



forschen.
vernetzen.
anwenden.

Innovationsreport 2018

Industrielle Gemeinschaftsforschung

IGF-Forschungsvorhaben 18436 N

"Flowmap" - Erarbeitung von Handlungsanweisungen zum Design und zur Durchströmung von PEM-Brennstoffzellen für einen effektiven Wasseraustrag

Laufzeit:

01.01.2015 – 31.03.2018

Beteiligte Forschungsstelle(n):

Zentrum für BrennstoffzellenTechnik ZBT GmbH,
Duisburg

Schlussbericht

zu IGF-Vorhaben Nr. 18436N

Thema

"Flowmap" - Erarbeitung von Handlungsanweisungen zum Design und zur Durchströmung von PEM-Brennstoffzellen für einen effektiven Wasseraustrag Thema laut Zuwendungsbescheid

Berichtszeitraum

01.01.2015 - 31.03.2018

Forschungsvereinigung

IUTA e.V.

Forschungseinrichtung(en)

Zentrum für Brennstoffzellentechnik, Carl-Benz-Str. 201, 47057 Duisburg

Duisburg, 05.07.2018

Ort, Datum

Lena Engelmeier

Name und Unterschrift aller Projektlehrerinnen und Projektleiter der
Forschungseinrichtung(en)

Gefördert durch:

Inhalt

0	Einleitung, Hintergrund und Ziele des Projekts	3
1	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	7
1.1	Versuchsaufbau	7
1.1.1	Teststand zur Untersuchung von Zweiphasenströmungen in einer ex situ Zelle	7
1.1.2	Teststand zur Untersuchung von Zweiphasenströmungen in einer in situ Zelle	9
1.2	Ergebnisse	12
1.2.1	Rauheit der Stahlkanalwände.....	12
1.2.2	Benetzungsverhalten der eingesetzten Materialien	13
1.2.3	Charakterisierung von Strömungsformen in einer durchströmten ex situ Zelle	15
1.2.4	Charakterisierung von Zellperformanz und Strömungsformen in einer in situ Zelle 24	
1.3	Zusammenfassung.....	30
2	Abgleich zwischen durchgeführten und geplanten Arbeitspaketen	31
3	Verwendung der Zuwendung	32
4	Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit	33
5	Darstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Nutzens der erzielten Ergebnisse insbesondere für KMU sowie ihres innovativen Beitrags und ihrer industriellen Anwendungsmöglichkeiten.....	34
6	Plan zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft	35
7	Durchführende Forschungsstelle.....	36
8	Förderhinweis und Danksagung	36
9	Literatur.....	37

0 Einleitung, Hintergrund und Ziele des Projekts

In Brennstoffzellen wird chemisch gebundene Energie von Brenngasen wie bspw. Wasserstoff (oder wasserstoffreichen Gasen) durch die Reaktion mit Sauerstoff in Form von Luft in elektrische Energie überführt. Je nach Aufbau und Funktion werden verschiedene Brennstoffzellentypen unterschieden. Am ZBT wird hauptsächlich die Entwicklung von Brennstoffzellen auf Basis einer Polymermembran vorangetrieben, wobei der Fokus auf der Niedertemperaturmembranbrennstoffzelle (hier: PEMFC) und der Direktmethanolbrennstoffzellen (DMFC) liegt. Die PEMFC zeichnet sich durch hohe Leistungsdichten von $> 1 \text{ W/cm}^2$ und guter Lebensdauer von einigen tausend Betriebsstunden aus (Heinzel 2011). Kernkomponente einer einzelligen PEMFC ist eine wenige Mikrometer dicke, für positiv geladene Wasserstoffionen (Protonen) permeable Polymermembran aus bspw. Nafion mit beidseitig aufgetragenen Katalysator- (Platinpartikel) und Gasdiffusionsschichten. Membran, Katalysator- und Gasdiffusionsschichten werden von zwei Bipolarplatten aus Graphit oder beschichteten Stahl mit integrierten, zur GDL ausgerichteten Strömungskanälen (Flowfield) eingerahmt (Abbildung 1). Die Strömungskanäle verteilen die Edukte Wasserstoff (Anode) und Sauerstoff bzw. Luft (Kathode) gleichmäßig auf die elektrisch leitfähigen und porösen Gasdiffusionsschichten (GDL). Die Gasdiffusionsschichten sind meist Gewebe oder Vliese aus Kohlenstofffasern und sorgen für den gleichmäßigen Transport der Edukte zur Katalysatorschicht - und für den Abtransport der Produkte zum Strömungskanal.

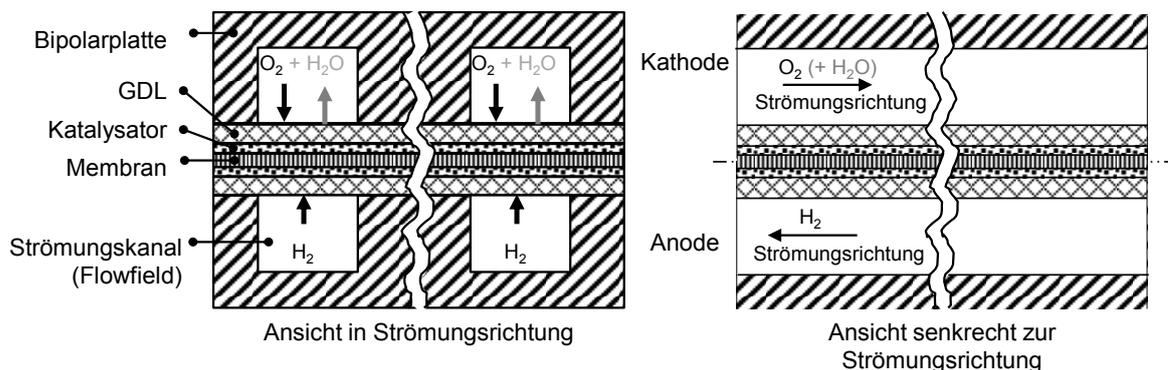


Abbildung 1: Schematischer Aufbau einer NT-PEM-Brennstoffzelle in Anlehnung an Nam & Kavaiany (2003).

An der Dreiphasengrenzfläche bestehend aus Katalysatorschicht, Polymerelektrolyt (Membran) und Gas wird Wasserstoff zu Protonen und Elektronen oxidiert. Die Protonen diffundieren durch die Membran zur Dreiphasengrenzfläche auf Kathodenseite. Die Elektronen gelangen über die GDL, die Bipolarplatte und einen Verbraucher ebenfalls zur Kathodenseite. An der Dreiphasengrenzfläche auf Kathodenseite wird Sauerstoff durch die Elektronen, die auf dem Weg Arbeit verrichtet haben, und den durch die Membran diffundierten Protonen zu Wasser reduziert. Damit das Produktwasser die Poren der eigentlich hydrophilen GDL und damit die Diffusionswege zum Reaktionsort nicht versperrt, ist das Material der GDL mit Polytetrafluorethylen (PTFE) gecoated. Durch den daraus resultierenden hydrophoben Charakter wird das Produktwasser über die GDL ins Flowfield abgeführt. In der Regel bildet sich, wie in Abbildung 2 dargestellt, an der GDL-Oberfläche zunächst ein Tropfen, der anwächst und oberhalb einer bestimmten Größe und Luftgeschwindigkeit mitgetragen wird. Nach Bazylak et al. 2008 ist die Position der Tropfenbildung bzw. des Tropfendurchbruchs in der GDL abhängig von der lokalen Porosität der GDL und kann daher schwer vorhergesagt werden.

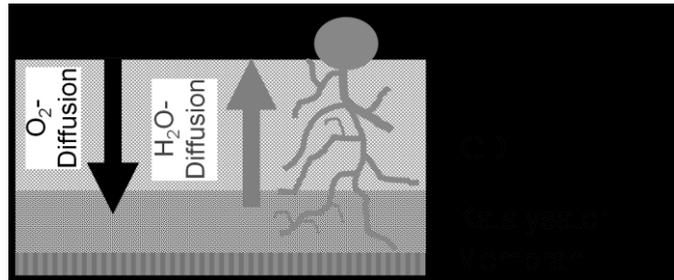


Abbildung 2: Bildung eines Wassertropfens auf der Oberfläche der GDL.

Die aufgrund der elektrochemischen Prozesse umgesetzte Stoffmenge an Wasserstoff \dot{n}_{H_2} und Sauerstoff \dot{n}_{O_2} sowie die entstehende Stoffmenge an Wasser $\dot{n}_{\text{H}_2\text{O}}$ werden mit Hilfe des Faraday'schen Gesetzes (Gl.1) berechnet. Darin ist I der Strom bzw. i die Stromdichte und A die aktive Katalysatorfläche, F die Faraday-Konstante und z die Ladungszahl. Die Ladungszahl beschreibt die Anzahl an Elektronen, die benötigt werden, um ein Mol des jeweiligen Stoffes umzusetzen. Die Ladungszahl für Wasserstoff und Wasser entspricht dem Wert $z = 2$, die für Sauerstoff dem Wert $z = 4$.

$$\dot{n} = \frac{I}{z \cdot F} \quad \text{Gl. (1)}$$

$$\dot{n}_{\text{H}_2} = \dot{n}_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{i \cdot A}{2 \cdot F}; \quad \dot{n}_{\text{O}_2} = \frac{i \cdot A}{4 \cdot F}$$

Mit bekannter Stoffmenge \dot{n} aus Gleichung (1) und dem jeweiligen Molgewicht wird mit Gleichung (2) die entsprechende Massenstromdichte \dot{m} berechnet.

$$\dot{m} = \dot{n} \cdot \tilde{M} \quad \text{Gl. (2)}$$

$$\dot{m}_{\text{H}_2} = \frac{i \cdot A}{2 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{H}_2}; \quad \dot{m}_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{i \cdot A}{2 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{H}_2\text{O}}; \quad \dot{m}_{\text{O}_2} = \frac{i \cdot A}{4 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{O}_2}$$

Da in der Regel Luft und nicht Sauerstoff als Oxidationsmittel verwendet wird, folgt der Luftmassenstrom aus Gleichung (3) mit der Sauerstoffkonzentration in Luft von $x_{\text{O}_2} = 0,2095$.

$$\dot{n}_{\text{Luft}} = \frac{1}{x_{\text{O}_2}} \cdot \frac{i \cdot A}{4 \cdot F} \quad \text{Gl. (3)}$$

$$\dot{m}_{\text{Luft}} = \frac{1}{0,21} \cdot \frac{i \cdot A}{4 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{OLuft}2}$$

Mit bekanntem Massenstrom \dot{m} , der Dichte ρ und der Kanalquerschnittsfläche A_{Kanal} wird nach Gleichung (4) bzw. (5) eine charakteristische Geschwindigkeit, die sogenannte Lehrrohrgeschwindigkeit, berechnet. In Gleichung (5) stellt λ den stöchiometrischen Faktor dar, nach welchem zusammen mit der Stromdichte i normalerweise der Produktvolumenstrom in Brennstoffzellen vorgelegt wird. Um mindestens ausreichend Brennstoff zur Verfügung zu stellen muss gelten, dass $\lambda \geq 1$. In der Praxis wird auf der Kathode ein Luftüberschuss entsprechend $\lambda = 2$ und auf der Anode ein Wasserstoffüberschuss entsprechend $\lambda = 4$ betrieben.

$$v_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{\dot{m}_{\text{H}_2\text{O}}}{\rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot A_{\text{Kanal}}} = \frac{1}{\rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot A_{\text{Kanal}}} \cdot \frac{i \cdot A}{2 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{H}_2\text{O}} \quad \text{Gl. (4)}$$

$$v_{\text{Luft}} = w \cdot \frac{\lambda}{\rho_{\text{Luft}} \cdot A_{\text{Kanal}}} \cdot \frac{i \cdot A}{4 \cdot F} \cdot \tilde{M}_{\text{Luft}} \quad \text{Gl. (5)}$$

Die durchschnittliche Spannung einer einzelnen PEM-Brennstoffzelle beträgt $U = 0,5 \text{ V}$ bis $U = 1 \text{ V}$ bei einer Stromdichte von $i = 0,6 \text{ W/cm}^2$ bis 1 W/cm^2 . Um die Spannung zu erhöhen, werden mehrere Einzeller elektrisch in Serie geschaltet, auch als Stack bezeichnet (siehe Abbildung 3).

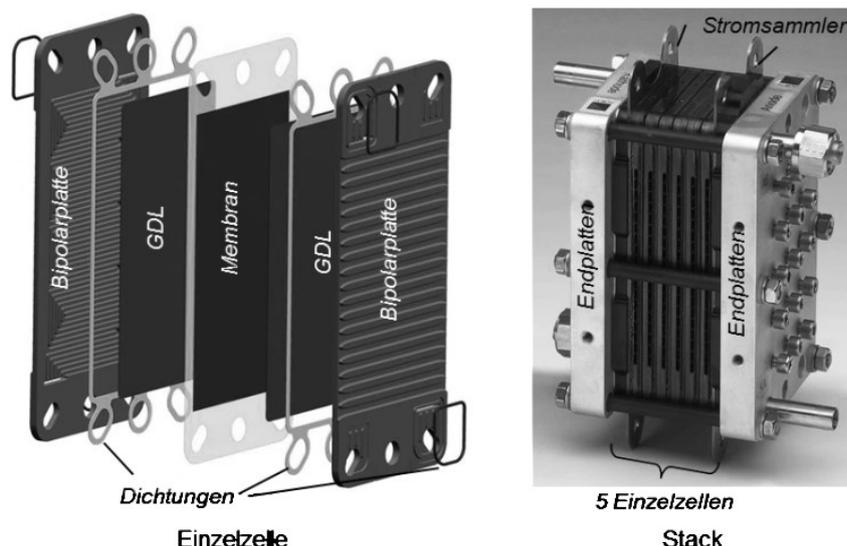


Abbildung 3: CAD-Zeichnung einer Einzelzelle (links) und Fotografie eines Stacks aus fünf Einzelzellen (rechts).

Durch das entstehende Produktwasser bilden sich in den Flowfieldkanälen Zweiphasenströmungen aus: am Eintritt liegt das strömende Fluid noch einphasig vor, die zweite Phase entsteht während des Betriebs der Zellen an der Kontaktzone zwischen Membran, Katalysator und GDL. Der Anteil der zweiten Phase nimmt im Betrieb entlang der Kanallaufänge zu. Eine umfassende rigorose Beschreibung der Transport- und Entstehungsprozesse ist bislang nicht möglich, weswegen sich u.a. Austrittsort, lokaler Massenstrom und Form der zweiten Phase nicht vorherbestimmen lassen (May et al. 2013). Im Kathoden-Flowfield der PEM-Brennstoffzelle werden je nach Betriebsparametern der Brennstoffzelle (Volumenströme, Temperatur, relative Luftfeuchte, Materialien, Kanalgröße etc.) die in Abbildung 4 dargestellten Strömungsformen beobachtet. Die abgebildeten Strömungsformen können zu erheblichen Druckschwankungen in den Kanälen und somit (bei einer parallelen Kanalführung in einer Zelle) zu einer Ungleichverteilung der Reaktanden führen. Dies gilt auch für einen Stack, da die Durchströmung der Zellen in der Regel parallel erfolgt und sich die Tropfen in dem anschließenden Kanal ansammeln und es so zu einer Ungleichverteilung über die Zellen kommt. Die Folge ist ein (temporärer) Leistungsabfall (Abbildung 5).

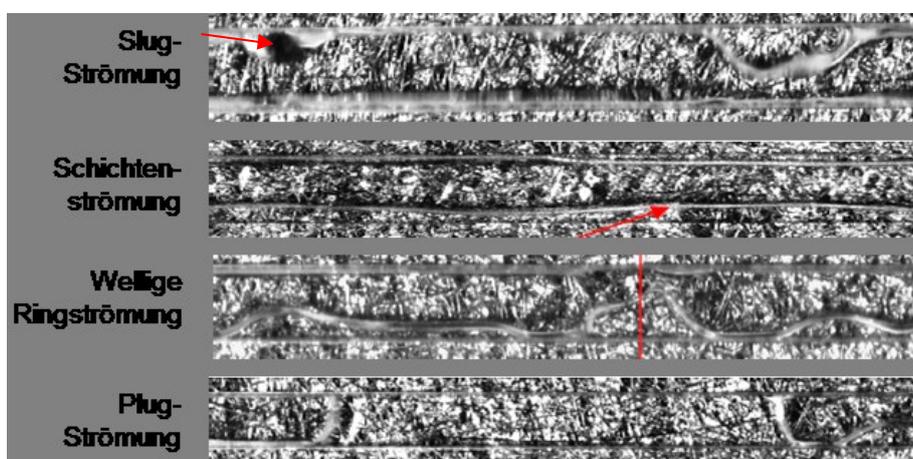


Abbildung 4: Strömungsformen im Kathodenkanal einer PEM-BZ nach Lee et al 2007.

Das Flüssigwasser behindert außerdem – sowohl im Flowfield als auch in der Katalysatorschicht und der GDL – die Diffusionswege vom Sauerstoff zur Dreiphasengrenze.

Teile der Membran können nicht mehr oder nicht vollständig mit Brennstoff versorgt werden, es folgt lokaler Spannungseinfall oder sogar ein Ausfall der BZ.

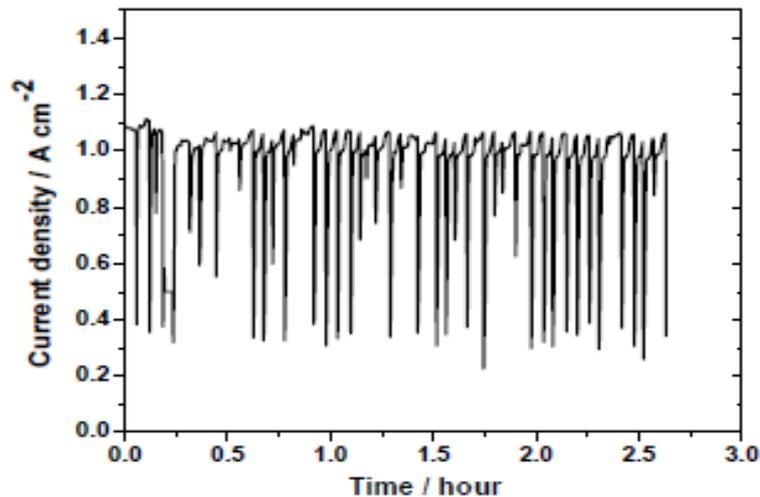


Abbildung 5: Spannungseinfall beim "flooding" nach Ji und Weil 2009.

Eine der wichtigsten Herausforderungen bei der Entwicklung der PEM-Brennstoffzelle ist ein optimales Wassermanagement: zum einem muss für gute Protonenleitfähigkeit und damit eine gute Zelleistung ein bestimmter Feuchtegehalt der Membran sichergestellt sein, zum anderen müssen Zustände eines zu feuchten Zustands („flooding“) vermieden werden. Der gezielte Abtransport von Tropfen ist also für die Stabilität und Effizienz der Systeme unerlässlich und kann bspw. über geschickte Strömungsführung oder Manipulation der Oberfläche erreicht werden. Die Zusammenhänge zwischen Betriebsbedingungen, Strömungsform und Zelleistung sind aber noch nicht vollständig bekannt und verstanden. Beispielsweise herrschen Unsicherheiten bezüglich des Einflusses von Kanalgeometrie und Benetzungseigenschaften der Kanalwandungen auf die sich einstellende Strömungsform und letztlich die Zellperformanz.

Im Rahmen des Projekts sollen diese Zusammenhänge verstanden werden, um darauf aufbauend Handlungsanweisungen oder gar ein Tool zu entwickeln, mit welchem ein Kathodenflowfield für einen optimalen Brennstoffzellenbetrieb mit geeignetem Wassermanagement entwickelt und ausgelegt werden kann. Der Lösungsvorschlag des Projekts besteht darin, ein solches „Tool“ mit Hilfe dimensionsloser Strömungskarten zu realisieren. In Strömungskarten werden charakteristische Strömungsformen anhand der jeweiligen Volumenströme oder mit Hilfe dimensionsloser Kennzahlen klassifiziert. Abbildung 6 zeigt ein Beispiel einer Strömungskarte nach Baker für Wasser und Luft. Ist die gewünschte Strömungsform bekannt, kann der erforderliche Luft- bzw. Wasservolumenstrom ermittelt werden. Andersherum kann mit bekanntem Wasser- und Luftvolumenstrom eine Vorhersage über die entsprechende Strömungsform getroffen werden. Die Idee, solche Strömungskarten auch für den Kathodenkanal der PEM-Brennstoffzelle zu nutzen, ist nicht neu. Der Nutzen für den Anwender scheitert hier aber bislang an der Inkonsistenz der Ergebnisse und den angegebenen dimensionsbehafteten Größen und fehlender Information über weitere relevante Parameter.

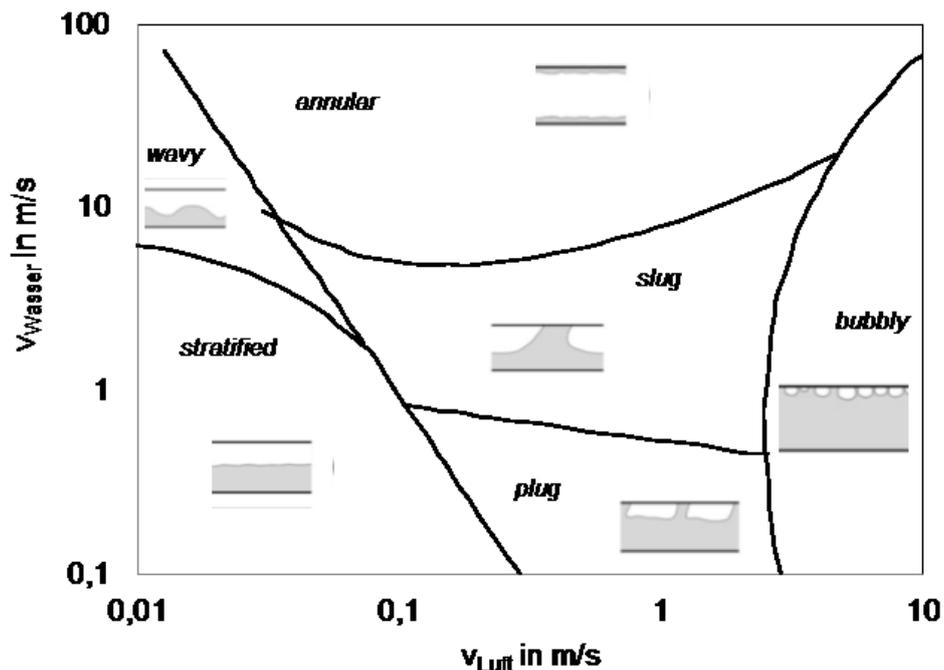


Abbildung 6: Baker-Strömungskarte für Luft und Wasser nach Beitz und Küttner 1995.

1 Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Grundlage zum Erreichen des Projektziels ist die Erstellung dimensionsloser Strömungskarten, die eine Vorhersage der Strömungsform abhängig von Kanalgeometrie, Benetzungseigenschaften und von Luft- bzw.- Wasser-Volumenstrom erlauben. Die Strömungskarten werden an einem Modell eines PEM-Brennstoffzellen-Kathodenkanals, im Folgenden ex situ Zelle genannt, erarbeitet. Zusätzlich ermöglichen eine baugleich aufgebaute in situ Zelle sowohl die Ergebnisse der ex situ Zelle zu verifizieren als auch den Zusammenhang von Strömungsform und Zelleistung zu erschließen. Die Zell- und Versuchsaufbauten inklusive eingesetzter Materialien und Messmethoden werden in Kapitel 1.1 beschrieben. Im Anschluss daran werden die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert (Kapitel 1.2 und 1.3). Ein Abgleich zwischen durchgeführten Arbeiten und geplanten Arbeiten erfolgt in Kapitel 2.

1.1 Versuchsaufbau

1.1.1 Teststand zur Untersuchung von Zweiphasenströmungen in einer ex situ Zelle

Aufgabe des Versuchsstands ist es - gemäß AP 1 - Untersuchungen zum Einfluss von Kanalgeometrie und Kontaktwinkel auf das Strömungsfeld in einem Kanal bei Variation von Luft- und Wasservolumenstrom zu ermöglichen. Kernkomponente dieses Versuchsstands ist eine optisch zugängliche ex situ Zelle. Diese muss sowohl die Variation der Kanalgeometrie als auch der Benetzungseigenschaften der Kanalwandungen ermöglichen, einen optischen Zugang aufweisen und die Medienver- und -entsorgung erlauben. Gewählt wird eine einfache, grade Kanalgeometrie, um strömungsmechanische Effekte aufgrund von Bögen oder Krümmungen zu vermeiden.

Abbildung 7 zeigt eine Explosionsdarstellung, Abbildung 8 eine Fotoaufnahme der ex situ Zelle. Die Apparatur besteht im Wesentlichen aus einer Grundplatte (1) und dem Kanaleinsatz (6). Die

Grundplatte verfügt seitlich über Bohrungen, die bis in die Grundplattenmitte hineinragen und von dort im 90 ° Winkel nach oben abknicken. Über diese Bohrungen erfolgt die Zufuhr von Luft (2) und Wasser (3) sowie die Abfuhr von Wasser und Luft (4). Es stehen zehn Zugänge für die Wasserzufuhr in einem Abstand von 1 cm zur Verfügung um zu simulieren, dass Wasser im realen Brennstoffzellenbetrieb entlang der Kanalwandung entsteht. Der Kanaleinsatz wird in der Art mit der Grundplatte verschraubt, dass der Kanal genau über den Bohrungen liegt. Der Kanal wird nach oben mit einer Druckfolie abgedichtet. Zur Abdichtung von Grundplatte und Kanaleinsatz dient eine Silikondichtung.

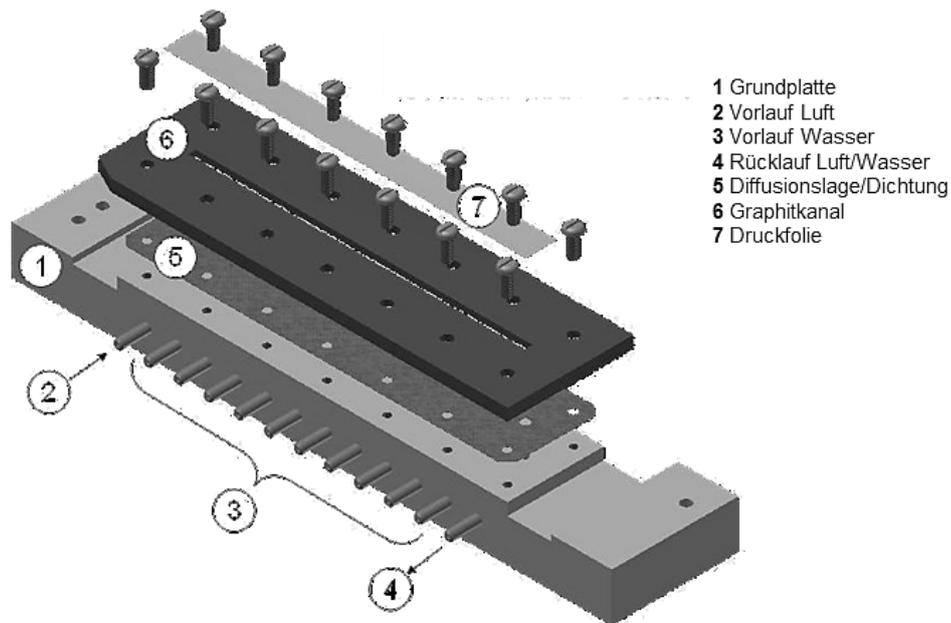


Abbildung 7: Explosionszeichnung der ex situ Zelle mit einem Graphitkanal.

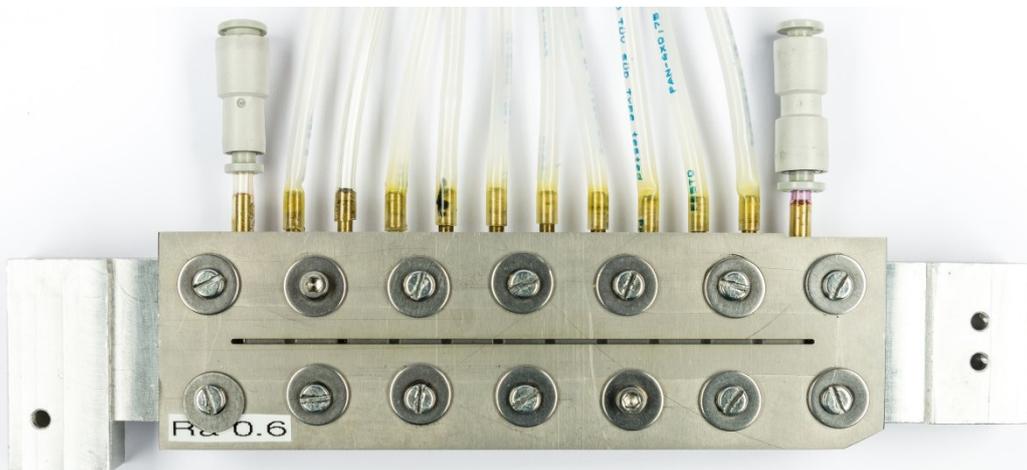


Abbildung 8: Fotoaufnahme der ex situ Apparatur mit integriertem Stahlkanal.

Um den Einfluss der Kanalgeometrie zu untersuchen, werden vier Kanaleinsätze aus Graphit-Compound (BBP 4 der Firma Eisenhut) mit den Kanaldimensionen $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 1 \text{ mm}$, $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 2 \text{ mm}$, $B = 2 \text{ mm}$ und $H = 1 \text{ mm}$ sowie $B = 2 \text{ mm}$ und $H = 2 \text{ mm}$ gefertigt. Um das Benetzungsverhalten gegenüber den hydrophoben Kanalwänden aus Graphit zu variieren, wird auf Stahlbleche zurückgegriffen, in welche der Kanal mittels eines Senkerodierverfahrens gefertigt wird. Mit diesem Bearbeitungsverfahren können definierte Oberflächenrauheiten eingestellt werden. Die Oberflächenrauheit wiederum hat einen direkten Einfluss auf den

Kontaktwinkel und damit die Benetzungseigenschaften des Materials. Es werden Kanalwandungen mit drei verschiedenen Rauheiten (siehe Kapitel 1.2.1) und in den Dimensionen $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 1 \text{ mm}$ sowie $B = 2 \text{ mm}$ und $H = 1$ hergestellt.

Für den Betrieb der Zelle dient der in Abbildung 9 schematisch dargestellte Teststand. Die Luftversorgung erfolgt über das Druckluftnetz und wird mittels eines Schwebekörper-Durchflussmessers von Kobold geregelt. Die Wasserversorgung erfolgt mittels einer Spritzenpumpe der Firma neMESYS. Zur Visualisierung der Zweiphasenströmung steht eine sCMOS-Kamera (imager intense) der Firma LaVision zu Verfügung. Die maximale Aufnahmezeit der Kamera beträgt 5 Hz, die Auflösung der Kamera 1376×1040 Pixel und die Pixelgröße $6.45 \mu\text{m} \times 6.45 \mu\text{m}$. Für die Untersuchungen ist es erforderlich, die gesamte Kanallänge von $L = 112 \text{ mm}$ zu visualisieren. Damit wird die Kanalbreite mit maximal 12 respektive 24 Pixeln abgebildet. Angenommen, zur Identifikation eines Tropfens werden etwa 9 Pixel ($d = 3 \text{ Pixel}$) bzw. zur Identifikation eines Flüssigkeitsfilms 3 Pixel erforderlich, dann können Tropfen oder Flüssigkeitsfilme (bei Visualisierung der Strömungsform über die gesamte Kanallänge) bis zu einer Größe von $0,25 \text{ mm}$ und damit entsprechend einem Viertel ($B = 1 \text{ mm}$) bzw. einem Achtel ($B = 2 \text{ mm}$) der Kanalbreite identifiziert werden. Kleinere Tropfen oder Filme sind nur dann als solche zu erkennen, wenn die Größe des Sichtfelds reduziert wird (Zoom-Aufnahmen).

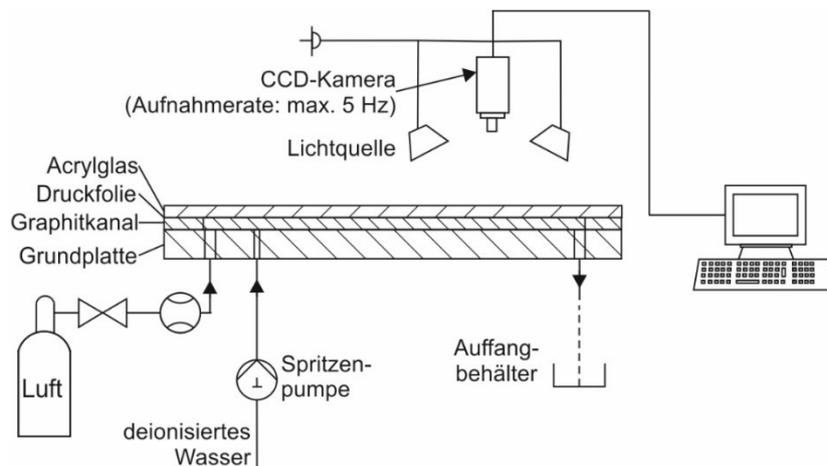


Abbildung 9: Vereinfachtes Verfahrensfliessbild der Versuchsanlage.

1.1.2 Teststand zur Untersuchung von Zweiphasenströmungen in einer in situ Zelle

Aufgabe des Teststandes ist es, den Einfluss der Kanalgeometrie auf die Zweiphasenströmung in einer optisch zugänglichen Test-Brennstoffzelle (in situ Zelle) zu untersuchen und damit nicht nur die mit der ex situ Zelle gewonnenen Ergebnisse zu verifizieren, sondern auch den Zusammenhang von Strömungsform und Zellperformanz zu ermitteln. Kernkomponente des Teststands ist die optisch zugängliche in situ Zelle, deren Konstruktion und Aufbau auf dem Prinzip der ex situ Zelle beruht. So sind die Kanalwandungen aus Graphit-Compound der ex situ Zelle zur Reduzierung des Fertigungsaufwandes so gestaltet, dass sie als Bipolarplatten in der in situ Zelle eingesetzt werden können und sich aus ihnen somit funktionsfähige Zellen aufbauen lassen. Abbildung 10 zeigt die Explosionszeichnung einer solchen in situ Zelle. Die Membranelektroden-Einheit (MEA) wird von den beiden Bipolarplatten (hier den Graphitkanälen) und optisch transparenten Endplatten eingerahmt und mit isolierten Schrauben verspannt. Eine Fotoaufnahme der aufgebauten Zelle zeigt Abbildung 11.

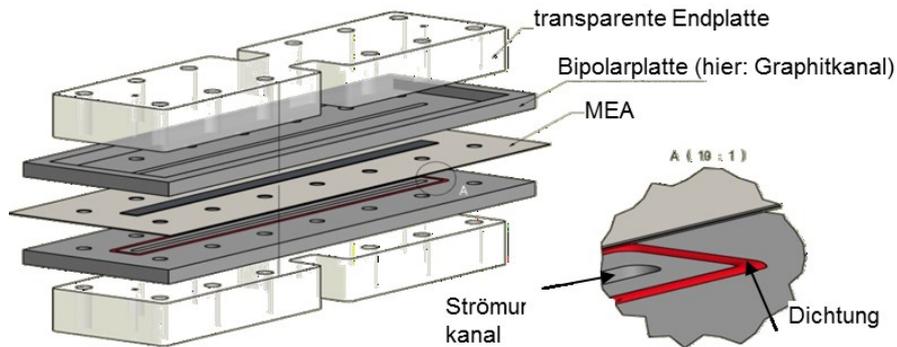


Abbildung 10: Explosionszeichnung der in situ Zelle.

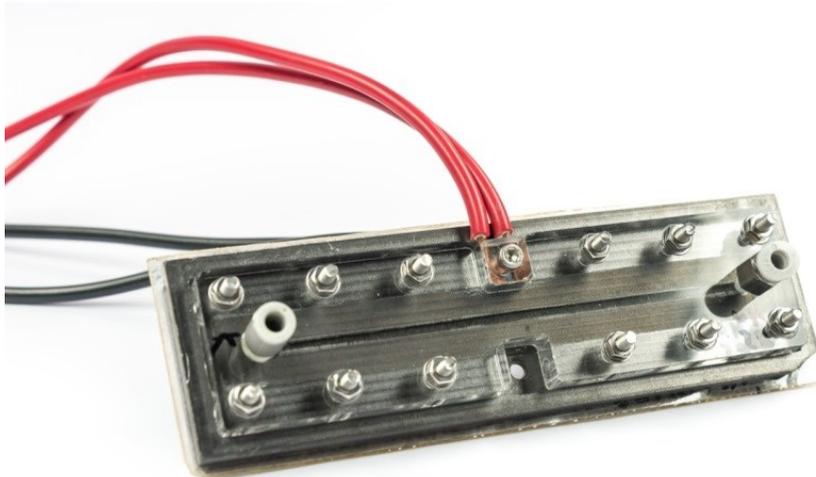


Abbildung 11: Fotoaufnahme der in situ Zelle.

Die Membranelektrodeneinheit (Abbildung 12) wurde am ZBT hergestellt und besteht aus dem Membranmaterial Nafion 212 und einer Gasdiffusionsschicht samt mikroporöser Schicht vom Typ GDS I2C8 mit hydrophobem Charakter. Diese weist eine Materialstärke von 230 μm bei 0,025 MPa und einem Durchgangswiderstand von 10 $\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ bei 0,6 MPa auf. Der Randbereich der MEA wird auf beiden Seiten mit Randverstärkung versehen. Die Katalysatorbelegung beträgt kathodenseitig 0,36 mg/cm^2 (40wt% Pt/C, 38 % Nafion) und anodenseitig 0,18 mg/cm^2 (40 wt% Pt/C, 42 % Nafion).

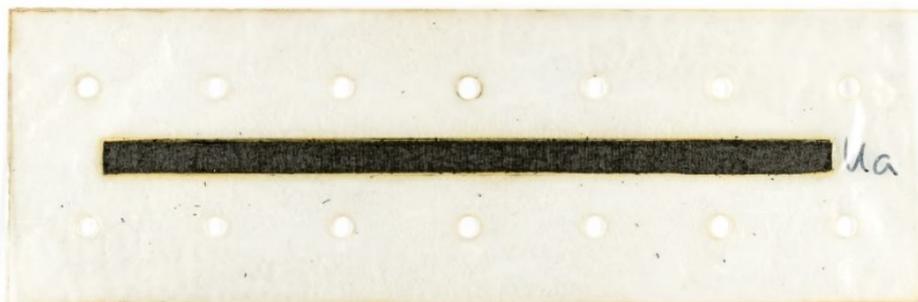


Abbildung 12: Am ZBT gefertigte Membranelektrodeneinheit mit Randverstärkung.

Teststand

Ein vereinfachtes Verfahrensfließbild vom Teststand zum Betrieb der optisch zugänglichen in situ Zelle ist in Abbildung 13, eine Fotoaufnahme des Teststands in Abbildung 14 gezeigt. Die Medienversorgung der Brennstoffzelle (Druckluft, H_2 und Wasser) erfolgt über die Ringleitung des Labors und wird über Mass Flow Controller der Firma Bronkhorst gesteuert. Sowohl

Druckluft als auch Wasserstoff können in einem Verdampfer von aDROP Feuchtemeßtechnik GmbH befeuchtet und mittels Heizschläuchen temperiert der Brennstoffzelle zugeführt werden. Für den spannungsgeführten Betrieb der Zelle steht eine elektrische Last der Firma Keithley (Serie 2400) zur Verfügung. Stromab der Test-Brennstoffzelle wird die Feuchte im Gasstrom auskondensiert und die Gase entsprechend abgeführt. Für ein möglichst konstantes Temperaturniveau der Brennstoffzelle ist diese in einer beheizten und nach außen isolierten Kammer (Abbildung 15) installiert.

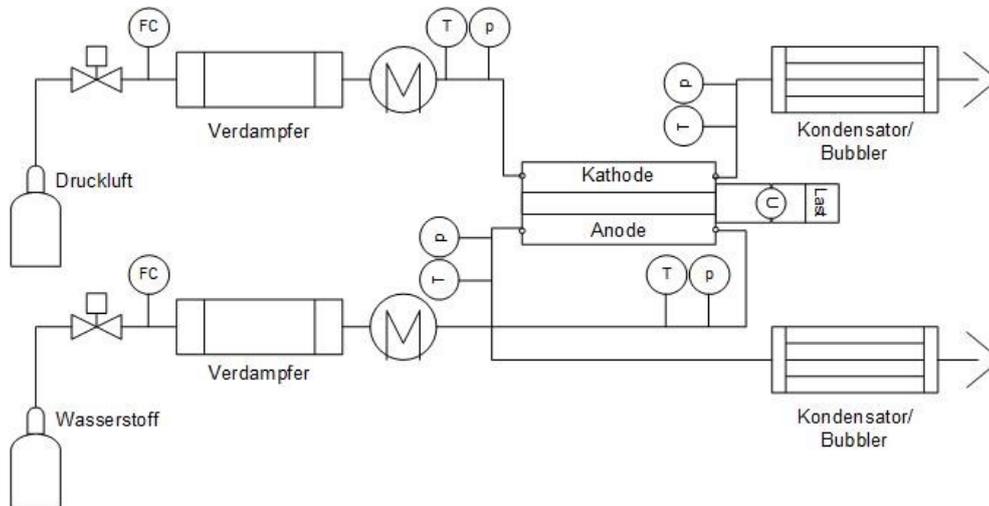


Abbildung 13: Vereinfachtes Verfahrensfliessbild vom PEM-Teststand.

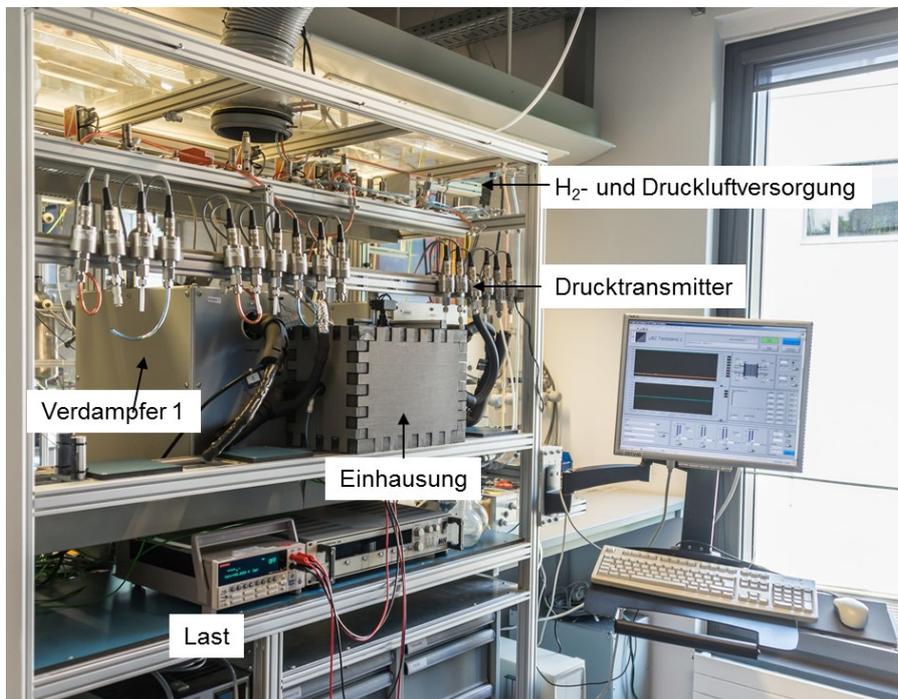


Abbildung 14: Fotoaufnahme vom PEM-Teststand.

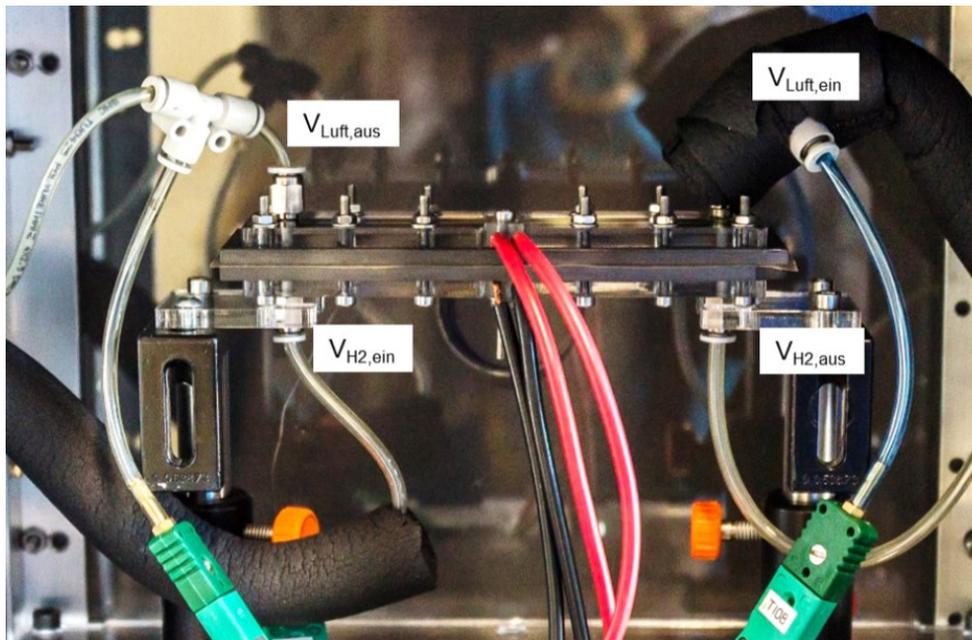


Abbildung 15: Fotoaufnahme von in isolierter Einhausung installierter in situ Zelle.

Erfassung der Prozessparameter

Temperatur- und Druckmessstellen sind ebenfalls dem Fließbild in Abbildung 13 zu entnehmen. Eingesetzt werden Thermoelemente vom Typ K und Drucktransmitter der Firma Keller. Sowohl Steuerung, Regelung als auch Messdatenerfassung erfolgt mit LabView.

1.2 Ergebnisse

1.2.1 Rauheit der Stahlkanalwände

Die Rauigkeit der Kanalwandungen aus Stahl wird mit einem konfokalen Laser-Mikroskop der Firma NanoFocus AG ermittelt. Für die Messungen ist allerdings eine freie Sicht auf die zu vermessende Oberfläche erforderlich, was bei den Kanalwandungen nicht gegeben ist. Daher ist bei der Herstellung der Kanalwandungen an der langen Außenkante eine 2 cm lange Einbuchtung erodiert (siehe Abbildung 16). Hierbei wurden die gleichen maschinellen Einstellungen gewählt wie bei der Erzeugung der Kanalstruktur. Damit ist davon auszugehen, dass die an der Außenkante erodierte Fläche die gleichen Oberflächeneigenschaften aufweist wie die Oberfläche der Kanalwandungen.



Abbildung 16: Draufsicht auf die in Stahl erodierte Kanalstruktur und Zoom-Ansicht der an der Außenkante erodierten Vergleichsfläche.

Die mit dem Nanofocus ermittelten, auf die Fläche bezogenen Rauheiten der drei Stahlkanalwänden betragen:

- Stahlkanal, erodiert und plasmapoliert: Ra = 0,286 μm
- Stahlkanal, erodiert (Soll: Ra = 0,6): Ra = 0,790 μm
und
- Stahlkanal, erodiert (Soll: Ra = 6,3): Ra = 5,730 μm .

Abbildung 17 zeigt vergleichend die Oberflächentopografie der plasmapolierten und der rauen Kanalwandung (Ra = 0,573).

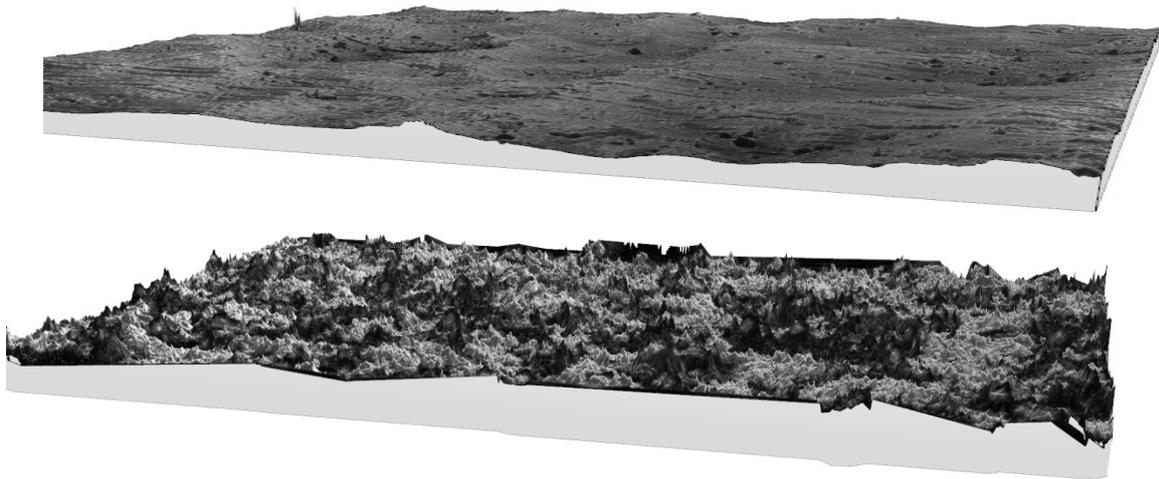


Abbildung 17: Oberflächentopografie der plasmapolierten Kanalwandung und der rauen Kanalwandung (Ra = 5,730 μm)

1.2.2 Benetzungsverhalten der eingesetzten Materialien

Ein Maß für das Benetzungsverhalten der eingesetzten Materialien ist der sogenannte Kontaktwinkel θ (siehe Abbildung 18). Dieser stellt sich ein, wenn ein Flüssigkeitstropfen auf eine ebene Oberfläche abgesetzt wird und thermodynamisches und mechanisches Gleichgewicht an der Phasengrenze zwischen Gas, Flüssigkeit und Feststoff herrscht. Bei gutem Benetzungsverhalten spreitet der Tropfen und bildet kleine Kontaktwinkel von $\theta < 90^\circ$ (hydrophil). Bei schlechtem Benetzungsverhalten nimmt der Kontaktwinkel Werte von $\theta > 90^\circ$ an (hydrophob).

Die Benetzungseigenschaften der eingesetzten Materialien werden mit einem Goniometer OCA 30 der Fa. DataPhysics Instruments GmbH ermittelt. Das Messprinzip ist in Abbildung 18 dargestellt. Über eine Pumpe wird ein Flüssigkeitstropfen (vollentsalztes Wasser) mit definiertem Volumen an einer Kapillare erzeugt und auf den Probekörper abgesetzt. Der Tropfen wird von hinten mit diffusem Licht beleuchtet, das „Schattenbild“ des Tropfens von einer CCD-Kamera erfasst. Die Ermittlung der Kontaktwinkel-Werte erfolgt basierend auf der optisch scharfen Abbildung des Tropfens auf ebener Fläche und einer computergestützten Auswertung von Tropfenprofilen basierend auf der *Axisymmetric Drop Shape Analysis (ADSA-P)*.

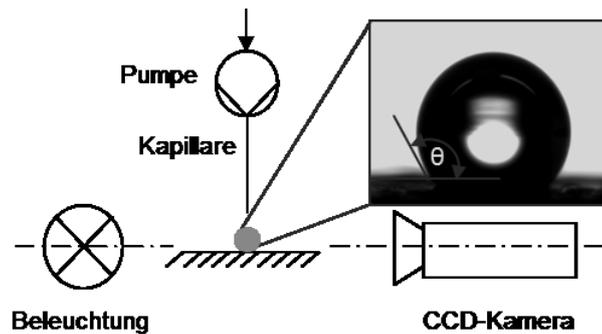


Abbildung 18: Messprinzip zur Erfassung des Kontaktwinkels mit einem Goniometer.

Voraussetzung für erfolgreiche Messungen sind u.a. das Erzeugen runder, achsensymmetrischer, aufgesetzter Tropfen sowie eine sorgfältige Reinigung der zu vermessenden Oberflächen (Ultraschallbad, Aceton) vorab. Bei bestimmten Oberflächen, insbesondere bei rauen Oberflächen spreitet der Tropfen in den ersten Sekunden nach dem Absetzen, so dass der Kontaktwinkel um etwa 5 bis 15° abnimmt. Kubiak et al 2011 empfehlen daher, den Tropfen erst 20 Sekunden nach Absetzen auf ebener Fläche abzulichten. Unter diesen Voraussetzungen und Bedingungen werden die Benetzungseigenschaften der Gasdiffusionsschicht, der Silikondichtung, der Endplatte aus Plexiglas sowie der Druckfolie ermittelt. Hierbei wird jeweils ein Tropfenvolumen von 3 μl gewählt. Die Ergebnisse fasst Tabelle 1 zusammen.

Tabelle 1: Kontaktwinkel der eingesetzten Materialien.

	Kontaktwinkel Mittelwert	Kontaktwinkel Standardabweichung
Druckfolie	113,9	1,9
Gasdiffusionsschicht	147,2	4,5
Graphit	108,33	3,13
Plexiglas	71,5	1,2
Silikondichtung	118,2	1,6

Wie auch bei der Ermittlung der Rauheit der Kanalwandungen geht die Ermittlung des Kontaktwinkels zwischen Wassertropfen und Kanalwandung mit Schwierigkeiten einher. Die Idee bestand zunächst darin, die Tropfen auf die erodierte Außenkante (simulierte Vergleichsfläche, siehe Abbildung 16, links) aufzusetzen. Die Kombination der geringen Materialstärke der Kanalwandung von 1 mm und der Anforderung an eine achsensymmetrische Tropfengeometrie erschweren die Messung. Abbildung 19 zeigt die Draufsicht auf die Oberfläche der an der Außenkante erodierten Vergleichsfläche und zwei aufgesetzte Wassertropfen mit verschiedenem Volumen. Der linke Tropfen ist klein genug, so dass eine achsensymmetrische Tropfengeometrie gewährleistet werden kann. Das Volumen des rechten Tropfens ist zu groß und der Tropfen zeigt eine ellipsenförmige Tropfengeometrie und ist für eine Messung des Kontaktwinkels nicht geeignet. Das für achsensymmetrische Tropfenkonturen erforderliche Volumen ist wiederum zu gering, als dass mit der vorhandenen Apparatur Messungen mit ausreichender Genauigkeit erfolgen können.

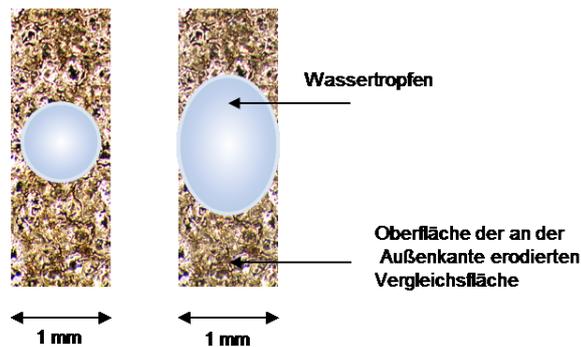


Abbildung 19: Tropfenkontur von zwei auf die erodierte Vergleichsfläche aufgesetzten Tropfen unterschiedlichen Volumens.

Um dennoch die Kontaktwinkel und damit das Benetzungsverhalten der erodierten Kanalwandungen abschätzen zu können, wurde ein Erodiernormal (Oberflächenvergleichsmuster) zur Hand genommen. Dieses Muster besteht aus acht in Stahl erodierten Flächen unterschiedlicher Rauheit. Sowohl die Rauheit dieser Flächen als auch die Kontaktwinkel wurden gemessen. Die Ergebnisse sind in dem Diagramm in Abbildung 20 gezeigt. Dem Diagramm ist zu entnehmen, dass für den plasmapolierten Kanal ein Kontaktwinkel von 75° , für den Kanal mit einer Rauheit von $Ra = 0,790 \mu\text{m}$ ein Kontaktwinkel von etwa 85° und für den Kanal mit einer Rauheit von $Ra = 5,73 \mu\text{m}$ ein Kontaktwinkel von etwa 95° angenommen werden kann.

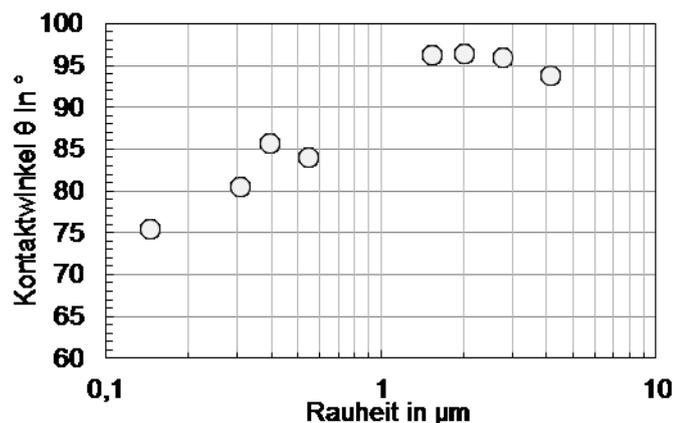


Abbildung 20: Abhängigkeit des Kontaktwinkels von der Rauheit der erodierten Stahl-Oberflächen.

Zusammenfassung: Plexiglas, Graphit, Stahl und Druckfolie haben Kontaktwinkel von $< 90^\circ$ und weisen damit einen hydrophilen Charakter auf. Sowohl die Gasdiffusionsschicht als auch Silikon weisen hydrophobe Oberflächen auf.

1.2.3 Charakterisierung von Strömungsformen in einer durchströmten ex situ Zelle

Die Visualisierung und Charakterisierung der Strömungsformen in der ex situ Zelle erfolgt unter Variation von Kanalgeometrie, Benetzungsverhalten der Kanalwandungen sowie von Luft- und Wasservolumenstrom. Da in der durchströmten ex situ Zelle Betriebszustände einer PEM-Brennstoffzelle zu simulieren sind, erfolgt die Ermittlung geeigneter Parameterkombinationen für Luft- und Volumenstrom anhand charakteristischer Betriebszustände einer PEM-Brennstoffzelle. Laut Flipo et al. 2016 liegen üblicherweise Stromdichten zwischen $0,4 \text{ A/cm}^2$ und 3 A/cm^2 und die stöchiometrischen Koeffizienten zwischen $\lambda_{\text{Kathode}} = 2$ und $\lambda_{\text{Kathode}} = 10$. Innerhalb dieses Parameterfeldes werden mit den Gleichungen 1 bis 5 (Kapitel 0) die Wasser- und Luftvolumenströme sowie die Leerrohrgeschwindigkeiten und Reynoldszahlen berechnet.

Vorversuche haben gezeigt, dass sowohl der Durchmesser der Bohrung für die Wasserzufuhr als auch der Abstand zwischen Luft- und Wasserzufuhr sowie die Anzahl der Positionen für die Wasserzufuhr die sich einstellende Strömungsform beeinflussen. Auch diese Parameter in den Experimenten zu variieren führt zu einer zu hohen Anzahl an Versuchen. Daher wird der Bohrungsdurchmesser auf $d = 250 \mu\text{m}$ festgelegt. Der Abstand zwischen Luft- und Wasserzufuhr beträgt 2 cm, der zwischen Wasserzufuhr und Abfuhr 9 cm.

Die Vorversuche haben außerdem gezeigt, dass sich die entsprechende (quasistationäre) Strömungsform erst nach einem instationären Anfahrvorgang einstellt. Der quasistationäre Zustand wird hier definiert als ein Zustand, bei dem über einen Zeitraum von 30 Minuten keine wesentliche Änderung der Strömungsform zu identifizieren ist. Daraus resultiert, dass je Betriebspunkt mindestens eine Versuchsdauer von > 30 Minuten vorzusehen ist. Zwischen den einzelnen Versuchen wird der Kanal getrocknet. Tabelle 2 fasst das Parameterfeld und die Randbedingungen zusammen.

Tabelle 2: Randbedingungen und Parameterfeld für die Versuche in der ex situ Zelle.

Parameter	Wert
Kanalbreite und Kanalhöhe	1 mm x 1 mm, 1 mm x 2 mm, 2 mm x 1 mm, 2 mm x 2 mm
Kanallänge	112 mm
Material	Stahl, Graphit-Compound
Durchmesser Bohrung Wasserzufuhr	250 μm
Abstand Luft- zu Wasserzufuhr	20 mm
Abstand Wasserzufuhr und Wasser- und Luft Rücklauf	90 mm
Volumenstrom Wasser in ml/min	0,0034 bis 0,0504
Volumenstrom Luft in ml/min	14,4 bis 1081,1
Geschwindigkeit Luft in m/s	0,1 bis 9
Geschwindigkeit Wasser in m/s	$3 \cdot 10^{-5}$ bis $4 \cdot 10^{-4}$
Reynoldszahl Luft	10 bis 800
Reynoldszahl Wasser	0,037 bis 0,56
Versuchsdauer	> 30 Minuten
Temperatur	$T \approx 20 \text{ }^\circ\text{C}$

1.2.3.1 Identifikation charakteristischer Strömungsformen in der ex situ Zelle

Unter Variation der genannten Parameter und bei gegebenen Randbedingungen werden sowohl für die Kanalwandungen aus Graphit als auch für die Kanalwandungen aus Stahl fünf Strömungsformen identifiziert: einseitige Wandströmung, beidseitige Wandströmung, Plugströmung, überströmter Kanal und Tropfenströmung. Charakteristische Aufnahmen dieser Strömungsformen inklusive schematischer Darstellung sind in Abbildung 23 gezeigt. Zu Beginn der Ausbildung jeder dieser Strömungsformen tritt ein Tropfen aus der „Pore“ (Wassereintritt), der mit der Zeit anwächst und schließlich eine der fünf Strömungsformen ausbildet:

Tropfenströmung

Oberhalb bestimmter Luftgeschwindigkeiten und Tropfendurchmesser wird der Tropfen unmittelbar an der Pore fortgetragen. Nach Abreißen des Tropfens von der Pore wächst an dieser der nächste Tropfen, der wiederum fortgetragen wird usw.

Plugströmung

Bei kleinen Unregelmäßigkeiten innerhalb des Kanals/ an den Kanalwänden kann der an der Pore entstandene und fortgetragene Tropfen während des Durchströmens des Kanals an einer der beiden Kanalwände haften bleiben. Der darauf folgende Tropfen bleibt an diesem Hindernis hängen und es wird ein größerer Tropfen gebildet, der schließlich die gegenüberliegende Kanalwandseite berührt. Es entsteht ein Plug, hier dadurch gekennzeichnet, dass die Wasseransammlung mindestens drei Kanalwände berührt. Dieser Plug wächst durch den Aufprall weiterer Tropfen an und strömt ab einer gewissen Größe ab. Der abströmende Plug hinterlässt an der Kanalwandung einen Flüssigkeitsfilm. Dieser begünstigt die weitere Anhaftung eines nachfolgenden Tropfens an der Kanalwand.

Wird der an der Pore wachsende Tropfen allerdings nicht vom Luftstrom in Form eines Tropfens fortgetragen, wächst er an dieser Stelle weiter an und kontaktiert entweder beide Kanalwände (Plug) oder eine der beiden Kanalwände. Im letztgenannten Fall spreitet der Tropfen entlang der Kanalwand und es bildet sich eine wachsnasenähnliche Struktur. Berührt die wachsnasenähnliche Struktur die gegenüberliegende Kanalwandung, wird ebenfalls ein Plug geformt.

Überströmter Kanal

Die Entwicklung der Strömungsform „überströmter Kanal“ ist anhand charakteristischer Aufnahmen am Beispiel für einen Kanal mit $B = 2 \text{ mm}$ und $H = 2 \text{ mm}$ sowie einem Wasservolumenstrom von $0,0067 \text{ ml/min}$ und einem Luftvolumenstrom von $0,14 \text{ l/min}$ in Abbildung 21 gezeigt. Am Wassereintritt wird ein Tropfen geformt, der eine der Kanalwänden kontaktiert und als länglicher Tropfen/ Wachsnase entlang dieser Kanalwand spreitet, bis die Flüssigkeitsoberfläche auch die gegenüberliegende Kanalwand kontaktiert. Es entsteht ein Plug, der rasch zum Austritt strömt und dabei einen dünnen Film auf dem Kanalgrund hinterlässt.

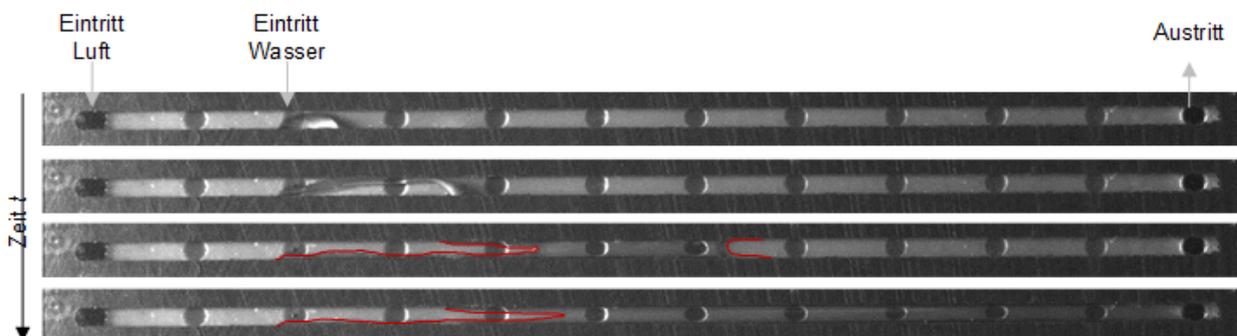


Abbildung 21: Charakteristische Aufnahmen zur Darstellung der Strömungsform „überströmter Kanal“. Auf den beiden unteren Bildern ist die Phasengrenze von Flüssigkeit/Gas anhand der roten Kontur verdeutlicht dargestellt.

Einseitige Wandströmung

Berührt der an der Pore wachsende Tropfen auch beim Entlangspreiten an einer der beiden Kanalwänden die gegenüberliegende Kanalwandung nicht, strömt die Flüssigkeit die Kanalwandung entlang zum Austritt, wobei einen Flüssigkeitsfilm an einer der beiden Kanalwände bestehen bleibt. Die Entwicklung dieser Strömungsform ist am Beispiel für einen Kanal mit der Breite $B = 2 \text{ mm}$ und der Höhe $H = 2 \text{ mm}$ sowie für einen Wasservolumenstrom von $V_w = 0,0168 \text{ ml/min}$ und einem Luftvolumenstrom von $V_L = 0,22 \text{ l/min}$ in Abbildung 22 gezeigt. Auf der Abbildung ist zu sehen, dass der Flüssigkeitsfilm am Austritt eine höhere Filmdicke aufweist. Diese Erhöhung wird im Folgenden auch als „Slug“ bezeichnet. Mit zunehmender Luftgeschwindigkeit nimmt die Dicke des Slugs ab.

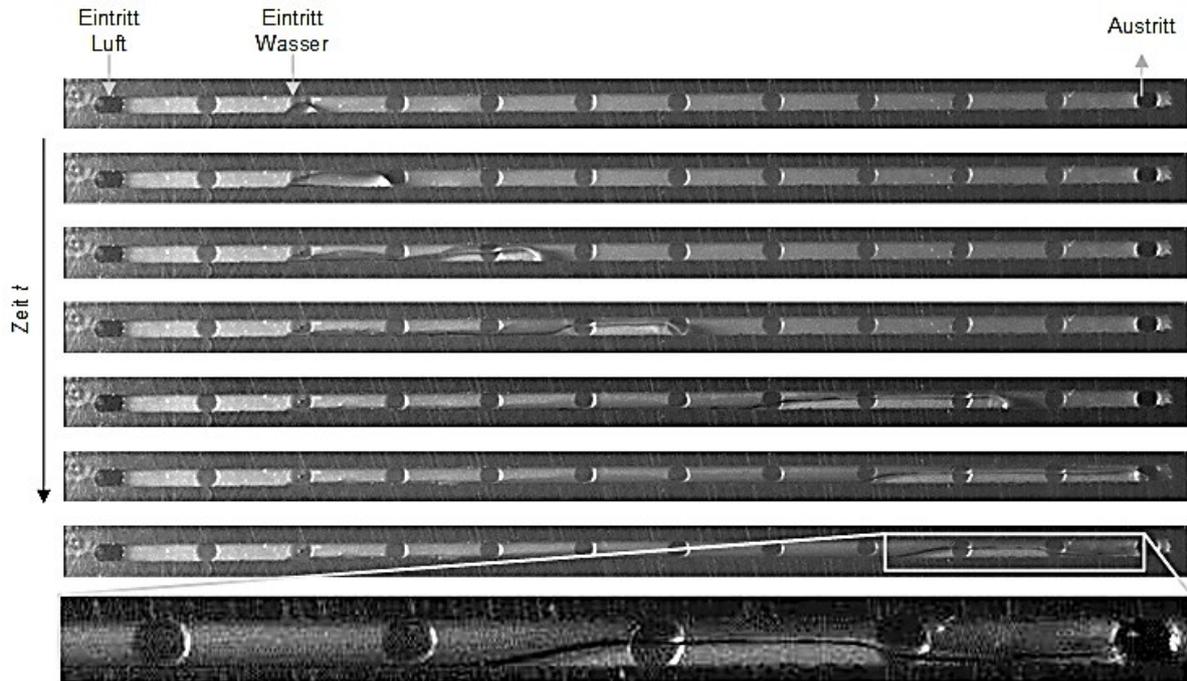


Abbildung 22: Einseitige Wandströmung im Graphitkanal.

Beidseitige Wandströmung

Die beidseitige Wandströmung ist zu beobachten, wenn ein Tropfen an der Pore gebildet wird, der zügig abströmt und dabei an beiden Kanalwänden einen flüssigen Film hinterlässt. Flüssigkeit, die dann aus der Pore nachströmt, wird unmittelbar, ohne Bildung eines weiteren Tropfens, entlang des Flüssigkeitsfilms an den Kanalwänden abgeführt.

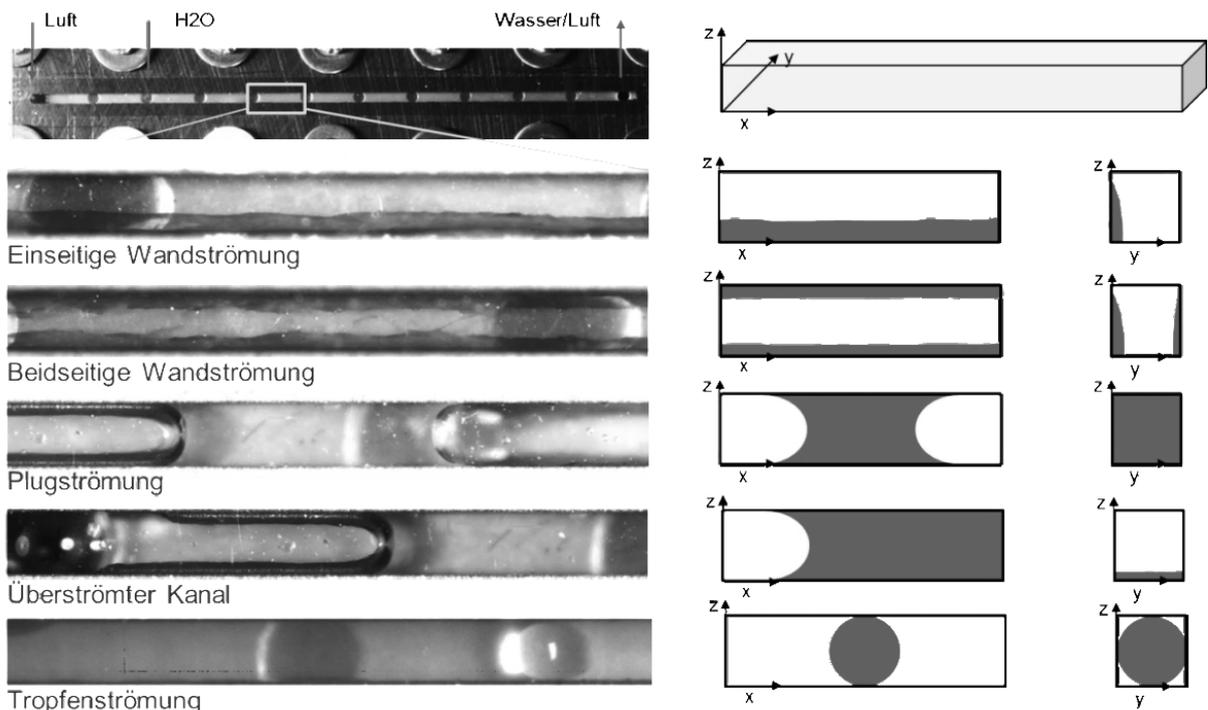


Abbildung 23: Fotoaufnahmen (links) und schematische Darstellungen (rechts) der fünf identifizierten Strömungsformen.

1.2.3.2 Strömungskarten für den Graphitkanal

Üblicherweise beschränkt sich die Darstellung der Strömungsformen in einer Strömungskarte auf die Auftragung der jeweiligen Rohrrohrgeschwindigkeiten bzw. Reynoldszahlen übereinander. Abbildung 24 zeigt die in den Graphit-Compound-Kanälen identifizierten Strömungsformen anhand der Auftragung der Reynoldszahl für Wasser über der Reynoldszahl für Luft. Zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit wurden die Randparameter ($R_{Luft,Min}(Re_{Wasser})$ und $R_{Luft,Max}(Re_{Wasser})$) erneut angefahren. Die Wiederholungsversuche sind anhand grau schattierter Symbole dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass bei kleinen Reynoldszahlen tendenziell die Plugströmung und bei hohen Reynoldszahlen tendenziell die einseitige Wandströmung beobachtet wird. Bei $0,03 > Re_{Wasser} < 0,3$ treten die beobachteten Strömungsformen (bis auf die Tropfenströmung) gemischt auf, Strömungsbereiche können nicht eindeutig identifiziert, die Reproduzierbarkeit als schlecht bewertet werden.

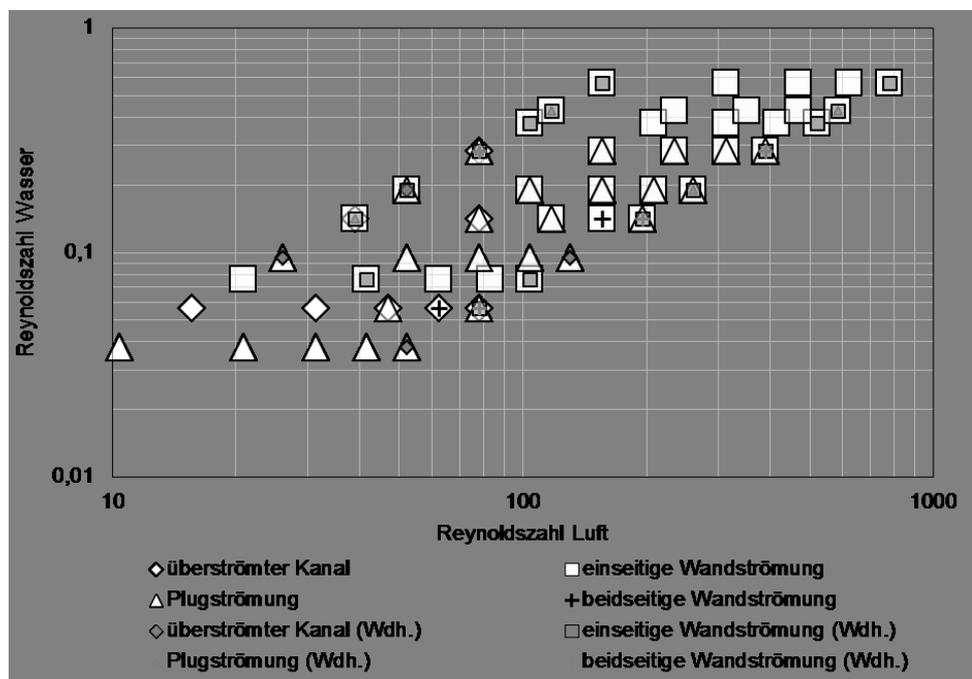


Abbildung 24: Strömungskarte zur Einordnung der im Graphitkanal identifizierten Strömungsformen anhand der Auftragung der Wasser-Reynoldszahl über der Luft-Reynoldszahl.

Abbildung 25 zeigt die Strömungskarten für die Kanäle aus Graphit-Compound differenziert nach Kanalgeometrie. Die grau schattierten Symbole stellen erneut die Ergebnisse der Wiederholungsversuche dar. Hier sind nur die Datenpunkte eingetragen, bei denen eine Abweichung zu beobachten ist. Bei einer Kanalbreite von $B = 2$ mm und einer Kanalhöhe von $H = 1$ mm wird einzig die einseitige Wandströmung beobachtet. Bei gleicher Kanalbreite aber einer Kanalhöhe von $H = 2$ mm werden die beiden Strömungsformen *einseitige Wandströmung* und *überströmter Kanal* beobachtet, wobei der überströmte Kanal tendenziell mit zunehmender Luft- und Wasser-Reynoldszahl in die einseitige Wandströmung übergeht. Bei einer Kanalgeometrie von $B = 1$ mm und $H = 2$ mm treten Plugströmung und überströmter Kanal auf, bei einer Kanalgeometrie von $B = 1$ mm und $H = 2$ mm treten alle beobachteten Strömungsformen außer der Tropfenströmung auf. Abgesehen von der Kanalgeometrie mit einer Breite von $B = 2$ mm und $H = 1$ mm zeigen die Ergebnisse, dass die Versuche nicht reproduzierbar sind. Damit geht einher, dass keine eindeutigen Grenzen zwischen den

einzelnen Strömungsbereichen gefunden werden können. Zu ähnlichem Ergebnis kommen auch Flipo et al. 2016. Die Autoren untersuchen den Einfluss des Benetzungsverhaltens auf die Strömungsform in einem graden Kanal mit einem hydraulischen Durchmesser von $d_H = 1 \text{ mm}$ (ex situ). Hierfür kommen Kanalstrukturen aus hydrophilen PMMA (Paramethoxymethamphetamin) mit einem Kontaktwinkel von $\theta = 40^\circ$ und hydrophobem PDMS (Polydimethylsiloxan) mit einem Kontaktwinkel von $\theta = 103^\circ$ zum Einsatz. Unter Variation von Luft- und Wasservolumenstrom beobachten die Autoren drei charakteristische Strömungsformen und differenzieren zwischen Plug-, Slug und Filmströmung. Insbesondere bei der hydrophoben Kanalstruktur beobachten sie, dass das Auftreten der Strömungsformen nicht reproduzierbar ist. So werden bei gleichen Randbedingungen verschiedene Strömungsformen beobachtet. Insgesamt können sie auch mit einer Vielzahl an Experimenten keine Strömungskarten für die betrachteten Kanalstrukturen und den untersuchten Parameterbereich erstellen. Sie können das Auftreten einer Grenze zwischen den einzelnen Strömungsformen nicht bestätigen.

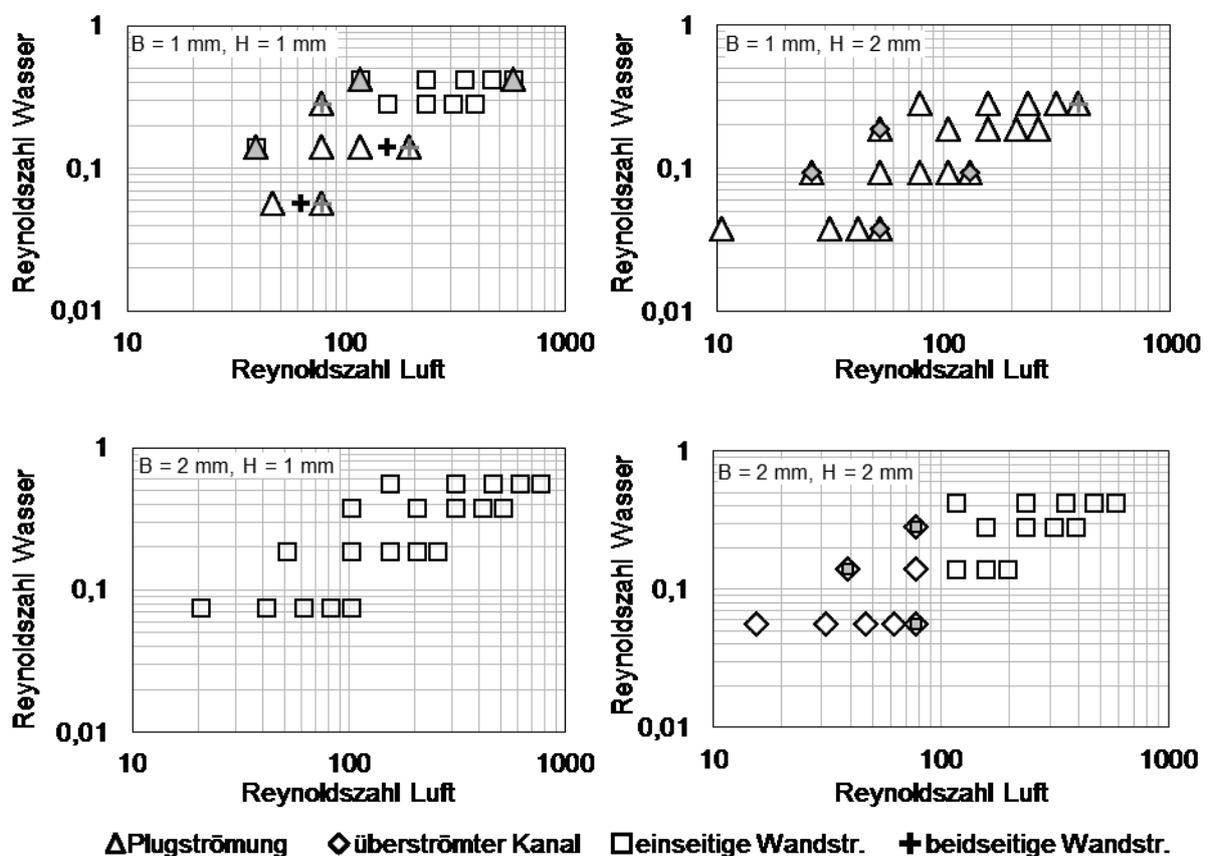


Abbildung 25: Strömungskarten für die Kanalstrukturen in Graphit-Compound.

Mögliche Ursache dafür, dass die Versuche nicht reproduzierbar sind bzw. dafür, dass verschiedene Strömungsformen bei ansonsten gleichen Randbedingungen beobachtet werden ist, dass bei den Betriebsparametern, die den Brennstoffzellenbetrieb simulieren, ein Übergangsbereich von zwei oder mehreren Strömungsformen vorliegt. Um das zu prüfen, werden Strömungskarten für ein erweitertes (und für den Kathodenkanal von PEM-Brennstoffzellen nicht relevantes) Parameterfeld erstellt. Diese Parameterfeld wird durch die Parameter $V_{\text{Luft,Min}} = 40 \text{ ml/min}$ bis $V_{\text{Luft,Max}} = 5000 \text{ ml/min}$ und $V_{\text{Wasser,Min}} = 0,01 \text{ ml/min}$ und $V_{\text{Wasser,Max}} = 50 \text{ ml/min}$ aufgespannt. Innerhalb dieses Parameterfelds werden neben den in Abbildung 23 identifizierten Strömungsformen die in Abbildung 26 abgebildeten

Strömungsformen (a) *Fadenströmung*, (b) *Ring-/Schwallströmung* sowie (c) *Spritzerströmung* (kleine Tröpfchen) identifiziert.

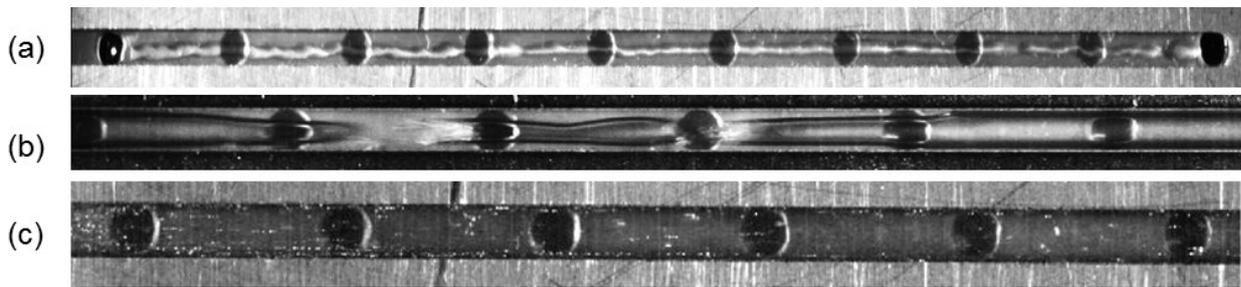


Abbildung 26: Fotografische Darstellung der Strömungsformen (a) *Fadenströmung*, (b) *Ring-/Schwallströmung* sowie (c) *Spritzerströmung*.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen fasst die Strömungskarte in Abbildung 27 am Beispiel für die Kanäle in Graphit-Compound mit der Kanalbreite $B = 1$ mm und Kanalhöhe $H = 1$ mm sowie der Kanalbreite $B = 1$ mm und Kanalhöhe $H = 2$ mm zusammen. Das Diagramm zeigt, dass es – insbesondere bei hohen Reynoldszahlen für Wasser – Bereiche gleicher Strömungsform gibt. Bei hoher Wasser-Reynoldszahl und kleiner Luft-Reynoldszahl wird Blasenströmung beobachtet. Mit zunehmender Luft-Reynoldszahl werden die Blasen länger und gehen schließlich in eine Ring – und mit weiterer Zunahme von Luft-Reynoldszahl in eine Schwallströmung und schließlich in eine Tropfenströmung über. Mit abnehmender Reynoldszahl für Wasser wiederum gehen die Blasen- und Ringströmung in den überströmten Kanal über, die Spritzerströmung in einseitige und beidseitige Wandströmung. Zwischen einseitiger und beidseitiger Wandströmung kann nicht differenziert werden. Im Übergangsbereich von überströmten Kanal und beidseitiger Wandströmung tritt hauptsächlich Plugströmung auf. Der Parameterbereich, der die Betriebszustände im Kathodenkanal der PEM-Brennstoffzelle simuliert, ist schattiert dargestellt. Innerhalb dieses Parameterbereichs treffen die Formen Plugströmung und beidseitige/ einseitige Wandströmung aufeinander. Die Bereiche sind nicht durch eine scharfe Grenze, sondern einen breiten Übergangsbereich voneinander getrennt, so dass innerhalb eines relativ breiten Parameterbereichs Mischformen dieser Strömungsformen auftreten können. Damit ist einleuchtend, dass die Reproduzierbarkeit innerhalb des für Brennstoffzellen relevanten Parameterbereichs nicht gegeben ist und eine eindeutige Abgrenzung der Strömungsformen voneinander nicht gefunden werden kann. Anhand der in Abbildung 27 dargestellten Strömungskarte ist aber ersichtlich, dass bei kleiner Re_{Luft} tendenziell Plugströmung, bei hoher Luft-Reynoldszahl tendenziell beidseitige/ einseitige Wandströmung auftritt. Oberhalb einer bestimmten Wasser-Reynoldszahl ist schließlich über einen breiten Parameterbereich mit überströmtem Kanal zu rechnen.

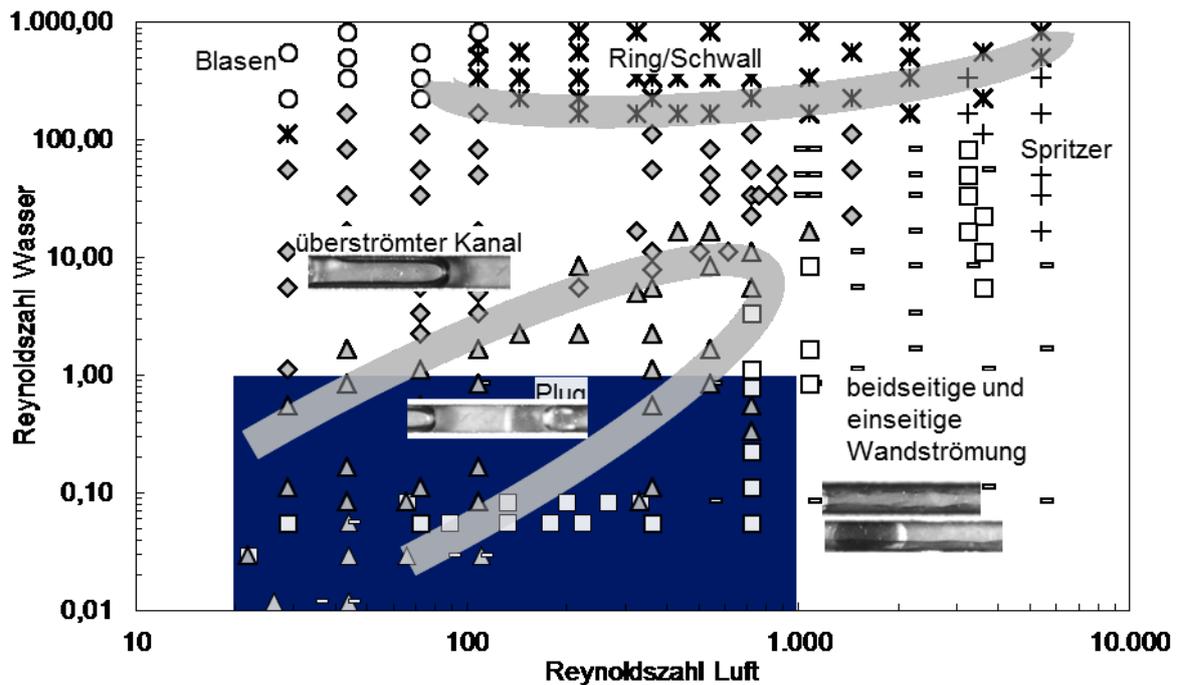


Abbildung 27: Strömungskarte für Kanalstrukturen in Graphit-Compound mit einer Breite $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 1 \text{ mm}$ sowie $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 2 \text{ mm}$.

1.2.3.3 Strömungskarten für den Stahlkanal

Aufgrund der bisherigen Ergebnisse erfolgen die Untersuchungen zum Einfluss des Benetzungsverhaltens auf die Strömungsform mittels der in Stahl erodierten Kanäle ebenfalls für ein erweitertes Parameterfeld. Die Ergebnisse sind abhängig von der Luft- bzw. Wasser-Reynoldszahl in den Diagrammen in Abbildung 28 dargestellt. Der Parameterbereich, der die Betriebszustände im Kathodenkanal einer PEM-Brennstoffzelle insimuliert, ist jeweils mit der schwarzen Rechteckkontur eingerahmt. Die Strömungskarten für die Kanalwandungen mit $B = 1 \text{ mm}$ und $H = 1 \text{ mm}$ und für die drei verschiedenen Rauheiten sind sowohl untereinander als auch mit dem Ergebnis der Strömungskarte für den Graphit-Compound-Kanal derselben Kanalgeometrie vergleichbar; die Rauheit zeigt keinen signifikanten Einfluss auf die Strömungskarte. Mit Zunahme der Kanalbreite auf $B = 2 \text{ mm}$ ändert sich das Erscheinungsbild der Strömungskarte: die Plugströmung wird nicht mehr, dafür aber die Tropfenströmung und beim Übergang von Wand- zu Spritzerströmung eine weitere Strömungsform, die Fadenströmung identifiziert. Auch für diese Kanalgeometrie ist kein signifikanter Einfluss der Rauheit der Kanalwandung auf die Ausbildung der Zweiphasenströmung und damit auf die Strömungskarte identifizierbar.

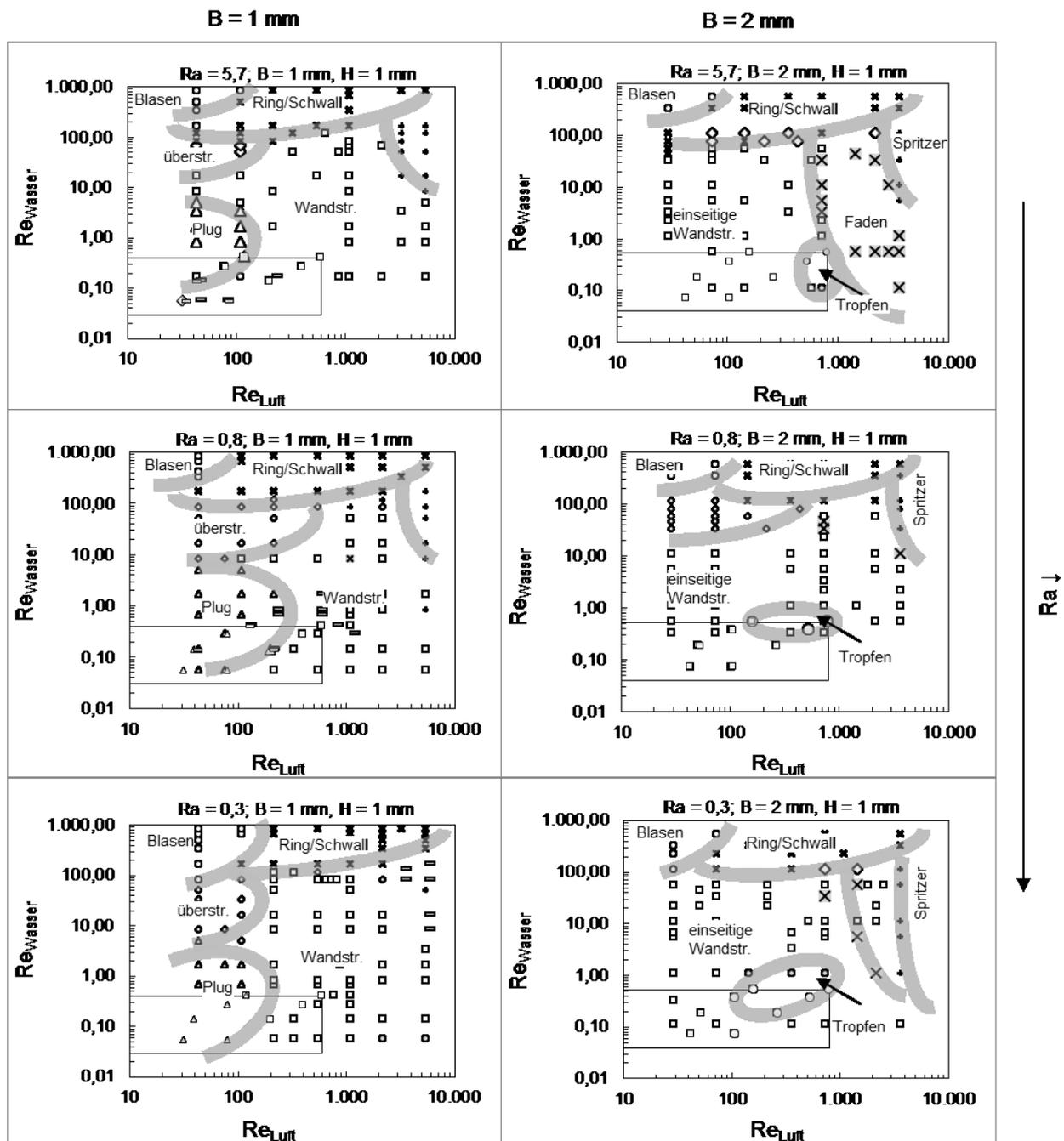


Abbildung 28: Strömungskarten für den Stahlkanal mit Silikonichtung als Kanaluntergrund.

Fazit

Die Strömungskarten zeigen, dass der Einfluss der hier untersuchten Rauheiten auf die Strömungsform zu vernachlässigen ist. Die Geometrie hingegen hat einen wesentlichen Einfluss auf die Ausbildung der Zweiphasenströmung: im für den Kathodenkanal von Brennstoffzellen relevanten Parameterbereich bilden sich bei einer Kanalbreite von $B = 2 \text{ mm}$ tendenziell Wandströmung und vereinzelt Tropfenströmung, bei einer Kanalbreite von $B = 1 \text{ mm}$ tendenziell eine Mischung aus Plug- und Wandströmung aus. Eine scharfe Grenze zwischen den Strömungsbereichen kann nicht gefunden, eine universelle Strömungskarte nicht erstellt werden. Daher eignen sich diese Diagramme – insbesondere bei einer Kanalbreite von $B = 2 \text{ mm}$ – nicht zur exakten Vorhersage der jeweiligen Strömungsform.

1.2.3.4 Einfluss des Kanaluntergrunds auf die Strömungsform

Bei den bisherigen Versuchen wurde zwischen dem Graphit-Compound-Kanal und der Grundplatte eine Silikondichtung eingesetzt. Um sich den realen Bedingungen einer funktionierenden Brennstoffzelle zu nähern, wurde anstelle der Silikonunterlage die in der MEA der in situ Zelle verarbeitete Gasdiffusionsschicht zwischen dem Kanal und der Grundplatte verwendet und deren Einfluss auf die Strömungsformen im Unterschied zur Silikonunterlage untersucht. Die Silikonunterlage und die Gasdiffusionsschicht sind sowohl hinsichtlich ihrer Benetzungseigenschaften als auch der Oberflächenstruktur verschieden: die Silikonunterlage weist einen Kontaktwinkel von $\theta = 118^\circ$, die Gasdiffusionsschicht einen Kontaktwinkel von $\theta = 147,2^\circ$ auf. Die Versuche erfolgen analog zu den bisher dargestellten Versuchsreihen. Die resultierenden Strömungskarten sind vergleichbar zu denen, die mit der Silikonunterlage erstellt wurden. Der wesentliche Unterschied wird in der Ausprägung der jeweiligen Strömungsform, insbesondere der Ausprägung der Wandströmung, beobachtet: im Gegensatz zur glatten Wandströmung bei Verwendung der Silikonunterlage wird unter Einsatz der GDL eine sehr wellige, teils tropfenförmigen einseitige Wandströmung ausgebildet, wie beispielhaft in Abbildung 29 gezeigt.

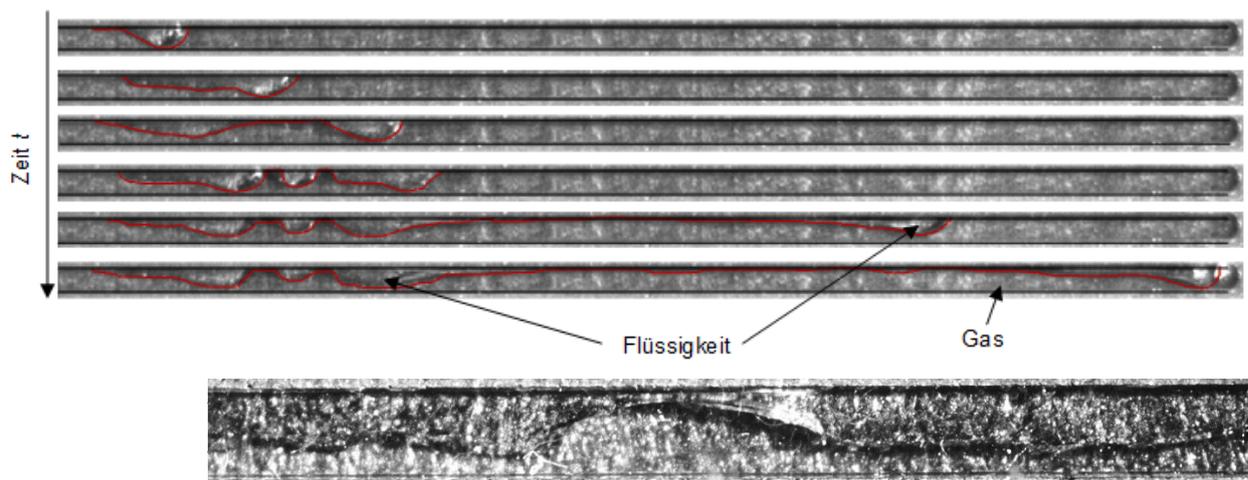


Abbildung 29: Einseitige Wandströmung im Graphitkanal mit GDL-Unterlage.

1.2.4 Charakterisierung von Zellperformanz und Strömungsformen in einer in situ Zelle

Die Visualisierung und Charakterisierung der Strömungsformen in betriebenen Versuchsbrennstoffzellen dient sowohl zum Abgleich mit den Ergebnissen der ex situ Apparatur (Kapitel 1.2.3) als auch zur Ermittlung des Zusammenhangs zwischen der Strömungsform und der Zelleistung. Hierfür erfolgt nach notwendiger Einfahrprozedur für die Aktivierung der Membran der spannungsgeführte Betrieb der Zelle unter Variation von Luftvolumenstrom ($\lambda_{\text{Kathode}} = 1,5$, $\lambda_{\text{Kathode}} = 3$ und $\lambda_{\text{Kathode}} = 10$), Luftfeuchte ($\varphi = 30\%$ und $\varphi = 80\%$) und Kanalgeometrie (1x1, 1x2, 2x1 und 2x2 [mm x mm]). Die Stöchiometrie auf der Anode beträgt etwa $\lambda_{\text{Anode}} = 3$, die relative Feuchte etwa $\varphi = 30\%$. Die Temperatur in der Kammer (isolierte Einhausung, siehe Abbildung 14) wird auf $T = 60^\circ\text{C}$ konstant gehalten. Die Gase werden vor Eintritt beheizt, so dass diese mit einer Temperatur von ebenfalls $T = 60^\circ\text{C}$ in den entsprechenden Kanal der Brennstoffzelle einströmen.

Bei konstanten Randbedingungen (T_{Zelle} , T_{H_2} , T_{Luft} , λ_{Anode}) und unter Variation der genannten Betriebsparameter wird die Brennstoffzelle spannungsgeführt betrieben. Nach Aufzeichnung der Leerlaufspannung wird die Spannung in 0,1 V Schritten von 0,9 V auf 0,3 V gesenkt und der Strom gemessen. Jeder Betriebspunkt wird für 2 Minuten aufrechterhalten, die Messwerte mit

einer Frequenz von 0,5 Hz aufgezeichnet. Parallel wird der Kanal und damit die sich einstellende Zweiphasenströmung mit einer Frequenz von 0,2 Hz abgelichtet.

1.2.4.1 Zellperformanz

Einfluss Stöchiometrie und Feuchte

Der Einfluss von Stöchiometrie und Feuchte auf die Zellperformanz und Strömungsform wird am Beispiel für einen Kanal mit einer Breite von $B = 2$ mm und einer Höhe von $H = 1$ mm vorgestellt. Abbildung 30 zeigt die Strom-Zeit-Diagramme als Resultat des spannungsgeführten Betriebs der in situ Zelle. Bei einer relativen Feuchte von $\varphi = 30$ % ist bei einer Spannung von $\leq 0,6$ V und dementsprechend bei einem Strom von $I \geq 0,4$ A ein Anstieg der Zelleistung bei konstanter Spannung zu beobachten. Dieser Effekt ist auf den Einfluss der Selbstbefeuchtung und damit auf eine Zunahme der Protonenleitfähigkeit der Membran zurückzuführen. Nach dem Einsetzen der Selbstbefeuchtung sind leichte Stromschwankungen ($dI/dt \leq 2$ %) zu erkennen, die mit zunehmendem Strom zunehmen. Diese ersten (leichten) Instabilitäten gehen ohne erkennbare Flüssigkeitsansammlungen im Kathodenkanal einher und können auf beginnende Wasseransammlungen in der porösen Struktur der MEA zurückzuführen sein. Oberhalb einer bestimmten Stromstärke sind Wasseransammlungen im Kanal in Form von Tropfen zu beobachten. Diese Tropfen entstehen am Kanalgrund an der Kontaktlinie von Bipolarplatte und Gasdiffusionsschicht. Eine charakteristische Fotoserie, die die Tropfenentwicklung darstellt, ist in Abbildung 30 (b) gezeigt. Nimmt bei gleichbleibender relativer Feuchte ($\varphi = 30$ %) die Stöchiometrie zu, sind weder leichte Strom-Schwankungen noch Tropfen im Kanal zu identifizieren. Bei Zunahme der relativen Feuchte auf $\varphi = 80$ % sind im Gegensatz zur relativen Feuchte von $\varphi = 30$ % auch bei erhöhter Stöchiometrie von $\lambda_{\text{Kathode}} = 3$ und $\lambda_{\text{Kathode}} = 10$ sowohl Stromschwankungen als auch Tropfen im Kathodenkanal zu erkennen. Die Zeitpunkte, an denen die Stromschwankungen einsetzen, sind in Abbildung 30 anhand von Pfeilen mit durchgehender Linie gekennzeichnet; die Zeitpunkte, an denen Tropfenbildung beobachtet wird, sind anhand von Pfeilen mit gestrichelter Linie gekennzeichnet. In allen Fällen werden die Stromschwankungen vor der ersten Tropfenbildung beobachtet, die Tropfenbildung erfolgt in allen Fällen an der Kontaktlinie von Bipolarplatte und Gasdiffusionsschicht. Besonders fallen die starken Stromschwankungen bei einer Stöchiometrie von $\lambda_{\text{Kathode}} = 1,5$ und einer relativen Feuchte von $\varphi = 80$ % auf. Die Schwankungen betragen bis zu 20 %. Mit Zunahme der Stöchiometrie auf $\lambda_{\text{Kathode}} = 3$ nehmen diese Schwankungen deutlich ab, betragen aber immer noch bis zu 5 %. Die hier beispielhaft dargestellten Ergebnisse für den Kanal mit der Breite $B = 2$ mm und der Höhe $H = 1$ mm sind vergleichbar zu den Ergebnissen der anderen drei Kanalgeometrien.

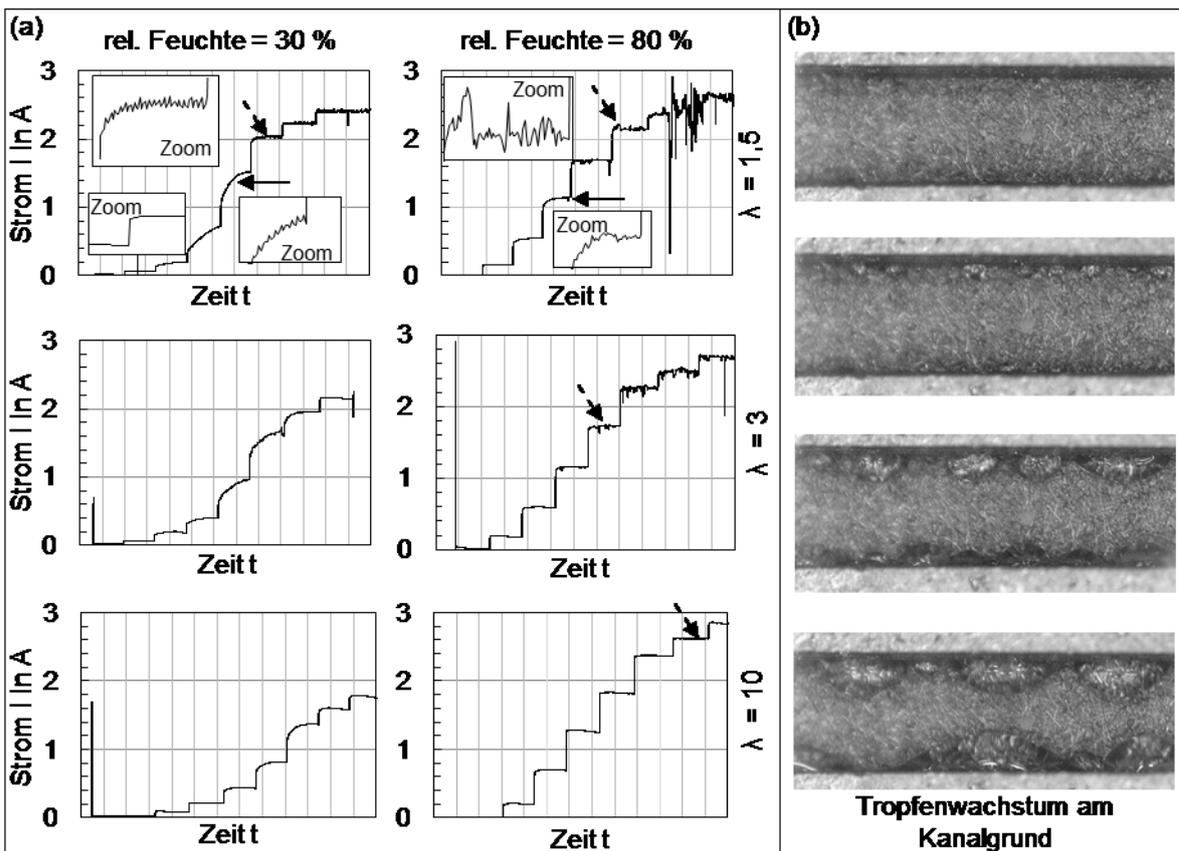


Abbildung 30: Strom-Zeit-Diagramme am Beispiel eines Graphit-Compound-Kanals mit der Breite $B = 2 \text{ mm}$ und der Höhe $H = 1 \text{ mm}$ (a). Fotoaufnahmen vom Tropfenwachstum im Kathodenkanal (b).

Die zu den in Abbildung 30 gezeigten Strom-Spannungs-Diagrammen zugehörigen U-I-Kennlinien sind in Abbildung 31 abhängig von Feuchte und Stöchiometrie abgebildet. Die Messpunkte für die Versuche mit einer relativen Feuchte von 30 % werden mit Kreisen, die mit einer relativen Feuchte von 80 % mit Dreiecken symbolisiert. Die Variation der Stöchiometrie ist farblich codiert ($\lambda = 1,5$: dunkelgrau, $\lambda = 3$: hellgrau und $\lambda = 10$: weiß).

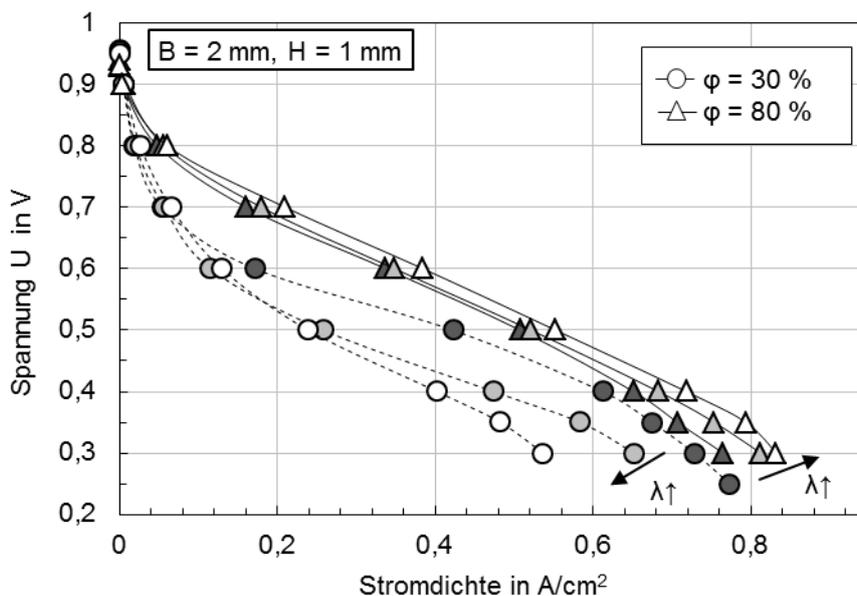


Abbildung 31: Strom-Spannungskennlinie am Beispiel eines Graphit-Compound-Kanals mit der Breite $B = 2 \text{ mm}$ und der Höhe $H = 1 \text{ mm}$.

Bei einer rel. Feuchte von $\varphi = 30\%$ nimmt die Stromdichte mit der Stöchiometrie ab. Dieser Zusammenhang ist darauf zurückzuführen, dass die Membran zu trocken wird und somit die Protonenleitfähigkeit abnimmt. Bei einer rel. Feuchte von $\varphi = 80\%$ nimmt die Stromdichte mit der Stöchiometrie zu. Ursache hierfür kann der verbesserte Wasseraustrag bedingt durch den erhöhten Luftvolumenstrom sein. Denkbar ist auch, dass aufgrund des erhöhten Volumenstroms die Druckdifferenz und damit der Gesamtdruck zunehmen, so dass eine Verbesserung der Zelleistung auf erhöhten Systemdruck zurückzuführen ist.

Einfluss Kanalbreite und Kanalhöhe

Abbildung 33 zeigt den Einfluss der Kanalbreite am Beispiel für eine Kanalhöhe von $H = 1\text{ mm}$ und für eine relative Feuchte von $\varphi = 80$ anhand von U_i -Kennlinien. Die U_i -Kennlinien für den schmaleren Kanal sind mit Kreisen, die für den breiteren Kanal mit Dreiecken dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass die Stromdichte des Kanals mit $B = 2\text{ mm}$ oberhalb der Stromdichte des Kanals mit $B = 1\text{ mm}$ liegt. Es ist anzunehmen, dass die erhöhte Leistung darauf zurückzuführen ist, dass mit zunehmender Kanalbreite (bei gleichbleibender MEA-Fläche) der Anteil der MEA-Fläche im Kanal im Vergleich zur MEA-Fläche unter den Stegen zunimmt und damit bei breiterer Kanalgeometrie ein erhöhter konvektiver Stofftransport von O_2 Richtung Reaktionsort erfolgen kann.

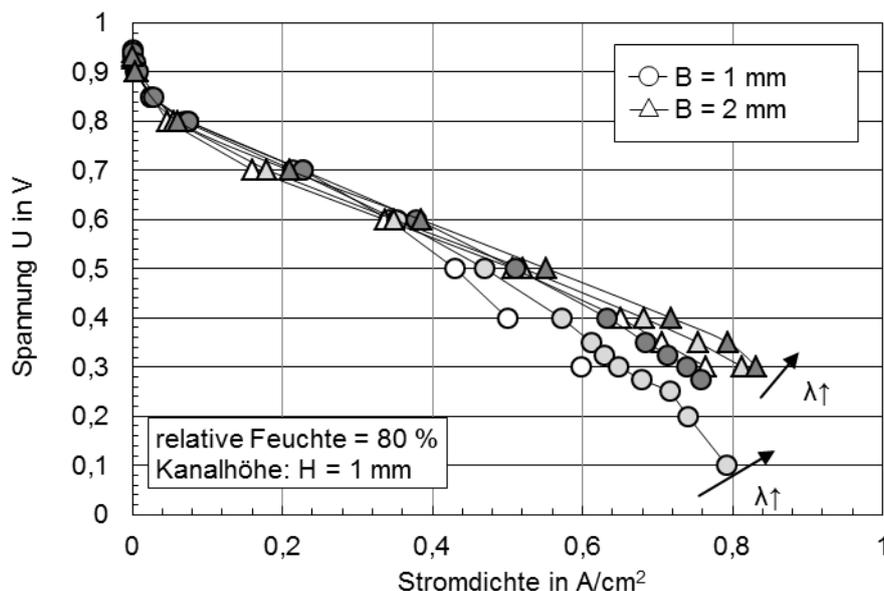


Abbildung 32: Einfluss der Kanalbreite und der Stöchiometrie (Kathode) auf die U_i -Kennlinie.

Ein Einfluss der Kanalhöhe sowohl hinsichtlich des Tropfenwachstums als auch hinsichtlich der Strom-Zeit-Diagramme kann nicht identifiziert werden, verdeutlicht anhand der U_i -Kennlinie in Abbildung 33.

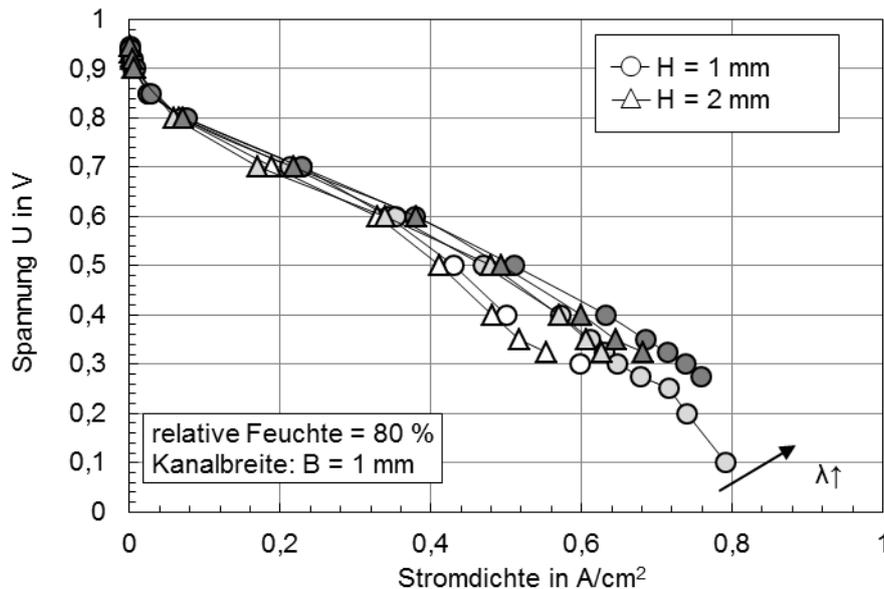


Abbildung 33: Einfluss der Kanalhöhe und der Stöchiometrie (Kathode) auf die UI-Kennlinie.

1.2.4.2 Strömungsformen

Unabhängig von der Kanalgeometrie und den Betriebsparametern wird die erste Ansammlung von Wasser im Kathodenkanal in Form von Tropfen bzw. kleinen Linsen beobachtet, die am Kanalgrund an der Kontaktlinie von GDL und Bipolarplatte entstehen. Die Tropfenbildung am Kanalgrund erfolgt innerhalb weniger Sekunden. Die Ausbildung eines quasistationären Strömungszustands hingegen nimmt deutlich mehr Zeit in Anspruch und kann bis zu 30 Minuten und länger dauern. Charakteristisch für einen Kanal mit einer Breite von $B = 1$ mm ist, dass gegenüberliegenden Tropfen in Kanalmitte zusammentreffen und einen Plug bilden. Ein Zusammenhang zwischen der Bildung oder dem Vorhandensein von Plugs und der Zellperformanz bzw. dem Maß der Instabilität kann nicht gefunden werden. Dies ist exemplarisch in Abbildung 34 am Beispiel eines Kanals mit einer Breite von $B = 1$ mm und einer Höhe von $H = 1$ mm bei einer relativen Feuchte von $\varphi = 30$ % und einer Stöchiometrie von $\lambda = 1,5$ dargestellt. Das Diagramm in der Abbildung zeigt den Verlauf des Stroms über der Zeit, die Aufnahmen die sich mit der Zeit formende Zweiphasenströmung.

Charakteristisch für einen Kanal mit einer Breite von $B = 2$ mm ist, dass die Tropfen anwachsen und mit zunehmendem Durchmesser entlang der Kanalwand spreiten, bis sich ein länglicher Film vergleichbar zur Wandströmung entlang der Kanalwand bildet. Im Unterschied zur Wandströmung in der ex situ Zelle tritt die Wandströmung hier kombiniert mit Tropfen an der Kanalwand auf. Auch dieser Strömungszustand kann nicht mit einem konkreten Ereignis wie bspw. lokalem Stromabfall in Zusammenhang gebracht werden. Dies ist exemplarisch in Abbildung 35 am Beispiel eines Kanals mit einer Breite von $B = 2$ mm und einer Höhe von $H = 1$ mm, ebenfalls bei einer relativen Feuchte von $\varphi = 30$ % und einer Stöchiometrie von $\lambda = 1,5$ dargestellt. Das Diagramm in der Abbildung zeigt den Verlauf des Stroms über der Zeit, die Aufnahmen die sich mit der Zeit formende Zweiphasenströmung.

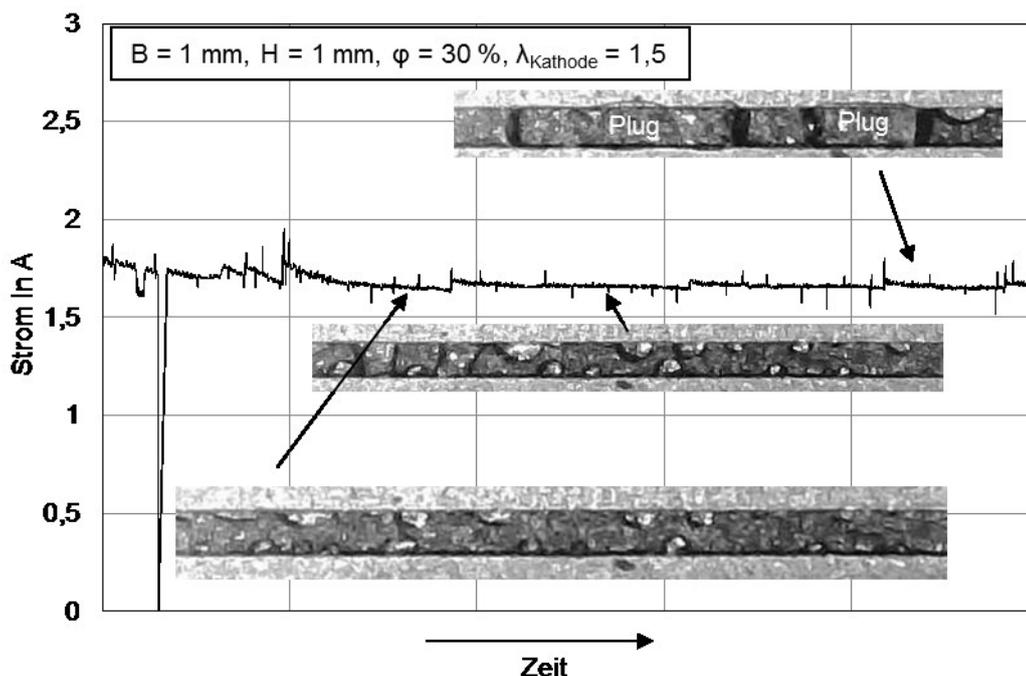


Abbildung 34: Strom-Zeit-Diagramm inkl. charakteristischer Aufnahmen der Zweiphasenströmung im Kathodenkanal am Beispiel für einen Kathodenkanal mit $B = 1 \text{ mm}$, $H = 1 \text{ mm}$, einer relativen Luftfeuchte $\varphi = 30 \%$ und einer Stöchiometrie von $\lambda_{\text{Kathode}} = 1,5$.

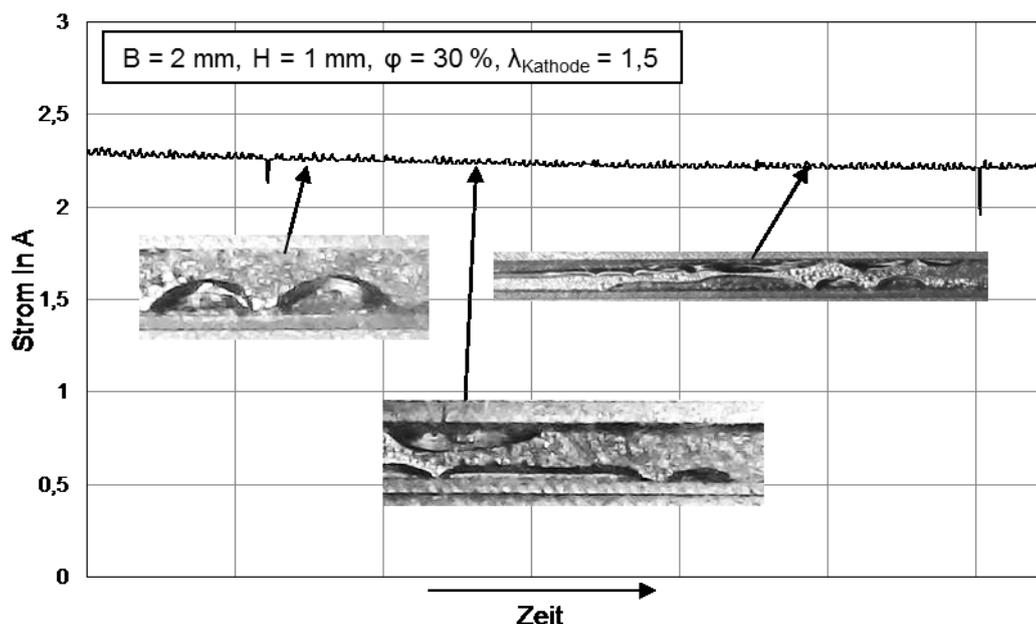


Abbildung 35: Strom-Zeit-Diagramm inkl. charakteristischer Aufnahmen der Zweiphasenströmung im Kathodenkanal am Beispiel für einen Kathodenkanal mit $B = 2 \text{ mm}$, $H = 1 \text{ mm}$, einer relativen Luftfeuchte $\varphi = 30 \%$ und einer Stöchiometrie von $\lambda_{\text{Kathode}} = 3$.

Tendenziell werden in der in situ Zelle bei einer Kanalbreite von $B = 1 \text{ mm}$ eine Mischung aus Plugs und Tropfen, bei einer Kanalbreite von $B = 2 \text{ mm}$ eine Kombination von Tropfen und einseitiger Wandströmung beobachtet. Somit ist die sich einstellende Strömungsform in der in situ Zelle vergleichbar mit denen in der ex situ Zelle gleicher Geometrie dahingehend, dass auch hier bei einer Kanalbreite von $B = 1 \text{ mm}$ tendenziell Plugs, bei einer Kanalbreite von $B = 2 \text{ mm}$ tendenziell Wandströmung beobachtet wird.

1.3 Zusammenfassung

Im Rahmen des Projekts wurden aus graden Kanalstrukturen ex situ Zellen mit variabler Kanalgeometrie sowie variablem Benetzungsverhalten aufgebaut. Unter Variation von Luft- und Wasservolumenstrom wurden die sich einstellenden quasi-stationären Strömungszustände visuell erfasst. Dabei wurden 5 Strömungsformen (einseitige und beidseitige Wandströmung, Plugströmung, überströmter Kanal und Tropfenströmung) identifiziert. Angelehnt an die Literatur erfolgt die Darstellung der Strömungsformen in Strömungskarten mittels Auftragung der Wasser-Reynoldszahl über der Luft-Reynoldszahl. Für die betrachteten Konfigurationen kann keine universelle Strömungskarte erstellt werden, insbesondere bei für Brennstoffzelle-Flowfields interessanterer Kanaldimension von $d_H = 1$ mm. Hauptursache hierfür ist, dass über einen breiten Parameterbereich ein Übergangsbereich von Plugströmung zur Wandströmung vorliegt. Innerhalb dieses Parameterbereichs können bei gleichen Randbedingungen beide Strömungsformen beobachtet werden. Das Erstellen einer universellen Strömungskarte scheitert zusätzlich daran, dass abhängig von der Kanalgeometrie verschiedenen Strömungsformen identifiziert werden. So geht bei einer Kanalbreite von $B = 1$ mm die Wandströmung mit zunehmender Luft-Reynoldszahl in eine Spritzerströmung über, wohingegen bei einer Kanalbreite von $B = 2$ mm die Wandströmung mit zunehmender Reynoldszahl zunächst in eine Faden- und dann in eine Spritzerströmung übergeht.

Auch wenn keine universellen Strömungskarten erstellt werden können, zeigen die für jeden Kanal und den erweiterten Parameterbereich erstellten Strömungskarten folgendes:

- der Einfluss der Kanalrauheit innerhalb des hier betrachteten Parameterbereichs ist vernachlässigbar
- die Kanalgeometrie hat einen wesentlichen Einfluss auf die Strömungsform: bei breitem Kanal ($B = 2$ mm) tritt tendenziell einseitige Wandströmung, bei schmalere Kanal ($B = 1$ mm) tendenziell Plugströmung auf.

Um zu untersuchen, ob anhand der ex situ Zellen Vorhersagen über das Strömungsverhalten in in situ Zellen getroffen werden können und um den Zusammenhang von Strömungsform und Zellperformanz zu ermitteln, wurden aus den Graphit-Compound-Kanälen der ex situ Zelle funktionierende PEM-Brennstoffzellen aufgebaut. Hierfür rahmen die Graphit-Compound-Kanäle als Bipolarplatte eine am ZBT gefertigte Membranelektrodeneneinheit ein und werden mit transparenten Endplatten aus Plexiglas verspannt. Unter Variation von Luftvolumenstrom und relativer Feuchte werden die Zellperformanz und die sich einstellenden Strömungsformen untersucht. In allen vier Kanalgeometrien werden die ersten Wasseransammlungen in Form von Tropfen an der Kontaktlinie von Bipolarplatte und Gasdiffusionsschicht beobachtet. Abhängig vom Luftvolumenstrom wachsen die Tropfen mit der Zeit an. Bei Kanalstrukturen mit einer Breite $B = 1$ mm gehen einige Tropfen in Plugs über und es bildet sich eine Mischung aus Plug- und Tropfenströmung (Tropfen haften an der Wand) aus. Bei Kanalstrukturen mit einer Breite von $B = 2$ mm wachsen die Tropfen an, spreiten ab einem gewissen Tropfendurchmesser entlang der Kanalwand und gehen in längliche Tropfen bzw. in Wandströmungen über. Es bildet sich eine Mischung aus Wandströmung und Tropfenströmung (Tropfen haften an der Wand) aus. Ein Zusammenhang zwischen Strömungsform und einer bestimmten Ausprägung einer Instabilität der Zelle kann nicht identifiziert werden.

Für die in diesem Projekt untersuchten Kanalgeometrien, Materialien und Strömungsverhältnisse können – für den im Kathodenkanal von Brennstoffzelle relevanten Parameterbereich – keine universellen Strömungskarten generiert werden. Strömungskarten stellen in diesen Fällen kein geeignetes Tool dar, um Handlungsanweisungen für die Auslegung eines Kathodenkanals mit effektivem Wasseraustrag abzuleiten.

Allerdings konnte gezeigt werden, dass die Abhängigkeit von Geometrie und Strömungsform in der *ex situ* Zelle und in der *in situ* Zelle vergleichbar sind. Somit erlauben Untersuchungen in *ex situ* Zellen eine Vorhersage über die zu erwartende Strömungsform in baugleichen *in situ* Zellen. Da kein Zusammenhang von Strömungsform und Zelleistung beobachtet werden kann, sind aus den bisherigen Versuchen keine Handlungsanweisungen für die Auslegung eines Kathodenkanals mit effektivem Wasseraustrag abzuleiten.

2 Abgleich zwischen durchgeführten und geplanten Arbeitspaketen

Eine Übersicht über den Abgleich zwischen bearbeiteten und im Antrag geplanten Arbeitspaketen zeigt Tabelle 3. Die Arbeitspakete AP 1 bis AP 6 sowie AP 10 und AP 11 wurden wie geplant durchgeführt. Die Ergebnisse von AP1 bis AP 6 wurden ausführlich in den Kapiteln 1.1 und 1.2 vorgestellt, die Arbeitspakete 10 und 11 sind Gegenstand von Kapitel 1.3. Die Arbeitspakete AP 7 bis AP 9 sowie das AP 12 konnten aufgrund der Zwischenergebnisse bzw. aufgrund des Projektverlaufs nicht durchgeführt werden:

Ziel von AP 7 bis AP 9 ist die Erstellung eines physikalischen Modells für den Tropfenaustrag. Hierfür soll die Kräftebilanz an einem Tropfen im Kanal (AP 9) mit Hilfe von Messdaten über die Kontaktwinkelhysterese (AP 7) sowie Messungen des Strömungsfelds vor, hinter und im Tropfen (AP 8) erstellt werden. Dazu ist in dem in AP 1 aufgebauten Versuchsstand gezielt eine definierte Menge Wasser zu injizieren, die bestimmten Stromdichten einer Brennstoffzelle entspricht. Dabei sollen solche Fälle untersucht werden, die nach AP 3, 5 und 6 einen Tropfen auf der GDL ergeben. Allerdings haben die Versuche in AP 3, 5 und 6 gezeigt, dass nur in sehr wenigen Ausnahmefällen überhaupt ein runder, die Kanalwände nicht berührender Tropfen auf der GDL entsteht. In der Regel berührt der Tropfen bei Injektion die Kanalwand und wird zu einem länglichen Tropfen, der schließlich in eine Wandströmung oder einen Plug übergeht. Insbesondere in den *in situ* Zellen kann keine Tropfenbildung in Kanalmitte beobachtet werden. Demnach weicht das geplante physikalische Modell für die betrachteten Versuchsparameter stark von Realität ab und die Bearbeitung wurde als nicht zielführend betrachtet. Für das Erreichen des Projektziels hingegen unerlässlich waren die Untersuchungen zum Einfluss von Kanalgeometrie und Kanalrauheit auf die Ausbildung der Zweiphasenströmungen. Diese Untersuchungen nahmen jedoch deutlich mehr Zeit in Anspruch, als zum Zeitpunkt der Antragstellung angenommen werden konnte. Erst im Zuge der Projektbearbeitung stellte sich heraus, dass sich die entsprechende Strömungsform (im quasistationären Zustand) erst nach einem instationären Anfahrvorgang einstellt. Dieser instationäre Anfahrvorgang nimmt je nach Betriebsbedingungen (Kanalgeometrie, Luft- und Wasservolumenstrom) zwischen 15 Minuten bis über 180 Minuten in Anspruch. Für die Untersuchungen war es zwingend erforderlich, den quasistationären Zustand anzufahren. Die für die Bearbeitung von AP 7 bis AP 9 eingeplante Arbeitszeit wurde dementsprechend für die Bearbeitung von AP 3 eingesetzt.

Ziel von AP 12 ist der Aufbau einer Versuchsbrennstoffzelle, die in der Art gestaltet ist, dass ein verbesserter Wasseraustrag ermöglicht wird. Dazu soll die Versuchsbrennstoffzelle aus denjenigen Materialien und mit solchen Geometrien aufgebaut werden, die sich in den

vorherigen AP als vorteilhaft für einen effektiven Wasseraustrag erwiesen haben. Ein effektiver Wasseraustrag wird letztendlich darüber definiert, welche Form der Zweiphasenströmung eine optimale und stabile Zellperformanz erlaubt. Für den betrachteten Parameterbereich konnte jedoch kein Zusammenhang zwischen Zell-Performanz und konkreter Strömungsform gefunden werden – damit erlauben die vorgestellten Versuche keine Schlussfolgerung über Auslegungsstrategien des Kathodenkanals hinsichtlich eines optimalen Wassermanagements.

Tabelle 3: 2: Abgleich zwischen durchgeführten und geplanten APs

AP	Beschreibung	Status
AP 1	Konstruktion und Fertigung eines optisch zugänglichen Versuchsstands zur Vermessung von Tropfen und Strömungsfeld in einem Mikrokanal mit poröser Unterlage (Ex-Situ-Zelle)	✓
AP 2	Kontaktwinkel zwischen Wasser und verwendeten Materialien	✓
AP 3	Visualisierung und Charakterisierung der Flüssigwasserformen in einem durchströmten Mikrokanal	✓
AP 4	Optisch zugängliche Test-Brennstoffzellen	✓
AP 5	Visualisierung und Charakterisierung der Flüssigwasserformen in betriebenen Versuchsbrennstoffzellen und Abgleich mit den Ex-Situ-Ergebnissen	✓
AP 6	Erstellen dimensionsloser Strömungskarten für Flüssigwasser in Mikrokanälen der Kathode einer NT-PEM-Brennstoffzelle	✓
AP 7 – AP 9	Physikalisches Modell für Kräftebilanz an einem Tropfen im Kanal (AP 9) mit Hilfe von Messdaten über Kontaktwinkelhysterese (AP 7) sowie Strömungsfeld vor, hinter und im Tropfen (AP 8)	×
AP 10 – AP 11	Auslegungsstrategie für leistungsfähiges Kathoden-Flowfield (AP 10) und Handlungsanweisungen für leistungsfähiges Kathoden-Flowfield (AP 11)	✓
AP 12	Versuchsbrennstoffzelle	×

3 Verwendung der Zuwendung

Wissenschaftlich-technisches Personal (Einzelansatz A.1 des Finanzierungsplans):

wissenschaftlichen Mitarbeiter (HPA-A):	31
wissenschaftlich-technischen Mitarbeiter (HPA-B):	7,97
technischen Mitarbeiter (HPA-C):	2
technischen Mitarbeiter (HPA-D):	3
stud. Hilfskraft (HPA-F):	4,5

Geräte (Einzelansatz B des Finanzierungsplans):

Es wurden im Berichtszeitraum folgende Geräte erworben:

- Digital Source Meter von Keithley
- Differenzdruckmesser von MKS Instruments Deutschland GmbH
- Revolving Microscope Frame von ILA

Leistungen Dritter (Einzelansatz C des Finanzierungsplans):

Es wurden im Berichtszeitraum keine Leistungen Dritter in Anspruch genommen. Bewilligt wurden allerdings 18.400 € für die Beschichtung von metallischen Bipolarplatten (= Kanalstrukturen). Der Einsatz metallischer Kanalstrukturen war insbesondere für die Untersuchungen zum Einfluss des Benetzungsverhaltens auf die Strömungsform erforderlich und war anhand von ex situ Versuchen vorgesehen. Zudem war geplant, diese metallischen Kanalstrukturen auch in in situ Zellen einzusetzen, um schließlich den Einfluss des Benetzungsverhaltens auf Strömungsform **und Zellperformanz** zu untersuchen. Für den Einsatz in in situ Zelle müssen die metallischen Kanalstrukturen allerdings beschichtet werden. Andernfalls kommt es zu Korrosion und damit zum „Vergiften“ der Zelle was bedeutet, dass die Funktion der Membran beeinträchtigt wird.

Die Untersuchungen zum Einfluss des Benetzungsverhaltens auf die Strömungsform (ex situ) wurden erfolgreich durchgeführt und sind in Kapitel 1.2.3 vorgestellt. Ergebnis dieser Versuche ist, dass während der Einfluss der Kanalgeometrie auf sich einstellende Strömungsform signifikant ist, der Einfluss der hier gewählten Benetzungseigenschaften der Stahlstrukturen auf die Strömungsform zu vernachlässigen ist.

Zusätzlich haben die Versuche mit aus Graphitcompound-Kanälen aufgebauter in situ Zelle gezeigt, dass innerhalb des hier betrachteten Parameterbereichs kein Zusammenhang zwischen Zell-Performanz und konkreter Strömungsform zu identifizieren ist.

Aufgrund dieser Zwischenergebnisse konnte von aus metallischen Bipolarplatten aufgebauten in situ Zellen kein zusätzlicher Erkenntnisgewinn erwartet werden. Daher wurde auf die Beschichtung der metallischen Bipolarplatten und deren Einsatz in der in situ Zelle verzichtet.

4 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die geleisteten Arbeiten der Forschungsstelle innerhalb des Zeitraums dieser Berichterstattung entsprechen weitgehend den Plänen des Forschungsantrags und waren für die Durchführung des Vorhabens notwendig. Aufgrund einer beruflichen Umorientierung des projektverantwortlichen Mitarbeiters und der Verzögerung bei der Auswahl eines neuen, geeigneten Mitarbeiters konnte das Projekt über einen Zeitraum von 6 Monaten nicht fortgeführt werden. Seit dem 01.02.2017 steht ein neuer Mitarbeiter für das Projekt zur Verfügung. Zudem kam es aufgrund von technischen Problemen mit der institutseigenen Erodiermaschine zu Verzögerung bei der Herstellung der für das Projekt erforderlichen Kanalstrukturen, deren Fertigung schließlich extern vergeben werden musste. Aufgrund dessen wurde eine kostenneutrale Verlängerung um insgesamt 9 Monate bis zum 31.03.2018 beantragt. Diesem Antrag wurde stattgegeben.

5 Darstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Nutzens der erzielten Ergebnisse insbesondere für KMU sowie ihres innovativen Beitrags und ihrer industriellen Anwendungsmöglichkeiten

Wie im Rahmen zahlreicher Fachtagungen und Publikationen thematisiert, besteht im Bereich der Brennstoffzellentechnik ein enormer Bedarf an Erkenntnisgewinn hinsichtlich eines effizienten Wasseraustrags aus den Kathodenkanälen von PEM-Brennstoffzellen – und zwar ohne auf das regelmäßige „Purgen“ der Kanäle zurückgreifen und damit erhöhte Gebläseleistung und schließlich geringere Nettoleistung in Kauf nehmen zu müssen. Grundlage hierfür ist detailliertes Verständnis von Zweiphasenströmungen in Mikrokanälen, ggf. unter Berücksichtigung von Phasenübergangseffekten. Noch ist ungeklärt, welche Parameter (Volumenstrom, Material, Rauheit, Geometrie, Temperatur) warum welchen Einfluss auf die Form der Zweiphasenströmung haben und welcher Zusammenhang zwischen Strömungsform und Zelleistung besteht.

Ein viel publizierter Ansatz zur Schaffung von Erkenntnisgewinn ist die Visualisierung von Zweiphasenströmungen in situ Zellen und ex situ Zellen unter Variation der genannten Parameter. Zur Charakterisierung und Einordnung der Strömungsformen werden diese häufig in Strömungskarten dargestellt. Bislang sind die in der Literatur diskutierten Ergebnisse aber widersprüchlich und es herrscht Uneinigkeit über den Einfluss von den entsprechenden Betriebsparametern auf das Strömungsverhalten. Ziel dieses Projekts war es, diese Uneinigkeiten zu klären und universelle Strömungskarten zu generieren. Allerdings zeigen die Ergebnisse, dass in den betrachteten Parameterbereichen keine universellen Strömungskarten erstellt werden können. Damit konnte zum viel diskutierten Thema „Wasserproblematik im Kathodenkanal von PEM-Brennstoffzellen“ die wesentliche Erkenntnis generiert werden, dass Strömungskarten – abhängig von makroskopischen Größen – kein geeignetes Tool zum Auslegen eines Kathoden-Flowfields mit effektiven Wasseraustrag darstellen. Es erscheint sinnvoll, den Einfluss mikroskopischer Einflussparameter wie bspw. die Mikrostrukturierung von Oberflächen oder Kanten auf die sich bildende Zweiphasenströmung zu untersuchen. Ferner kann empfohlen werden, Untersuchungen von Einflussparametern auf die Strömungsform aus Zeitgründen in einer ex situ Zelle durchzuführen und nur in aussichtsreichen Fällen in einer in situ Zelle zu testen. Vorteilhaft ist hierbei die Verwendung einer geraden Kanalstruktur, da hiermit insbesondere Ereignisse der Zellperformanz wie bspw. lokaler Spannungseinfall auf einen einzelnen strömungsmechanischen Effekt zurückgeführt werden können. Die genannten Erkenntnisse und die Empfehlungen sind ein weiterer Schritt in Richtung eines effizienten Wasseraustrags aus dem Kathodenkanal von PEM-Brennstoffzellen und sind damit für die gesamte Brennstoffzellencommunity von Bedeutung. Diese Brennstoffzellencommunity umfasst viele liefernde KMUs und Start-Ups. Für diese Zielgruppe ist dieser Erkenntnisgewinn von ganz wesentlicher Bedeutung, insbesondere, da diese nicht in der Lage sind, im „Tagesgeschäft“ einen solchen Erkenntnisgewinn zu erzielen. Hierfür nehmen diese praxisnahen Untersuchungen zu viel Zeit in Anspruch. Meist ist eine für derartige Untersuchungen benötigte Infrastruktur gar nicht vorhanden. Durch regelmäßige Transfermaßnahmen wird dieses Wissen in Anwendung transportiert.

6 Plan zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft

Für die wirtschaftliche Nutzung der Ergebnisse und die Weiterentwicklung von Materialien und Komponenten im Bereich der Brennstoffzellentechnologie, wurden die im Rahmen des Projektes erzielten Ergebnisse und Informationen auf verschiedene Weise transferiert. Eine Übersicht der geleisteten Tätigkeiten der Forschungsvereinigungen sowie von der Forschungsstelle ist Tabelle 4 zu entnehmen. Über die gesamte Laufzeit des Projektes wurden in regelmäßigen Abständen Sitzungen für den Projektbegleitenden Ausschuss durchgeführt. Das Ziel dieser Sitzungen ist eine Möglichkeit für die im Ausschuss vertretenen Unternehmen und Organisationen eine aktive Position bei der Durchführung geplanter Arbeiten einzunehmen, darauf einen Einfluss zu haben und einen Feedback in Bezug auf die erzielten Ergebnisse zu geben.

Tabelle 4: Umgesetzte und geplante Maßnahmen zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft.

Umgesetzte bzw. geplante Maßnahme		Erläuterung	Datum / Zeitraum
A Projektbegleitender Ausschuss (PA)			
1	1. Sitzung des PA	Präsentation des Projektes und Besprechung geplanter Arbeiten	11.08.2015
2	2. Sitzung des PA	Vorstellung erster Ergebnisse und Diskussion des weiteren Vorgehensweise	20.07.2017
B Messen			
1	Hannover Messe	Handzettel zum Projekt auf dem Messestand des ZBT, Diskussionen	Mai 2015
2	Hannover Messe	Handzettel zum Projekt auf dem Messestand des ZBT, Diskussionen	Mai 2016
3	Hannover Messe	Handzettel zum Projekt auf dem Messestand des ZBT, Diskussionen	Mai 2017
4	Hannover Messe	Handzettel zum Projekt auf dem Messestand des ZBT, Diskussionen	Mai 2018
C Akademische Lehre			
1	Hilfswissenschaftler (Hiwi)		laufend
D Konferenzen und Workshops			
1	8. Workshop AiF-Brennstoffzellenallianz	Bekanntmachung der Projektarbeiten und Ergebnisse, Poster	19.-20.05.2015
2	Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik, Dresden 2015	Präsentation der Ergebnisse	08.-10.09.2015
E Artikel			
1	T. Bunthoff, S. Burgmann, J. Wartmann, A. Heinzel: <i>Untersuchung des Flüssigwasserverhaltens im Kathodenkanal einer Brennstoffzelle</i> , 23. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik (GALA), 8. - 10.09.2015, Dresden	wissenschaftliche Publikation der Ergebnisse	Sep 2017
F Geplante Maßnahmen			
1	Veröffentlichung des Projektberichtes auf der Plattform der FV	Verbreitung der Ergebnisse	fortlaufend

2	Nachfolgeantrag		Okt 2018
3	11. AiF-Brennstoffzellenallianz	Präsentation der Ergebnisse , Vortrag	27. 06. 2018
5	Internes Kolloquium	Bekanntmachung der Projektarbeiten und Ergebnisse, Vortrag	voraus. Jul 2018

Einschätzung der Realisierbarkeit des vorgeschlagenen und aktualisierten Transferkonzepts

Die in der obigen Tabelle aufgeführten Maßnahmen dienen der Verbreitung der Ergebnisse sowohl in wissenschaftlichen Bereichen als auch innerhalb der Wirtschaft. Dies geschah während der Projektlaufzeit vor allem über die Veröffentlichung der Ergebnisse auf verschiedenen Workshops und Tagungen. Die Vorträge der Ergebnisse bei den oben aufgeführten Veranstaltungen sowie Einbindung der Ergebnisse in den Tagungsbänden der besuchten Veranstaltungen trägt dazu bei, die erzielten Erkenntnisse einem breiten Fachpublikum zugänglich zu machen. Es sind ebenso weitere Publikationen und Präsentationen der aktuellen Ergebnisse im Anschluss an das Projekt geplant (siehe Tabelle 4). Der Schlussbericht des Projektes wird auf der Plattform der Forschungsvereinigung IUTA öffentlich zugänglich gemacht. Auf den Sitzungen des begleitenden Ausschusses wurden die erzielten Ergebnisse ausführlich vorgestellt und die Präsentationen nachfolgend den Teilnehmern zugesendet.

7 Durchführende Forschungsstelle

Zentrum für BrennstoffzellenTechnik GmbH
 Carl-Benz-Str. 201
 47057 Duisburg

Leiter: Prof. Dr. A. Heinzl
 Projektleiter: Lena Engelmeier

8 Förderhinweis und Danksagung

Das in diesem Schlussbericht geschilderte Forschungsvorhaben Nr. 18436N der Forschungsvereinigung IUTA wurde über die AiF im Rahmen des Programms zur Förderung der industriellen Gemeinschaftsforschung und –entwicklung vom Bundesministerium für Wirtschaft und Energie aufgrund eines Beschlusses des deutschen Bundestages gefördert. Ein besonderer Dank gilt den Firmen, dessen Industrievertreter an den Sitzungen des Projektbegleitenden Ausschusses teilgenommen haben sowie den Unternehmen, die bereits bei Antragstellung die Bereitschaft zeigten, dem Projekt unterstützend zur Seite zu stehen: AVL Deutschland GmbH, ECG GmbH, Freudenberg & Co. KG, FutureE Fuel Cell Solutions GmbH, ILA GmbH, LaVision GmbH, NEXT ENERGY, Proton Motor GmbH, PT & B SILCOR GmbH, Gräbener Maschinenteknik GmbH & Co. KG und Volkswagen AG .

9 Literatur

Flipo, G., Josset, C., Bellettre, J., Auvity, B. (2016): Clarification of the surface wettability effect on two-phase flow patterns in PEMFC gas channels. In: International Journal of Hydrogen Energy 41 (34), S. 15518-15527. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.04.008>.

Ji, M., Weil, Z. (2009): A Review of Water Management in Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells. In: Energies 2(4), S. 1057-1106. DOI: 10.3390/en20401057.

Kubiak, K.J., Wilson, C.T., Mathiab, T.G., Carvalc, Ph. (2011): Wettability versus roughness of engineering surfaces. In: Wear 271 (3-4), S. 523-528. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.wear.2010.03.029>.

Liu X., Guo H., Ye F., Ma C.F., Flow dynamic characteristics in flow field of proton exchange membrane fuel cells, Int. J. Hydrogen Energy 33 (2008) 1040–1051

May J., Ioannis G. Kevrekidis, Benziger J. B. (2013): Water Slug Formation and Motion in Gas Flow Channels: The Effects of Geometry, Surface Wettability, And Gravity. In: Langmuir 29 (31), S. 9918–9934. DOI: 10.1021/la4011967.