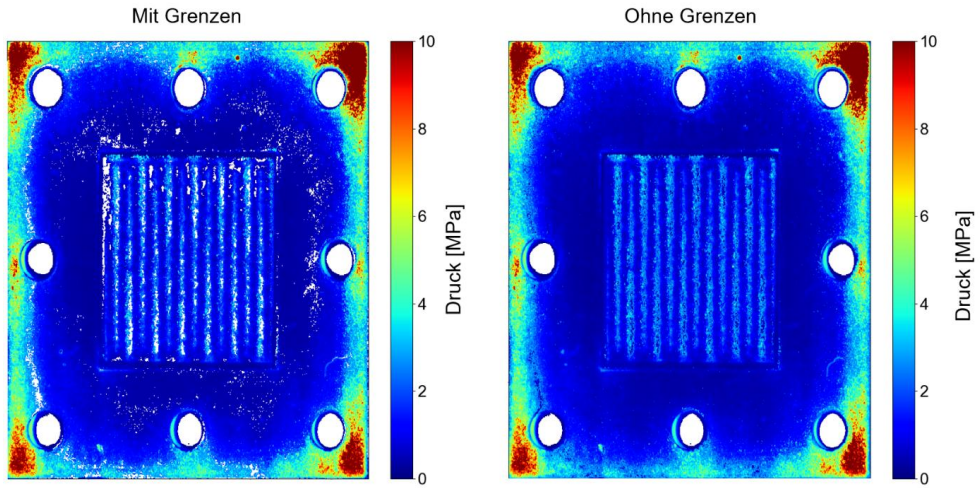


Anhang Bild 11: Reihenfolge beim Anziehen der Schrauben.

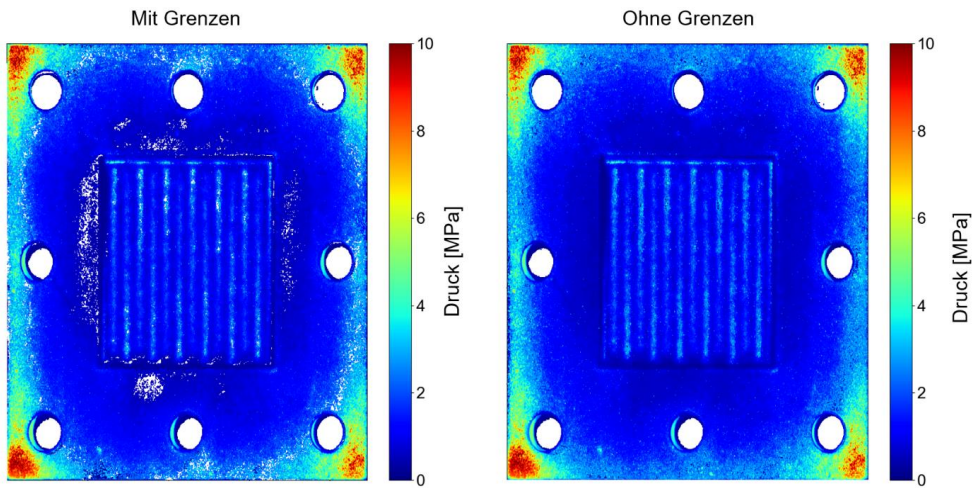
Anhang E Druckverteilungsuntersuchungen mittels Fujifilm



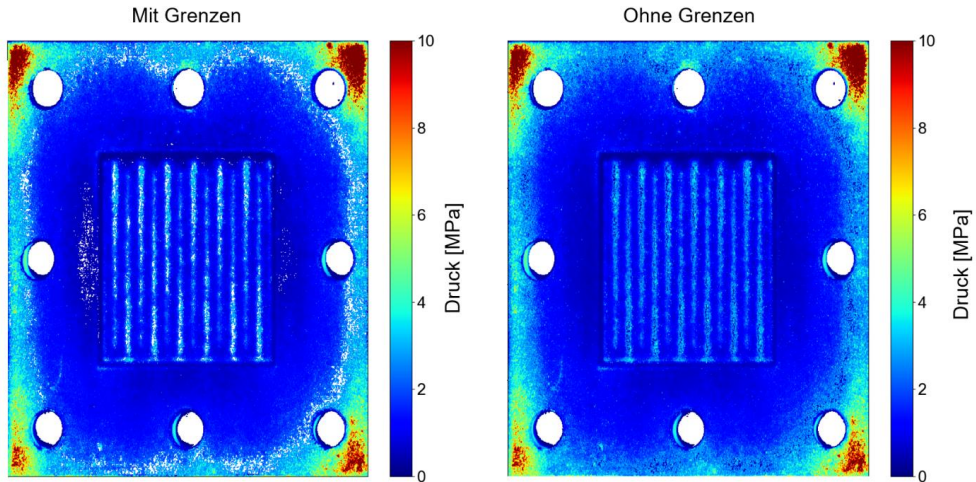
Anhang Bild 12: Druckverteilung zu den Validierungsuntersuchungen der "Fujifilm-Methode" mithilfe von Industriepressen.



Anhang Bild 13: Numerisch ausgewertete Druckverteilungen für den Fall der kombinierten Einzelmessungen („einzeln“).



Anhang Bild 14: Numerisch ausgewertete Druckverteilungen für den Fall des Stapelns der LW Folie auf dem Toray („LW auf Toray“).



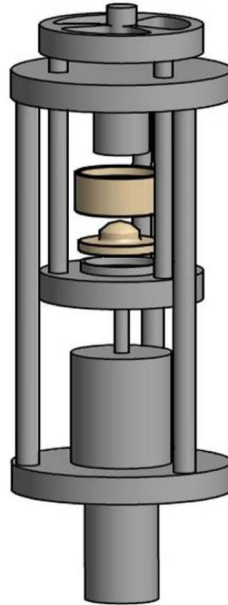
Anhang Bild 15: Numerisch ausgewertete Druckverteilungen für den Fall des Stapels der LLW Folie auf dem Toray („LLLW auf Toray“).

Anhang F Stauchungsuntersuchungen an Elektrolysematerialien

Zur Charakterisierung des kompressiblen Verhaltens der porösen Medien wurde die Universal-Materialprüfmaschine Z005TE Allround-Line der Firma ZwickRoell GmbH & Co. KG verwendet. Der verwendete Kraftmessdose Xforce-HP verfügt über eine Genauigkeit von 0,25%, was bei einem Kraftwert von 5000 N einer Abweichung von bis zu 12,5 N darstellt. Die Messung des Verformungswegs erfolgte über eine integrierte Wegmessung, deren Genauigkeit mit $\pm 1,5 \mu\text{m}$ bis zu einem Messweg von $300 \mu\text{m}$ angegeben wird. Für größere Messwege beträgt die Genauigkeit $\pm 0,5\%$ des Messweges. Der von Irmischer [21] vorgestellte Versuchsaufbau ist eine Konstruktion, welche die Zugversuchsmessung der Universal-Prüfmaschine in eine Druckmessung transferiert. Die Versuche wurden mithilfe einer Klimakammer bei 25°C und einer relativen Luftfeuchte von 50% durchgeführt. Zur Versuchsdurchführung wurde die von Irmischer [21] vorgestellte Prüfvorrichtung zur Evaluation von Spannungs-Stauchungs-Diagrammen verwendet. In dem verwendeten Aufbau können die zu prüfenden Proben zwischen zwei Stempeln eingebracht werden. Mithilfe eines „selbstausrichtenden Elements“, welches sich aus einer Halbkugel und einer Probenhalterung, die beide aus Keramik bestehen, zusammensetzt, wird eine gleichmäßige Kraftaufbringung auf die Proben gewährleistet.

Zur Versuchsdurchführung der Kompressionstests wurden zylinderförmige Proben mit einem Durchmesser von 23 mm verwendet und in einem Stapel von fünf Proben in den Messaufbau eingebracht. Zur Ermittlung der Ausgangsdicke des jeweiligen Probenstapels, wurden die

mittleren Dicken der Proben durch eine fünffache Messung mittels des Dickenmessgerät „Dickenmesser D-2010“ der Firma Hans Schmidt & Co GmbH ermittelt. Die Genauigkeit des Dickenmessgeräts liegt bei $0,1\ \mu\text{m}$. Bei der Dickenmessung wird ein Druck von $160\ \text{kPa}$ auf eine Messfläche von $0,5\ \text{cm}^2$ ausgeübt.



Anhang Bild 16: Prüfvorrichtung für die Kompressionsmessungen [21].

Anhang G Druckverteilungsuntersuchungen mittels Fujifilm: Praktische Anmerkungen zur Handhabung von Fujifilm- Folien

Sowohl aus dem quantitativen als auch aus den qualitativen Ergebnissen lassen sich Fehlerstellen beim Auslösen der drucksensitiven Folie feststellen. Hier als Fehlauflösung bezeichnet, werden die Stellen, an denen sich das Druckbild entgegen den sonstigen Druckkontrolllinien verhält. So kann es zu lokalen Spannungsspitzen oder Spannungsabfällen kommen. quantitativ sind diese sehr schwer zu charakterisieren, da es sich um eine sehr geringe Anzahl an Datenpunkten handelt. Rein optisch sind solche Fehlerstellen im Bereich der Dichtungsfläche an den Rändern der Zellen und an den Durchgangslöchern für die Schrauben zu erkennen. Die hier vorliegenden Fehlerwerte an den Rändern und an den Durchgangslöchern für die Schrauben lassen sich durch den Vorbereitungsprozess der drucksensitiven Folien erklären. Dabei wird die farbgebende Folie bereits minimal ausgelöst,

sodass die hier vorliegenden Druckwerte angezeigt werden. Im Bereich der Dichtungsfläche kommt es zu den dargestellten Fehlauslösungen, da hier möglicherweise inkonsistente mechanische Beschaffenheiten oder Toleranzen in der Dicke des Dichtungsmaterials vorliegen oder Fremdpartikel wie beispielsweise Staubkörner zwischen den zu testenden Schichten gelangen. Da alle zu testenden Schichten in diesem Bereich vergleichsweise hohe E-Module besitzen, kommt es bei minimalen Höhenunterschieden zu hohen punktuellen Spannungswerten. Im Bereich der aktiven Zellfläche kommen derartige Spannungsspitzen eher selten vor, da das vergleichsweise weiche Toray-Papier einen Puffer für minimale Höhendifferenzen darstellt. Lediglich beim Überlappen des Dichtungsmaterials und der GDL oder der PTL kommt es zu einem signifikanten Höhenunterschied, der zu hohen Spannungswerten führen kann. Dementsprechend ist das betrachtete Messsystem fehleranfälliger gegenüber Fremdpartikeln und lokalen Fehlerstellen. Der korrekte Aufbau ist essentiell für ein korrektes Messergebnis. Ebenso können Inkonsistenzen in Materialien ebenfalls das Spannungsbild beeinflussen.

Da das Messsystem anfällig für lokale, temporäre Spannungsspitzen ist, muss ebenfalls der Einfluss des Assemblierungsprozesses beachtet werden. Da beim Anziehen von Schrauben die Kraft nicht gleichzeitig auf die Schrauben aufgebracht wird, kann bei einem unsymmetrischen Anziehen der Schrauben oder bei zu großen Kraftschritten bis zum Endwert des Drehmoments die drucksensitive Folie partiell an dieser Stelle einen erhöhten Kraftwert erfahren und dementsprechend auslösen. Diese Druckverteilungen stellen nicht die reale Druckverteilung im assemblierten Zustand dar.

Anhang H Zusätzliche Informationen zur Kontaktdefinition

Als Algorithmus zur Kontaktmodellierung wird das Augmented-Lagrange-Verfahren [84] mit symmetrischer Kontaktdetektion verwendet. Der Pinnball-Bereich für die Kontaktstellensuche wird mit 1 mm zur sicheren Seite abgeschätzt, da der Abstand zwischen der FFP und Dichtung beim Grundmodell mit 0,1 mm deutlich darunter liegt. Da die Dicke der Bauteile sehr unterschiedlich ist, wird eine hohe Kontaktsteifigkeit verwendet. Die Kontaktsteifigkeit wird mit einem Skalierungsfaktor von 10 eingestellt und nach jeder Iteration des Newton-Raphson-Verfahrens angepasst. Ebenso wird der Dämpfungsfaktor der Stabilisierung auf 10 eingestellt. Durch diese Einstellung wird die Durchdringung an den Kontaktstellen reduziert.

Zusätzlich wird der Elementtyp als Hexaeder in den dünnen Bauteilen (GDL, PTL, Dichtungen und MEA/Fujifilm-Folien) durch die Elementansatzfunktion „Quadratisch“ als SOLID186 eingestellt. Die Anzahl der Elementknoten eines SOLID186-Elementes beträgt 20 und steigert die Steifigkeit der Bauteile [114]. Zur Steigerung der Effizienz (Rechenzeit und Verringerung des Arbeitsspeicherbedarfs) wird die Trimmfunktion an den Kontaktflächen zwischen den

Schraubendummys und Endplatten sowie zwischen der Flowfield-Platte und den porösen Materialien verwendet. Die Trimmfunktion reduziert innerhalb einer vorgegebenen Toleranz die ausgewählten Oberflächen der Bauteile auf die zu Beginn vorliegenden Berührungsflächen, wodurch die Anzahl der als Kontaktelemente definierten Elemente abnimmt.

Anhang I Berechnung von Schraubenkräften [130]

Aus der Differenz von Montagekraft F_M und Setzverlusten F_Z lässt sich die Vorspannkraft einer Schraube berechnen

$$F_V = F_M - F_Z \quad (26)$$

Hierbei hängen sowohl die Montagekraft als auch Setzverluste von der Geometrie der Schraube oder der Gewindestange ab.

$$F_M = \frac{T}{\frac{d_2}{2} \tan(\alpha + \rho') + \mu r_k} \quad (27)$$

$$F_Z = \frac{f_z}{\delta_s + \delta_p} \quad (28)$$

Die benötigten Parameter lassen sich hier aus den entsprechenden Schraubennormen wie der DIN 931 entnehmen.

Mithilfe der Reibungszahl μ und dem Flankenwinkel β ergibt sich der Reibungswinkel ρ'

$$\rho' = \arctan\left(\frac{\mu}{\cos\left(\frac{\beta}{2}\right)}\right) \quad (29)$$

Der Reibradius kann mithilfe des Kopfdurchmessers d_a und des Bohrungsdurchmessers d_i entsprechend

$$r_k = \frac{d_a + d_i}{4} \quad (30)$$

ermittelt werden.

Die Setzverluste lassen sich mit den folgenden Gleichungen beschreiben:

$$f_Z = \sum f_{Zi} \quad (31)$$

$$\delta_i = \frac{1}{c_{p,i}} = \frac{l_i}{E_i A_i} \quad (32)$$

$$\delta_S = \delta_K + \delta_{Gew} + \delta_M \quad (33)$$

$$\delta_P = \sum \delta_{P,i} \quad (34)$$

$$A_{ers} = \frac{\pi}{4} (d_k^2 - d_i^2) + \frac{\pi}{8} \left(\frac{D_A}{d_K} - 1 \right) \left(\frac{d_K l}{5} + \frac{l^2}{100} \right) \quad (35)$$

Anhang J Änderungen für das FKM-Modell

Durch das Verringern der Steifigkeit der Dichtungen und das Herabsetzen der Skalierungsfaktoren der Kontaktsteifigkeit an den Grenzflächen der Dichtungen auf einen Wert von zwei wird das Konvergenzverhalten des Modells verbessert. Zusätzlich wird der Kontakterkennungsalgorithmus an den Dichtungskontakten auf das Pure-Penalty-Verfahren eingestellt. Durch die Umstellung der Elementansatzfunktion von quadratisch auf linear werden die Knotenzahlen pro Element verringert und die Dichtungen mit SOLID185 Elementen vernetzt.

Anhang K Berechnung der Materialersatzmodelle für den Zelldummy

Zur Berechnung des Materialverhaltens des Zelldummys wurden folgende Gleichungen angewendet:

$$\sigma_{ges} = \sigma_1 = \sigma_2 = \sigma_3 = \sigma_i \quad (36)$$

$$\Delta l_i = \frac{\sigma_i}{E_i} \cdot l_i \quad (37)$$

$$\varepsilon_{ges} = \frac{\Delta l_{ges}}{l_{ges}} = \frac{\Delta l_1 + \Delta l_2 + \Delta l_3}{l_1 + l_2 + l_3} \quad (38)$$

$$E_{Ersatz} = \frac{\sigma_{ges}}{\varepsilon_{ges}} \quad (39)$$

$$E_{Ersatz} = \sigma_{ges} \cdot \frac{l_1 + l_2 + l_3}{\frac{\sigma_1}{E_1} \cdot l_1 + \frac{\sigma_2}{E_2} \cdot l_2 + \frac{\sigma_3}{E_3} \cdot l_3} = \frac{l_{ges}}{\frac{l_1}{E_1} + \frac{l_2}{E_2} + \frac{l_3}{E_3}} \quad (40)$$

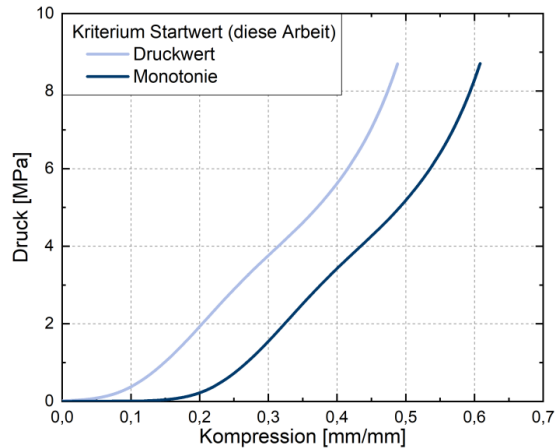
$$v_{ges} = \frac{\sum l_i \cdot v_i}{l_{ges}} \quad (41)$$

Anhang L Ergebnisse der Werkstoffcharakterisierung von porösen Materialien

Bei der Materialprüfung ist neben dem homogenen Kraftauftrag die Detektion des Messbeginns entscheidend. Sowohl bei den in der Literatur durchgeführten Messungen als auch bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Materialprüfungen der porösen Materialien, wurde ein variabler Weg gegenüber der detektierten Kraft gemessen. Sobald die Kraftmessdosen einen streng monotonen Kraftanstieg detektieren, lässt sich dieses als Startpunkt der Kraft-Weg-Messung interpretieren. Ist bei einer derartigen Messung die Probenaufnahme nicht genau planparallel ausgerichtet, kann dies zu einer signifikanten Verfälschung der Wegmessung führen, da die Ausrichtung der Aufnahme ebenfalls als Kraftwert zu detektieren ist. Des Weiteren ist es möglich bei derartigen Messungen Randeffekte, wie das Herunterdrücken von, aus der Messebene herausragenden, Kohlenstofffasern, zu detektieren. Dementsprechend muss ein gewisser Kraftgrenzwert definiert werden, welcher als physikalisch sinnvoll erachtet wird, um den Start der realen Kraft-Weg-Messung zu detektieren. Wie in Anhang Bild 17 dargestellt, hat das gewählte Kriterium für den Startwert der Messung einen signifikanten Einfluss auf das Ergebnis. So wird die Druck-Kompressions-Messung nach Definition der beschriebenen, strengen Monotonie der Messung einem definierten Druckwert von 0,16 MPa gegenübergestellt. Die Wahl des Druckwerts basiert auf dem Wert, den das Dickenmessgerät „Dickenmesser D-2010“ der Firma Hans Schmidt & Co GmbH zur Bestimmung der Ausgangsdicke verwendet. Aus Gründen der Konsistenz wird dieses Gerät für sämtliche in dieser Arbeit durchgeführten Dickenmessungen der porösen Materialien und Dichtungen verwendet, die als Grundlage für die experimentelle Validierung des hier beschriebenen Modells dienen. Der Verlauf der dargestellten Ergebnisse für das „Kriterium Druckwert“ ist vergleichbar mit den aus der

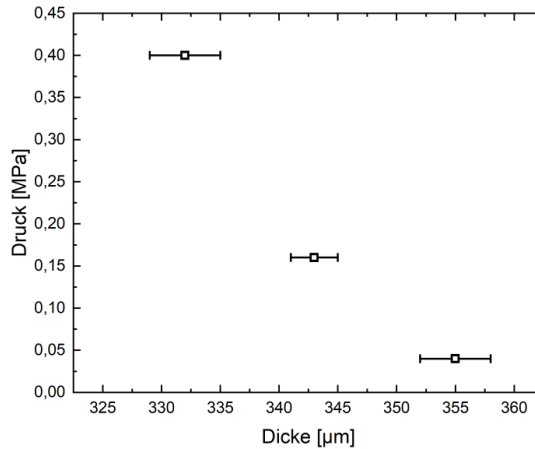
244

Literatur bekannten Druck-Kompressionskurven (vgl. Abbildung 40). Dementsprechend werden im Weiteren die Daten auf Basis des „Kriteriums Druckwert“ verwendet.



Anhang Bild 17: Druck-Kompressions-Kurven für einen Probenstapel von fünf Toray TGP-H-120 bei der Wahl unterschiedlicher Kriterien für den Startwert der Messung.

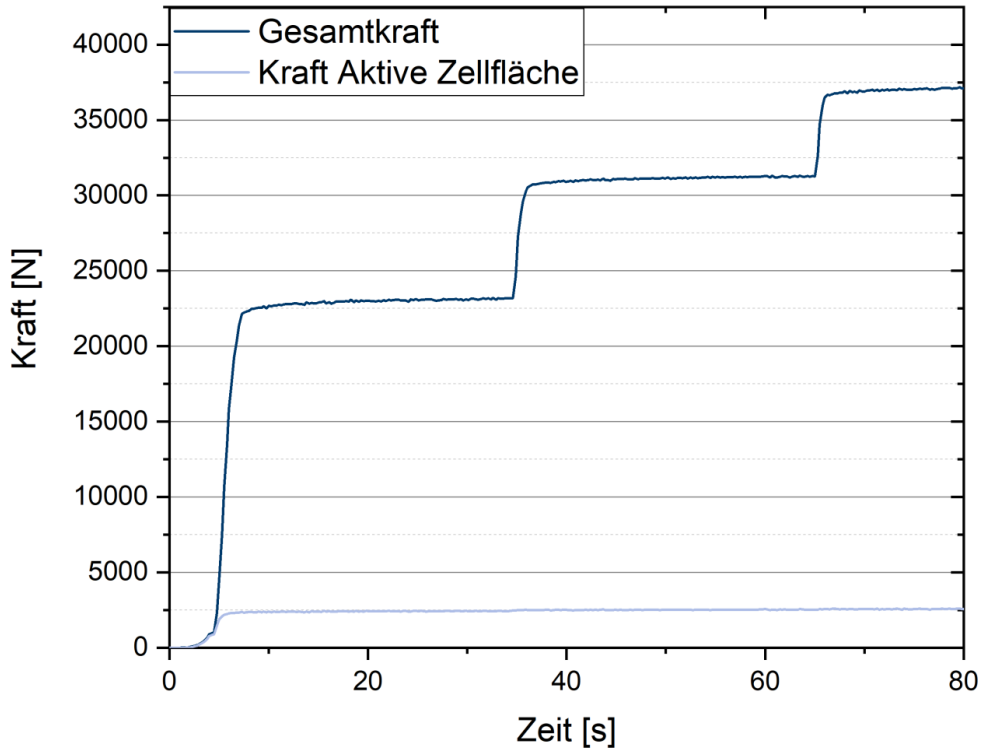
Ein weiteres Problem beim Überführen von Kraft-Weg-Messungen in Druck-Kompressions-Messungen, ist die Definition von Anfangswerten beziehungsweise die Dickenmessung der unverformten Probe. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Ausgangsdicke der Proben mit dem zuvor beschriebenen Dickenmessgerät gemessen. Wird jedoch die gleiche Probe mit unterschiedlichen Kraftwerten vermessen, so lässt sich gerade in Bereichen geringer Belastung der Probe eine starke Abhängigkeit der Probendicke von dem angewendeten Stauchungsdruck feststellen (vgl. Anhang Bild 18). Dementsprechend ist es kaum möglich die Ausgangsdicke poröser Medien bei nahezu keiner Belastung zu bestimmen. Aus diesem Grund erfolgt eine Angabe der gemessenen Dicken mit zusätzlicher Angabe des Anpressdrucks. Alle im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Dicken wurden mit einem Anpressdruck von 0,16 MPa gemessen, solange dies nicht anders angegeben wird.



Anhang Bild 18: Abhängigkeit der gemessenen Dicke eines Toray-Papiers vom Druck, welcher zur Messung aufgewendet wurde.

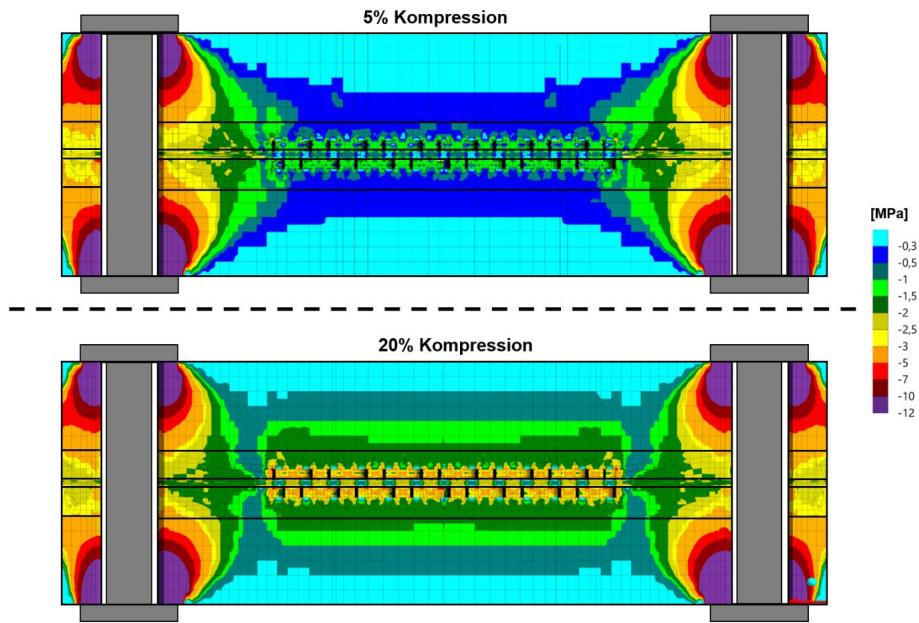
Für die Verwendung der Druck-Kompressions-Diagramme (Spannungs-Stauchungs-Diagramme) als Datengrundlage für die Finite-Elemente-Modellierung von porösen Materialien stellt dies ein Problem dar, da in derartigen Simulationen von unverformten Körpern zu Simulationsbeginn ausgegangen wird. In der Literatur wird dieses nicht weiter behandelt. Bei Kompressionsuntersuchungen werden der Kompressionsweg oder direkt die relative Kompression dargestellt, jedoch keine Referenz zur Anfangsdicke genommen. In Simulationsmodellen wird bei der Definition der Bauteilgeometrie von der nominellen Dicke eines Materials ausgegangen.

Anhang M Messung des zeitlichen Kompressionsverlaufs

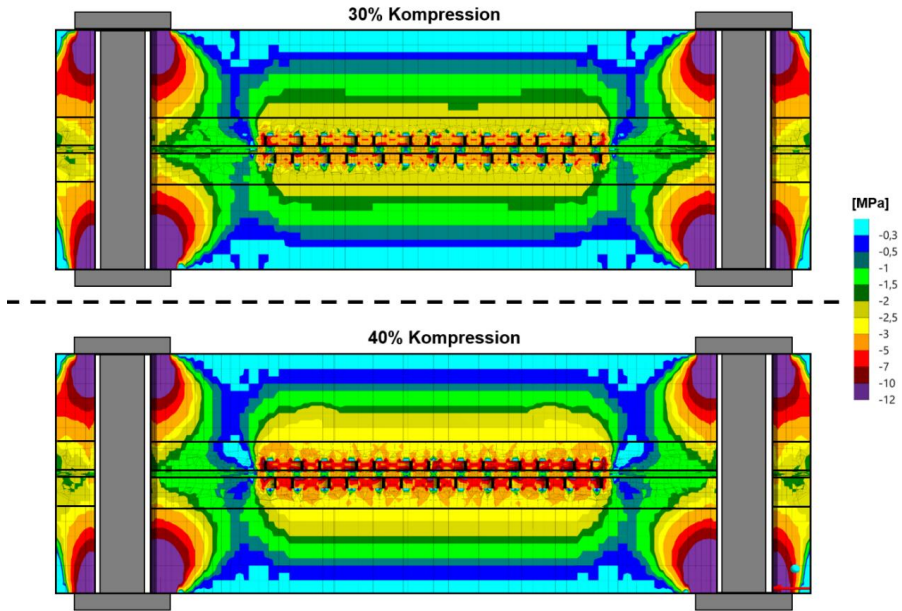


Anhang Bild 19: Zeitlicher Kraftverlauf auf der gesamten Zelloberfläche und der aktiven Zellfläche für eine weitere Steigerung der Gesamtkraft.

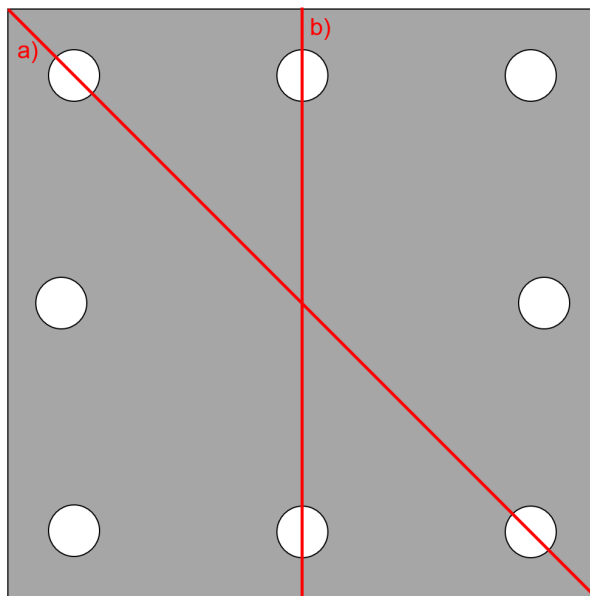
Anhang N Zusätzliche Abbildungen zu den simulierten Normalspannungsverteilungen mit dem MEA-Modell und Auswertungspfade auf den Endplatten



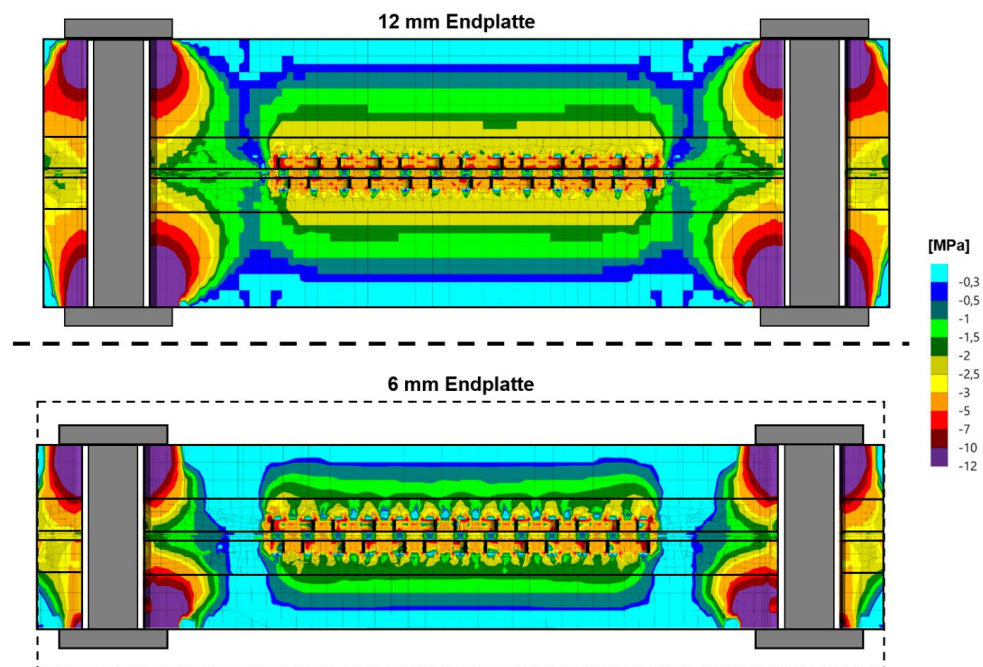
Anhang Bild 20: Simulierte Normalspannungsverteilungen im Zellquerschnitt für Modelle mit Kompression der kathodenseitigen GDL (5% und 20%).



Anhang Bild 21: Simulierte Normalspannungsverteilungen im Zellquerschnitt für Modelle mit Kompression der kathodenseitigen GDL (30% und 40%)



Anhang Bild 22: Auswertungspfade auf der Oberseite der Endplatten des Modells: a) diagonal; b) quer.



Anhang Bild 23: Simulierte Normalspannungsverteilungen im Zellquerschnitt für Modelle mit variierter Endplattendicke.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde während meiner Doktorandentätigkeit am Institut für Energie und Klimaforschung (IEK), IEK-14: Elektrochemische Verfahrenstechnik angefertigt. Hiermit würde ich mich gerne für die unterschiedlichen Hilfestellungen bedanken.

Meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr. Werner Lehnert, gilt ein großer Dank, für die Betreuung meiner Arbeit und die Unterstützung auf fachlicher Ebene. Besonders möchte ich mich für das Engagement bei der persönlichen Betreuung und der Unterstützung von mir und meinen Doktoranden-Kollegen in schwierigen Zeiten bedanken.

Bei Herrn Dr. Holger Janßen möchte ich mich besonders bedanken, der mir zu jeder Zeit sowohl fachlich als auch persönlich zur Seite stand. Ebenso möchte ich mich bei meinem Abteilungsleiter Herrn Dr. Martin Müller bedanken, der mir fachliche Freiheit für meine Forschung am Institut ermöglichte und mir ebenfalls stets mit fachlichem Rat zur Seite stand.

Für die tägliche Unterstützung bei meiner Arbeit möchte ich mich bei allen Kolleginnen und Kollegen am IEK- 14 bedanken. Hierbei gilt ein besonderer Dank Herrn Walter Zwaygardt, Frau Andrea Stähler, Herrn Richard Wegner, Herrn Michael Hehemann und Herrn Dr. Markus Stähler für die technische Unterstützung sowie die ergiebigen fachlichen Diskussionen.

Weiterhin möchte ich mich bei meinen Doktoranden-Kollegen für die Diskussionen und die gemeinsame Zeit während und abseits meiner Promotion, sowie bei meinen Masterstudenten und hierbei besonders Herrn Lukas Ritz und Herrn Kai Derzsi, die tolle Zusammen- und Zuarbeit bedanken.

Ein besonderer Dank gilt meiner Familie, meinen Freunden und meiner Freundin. So möchte ich mich bei meinen Eltern bedanken, die mich in jeder Phase meines Lebens unterstützt haben und mir meinen Lebensweg so ermöglicht haben. Ebenso möchte ich meiner Freundin dafür danken, mir während meiner Promotion immer den Rücken freigehalten zu haben. Zuletzt gilt mein größter Dank meinem Bruder dafür, dass er mir immer zur Seite stand und mich immer mit ganzem Herzen fachlich und persönlich unterstützt hat.

Band / Volume 597

Nanostructures of Transition Metal Sulfides for Anion Exchange Membrane Water Electrolysis

L. Xia (2022), 161 pp

ISBN: 978-3-95806-670-0

Band / Volume 598

Recycling- und Defossilisierungsmaßnahmen der Energieintensiven Industrie Deutschlands im Kontext von CO₂-Reduktionsstrategien

F. Kullmann (2022), XII, 237 pp

ISBN: 978-3-95806-672-4

Band / Volume 599

IEK-14 Report 2022

Research contributions for the energy transition and structural change in the Rhineland

B. Emonts (Ed.) (2022), 83 pp

ISBN: 978-3-95806-676-2

Band / Volume 600

Development of Glass-based Sealants for the Joining of Oxygen Transport Membranes

X. Li (2022), IV, 159 pp

ISBN: 978-3-95806-677-9

Band / Volume 601

High-resolution imaging of transport processes with GPR full-waveform inversion

P. Haruzi (2022), iv, 173 pp

ISBN: 978-3-95806-678-6

Band / Volume 602

Synthesis of optimized cathode materials for all-solid-state lithium batteries

C. Roitzheim (2022), xv, 221 pp

ISBN: 978-3-95806-679-3

Band / Volume 603

Development of components based on Ti₂AlC/fiber composites for aggressive environmental conditions

S. Badie (2023), x, 161 pp

ISBN: 978-3-95806-680-9

Band / Volume 604

Multiregionales Energiesystemmodell mit Fokus auf Infrastrukturen

T. M. Groß (2023), xx, 235 pp

ISBN: 978-3-95806-681-6

Band / Volume 605

Temporal Aggregation Methods for Energy System Modeling

M. A. C. Hoffmann (2023), XXVI, 341 pp

ISBN: 978-3-95806-683-0

Band / Volume 606

**Examining transport in the Upper Troposphere –
Lower Stratosphere with the infrared limb imager GLORIA**

L. Krasauskas (2023), v, 107 pp

ISBN: 978-3-95806-691-5

Band / Volume 607

**Sustainable Fabrication of Ceramic Solid Electrolytes
for Solid-State Lithium Batteries**

R. Ye (2023), vi, 119 pp

ISBN: 978-3-95806-694-6

Band / Volume 608

**Improving Nitrogen Retention in Soils Treated with Pig and Cattle Slurry
Through the Use of Organic Soil Amendments**

X. Cao (2023), XVI, 119 pp

ISBN: 978-3-95806-696-0

Band / Volume 609

**Mechanisches Verhalten von Polymer-Elektrolyt-Membran-
Elektrolysezellen und -Stacks**

S. Holtwerth (2023), x, 251 pp

ISBN: 978-3-95806-697-7

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter
<http://wwwzb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>

Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 609
ISBN 978-3-95806-697-7