Abschlussbericht

HyFaB-Baden-Württemberg

von

Ludwig Jörissen*, Ulf Groos**

*Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg ** Fraunhofer-Institut für Solare Energiesysteme ISE

Förderkennzeichen: L75 20112, L75 20113

Laufzeit: 11.11.2019 - 30.06.2023

Finanziert aus Landesmitteln, die der Landtag Baden-Württemberg beschlossen hat

August 2023





MINISTERIUM FÜR UMWELT, KLIMA UND ENERGIEWIRTSCHAFT

Inhaltsverzeichnis

| Abbildungsverzeichnis | 2 |
|--|------|
| Tabellenverzeichnis | 5 |
| Kurzbeschreibung der Forschungsergebnisse | 6 |
| Motivation und Hintergrund des Vorhabens | 6 |
| Aufgabenstellung | 8 |
| Arbeitspaket B, Erstellung eines F&E-Gebäudes | 8 |
| Arbeitspaket Q: Qualifizierung von Materialien und Qualitätssicherung von Komponenten | 9 |
| Arbeitspaket H: Schnelle Herstellprozesse für die Serienproduktion von PEFC- Stapeln | 9 |
| Arbeitspaket T: Training, Aus- und Weiterbildung | 10 |
| Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde | 10 |
| Planung und Ablauf des Vorhabens | 10 |
| Zusammenarbeit mit anderen Stellen | 13 |
| Beitrag der Ergebnisse zu den Zielen des Förderprogramms | 13 |
| Erzielte Ergebnisse | 13 |
| Arbeitspaket B: | 13 |
| Arbeitspaket Q: Qualifizierung von Materialien und Qualitätskontrolle von Komponenten | . 17 |
| AP Q1: Definition der Qualitätsparameter | . 17 |
| AP Q2: Neue analytische und QS-Verfahren | 20 |
| AP Q3 Erprobung von QS-Verfahren | 22 |
| AP Q4: Unterstützung Harmonisierung und Standardisierung | 25 |
| Arbeitspaket H: Schlüsselprozesse für eine schnelle Serienproduktion | 25 |
| AP H1: Konzept CCM Herstellverfahren | 25 |
| AP H2: Konzept GDL-Herstellverfahren | 31 |
| AP H3: MEA-Assemblierung | 33 |
| AP H4: Schnelle Stapelprozesse | 43 |
| AP H5 Fabrikabnahmetest und H6 Inbetriebnahme | 49 |
| Arbeitspaket T | 55 |
| Verwertung | 56 |
| Veröffentlichungen | 57 |
| Preise | . 58 |

Abbildungsverzeichnis

| Abbildung | 1: | Wertschöpfungskette der PEFC-Stapelherstellung und Tätigkeitsschwerpunkte der Mitglieder des Kernteams |
|-------------------------------------|----------------|---|
| Abbildung | 2: | Wechselwirkung zwischen den Wertschöpfungsstufen am Beispiel CCM / MEA |
| Abbildung Abbildung Abbildung | 3: 4: 5: | HyFaB-Bauplanung. Bauabschnitt 1 war Bestandteil des Projekts14 Blick in die Testhalle des Bauabschnitts 1 |
| Abbildung | 6: | HyFaB Gebäude. Im Vordergrund sind das Gaselager sowie der Bauabschnitt 1 zu sehen |
| Abbildung | 7: | HyFaB Gebäude. Im Vordergrund sind die Funktionsräume des Bauabschnittes 2 sowie der Seminar- und Bürobereich zu sehen17 |
| Abbildung Abbildung | 8: 9: | Aufbau und Funktionen einer 7-Lagen MEA |
| Abbildung | 10: | Ergebnisse von Probemessungen an der Koordinatenmessmaschine a) Linie der Tiefenprofilmessung b) Schnitte unter verschiedenen Beleuchtungswinkeln |
| Abbildung | 11: | Verschiedene Analytik-Geräte, welche am Fraunhofer ISE in HyFaB- BW eingesetzt werden |
| Abbildung | 12 | Messplatz zur Oberflächenanalyse von Brennstoffzellkomponenten: optisches 3D Profilometer (links) und konfokales Laserscanning Mikroskop (rechts) |
| Abbildung | 13: | a) Einzelzell-Teststand des Fraunhofer ISE, b) Testzelle des Fraunhofer ISE. Gemeinschaftsentwicklung mit baltic FuelCells22 |
| Abbildung | 14: | Dummy-MEA mit Kapton-Randverstärkung auf der Koordinatenmessmaschine |
| Abbildung | 15: | Maßhaltigkeit der MEA-Längen (gesamt und über eingebrachte Alignmentfeatures) Sollwerte: 539.8 mm, Alignments: 536.0 mm23 |
| Abbildung | 16: | Maßhaltigkeit der MEA-Breiten (gesamt und über eingebrachte Alignmentfeatures) Sollwerte: 141.0 mm, Alignments: 137.8 mm23 |
| Abbildung | 17: | a) Schnittkante einer GDL b) Ausbruch des GDL-Fasersubstrats und Ablösung von der mikroporösen Schicht (MPL) nach thermischer Fixierung der GDL |
| Abbildung | 18: | Beispiel der Vermessung der Ebenheit einer Endplatte a) Darstellung der Messlinien b) Auswertung |
| Abbildung | 19: | Prozessablauf zúr Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) am Fraunhofer ISE mittels Siebdruck |
| Abbildung | 20: | Geräte zur Produktion von Katalysatorschichten, welche im Rahmen von HyFaB bereits geliefert und in Betrieb genommen wurden26 |
| Abbildung | 21: | Glovebox-System zur Herstellung von Katalysatortinten in einer inerten Atmosphäre |
| Abbildung | 22: | Prozessentwicklung während des HyFaB-Projekts beginnend mit manuellem Siebdruckprozess per Hand bis hin zum Ende des Projektes mit der halb-automatischen Herstellung von großflächigen Katalysatorschichten mittels EKRA Siebdruckers |

| Abbildung 23: | Decalfolien nach dem Transferprozess. Bei geringen Beladungen (links) erkennt man kaum Katalysator-Rückstände. Bei höheren Pt- |
|---|--|
| Abbildung 24: | Beladungen (rechts) sind leichte Ruckstande erkennbar |
| Abbildung 25: | Erfolgreiche Druckversuche zur Herstellung der vergrößerten aktiven Fläche (Generischer Stack) im Vergleich zu den herkömmlichen 20cm ² (links). Eine größere Pastenmenge wird verwendet (Bild Mitte), sowie größere Trocknungscarrier (Bild rechts) |
| Abbildung 26: | Multifunktionalen Druckanlage "EC 80" von Coatema mit Schlitzdüse, Flexo- und Gravurdruck, sowie inerter Konvektionstrocknung, NIR & UV Trocknung, welche im Rahmen des Projektes beschafft wurde und nun am Fraunhofer ISE im Labor "HvFaB" steht |
| Abbildung 27: | Zeitliche Entwicklung und Aufbau des Labors "HyFaB" am Fraunhofer ISE zur Herstellung von Katalysatorschichten |
| Abbildung 28: | Laborinfrastruktur am Fraunhofer ISE zur Herstellung von Katalysatorschichten, welche während des HyFaB-Projekts aufgebaut wurde |
| Abbildung 29: | Strom-Spannungskennlinien für verschiedene GDLs, gemessen unter H2/Luft, a) 80°C, 2bara und 100 % RH b) 80°C, 2bara und 40 % RH 32 |
| Abbildung 30: | Messvorrichtung zur Bestimmung der Leitfähigkeit/Kontaktwiderstand von GDLs |
| Abbildung 31: | Zünd Schneidplotter eingerichtet zum Schnitt von PEN- Randverstärkungsfolien |
| Abbildung 32: | Zuschnitts einer PEN-Randverstärkungsfolie für das generische Stackdesign. a) Gesamtbild b) Detail des Portzuschnitts |
| Abbildung 33: | Zur Prozessvalidierung hergestellte "Dummy-MEA" mit PEN- Folienrahmen; a) Gesamt-MEA; b) Ausschnitt Portkanal und GDL- Ansatz |
| Abbildung 34: | Schematischer Ablauf des MEA-Fertigungsprozesses mit Einzelschritten und benötigter Geräte/ Maschinen |
| Abbildung 35: | Zeichnungen der Zuschnitte der Randverstärkungsfolie a) vor MEA- Fertigung (links) und b) finaler Zuschnitt nach MEA-Fertigung, sowie GDL Zuschnitt (rechts, türkis) |
| Abbildung 36: | Rendering der Stapel- und Ausrichtvorrichtung "Dreifaltigkeit Randverstärkung" |
| Abbildung 37: | Stapelung der Komponenten Randverstärkung und CCM mit "Dreifaltigkeit Randverstärkung" |
| Abbildung 38: | Kaltlaminiergerät (links) und Heißpresse (rechts) des MEA- Fertigungsprozesses |
| Abbildung 39: | Rendering der Stapel- und Ausrichtvorrichtung "Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage" |
| Abbildung 40: | Stapelung der Komponenten randverstärkte CCM und GDL mit "Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage" |
| Abbildung 41: | Typische Fehlerbilder der MEA-Lamination a) Blasenbildung zwischen den beiden PEN-Folien b) Wellenbildung41 |
| Abbildung 42: Abbildung 43: Abbildung 44: | Variationsraum der Fertigungsparameter |

| Abbildung 45: | CFD-Simulation der Geschwindigkeitsverteilung der Medienströmung |
|---------------|---|
| Abbildung 46: | CFD-Simulation der Reaktandenverteilung a) anodenseitig b) kathodenseitig |
| Abbildung 47: | Ablauf des Entwurfs und der praktischen Umsetzung des generischen Stacks |
| Abbildung 48: | 2D-Zeichnungssatz für die Bipolarplatte des generischen Stacks46 |
| Abbildung 49: | 7-Lagen MEA-Konstruktionsunterlagen |
| Abbildung 50: | Explosionszeichnung und Umsetzung der Balance of Stack des generischen Stacks 48 |
| Abbildung 51: | Generischer Stack: vom 3D-Rendering zur Realisierung eines 320- zelligen Stacks |
| Abbildung 52: | Kurzstapel-Kennlinie des "generischen Stacks" unter Referenzbedingungen (kommerzielle CCM) bei nicht optimierten Betriebsbedingungen |
| Abbildung 53: | HyFaB-Prüfstände a) Leistungsklasse bis 3 kW b) Leistungsklasse bis 10 kW |
| Abbildung 54: | Einfahrprotokolle a) einstufig, b) zweistufig |
| Abbildung 55: | Dauertestprotokoll a) Lastzyklus (100% Last entsprechen einer Stromdichte von 1.5 A·cm ⁻²) b) Testprotokoll |
| Abbildung 56: | Spannungsentwicklung über Zeit in einem Dauerversuch mit dynamischem Lastprofil |
| Abbildung 57: | Auswahl an Infrarotbildgebung von rückseitig mit Wasserstoff bespülten MEAs, die nach Protokoll a) und b) eingefahren wurden53 |
| Abbildung 58: | Entwicklung der Zellspannung bei einem Laststrom von 1.5 A·cm ⁻² über die Versuchsdauer a) Erstversuch b) Wiederholung des Versuchs |
| Abbildung 59: | Analyse der Impedanzspektren über die Betriebszeit (b in Abbildung 58) |
| Abbildung 60: | Elektrodenquerschnitte nach Konditionierung. Man erkennt einen höheren Ionomeranteil in den Proben nach Schnellkonditionierung55 |

Tabellenverzeichnis

| Tabelle 1: Tabelle 2: | Genereller Strukturplan des Vorhabens |
|--------------------------|--|
| Tabelle 3: | Zum Erlangen eines ersten Eindrucks und der Einflüsse der Parameter wurden verschiedene Versuchsdurchläufe mit Variation der Parameter durchgeführt |
| Tabelle 4: | Versuche mit konstantem Verpressdruck von 100 bar und Variation der Temperatur, sowie Einfluss der Schaumstofftiefe. Am Ende des Pressprogramms wird erst die Temperatur, danach der Druck gesenkt. |
| Tabelle 5: | Versuche mit konstanter Verpresstemperatur von 140°C und Variation des Drucks, sowie Einfluss mit vorherigem Kaltlaminieren, bzw. ohne vorheriges Kaltlaminieren. Am Ende des Pressprogramms wird erst die Temperatur, danach der Druck gesenkt |
| Tabelle 6: | Verwendung von 3 mm Blechen zum Verpressen und dazu passender neuer Kaptonfolie, sowie frischem Silikon40 |
| Tabelle 7: | Versuchsbewertung (1 = sehr schlecht 10 = sehr gut) |
| Tabelle 8: | Stack-Design-Parameter aus FVV Umfrage |
| Tabelle 9: | Betriebsphasen des Dauerversuchs51 |
| Tabelle 10: | Schulungen zu BZ-relevanten Themen55 |
| Tabelle 11: | Durchgeführte Workshops |

Kurzbeschreibung der Forschungsergebnisse

Das Projekt HyFaB-Baden-Württemberg – Forschungsfabrik für Brennstoffzellen und Wasserstoff ist ein gemeinsames Projekt des ZSW, Fraunhofer ISE und des VDMA mit finanzieller Unterstützung des Ministeriums für Umwelt, Klima und Energiewirtschaft (UM) und des Minsteriums für Wirtschaft, Arbeit und Torismus Baden-Württemberg (WM). Im Projektverlauf ist es gelungen, weitere Mittel aus dem Bundesministerium für Digitales und Verkehr einzuwerben. Ziel des Projekts ist die Unterstützung der sich im Aufbau befindlichen Brennstoffzellenindustrie in Deutschland beim Übergang von der handwerklichen Montage zur industrialisierten Fertigung zu unterstützen.

Die Schwerpunkte der Forschungsarbeiten sind Verfahren zur Fertigung von Brennstoffzellenstacks und deren Komponenten. Hierzu gehören die Herstellung von Elektrode-Membran-Einheiten (MEA) die Montage, End-of-Line Prüfung, Inbetriebnahme und Testung von Brennstoffzellenstacks und deren Komponenten einschließlich der Erstellung und Bewertung von Qualitätssicherungsverfahren.

Die Bereitstellung eines generischen Stacks nahe dem Stand der Technik als Einstiegsplattform für Newcomer, insbesondere für kleine und mittlere Unternehmen erlaubt einen schnellen Zugang zur Technologie und bietet eine herstellerunabhängige, einheitliche Hardware für Partner aus Forschung und Industrie, über die ein übergreifendes Branchenwissen erzeugt werden kann.

Darüber hinaus ist die Aus- und Weiterbildung von Fachkräften sowie die Information der Öffentlichkeit Bestandteil des Projekts. HyFaB wird so in der aktuell stattfindenden Industrialisierungs- und Markteinführungsphase einen Beitrag liefern, um "das Rad zum Rollen" zu bringen.

Im Projekt wurden die Schlüsselprozesse zur Fertigung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) detailliert untersucht und wichtige Schlüsselparameter erforscht. Im Dialog mit Vertretern der Zulieferindustrie und Verbänden wurden die Spezifikationen eines generischen Stacks für Anwendungen im Verkehr erarbeitet, dessen Komponenten im Projektverlauf auskonstruiert und mit einem erfahrenen Hersteller von Brennstoffzellenkomponenten in die Praxis umgesetzt wurden. Hierbei konnten die spezifischen Leistungsanforderungen aus der Spezifikationsphase erreicht werden.

Bestandteil von HyFaB war auch die Ertüchtigung der Forschungsinfrastruktur der beteiligten Forschungsinstitute. Im Projektverlauf konnten moderne Anlagen zur Herstellung und Qualitätssicherung von CCM sowie zur Fertigung und Prüfung von Stacks konzipiert und in Betrieb genommen werden.

Die Konstruktionsunterlagen des generischen Stacks sowie die aufgebaute Forschungsinfrastruktur stehen der Branche auf Nachfrage diskriminierungsfrei zur Durchführung von Forschungs- und Entwicklungsvorhaben zur Verfügung.

Motivation und Hintergrund des Vorhabens

Der globale Klimawandel fordert einen zügigen Übergang zu CO₂-freien Energieträgern, wodurch elektrischer Strom aus regenerativen Quellen wie Sonnenoder Windenergie eine zentrale Bedeutung zukommt. Zwar ist das Angebot an Wind und Sonnenstrahlung über einen längeren Zeitraum verlässlich, allerdings kann das Angebot nicht bedarfsgerecht beeinflusst werden. Aus diesem Grund ist der Einsatz von Speichertechnologien zum Lastmanagement über einen Zeitraum von wenigen Minuten bis hin zum saisonalen Ausgleich von Angebot und Nachfrage zwingend notwendig. Wiederaufladbare Batterien können diese Funktion bis zu mehreren Stunden übernehmen. Längerfristige, saisonale Lastausgleichsszenarien benötigen jedoch einen stofflichen Speicher, der mittels elektrischem Strom hergestellt werden kann, wofür sich die elektrolytische Zersetzung von Wasser in seine Bestandteile Wasserstoff und Sauerstoff anbietet. Sogenannter "grüner Wasserstoff", hergestellt durch Elektrolyse mit Strom aus erneuerbaren Quellen, kann vielseitig als Energiespeicher, Kraftstoff im Verkehr oder für industrielle Zwecke eingesetzt werden.

Der Einsatz von Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen (PEFC) ist eine aussichtsreiche Option, um mit Wasserstoff als Kraftstoff CO₂-freie und lokal emissionsfreie Mobilität zu gestalten. Brennstoffzellenbetriebene Fahrzeuge werden erfolgreich im Alltag eingesetzt. Derzeit liegt der Schwerpunkt der Entwicklungen beim Antrieb schwerer Nutzfahrzeuge. Darüber hinaus können PEFC auch für andere Anwendungen in der Energietechnik eingesetzt werden.

Deutschland verfügt sowohl im industriellen als auch im Forschungsumfeld über ausgezeichnete Kapazitäten in der PEFC Forschung und Entwicklung. Verschiedentlich wurden bereits Pilotproduktionslinien errichtet. Für die nächste Stufe der praktischen Umsetzung sind Fragen zur großvolumigen Serienproduktion von Brennstoffzellenstapeln zu lösen. Dazu müssen Fertigungsprozesse über die gesamte Wertschöpfungskette enwickelt und in Form einer industriellen Zulieferkette etabliert werden. Parallel müssen Fachkräfte geschult bzw. qualifiziert werden.

Im Hinblick auf Leistung und Lebensdauer hat die Brennstoffzellentechnik in den letzten Jahren erhebliche Fortschritte gemacht. Diese technologischen Fortschritte müssen nun industrialisiert werden, um den zu erwartenden Markthochlauf der Technologie begleiten zu können.

Gegenüber der heute weitgehend manuell geprägten Fertigung werden komplett neue Produktionsverfahren erforderlich. Besondere Herausforderungen stellen hier die hohe Anzahl an zu verarbeitenden Teilen zur Stapelherstellung (ca. 350-400 Zellen à mindestens zwei handzuhabende Komponenten) vor dem Hintergrund folgender Aspekte dar:

- Qualifizierung von Materialien und Komponenten (Halbzeugen)
- Herstellung der Komponenten
 - Katalysatorbeschichtete Membran (CCM)
 - Gasdiffusionslage (GDL)
 - Bipolarplatte
- Prozesse zur Qualitätssicherung während der Herstellung und Verarbeitung der Komponenten
- Stapelaufbau
- Endabnahmetest (Fabrikabnahmetest)
- Stapelerstinbetriebnahme

Im Rahmen des Projekteverbunds HyFaB wurde eine Plattform geschaffen, um die erforderlichen Prozesse und Anlagen zum Aufbau einer schnellen Serienfertigung von PEFC-Stapeln sowie die dazu gehörigen Schritte zur Qualifizierung und Qualitätssicherung zu erforschen. Erste Anlagen für Einzelprozesse wurden konzipiert. Die einzelnen Prozesschritte sollen grundsätzlich miteinander verknüpfbar sein und der physische Material / Komponentenfluss durch einen Informationsfluss begleitet werden. Der Fokus der Arbeiten lag jedoch zunächst auf Einzelprozessen.

Ein weiterer wesentlicher Baustein der HyFaB-Aktivitäten neben der Prozessentwicklung ist die Bereitstellung einer guelloffenen Stackplattform für Forschungsund Entwicklungszwecke, mit Hilfe derer Forschungs-und Entwicklungsarbeiten in einem offenen Dialog durchgeführt werden können. HyFaB schafft so eine Plattform zur Durchführung von F&E-Projekten mit dem Ziel, die Voraussetzung für die Fertigung von Brennstoffzellenstapeln in für die automobile Serienproduktion typischen Qualitäten und Stückzahlen zu erforschen.

Aufgabenstellung

Tabelle 1 zeigt einen generellen Strukturplan des HyFaB-Vorhabens in der Konzeptions- und Implementierungsphase. Die zugehörigen Arbeiten sind auf verschiedene Vorhabensbausteine aufgeteilt.

| AP B: Bau | AP Q: Qualifizierung von Materialien und Qualitäts- sicherung von Komponenten | AP H: Schnelle Herstell- prozesse für die Serien- produktion von PEFC- Stapeln | AP T Information, Aus- und Weiterbildung |
|--|--|--|--|
| B1: Planung & Genehmigung Bauabschnitt 1 | Q1: Definition Qualitätsparameter | H1: Konzept CCM- Herstellverfahren | T1: Allgemeine Schulung |
| B2: Bau Ausführung Bauabschnitt 1 | Q2: neue analytische und QS-Verfahren für Komponenten | H2 Konzept GDL Herstellverfahren | T2: Spezifische Schulungen |
| B3: Bau Inbetriebnahme Phase 1 | Q3: Erprobung von QS- Verfahren | H3: Konzept MEA- Assemblierung | T3: Expertenworkshops |
| B4: Planung und Genehmigung Bauabschnitt 2 | Q4: Unterstützung Harmonisierung und Standardisierung | H4: Schnelle Stapelprozesse | |
| B5: Bau Ausführung Bauabschnitt 2 | | H5: Fabrikabnahmetest | |
| B6: Bau Inbetriebnahme Bauabschnitt 2 | | H6: Schnelle Inbetriebnahme / Konditionierung | |

Tabelle 1:Genereller Strukturplan des Vorhabens

Arbeitspaket B, Erstellung eines F&E-Gebäudes

Zur Durchführung der in HyFab vorgesehenen Arbeiten ist ein für die Zwecke passendes, multifunktionales Gebäude entstanden, in dem die Arbeiten zu den

technischen Arbeitspaketen ganzheitlich durchgeführt werden können. Die Erstellung des Gebäudes erfolgt in mehreren Bauphasen.

In einem ersten Bauabschnitt wurde ein Gebäude mit aufwändiger Medienversorgung, Lüftungs- und Sicherheitstechnik zur sicheren und "unbemannten" Durchführung und Überwachung von Brennstoffzellentests und Inbetriebnahmeversuchen erstellt. Die Medienversorgung (vor allem Brenngas, Inertgase, Luft, Sauerstoff, Kühlmedium etc.) musste dabei den Qualitätsanforderungen für Brennstoffzellen entsprechen. Ferner sind entsprechend dimensionierte Elektroversorgungen sowie Kälteanlagen zum Betrieb von Prüfständen erforderlich. Die beim Bau installierten Leistungen der Zuleitungen müssen auch zukünftigen Erwartungen an HyFab gewachsen sein.

In einer zweiten Bauphase, die mit Mitteln außerhalb des hier berichteten Vorhabens finanziert wird, wurde ein Gebäude zur Erprobung der Herstelltechnik von Brennstoffzellenstapeln errichtet. Für die dort durchzuführenden Versuche sind Räume mit konditionierter Atmosphäre (maximale Partikelzahl, Temperatur und Luftfeuchtigkeit) erforderlich, um mit den feuchtigkeits- und staubempfindlichen Brennstoffzellenmaterialien umgehen zu können.

Aus- und Weiterbildung ist ebenfalls Bestandteil der HyFaB-Aktivitäten. Hierzu wurden Schulungen durchgeführt und Schulungsmodule erstellt, die in Zukunft auch praktische Anteile enthalten.

HyFaB verfügt daher in einer zweiten Bauphase über entsprechende Räume für Herstelltechnik und für Schulungszwecke.

Arbeitspaket Q: Qualifizierung von Materialien und Qualitätssicherung von Komponenten

Qualifizierung bezieht sich auf der Erarbeitung der Anforderungsprofile für Materialien und Komponenten und den Nachweis der Tauglichkeit für die erforderlichen weiteren Verarbeitungsschritte. Daran schließt sich die Erarbeitung und Erprobung von Qualitätssicherungskonzepten für Materialien und Komponenten (Halbzeugen) für die Verarbeitung mit hohen Geschwindigkeiten an. Die abschließende Prüfung der Verarbeitungsqualität erfolgt auf Komponenten- und Stackebene.

Qualitätssicherung bezieht sich auf die Entwicklung und Implementierung von Testund Inspektionsverfahren während des Herstellungsprozesses und an Schnittstellen beziehungsweise Übergabestellen von Materialien und vorverarbeiteten Komponenten.

Arbeitspaket H: Schnelle Herstellprozesse für die Serienproduktion von PEFC-Stapeln

(AP Q) Voraussetzung für die Versuche zur Qualitätssicherung und Stackplattform, Fertigungstechnik (AP H) ist eine generische die ohne durch Vertraulichkeitsvereinbarungen für Forschungs-Einschränkungen und Entwicklungszwecke genutzt werden kann. Eine solche Plattform wurde im Projekt in einer ersten Generation entwickelt und steht nach Projektabschluss der Branche für weiterführende Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Verfügung.

Herstellung und Verarbeitung bezieht sich auf Herstellung von Komponenten beziehungsweise deren Weiterverarbeitung zum Brennstoffzellenstapel mit dem Ziel, die erforderlichen Elementaroperationen in einer für eine automobile Serienproduktion passenden Geschwindigkeit zu erforschen und zu entwickeln. **Abschlussprüfung** bedeutet die Sicherstellung des Herstellungs- und Verarbeitungserfolgs, um so gleichmäßige Qualität, Leistung und Lebensdauer bei der Übergabe sicherzustellen. Hierzu gehört gegebenenfalls auch eine Konditionierung der Komponente oder des Stacks.

Arbeitspaket T: Training, Aus- und Weiterbildung

Die Produktion von Brennstoffzellen mit für die Automobilserienproduktion geeigneten Geschwindigkeiten erfordert neben der Bewältigung technischer Herausforderungen auch umfangreiche Qualifikationsmaßnahmen für die Beschäftigten. Aus diesem Grund wurde ein gesondertes Arbeitspaket zur Erarbeitung der erforderlichen Qualifikations- und Weiterbildungsmaßnahmen definiert und in ersten Schulungsmaßnahmen erprobt. In diesem Rahmen wurde auch ein Forum für Experten zum Erfahrungsaustausch geschaffen.

Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

HyFaB ist als Verbundvorhaben konzipiert. Als Kernteam dienen das Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW) und das Fraunhofer-Institut für Solare Energiesysteme (ISE). Beide Organisationen sind schwerpunktmäßig an unterschiedlichen Stellen entlang der Wertschöpfungskette der PEFC-Stapelherstellung tätig.

- ISE bearbeitet bevorzugt Themen zur Qualifikation, Herstellung und Qualitätssicherung von Elektrolytmembranen und Gasdiffusionslagen.
- ZSW ist vorwiegend in der Assemblierung von Elektrode-Membran-Einheiten (MEA) und Stapeln sowie bei Fabrikabnahmetests und der Erstinbetriebnahme von PEFC Stapeln tätig.

ISE und ZSW haben langjährige Vorerfahrung in den jeweiligen Themenfeldern, die in das Projekt eingebracht werden. Seitens ZSW wird das Konzept des generischen Stacks in das Projekt eingebracht. Die Grundspezifikationen und das Basisdesign dieses Stacks wurden im Dialog mit Industrieunternehmen im Rahmen eines von der Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen (FVV) geförderten Projekts mit dem Ziel entwickelt, über eine für die Branche offene Stackplattform zu verfügen.

Planung und Ablauf des Vorhabens

Abbildung 1 zeigt die Wertschöpfungskette der PEFC-Stapelherstellung und die Tätigkeitsschwerpunkte der beiden Kernteampartner. Die Schnittstelle ist beschrieben durch die Zusammenführung der katalysatorbeschichteten Membran und der Gasdiffusionslage zur Membran-Elektroden-Einheit (MEA), die anschließend mit den sogenannten Bipolarplatten und den sogenannten "Balance of Stack"-Komponenten (BoS) zum PEFC-Stapel verarbeitet werden.

Notwendigerweise ergeben sich an der Schnittstelle sowie übergreifend Fragestellungen, die einen intensiven Dialog zwischen den Partnern des Kernteams erfordern. Abbildung 2 zeigt dies exemplarisch am Beispiel der Schnittstelle MEA.

Zur Herstellung eines PEFC-Stapels werden funktional und handhabungsmäßig abgestimmte Konzepte für die CCM (Leistungserzeugung), GDL (Mediendiffusion zur Katalysatorschicht und Wärmeableitung) sowie Stapel- / Bipolarplattendesign (Medienverteilung und Wärmeabfuhr) benötigt. Diese erfordern ein abgestimmtes CCM-Konzept, das über Beschichtungs- und Qualitätssicherungsprozesse physisch dargestellt wird. Gleiches gilt für die GDL.



Abbildung 1: Wertschöpfungskette der PEFC-Stapelherstellung und Tätigkeitsschwerpunkte der Mitglieder des Kernteams.



Abbildung 2: Wechselwirkung zwischen den Wertschöpfungsstufen am Beispiel CCM / MEA An der physischen Übergabeschnittstelle von CCM und GDL zur MEA-Assemblierung wird die Einhaltung verabredeter Handhabungseigenschaften für die MEA-Assemblierung relevant. Nachfolgend muss in einem Validierungstest die Einhaltung der vereinbarten Leistungs- und Lebensdauerspezifikationen im vollen Format des PEFC-Stapels nachgewiesen werden. Bei Abweichungen muss die Schleife Konzepterstellung, CCM- / GDL-Herstellung, MEA- und Stack-Assemblierung und Validierungstest erneut durchlaufen werden.

In der nachfolgenden Tabelle 2 sind exemplarisch einige Wechselwirkungen zwischen Stapel / Zelldesign und CCM / GDL-Eigenschaften dargestellt: Man erkennt deutlich, dass die Eigenschaften stark miteinander gekoppelt sind und eine enge Abstimmung zwischen den Teilbereichen zwingend nötig ist.

| Tabelle 2: | Exemplarische Aufzählung der Korrelation Komponenteneigenschaft |
|------------|---|
| | und Stapeleigenschaft |

| CCM / GDL-Eigenschaft | Stapeleigenschaft |
|--|--|
| Katalysatorschichtaufbau | Leistungsdichte Lebensdauer Stofftransport |
| Katalysatorwahl | Leistungsdichte Lebensdauer |
| GDL-Benetzungseigenschaft | Wasserübertrag aus der Katalysatorschicht in die Strömungskanäle Wasserrücktransport in der Membran |
| GDL-Mechanik | Maximale Kanalbreite der Bipolarplatte Orientierung beim Einbau |
| GDL-Wärmeleitfähigkeit bzw. elektrische Leitfähigkeit | Leistungsdichte Lebensdauer BPP-Konstruktion |
| GDL-Handhabung | Greifer für die Weiterverarbeitung Staubanfall Positionierung |
| CCM: Membran / Schneideeigenschaften | Mikrokurzschlüsse über die Schnittkante Verschmieren der Membran Haftung von Randverstärkungsfolien |
| Porosität der Katalysatorschicht | Siegeleigenschaften der Randverstärkung Stofftransport in der Katalysatorschicht Thermische & elektrische Leitfähigkeit |
| | |

Über die wechselseitigen Abhängigkeiten der Eigenschaften von CCM, MEA und Stack sind die am ISE und am ZSW durchgeführten Projektteile eng miteinander gekoppelt.

ZSW und ISE haben unterschiedliche, sich ergänzende Erfahrungen und Hintergründe in der Herstellung und Entwicklung von MEAs, CCMs bzw. GDLs.

Der Erfahrungshintergrund am ZSW resultiert aus dem Blickwinkel eines Brennstoffzellen-Stapelentwicklers. ZSW verfügt über Charakterisierungsverfahren für GDL / CCM wie Mikro-CT zur Bestimmung der GDL-Intrusion in Gasverteilerkanäle sowie über Anlagen zur Bestimmung der äußeren und inneren Kontaktwinkel. Aufgrund der Vorerfahrungen in der PEFC-Stapelentwicklung verfügt das ZSW über umfangreiches Erfahrungswissen gepaart mit Erfahrungen zur Übertragung von Modellierungsrechnungen zur Strömungs- und Wasserverteilung in PEFC-Stapeln auf deren Leistungs- und Lebensdauerdaten.

ISE hat vertiefte Erfahrungen in der Herstellung und Optimierung von Katalysatorschichten und GDL mit unterschiedlichen Beschichtungsverfahren. Im Rahmen von HyFab kann so auf die spezifischen Erfahrungen beider Institute zurückgegriffen werden.

Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Im Verlauf des Vorhabens ergaben sich intensive Dialoge mit verschiedenen Instituten der Fraunhofer-Gesellschaft sowie mit Industrieunternehmen hinsichtlich der Nutzung der Komponenten des generischen Stacks in parallel laufenden Forschungs- und Entwicklungsprojekten.

Zusätzlich wurde das Projekt durch einen industriellen Interessenten- und Steuerkreis begleitet, dessen Anregungen in der Planungs- und Durchführungsphase eingeflossen sind.

ISE und ZSW waren ferner an der Erstellung des vom NRC Canada koordinierten "Book of attributes" beteiligt, in dem die Qualitätskriterien und Messverfahren für MEAs gesammelt und dokumentiert werden.

Beitrag der Ergebnisse zu den Zielen des Förderprogramms

Brennstoffzellen sind ein Schlüsselelement der Wasserstoffnutzung und damit zur Reduktion der Emissionen von CO₂ und anderen bei Verbrennungsprozessen entstehenden Luftschadstoffen vor allem für Anwendungen im Schwerverkehr. Im Projekt wurden Fertigungsverfahren für Brennstoffzellenkomponenten und -stacks entwickelt. Die Ergebnisse sind in Einklang mit den folgenden Teilzielen des BWPLUS-Programms:

- Erneuerbare Energien
- Umwelt und Ökosysteme
- Wasserstoffwirtschaft und -forschung

Im Projekt wurden Schlüsselprozesse zur Fertigung von Brennstoffzellen erforscht und mit dem "generischen Stack" eine offene Forschungsplattform geschaffen, die von den Projektpartnern und anderen Organisationen der Branche in Zukunft für weitergehende Forschungs- und Entwicklungsarbeiten genutzt werden können.

Erzielte Ergebnisse

Arbeitspaket B:

Für HyFaB wurde ein neues Forschungsbebäude am ZSW-Standort Lise-Meitner-Straße 24 errichtet. Der erste Bauabschnitt wurde über Mittel des Projekts HyFaB- BaWü sowie Eigenmitteln des ZSW finanziert. Ein zweiter Bauabschnitt wurde aus EFRE-Mitteln kofinanziert. Die neuen Institutsgebäude beinhalten Räume und Anlagen für Brennstoffzellentests. Der zweite Bauabschnitt beinhaltet Räumlichkeiten für Anlagen zur Brennstoffzellenstackfertigung, weitere Büroflächen sowie einen Seminartrakt für Aus- und Weiterbildungsmaßnahmen. Zusätzlich zu den Funktionsräumen wurden Büroflächen für die Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter der in die HyFaB-Aktivitäten eingebundenen Fachgebiete geschaffen.

Abbildung 3 zeigt die Planung der beiden Bauabschnitte. Im ersten Bauabschnitt wurden die Medienversorgung (Wärme, Kälte, Elektro, Wasser, Prozessgase) sowie 900 m² Büroflächen und 2 200 m² Funktionsflächen für bis zu 50 Teststände für Brennstoffzellenstacks verschiedener Leistungsklassen geschaffen. Die Funktionsflächen sind mit vollständiger Medienversorgung (Wasserstoff, Prozessluft, Stickstoff, Argon, CO₂, Sondergase, Prozesswasser sowie Prozesskälte) versehen. Die Planungsarbeiten für den ersten Bauabschnitt begannen im Jahr 2020, die zugehörigen Gebäude wurden im Juni 2022 in Betrieb genommen.



HyFaB-2: 02/2022 - 03/2023

HyFaB: 02/2021 - 06/2022

Abbildung 3: HyFaB-Bauplanung. Bauabschnitt 1 war Bestandteil des Projekts.

Abbildung 4 zeigt einen Blick in die Testhalle. Zur Zeit sind mehr als 30 Prüfstände mit Leistungen zwischen 3 kW und 250 kW installiert und betriebsfähig. Bis zum Jahresende 2023 ist vorgesehen weitere Prüfstände zu installieren, so dass eine Gesamtzahl von 50 Prüfstände erreicht wird.



Abbildung 4: Blick in die Testhalle des Bauabschnitts 1.

Der Erfolg des Tests von Brennstoffzellenstacks ist abhängig von der Qualität der zugeführten Medien Wasserstoff, Prozessluft und Prozesswasser. Die Qualität der Prozessluft und des Prozesswassers wird über aufwändige Reinigungs- und Filteranlagen sichergestellt. Wasserstoff wird in der Regel über Trailer angeliefert. Die bevorzugte Quelle stammt aus der Chlor-Alkalielektrolyse in Gersthofen bei Augsburg. Die vereinbarte Qualität entspricht 5.0, also 99.999% Wasserstoff. Jedoch unterscheiden sich die Qualitätsstufen des technischen Gasehandels von der Spezifikation für Wasserstoff als Kraftstoff. Letztere fordert zwar nur einen Wasserstoffgehalt von > 99,97%, spezifiziert aber einzelne Verunreinigungen wie CO, CO₂, Schwefel oder Halogenide in sub-ppm Konzentrationen. Aus diesem Grund werden die Wasserstofflieferungen mit Hilfe eines aufwändig ausgestatteten Qualitätslabors überwacht, das an die Wasserstoffversogung der Testhalle angschlossen ist. Mit den dort installierten Anlagen können die in der Kraftstoffnorm spezifizierten gasförmigen Verunreinigungen detektiert und guantifiziert werden. Abbildung 5 zeigt einen Blick in das Wasserstoffqualitätslabor mit den dort aufgestellten Analysengeräten.



Abbildung 5: Wasserstoffqualitätslabor im Bauabschnitt 1.

Ein zweiter Bauabschnitt wurde im Februar 2022 begonnen und wird zum Zeitpunkt der Berichterstellung (September 2023) bezogen.

In diesem Bauabschnitt stehen 2 x 900 m² an Funktionsfläche für Forschungsarbeiten Brennstoffzellenstacks Fertigung von sowie zur Untersuchung und zur Qualitätssicherung von Komponenten wie Bipolarplatten, Gasdiffusionslagen und BoS-Komponenten zur Verfügung. Der Fertigungsbereich kann klimatisiert und im Hinblick auf Luftfeuchte kontrolliert werden. Einzelne Bereiche des Fertigungsbereichs sind mit Reinraumtechnik versehen, so dass die Herstellung von Brennstoffzellenstapeln unter reduzierter Partikelbelastung erfolgen kann.

Ein Seminartrakt, ein Computerserverraum für Modellierungsarbeiten und weitere Büroarbeitsplätze ergänzen die Funktionsräume. Abbildung 6 und Abbildung 7 zeigen die HyFaB-Gebäude aus verschiedenen Blickwinkeln.



Abbildung 6: HyFaB Gebäude. Im Vordergrund sind das Gaselager sowie der Bauabschnitt 1 zu sehen.



Abbildung 7: HyFaB Gebäude. Im Vordergrund sind die Funktionsräume des Bauabschnittes 2 sowie der Seminar- und Bürobereich zu sehen.

Arbeitspaket Q: Qualifizierung von Materialien und Qualitätskontrolle von Komponenten

AP Q1: Definition der Qualitätsparameter

Allgemeine Qualitätskriterien für MEAs

Im Rahmen der Arbeiten wurde in internationaler Kooperation ein Qualitätsleitfaden für Membran-Elektrodeneinheiten (MEA) erstellt und veröffentlicht. Dieser behandelt die wesentlichen Bestandteile und Funktionen der MEA wie in Abbildung 8 dargestellt. Hauptautoren der Studie sind Xiao-Zi Yuan (NRC, Kanada) und Dr. Nada Zamel (Fraunhofer ISE). Mitautoren sind Christine Nayoze (CEA, Frankreich), Nima Shaigan (NRC, Kanada), David Fischer (ElringKlinger), Nana Zhao (NRC, Kanada), Pawel Gazdzicki (DLR), Micha-el Ulsh (NREL, USA), Ulf Groos (Fraunhofer ISE), Francois Girard (NRC, Kanada).



Abbildung 8: Aufbau und Funktionen einer 7-Lagen MEA

Das "Book of Attributes" wurde im Journal of Power Sources veröffentlicht und ist unter

https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2021.229540

der Fachöffentlichkeit aus Forschung und Industrie zugänglich.

Qualitätskriterien für Bipolarplatten und Stacks

Für die Assemblierung von Brennstoffzellenstacks sind die genaue Kenntnis der Abmessungen und Toleranzen der Bauteile Bipolarplatten (BPP) und Membran-Elektroden-Einheit (MEA) sowie der sogenannten "Balance of Stack" (BoS) wesentliche Elemente zum Aufbau eines Qualitätssicherungssystems.

Zur genauen Vermessung von Komponenten wurde ein Koordinatenmesszentrum angeschafft, mit dessen Hilfe die Abmessungen der Brennstoffzellenkomponenten im Detail vermessen werden können. Hierzu gehören:

- Außenabmessungen sowie Konturen von Manifolds
- Höhenstrukturen aus der Bipolarplatte und der MEA
- Profile von Gasverteilerstrukturen auf den Bipolarplatten
- Dichtungshöhen und Dichtungsprofile
- Abweichungen von Sollmaßen z.B. durch thermische Verwerfungen während des Herstellprozesses metallischer Bipolarplatten (Knackfrosch)

Mit den Koordinatenmessmaschinen sind Prüfungen sowohl taktil als auch über optische Methoden durchführbar. Abbildung 9 zeigt eine Auswahl an Stapel Komponenten, deren Konturen im Zuge von Qualitätssicherungsmaßnahmen im Detail vermessen werden müssen.



Abbildung 9: Wiederholeinheiten eines Brennstoffzellenstacks. von links nach rechts: unten: Halbschalen einer Bipolarplatte graphitisch mit mäanderförmigem Kathoden- und Anodengasverteilerfeld. (Der Kühlmittelverteiler befindet sich rückseitig auf der Kathodenhalbschale) sowie metallische Bipolarplatte. oben: 7-Lagen Membran-Elektroden-Einheit (MEA)

Die taktile Messung von Konturen der Probekörper ist problemlos durchführbar. Ebenso ist die optische Vermessung von Konturen auf Bipolarplatten und MEAs sowie die Bestimmung der Lage und Abmessungen der Dichtung im Aufsichtverfahren problemlos darstellbar.

Die optische Vermessung der Gasverteilerstrukturen erwies sich wie erwartet als herausfordernd, da je nach Blickwinkel Spiegelungen an den Kanal-Steg-Übergängen zur Irritationen der optischen Sensoren führten.

Abbildung 10 zeigt ein typisches Ergebnis einer Versuchsmessung an einer graphitischen Bipolarplatte. Man erkennt in Abbildung 10 a) deutlich die feinen Kanal-Steg-Strukturen des Gasverteilers sowie die breite Stegstruktur des Überströmschutzes. Abbildung 10 b) zeigt Tiefenprofile der Platte unter verschiedenen Beleuchtungswinkeln.



Abbildung 10: Ergebnisse von Probemessungen an der Koordinatenmessmaschine a) Linie der Tiefenprofilmessung

b) Schnitte unter verschiedenen Beleuchtungswinkeln

Durch Superposition mehrerer Beleuchtungseinstellungen können die Kanal-Steg-Strukturen von Bipolarplatten unter Zuhilfenahme der Dreh-Schwenk-Einheit an den Sensoren mit hinreichender Genauigkeit in einer Aufspannung vermessen werden.

Herausforderungen der Dimensionsvermessung von MEAs

Infolge der labilen Folien und der Dicke der GDL, ist es erforderlich die MEAs zur Vermessung zu fixieren. Durch die labilen Randverstärkungsfolie sind weder eine optische noch eine taktile Vermessung der MEA-Dimensionen zielführend. Eine Fixierung der MEA kann durch eine Vakuumplatte erfolgen, was jedoch zu Schwingungsübertragung von der Vakuumpumpe und damit sowohl bei taktiler als auch bei optischer Vermessung zu einem verrauschten Messsignal führen kann. Als Lösungsansatz wurde die Vorfixierung der MEA mittels Vakuum mit nachfolgender Beschwerung der MEA Probe mit einer transparenten Abdeckung und optischer Vermessung nach Lösen des Vakuums untersucht. Durch diese Vorgehensweise und Optimierung der Beleuchtungsparameter konnten die Außenkonturen der MEA sicher mit der oben dargestellten hohen Genauigkeit vermessen werden.

AP Q2: Neue analytische und QS-Verfahren

Wie in AP Q1 dargestellt erfolgt die Herstellung von katalysatorbeschichten Membranen (CCM) in einer Vielzahl von Prozessschritten, die jeweils ihre spezifischen Verfahren zur Qualitätssicherung erfordern. Da auch Produktionslose der eingestzten Materialien und Komponenten einen erheblichen Einfluss auf die Qualität von MEAs haben, wurde zur Dokumentation der CCM-Fertigung eine Datenbank erstellt, in der die wesentlichen Material-, Zwischenprodukt- und Fertigungsparameter gespeichrt sind. Zur erleichterten Bedienung der Datenbank wurde diese mit einer grafischen Nutzerschnittstelle (GUI) ausgestattet.

Wichtige Parameter zur Dokumentation der CCM-Qualität sind zum Beispiel:

- Partikelgröße der eingesetzten Katalysatoren und Agglomeratgröße der lonmerdispersionen
- Thermisches Verhalten der eingesetzten Rohstoffe und Zwischenprodukte wie zum Beispiel Abdampf- und Zersetzungsverhalten, Phasenübergänge etc.
- Größe der Oberfläche von Katalysatoren und Trägermaterialien
- Leitfähigkeit, pH, lonenstärke etc. der Katalysatortinten

- Fließfähigkeit von Tinten und Pasten
- Vollständigkeit und Mikrostruktur der Katalysatorschicht
- Benetzbarkeit von Katalysatorschichten, Elektrolytmembranen bzw. Transferfolien.

Abbildung 11 und Abbildung 12 zeigen verschiedene Anlagen zur Qualitätssicherung für Materialien, Prozesse für die Herstellung von CCM.

Ein wichtiger Bestandteil der Qualitätssicherung ist die Bestimmung der elektrochemischen Eigenschaften und des Betriebsverhaltens der nach verschiedenen Präparationsmethoden hergestellten CCM. Hierzu wurden geeignete Prüfstände und Testzellen (Abbildung 13) beschafft und in Betrieb genommen.

Darüber hinaus wurden am ISE zwei zusätzliche 10kW-Teststände zur Prüfung von Kurzstacks beschafft und in Betrieb genommen.



Abbildung 11: Verschiedene Analytik-Geräte, welche am Fraunhofer ISE in HyFaB-BW eingesetzt werden



Abbildung 12 Messplatz zur Oberflächenanalyse von Brennstoffzellkomponenten: optisches 3D Profilometer (links) und konfokales Laserscanning Mikroskop (rechts)



a)

b)

Abbildung 13: a) Einzelzell-Teststand des Fraunhofer ISE , b) Testzelle des Fraunhofer ISE. Gemeinschaftsentwicklung mit baltic FuelCells

AP Q3 Erprobung von QS-Verfahren

Geometrievermessung von Dummy MEAs

Eine Serie von Dummy-MEAs wurde auf Maßhaltigkeit der Außenkonturen und sonstiger Referenzpunkte vermessen. Abbildung 14 zeigt beispielhaft eine MEA mit Kapton Randverstärkung während der optischen Vermessung auf der Zeiss-Contura Messmaschine.

Abbildung 15 zeigt die Ergebnisse der Längenvermessung der Fertigungsserie. Man erkennt, dass die MEA-Längen und die Abstände der Alignmentfeatures innerhalb von weniger als einem Zehntel Millimeter liegen. Gleiches gilt für die Breite der MEAs und der zugehörigen Alignmentfeatures (Abbildung 16)



Abbildung 14: Dummy-MEA mit Kapton-Randverstärkung auf der Koordinatenmessmaschine

Mit den im Projekt beschafften und in Betrieb genommenen Anlagen können demnach problemlos Referenzproben für die automatisierte Stackfertigung hergestellt und charakterisiert werden.



Abbildung 15: Maßhaltigkeit der MEA-Längen (gesamt und über eingebrachte Alignmentfeatures) Sollwerte: 539.8 mm, Alignments: 536.0 mm



Abbildung 16: Maßhaltigkeit der MEA-Breiten (gesamt und über eingebrachte Alignmentfeatures) Sollwerte: 141.0 mm, Alignments: 137.8 mm

Vermessung der Außenkontur von Gasdiffusionslagen (GDL)

Konturbestimmend für Gasdiffusionslagen (GDL) ist das aus hydrophobierten Graphitpapier oder –vlies bestehende Fasersubstrat. Dieses ist in der Regel auf der zur Katalysatorschicht weisenden Seite mit einer ebenfalls hydrophobierten mikroporösen Schicht (MPL) bedeckt. Gasdiffusionslagen konnten erfolgreich mit verschiedenen Schneidwerkzeugen auf dem Schneidplotter geschnitten werden. Im Gegensatz zur Randverstärkungsfolie ergibt sich häufig keine glatte Schnittkante sondern das Fasersubstrat bildet eine vergleichsweise raue Kante (Abbildung 17), die sowohl taktil als auch optisch nur mit vergleichsweise hoher Streuung der Messwerte vermessen werden kann.

Die Entwicklung von Verfahren zur Vermessung der GDL-Dimensionen und Positionen auf der 7-Lagen MEA sind Gegenstand laufender Untersuchungen. Von besonderem Interesse ist hierbei die relative Orientierung der GDL auf Kathoden- und Anodenseite zueinander sowie deren Orientierung relativ zur Schnittkante der Randverstärkung.

Ebenfalls von Interesse ist die Identifikation und Klassifikation von Defekten in der ausgeschnittenen GDL. Abbildung 17 zeigt exemplarisch die Schnittkante einer GDL sowie einen Ausbruch des GDL-Fasersubstrats nach thermischer Fixierung mittels Heißpressen auf einer 5-Lagen-MEA.



a)

b)



Vermessung der Ebenheit von Endplatten

Die mechanischen Eigenschaften und Toleranzen der sogenannten "Balance of Stack" (BoS) Komponenten wie Endplatten, Stromsammler, Isolationsplatten etc. sind ebenfalls von großer Bedeutung für eine erfolgreiche Brennstoffzellen-Stapelmontage und für einen erfolgreichen Stapelbetrieb. Die Prüfung der Ebenheit der Endplatten bildet einen wichtigen Schritt in der Qualitätssicherung der BoS-Komponenten.



Abbildung 18: Beispiel der Vermessung der Ebenheit einer Endplatte a) Darstellung der Messlinien b) Auswertung

Abbildung 18 zeigt beispielhaft die Auswertung der mechanischen Vermessung einer Endplatte für ein aktuelles Stapeldesign am ZSW. Mittels der Koordinatenmessmaschine konnten erfolgreich die Zeichnung und Ausführung der BoS-Komponenten abgeglichen und die Übereinstimmung mit dem Toleranzband nachgewiesen werden.

AP Q4: Unterstützung Harmonisierung und Standardisierung

Die Abteilung Brennstoffzellensysteme des Fraunhofer ISE unterstützt die nationalen und internationalen Arbeiten zur Harmonisierung und Standardisierung im Bereich Brenn-stoffzellen in folgenden Gremien:

International: IEC TC 105 "Fuel cell technologies", in folgenden Arbeitsgruppen:

- o WG 2: "Fuel cell modules"
- o WG 7: Portable fuel cell power systems Safety
- o WG 8: Micro fuel cell power systems Safety
- o WG 9: Micro fuel cell power systems Performance
- o WG 10: Micro fuel cell power systems Interchangeability
- o WG 11: Single cell test methods for PEFC and SOFC
- o ahG 11: Accelerated stress testing

National:

o DKE/K 384 "Brennstoffzellen" (nationales Spiegelgremium zum IEC TC 105)

Fachausschuss "Wasserstoff und Brennstoffzellen" der VDI GEU und der ETG im VDE

Arbeitspaket H: Schlüsselprozesse für eine schnelle Serienproduktion

AP H1: Konzept CCM Herstellverfahren

Im Verlauf des HyFaB-Projekts wurde am Fraunhofer ISE ein Labor zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) aufgebaut. Ziel war die Entwicklung eines stabilen Prozesses zur Herstellung von Katalysatorschichten, die mittels des sogenannten Decal-Transferprozesses auf eine Elektrolytmembran übertragen und fixiert werden können. Zur Prozessentwicklung wurde das Verfahren des Siebdrucks ausgewählt. Während des Projekts wurde der Prozess beginnend von einem

manuellen Flachbettsiebdruck hin zu einem halb-automatischen Flachbett-Siebdruckprozess entwickelt, der unter kontrollierten Umgebungs- und Prozessparametern durchgeführt werden kann. Abbildung 19 zeigt schematisch den Prozessablauf.



Abbildung 19: Prozessablauf zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) am Fraunhofer ISE mittels Siebdruck



Zur Prozessentwicklung wurde ein HyFaB-Labor in einem der Reinräume des Fraunhofer-ISE eingerichtet. Zur Ausstattung des Labors wurden Geräte für die

Pastenproduktion wie Abzug, Glovebox und Tintenmischer beschafft und in Betrieb genommen. Abbildung 20 zeigt die zur Komplettierung der Laborausstattung beschafften Anlagen.

Infolge der hohen Aktivität der eingesetzten Katalysatorpulver und der leichten Entflammbarkeit der zur Tintenherstellung eingestzten organischen Lösungsmittel, kann das Anmischen der Tinten und Pasten nicht ohne Weiteres in der freien Atmosphäre erfolgen. Aus Sicherheitsgründen erfolgen das Einwägen der Katalysatorpulver und die anfängliche Benetzung mit Lösungsmitteln in einer inertgasgefülten Glovebox (Abbildung 21).



Abbildung 21: Glovebox-System zur Herstellung von Katalysatortinten in einer inerten Atmosphäre

Für den halbautomatischen Druckprozess wurde ein ursprünglich für die Photovoltaik genutzter existierender Siebdrucker adaptiert. Zur Trocknung der Schichten wurde ein Konvektionstrockner eingesetzt.

Den Startpunkt der Prozessentwicklung bildete ein manueller Flachbettsiebdruck. Mit dem zur Prozessentwicklung dienenden manuellen Verfahren konnten anfänglich nur Laborproben von Katalysatorschichten zur Erprobung in Laborzellen hergestellt werden. Mit Entwicklung und Verfeinerung der Fertigungsparameter wurde der Prozess in einen teilautomatisierten Siebdrucker übertragen, mit dessen Hilfe auch größere Formate hergestellt werden können, wie sie zur Beschickung des generischen Stacks erforderlich sind. Abbildung 22 zeigt den manuellen und den halb automatisierten Siebdruckprozess.



Abbildung 22: Prozessentwicklung während des HyFaB-Projekts beginnend mit manuellem Siebdruckprozess per Hand bis hin zum Ende des Projektes mit der halb-automatischen Herstellung von großflächigen Katalysatorschichten mittels EKRA Siebdruckers.

Der Transfer der Elektroden auf die Membran wurde über eine bestehende Heißpresse bewerkstelligt. Durch Optimierung der Parameter des Transferprozess konnte die Leistung der CCMs weiter optimiert werden (Abbildung 23). Als optimale Parameter ergaben sich ein Druck von 6MPa, eine Temperatur von 170°C und eine Prozesszeit von 15min.



Abbildung 23: Decalfolien nach dem Transferprozess. Bei geringen Beladungen (links) erkennt man kaum Katalysator-Rückstände. Bei höheren Pt-Beladungen (rechts) sind leichte Rückstände erkennbar. Die Druckprozessentwicklung fand maßgeblich für den Siebdruckprozess statt. Hier wurde u.a. die Pt-Beladung durch die Wahl verschiedener Siebe angepasst. Dies wurde verifiziert über Wiegedaten und Schichtdickenmessungen (REM). (Abbildung 24)



Abbildung 24: Durch Verwendung verschiedener Gewebe (mesh) kann die Schichtdicke der Katalysatorschicht und damit die Pt-Beladung kontrolliert werden. (Bild Auszug aus Veröffentlichung: <u>https://link.springer.com/article/10.1007/s11998-022-00710-1</u>

Geeignete Siebe und Prozessparameter wurden für die Hochskalierung der aktiven Fläche auf die Größe des generischen Stacks übernommen. Dies ist sehr gut gelungen. Am Ende des Projekts wurden 10 CCMs an das ZSW für die MEA-Fertigung, das Stacking und in-situ Tests geliefert (Abbildung 25).

Neben der Verarbeitbarkeit und den Verarbeitungsparametern der Katalysatoren zu Tinten / Pasten wurde auch deren Stabilität gegen Sedimentation untersucht. Hiebei konnte eine Verarbeitbarkeit der Tinten ohne Qualitätsverlust von bis zu 43 Tagen nachgewiesen werden.

Im Projektverlauf wurde auch eine Multifuktionsanlage, mit deren Hilfe Katalysatorschichten mittels Siebdruck, Schlitzdüsenauftrag, Flexo- oder Gravudruck hergestellt werden können konzipiert und bei der Firma COATEMA beauftragt (Abbildung 26). Aufgrund Lieferverzögerungen konnte die Anlage erst zu Projektende geliefert und in Betrieb genommen werden.



b)

a)

Abbildung 25: Erfolgreiche Druckversuche zur Herstellung der vergrößerten aktiven Fläche (Generischer Stack) im Vergleich zu den herkömmlichen 20cm² (links). Eine größere Pastenmenge wird verwendet (Bild Mitte), sowie größere Trocknungscarrier (Bild rechts).

c)



Abbildung 26: Multifunktionalen Druckanlage "EC 80" von Coatema mit Schlitzdüse, Flexo- und Gravurdruck, sowie inerter Konvektionstrocknung, NIR & UV Trocknung, welche im Rahmen des Projektes beschafft wurde und nun am Fraunhofer ISE im Labor "HyFaB" steht.

Abbildung 27 zeigt den Aufbau des HyFaB-Labors zur Herstellung von Katalysatorschichten. Die Anordnung der Anlagen des Endausbaus ist in Abbildung 28 dargestellt.



Abbildung 27: Zeitliche Entwicklung und Aufbau des Labors "HyFaB" am Fraunhofer ISE zur Herstellung von Katalysatorschichten.



Abbildung 28: Laborinfrastruktur am Fraunhofer ISE zur Herstellung von Katalysatorschichten, welche während des HyFaB-Projekts aufgebaut wurde

AP H2: Konzept GDL-Herstellverfahren

Die Gasdiffusionslagen (GDL) tragen neben den katalysatorbeschichteten Membranen wesentlich zur Leistungsfähigkeit von Membran-Elektrodeneinheiten bei. Dies ist beispielhaft in Abbildung 29 dargestellt. Die hier dargestellten Kennlinien wurden unter unterschiedlichen Befeuchtungsverhältnissen aufgenommen, wobei sich die Reihenfolge der Leistungsdichten der jeweiligen MEAs bei hohen Stromdichten in Abhängigkeit der Gasfeuchte ändert.



Abbildung 29: Strom-Spannungskennlinien für verschiedene GDLs, gemessen unter H2/Luft,

a) 80°C, 2bara und 100 % RH

b) 80°C, 2bara und 40 % RH

Im Projekt wurden mehrere kommerziell verfügbare GDLs unter anderem im Hinblick auf Gastransporteigenschaften und Leitfähigkeiten untersucht und mit im Projekt hergestellten CCM in Einzelzelltests untersucht, wodurch ein vertieftes Verständnis der Zusammenhänge zwischen GDL-Eigenschaften und MEA-Leistungscharakteristik geschaffen werden konnte. Abbildung 30 zeigt exemplarisch eine Messanordnung zur Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeit durch die GDL bzw. deren Kontaktwiderstand.





b)

Abbildung 30: Messvorrichtung zur Bestimmung der Leitfähigkeit/Kontaktwiderstand von GDLs

AP H3: MEA-Assemblierung

Herstellung von Dummy-MEA

Mit dem im Projekt am ZSW beschafften Schneidplotter (Abbildung 31) wurden am ZSW Zuschnitte von Rahmenfolien und Gasdiffusionslagen (GDL) angefertigt, und für die Herstellung von 7-Lagen MEAs eingesetzt.

Zur Herstellung einer 7-Lagen MEA wird eine katalysatorbeschichtete Membran (CCM) zwischen zwei mit Heißkleber beschichtete Randverstärkungsfolien, hier aus Polyethylennaphtalat (PEN), laminiert. Auf dieses Laminat werden dann GDL mittels Klebung oder Heißpressen appliziert.

Im Projektverlauf wurden verschiedene Voruntersuchungen zu Schneidetechniken und zum Messereinsatz für verschiedene Schnittgüter erprobt und für verschiedene Rahmenfolien und GDL optimiert. Dies war vor allem für die Messerführung beim Zuschnitt von Ecken erforderlich, um einen möglichst Ansatzfreie und glatte Schnittführung zu ermöglichen. Abbildung 32 zeigt die Portregion und den Ansatz des CCM-Fensters für eine Randverstärkungsfolie des generischen Stackdesigns. Man erkennt eine gleichmäßige und defektfreie Schnittführung in den Innen- und Außenkonturen.

Zur Entwicklung eines Herstellprozesses für Referenz-MEAs und dessen Validierung wurden insgesamt 1 000 Dummy-MEAs (Abbildung 33) handwerklich hergestellt und auf der ebenfalls im Projekt beschafften Koordinatenmessmaschine hinsichtlich der Genauigkeit der Konturen vermessen. Aus Kostengründen wurden in diese Proben keine funktionstüchtigen CCMs eingebaut.



Abbildung 31: Zünd Schneidplotter eingerichtet zum Schnitt von PEN-Randverstärkungsfolien.



- Abbildung 32: Zuschnitts einer PEN-Randverstärkungsfolie für das generische Stackdesign.
 - a) Gesamtbild
 - b) Detail des Portzuschnitts



Abbildung 33: Zur Prozessvalidierung hergestellte "Dummy-MEA" mit PEN-Folienrahmen; a) Gesamt-MEA; b) Ausschnitt Portkanal und GDL-Ansatz

Herstellung von MEAs für den generischen Stack

Die Fertigung von 7-Lagen MEAs erfolgt, wie in Abbildung 34 dargestellt, in mehreren Prozessschritten. Nachdem die Einzelkomponenten bereitgestellt wurden, können diese im Schritt "Fertigung" gefügt und im anschließenden Schritt der Nachbearbeitung fertiggestellt werden. Im folgenden Schema werden die jeweiligen notwenigen Einzelschritte und die hierfür benötigten Geräte/ Maschinen aufgelistet.

Zur Herstellung der 7-Lagen MEAs mussten zunächst Vorrichtungen zur exakten Positionierung der Komponenten CCM, Randverstärkung und GDL entwickelt und erprobt werden.

Im Vergleich zur Herstellung von Dummy-MEAs ist es zur Fertigung funktionsfähiger 7-Lagen MEAs erforderlich, nicht nur die Ausschnitte der Ports präzise zu setzen, sondern auch die entsprechenden Fenster, in die die CCM eingelegt wird, genau auszuschneiden. Die Randfolie muss daher zunächst zusätzlichen mit Positionierungsmarken und Ausrichtungspunkten versehen werden. die im Endzuschnitt entfernt werden.

| Komponenten- bereitstellung | | Fügung | Nachbea | arbeitung | |
|---|--|-------------------|--|--|---|
| Zuschnitt | Komponenten- stapelung | Erstfügung | Verpressung | Zuschnitt | GDL-Auftragung |
| Dichtungsfolien- schnitt Zuschnitt GDL | Einlegen der Komponenten Ausrichten/ Stapeln | – Durchsatz | Durchlauf Pressprogramm | Zuschnitt der Dichtungsfolie | Auftragung der GDLs |
| Schneideplotter | Dreifaltigkeit Randverstärkung | Kaltlaminiergerät | Heißpresse | Schneideplotter | Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage |

Abbildung 34: Schematischer Ablauf des MEA-Fertigungsprozesses mit Einzelschritten und benötigter Geräte/ Maschinen

In einem ersten Schritt werden die Rohformate der Randverstärkungsfolien und Gasdiffusionslagen im Schneideplotter zugeschnitten. Für die Randverstärkungen der MEA wird eine PEN-Folie mit einseitiger Heißsiegelbeschichtung verwendet. Die Ausrichtungspunkte der PEN-Folie sind in der linken Teilzeichnung (Abbildung 35) dargestellt. Nach der endgültigen MEA-Lamination wird die Randverstärkung in ihre endgültige (rechter Teil der Zeichnung) Form geschnitten.

Abbildung 35: Zeichnungen der Zuschnitte der Randverstärkungsfolie a) vor MEA-Fertigung (links) und b) finaler Zuschnitt nach MEA-Fertigung, sowie GDL Zuschnitt (rechts, türkis)

Jeweils zwei Randverstärkungsfolien und die CCM werden in die hierfür entwickelte Randverstärkung") Stapelvorrichtung ("Dreifaltigkeit eingelegt. Die relative Randverstärkungsfolien Positionierung der beiden erfolgt über die Positionierungsmarken. Der CCM-Zuschnitt wird direkt auf der Vorrichtung entlang der Außenkante ausgerichtet. Die Komponenten werden nach Ausrichtung mittels Unterdruck in der Vorrichtung fixiert. Im nächsten Schritt wird die CCM auf die in der Abbildung 36 mittig liegende Randverstärkung gesetzt und durch Lösen des Unterdrucks im CCM-Teil mittels des die Randverstärkung fixierenden Unterdrucks in Position gehalten. Die zweite, in Abbildung 37 auf der linken Seite liegende Randverstärkung, wird nun aufgesetzt, positioniert, angedrückt und der die Randverstärkung haltende Unterdruck gelöst. Die Kleberseiten der Randverstärkungsfolie haften so leicht aneinander.

Abbildung 36: Rendering der Stapel- und Ausrichtvorrichtung "Dreifaltigkeit Randverstärkung"

Abbildung 37: Stapelung der Komponenten Randverstärkung und CCM mit "Dreifaltigkeit Randverstärkung"

Nachfolgend wird der aus zwei Randverstärkungsfolien und der CCM bestehende Verbund aus der Vorrichtung entnommen und mit Schrittgeschwindigkeit drei durch das in Abbildung 38 (links) zu sehende Kaltlaminiergerät geführt. Hierdurch wird der Verbund weiter gefestigt und größere Lufteinschlüsse zwischen den beiden Folien werden herausgedrückt. Der Verbund aus CCM und zwei Randverstärkungsfolien wird anschließend in der Heißpresse endültig fixiert (siehe Abbildung 38 (rechts)).

Abbildung 38: Kaltlaminiergerät (links) und Heißpresse (rechts) des MEA-Fertigungsprozesses

Im Schritt der Nachbearbeitung wird die gefügte CCM mit Randverstärkung nach Abbildung 35 (unten) final zugeschnitten. Für die Positionierung und Stapelung der GDLs wird eine weitere, ebenfalls für den Zweck eigens entwickelte Stapel- und Ausrichtvorrichtung "Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage" nach Abbildung 39 verwendet. Die zugeschnittenen GDLs und die mit Randverstärkung versehene CCM werden wie in Abbildung 40 dargestellt auf der Vorrichtung aufgelegt und anschließend mit der Vorrichtung "Dreifaltigkeit Randverstärkung" gefügt.

Abbildung 39: Rendering der Stapel- und Ausrichtvorrichtung "Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage"

Die Fixierung der GDLs auf der Randverstärkungsfolie erfolgt durch einen vor dem Schließen der Vorrichtung auf die überlappenden GDL-Ecken aufgetragenen Tropfen Flüssigkleber.

Abbildung 40: Stapelung der Komponenten randverstärkte CCM und GDL mit "Dreifaltigkeit Gasdiffusionslage"

Laminationsversuche

In einer ersten Fertigungsversuchsreihe wurden die verschiedenen Parameter variiert und ihre Einflüsse auf die gefertigte MEA untersucht. Als Variablen wurden hierbei zunächst die Temperatur, der Pressdruck und die Dauer des Pressvorgangs in einem definierten Programmdurchlauf der Heißpresse ausgewählt. Die Schaumstofftiefe der Fügevorrichtung "3-Faltigkeit", die Wahl der Pressplatte, die Wahl des Zwischenlagematerials zwischen MEA und Platte, sowie die Verwendung des Kaltlaminiergeräts stellen die weiteren Parameter dar. Die maximal zulässige Temperatur für den Pressvorgang liegt bei 160 °C.

Tabelle 3:Zum Erlangen eines ersten Eindrucks und der Einflüsse der Parameter
wurden verschiedene Versuchsdurchläufe mit Variation der Parameter
durchgeführt.

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier- gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-------------------------------|--------------------|---|
| | [°C] | [bar] | [mm] | [min] | | | | |
| 1 | 130 | 25 | 5 | 10 | ohne | Silikon | ja | mit Dummy Membran, Mit Temperatur- Rampe und 2x Entgasen |
| 2 | | | | | | | | Nur gefügt, mit Dummy Membran |
| 3 | 130 | 50 | 0 | 10 | ohne | Kapton und Silikon | nein | mit Dummy Membran, Mit Temperatur- Rampe und 2x Entgasen |

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier- gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-------------------------------|--------------------|---|
| 4 | 160 | 100 | 0 | 10 | ohne | Kapton und Silikon | nein | mit Dummy Membran, Mit Temperatur- Rampe und 2x Entgasen |
| 5 | 150 | 50 | 1,4 | 12 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Mit Temperatur-Rampe und 2x Entgasen |
| 6 | 150 | 100 | 1,4 | 18 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Mit Temperatur-Rampe und 2x Entgasen |
| 7 | 100 | 150 | 2,8 | 15 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Mit Temperatur-Rampe und 2x Entgasen |
| 9 | 150 | 100 | 2,8 | 14 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Mit Temperatur-Rampe und 2x Entgasen |
| 10 | 130 | 50 | 2,8 | 3 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | |
| 11 | 130 | 50 | 2,8 | 3 | P7- Platten | Kapton und Silikon | ја | |
| 13 | 150 | 100 | 1,4 | 3 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 14 | 150 | 100 | 1,4 | 3 | P7- Platten | Kapton und Silikon | ја | Folie am Rand zwischen P7 Platte |

Tabelle 4:Versuche mit konstantem Verpressdruck von 100 bar und Variation
der Temperatur, sowie Einfluss der Schaumstofftiefe. Am Ende des
Pressprogramms wird erst die Temperatur, danach der Druck gesenkt.

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier- gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-------------------------------|--------------------|-------------------------------------|
| | [°C] | [bar] | [mm] | [min] | | | | |
| 12 | 150 | 100 | 5 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 8 | 140 | 100 | 2,8 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 15 | 130 | 100 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 16 | 130 | 100 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | Ja | Folie am Rand zwischen P7 Platte |

Tabelle 5:Versuche mit konstanter Verpresstemperatur von 140°C und Variation
des Drucks, sowie Einfluss mit vorherigem Kaltlaminieren, bzw. ohne
vorheriges Kaltlaminieren. Am Ende des Pressprogramms wird erst die
Temperatur, danach der Druck gesenkt.

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier- gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-------------------------------|--------------------|-------------------------------------|
| | [°C] | [bar] | [mm] | [min] | | | | |
| 17 | 140 | 100 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 18 | 140 | 100 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | ja | Folie am Rand zwischen P7 Platte |

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier- gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-------------------------------|--------------------|-------------------------------------|
| 19 | 140 | 75 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | ja | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 20 | 140 | 75 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 21 | 140 | 50 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | ja | Folie am Rand zwischen P7 Platte |
| 22 | 140 | 50 | 1,4 | 5 | P7- Platten | Kapton und Silikon | nein | Folie am Rand zwischen P7 Platte |

Tabelle 6:Verwendung von 3 mm Blechen zum Verpressen und dazu passender
neuer Kaptonfolie, sowie frischem Silikon.

| Nr. | Temp. | Druck | 3- Faltigkeit Schaum- stofftiefe | Dauer | Press- platten | Zwischen MEA und Platte | Laminier -gerät | Sonstiges |
|-----|-------|-------|---|-------|-------------------|-----------------------------------|--------------------|-------------------------------|
| | [°C] | [bar] | [mm] | [min] | | | | |
| 23 | 140 | 50 | 1,4 | 5 | 3mm Bleche | Kapton und Silikon (frisch) | Ja | |
| 24 | 140 | 50 | 1,4 | 6 | 3mm Bleche | Kapton und Silikon (frisch) | Ja | |
| 25 | 140 | 50 | 1,4 | 6 | 3mm Bleche | Kapton und Silikon (frisch) | Ja | |
| 26 | | | 1,4 | | | | | nur gefügt, nicht gepresst |
| 27 | | | 1,4 | | | | | nur gefügt, nicht gepresst |
| 28 | 140 | 50 | 1.4 | 5 | 3mm Bleche | Backpapie r und Silikon | ia | Mit Dummv Membran |
| 29 | 140 | 50 | 1,4 | 5 | 3mm Bleche | Backpapie r und Silikon | ja | Mit Dummy Membran |

Die Versuche ergaben wichtige Hinweise für die handwerkliche Herstellung der 7-Lagen MEAs sowie der Übertragung auf einen kontinuierlichen Prozess. Dies beinhaltet sowohl den Prozessablauf als auch die jeweils erforderlichen Prozesszeiten und Prozessparameter. Typische Fehlerbilder waren der Einschluss von Luftblasen in der Randverstärkung sowie die Wellenbildung in der Randverstärkung. Diese sind in Abbildung 41 dargestellt. Beide Fehlerbilder erschweren den Aufbau dichter Stacks.

Die Häufigkeit und das Ausmaß der Fehler kann jedoch durch die Fertigungsbedingungen beeinflusst werden.

a)

b)

Abbildung 41: Typische Fehlerbilder der MEA-Lamination a) Blasenbildung zwischen den beiden PEN-Folien b) Wellenbildung

Bewertung der Versuche

In der folgenden Tabelle 7 wird eine qualitative Bewertung der Versuchsergebnisse der oben dargestellten Versuchsreihe gegeben. Hierbei werden im Bewertungssystem (1 = sehr schlecht, 10 =sehr gut) die Fertigungsfehler Blasenbildung zwischen den Folien, Wellenbildung der gefügten MEA, sowie das Gesamtergebnis bewertet.

| Tabelle 7: | Versuchsbewertung (| 1 = sehr schlecht | 10 = sehr aut |
|------------|---------------------|-------------------|---------------|
| | | | |

| Nr. | Blasen | Flache Folie | Ergebnis | Bemerkung |
|-----|--------|-----------------|----------|---|
| | [110] | [110] | [110] | |
| 1 | 5 | 2 | 3,5 | |
| 2 | | | 0 | |
| 3 | 6 | 2 | 4 | |
| 4 | 9 | 2 | 5,5 | |
| 5 | 6 | 2 | 4 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 6 | 7 | 1 | 4 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten sonst sehr gut |
| 7 | 7 | 1 | 4 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 9 | 7 | 1 | 4 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 10 | 4 | 6 | 5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 11 | 4 | 6 | 5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 13 | 5 | 6 | 5,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 14 | 5 | 6 | 5,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 12 | 7 | 5 | 6 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten knittrig von tiefem Fügen |

| Nr. | Blasen | Flache Folie | Ergebnis | Bemerkung |
|-----|--------|-----------------|----------|---|
| 8 | 7 | 6 | 6,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 15 | 6 | 6 | 6 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 16 | 7 | 5 | 6 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 17 | 7 | 6 | 6,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 18 | 7,5 | 6 | 6,75 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 19 | 7,5 | 6 | 6,75 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 20 | 7 | 6 | 6,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 21 | 7 | 6 | 6,5 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 22 | 6,5 | 6 | 6,25 | Viele Blasen an den Enden der P7 Platten |
| 23 | 8 | 10 | 9 | Man benötigt 2 Durchgänge, weil die Platte der Presse zu klein ist |
| 24 | 8,5 | 10 | 9,25 | Man benötigt 2 Durchgänge, weil die Platte der Presse zu klein ist |
| 25 | 8,5 | 10 | 9,25 | Man benötigt 2 Durchgänge, weil die Platte der Presse zu klein ist |
| 26 | | | 0 | |
| 27 | | | 0 | |
| 28 | 8,5 | 7 | 7,75 | Eingerissen wegen zu kleinem Backpapier |
| 29 | 8,5 | 7 | 7,75 | Eingerissen wegen zu kleinem Backpapier |

Es lässt sich anhand der Ergebnisse feststellen, dass sich eine Erhöhung der Heißpressentemperatur positiv auf das Fügebild der MEA auswirkt. Die Versuche 23, 24, und 25 mit den dazugehörigen Parametern liefern die besten Gesamtergebnisse. Eine Verbesserung konnte hierbei durch die Erhöhung der Pressdauer von 5 auf 6 Minuten erreicht werden. Das Weitern lässt sich ein Einfluss der Zwischenlage beim Pressen feststellen, welcher weiter zu untersuchen ist. Die Verwendung des Kaltlaminiergeräts zum Herauslösen größerer Lufteinschlüsse zwischen den Randverstärkungsfolien hat ebenso einen positiven Einfluss. Mit der Versuchsreihe konnten wesentliche Verarbeitungsparameter ermittelt werden, mit welcher 7-Lagen MEAs mit einer deutlich reduzierten Anzahl an Fehlern gefertigt werden können.

Da weiterhin das Problem von Lufteinschlüssen besteht soll der Prozess in Nachfolgeprojekten mittels weiterer Messreihen verbessert werden. In diesen Versuchsreihen sollen dann zusammen mit den Erkenntnissen aus den geschilderten Versuchen weitere Verbesserungen der MEA-Fertigung erzielt werden. Im in Abbildung 42 dargestellten Schema sind die markantesten Herausforderungen der jeweiligen Prozessschritte und mögliche Verbesserungsansätze dargestellt, welche in Folgeprojekten näher betrachtet werden sollen.

| Komponenten- bereitstellung | | Fügung | | | arbeitung |
|--|--|------------|--|-----------|----------------|
| Zuschnitt | Komponenten- stapelung | Erstfügung | Verpressung | Zuschnitt | GDL-Auftragung |
| Toleranzen beim Schnitt | Faltenbildung Inhomogenität nach Erstverbindung | | Faltenbildung Blasenbildung | | |
| Positionierungs- ausschnitte verändern | Ablauf standardisieren | | Optimierung Parameter Zwischenlage | | |

Abbildung 42: Variationsraum der Fertigungsparameter.

AP H4: Schnelle Stapelprozesse

Entwicklung eines generischen, quelloffenen Stacks

Eine wichtige Voraussetzung zur Entwicklung schneller Stapelprozesse ist die Verfügbarkeit eines geeigneten, quelloffenen Stapeldesigns. Aus diesem Grund wurde auf Basis von Vorarbeiten das Konzept eines "generischen Stacks", der als Plattform für alle weiteren Vorhaben im Projekteverbund HyFaB eingesetzt werden kann, im Detail ausgearbeitet und mit einem Hersteller für Bipolarplatten hinsichtlich der technischen und wirtschaftlichen Umsetzungsfähigkeit diskutiert.

Eine Umfrage innerhalb der Mitglieder der Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen (FVV) und eine Marktrecherche kommerziell Brennstoffzellenstapel diente Auslegungsgrundlage. verfügbarer als Die Basisauslegung des "generischen Stacks" mit metallischen Bipolarplatten erfolgte für eine Leistung bis 150 kW, also geeignet für automobile oder andere Anwendungen mit hohen Anforderungen an die Leistungsdichte. Tabelle 8 zeigt das Ergebnis der Branchenumfrage.

| FVV-Umfrage - Ergebnisse Stack Parameter | | | | | | |
|--|----------------------|-----------|--|--|--|--|
| Aktivfläche | [cm ²] | 280 | | | | |
| UEZ | [V] | 0.653 | | | | |
| Stromdichte (i) | [A/cm ²] | 1.8 | | | | |
| PEZ | [W] | 329 | | | | |
| P Nom | [kW] | 100 | | | | |
| Zellzahl | [Zellzahl] | 304 | | | | |
| U Stack | [V] | 198 | | | | |
| I Stack | [A] | 504 | | | | |
| Stapelhöhe Aktivbereich | [mm] | 334 | | | | |
| Zell Pitch | [mm] | <1.2 | | | | |
| Höhe Endplatten | [mm] | 200 | | | | |
| Stack Gesamthöhe | [mm] | 534 | | | | |
| Stack Gesamtbreite | [mm] | 156 | | | | |
| Stack Gesamtlänge | [mm] | 392 | | | | |
| Stack Temperatur | °C | 74 | | | | |
| PAustritt Port | barg | 2.2 | | | | |
| Stöciometrie (A/K) | λ | 1.4 / 1.6 | | | | |
| Taupunkt (A/K) | °C | 48.5 / 53 | | | | |
| Δp (Zelle, Anode) | mbar | 100 | | | | |
| Δp (Zelle, Kathode) | mbar | 200 | | | | |
| Δp (Zelle, Kühlwasser) | mbar | 400 | | | | |

 Tabelle 8:
 Stack-Design-Parameter aus FVV Umfrage

Das Basisdesign wird bei Projektabschluss für die Branche offengelegt. Der "generische Stack" bildet die Hardwareplattform für weitergehende Forschungs- und

Entwicklungsarbeiten, zu Qualitätssicherungsmaßnahmen während der Stapelfertigung, als Diskussionsgrundlage im Studium und der beruflichen Bildung sowie für die Erprobung von Fertigungstechnologien. Das resultierende Konzept des "generischen Stacks" verletzt nach einer vorläufigen Patentrecherche keine Rechte Dritter.

Entsprechend der Basisaulegung wurden Konstruktionszeichnungen der Bipolarplatten erstellt und Strömungsrechnungen für die Gasverteilkanäle und die Stack-Versorgungskanäle erstellt.

Abbildung 43: Kanal-Basisauslegung des generischen Stack

- a) Anode
- b) Kathode

Das Basisdessign wurde nachfolgend als Grundlage für die fertigungsgerechte Detailkonstruktion der Bipolarplatte in Kooperation mit der Firma EKPO sowie der Modellierung der Medienströmung und der Temperaturverteilung genutzt.

Gestaltung der Mediendistributorzone zur Optimierung der Reaktanden- und Kühlmittelverteilung

Auf Basis der in der Detailkonstruktionsphase neu definierten Außenkonturen wurden in einem ersten Ansatz die kathoden- und anodenseitigen Übergangszonen von Portkanal in die Aktivbereiche in Kooperation mit EKPO konstruiert. Die sich daraus ergebenden Negativformen bilden den Einströmbereich der Kühlkanäle. Ziel war es, eine möglichst homogene Verteilung sowohl der Reaktanden Wasserstoff und Luft als auch des Kühlmittelstroms zu erzielen.

Die CFD-Simulation der Druck- und Strömungsverhältnisse im Kühlbereich der Bipolarplatte zeigte im ersten Ansatz deutliche Inhomogenitäten. In Abbildung 44 a) ist Druckverteilung Kühlmittelverteiler dargestellt. Es die im sind deutliche Inhomogenitäten in der Druckverteilung innerhalb der Aktivzone zu erkennen (Zone 1, horizontal von oben nach unten), deren Ursache in einem zu hohen Druckabfall in den Verteilerzonen (Zone 2) liegt. Diese Inhomogenitäten führen zu einer erhöhten Durchströmung der Randbereiche des Kühlmittelfelds (Abbildung 44 b, Zone 3) in der Aktivzone, was zu einer inhomogenen Temperaturverteilung zwischen den Rändern und der Mitte der Zelle führt.

Abbildung 44: Strömungssimulation des Kühlmittelverteilungsfelds

- a) Druckverteilung
- b) Verteilung der Strömungsgeschwindigkeiten

Durch konstruktive Veränderungen in der Mediendistributionszone konnten die Druckund Strömungsverhältnisse zwischen Rand und Mitte der Kühlzone angeglichen werden. Abbildung 45 zeigt die Geschwindigkeitsverteilung der Medienströmung in der Zuführungszone der Anode, der Kathode und des Kühlmittels.

Abbildung 45: CFD-Simulation der Geschwindigkeitsverteilung der Medienströmung in der Medienzuführung a) Anode; b) Kathode; c) Kühlmittel

Da die Umgestaltung der Ein- und Ausströmzonen auch die Reaktandenverteilung beeinflusst, wurden die anoden- und kathodenseitigen Strömungsverhältnisse neu modelliert.

Abbildung 46 zeigt, dass die Reaktandenverteilung in der Mitte der Gasverteilerkanäle durch die Veränderung der Einströmzone nicht nachteilig verändert wurde.

b) kathodenseitig

Durch die iterative Optimierung der Verteilzonen konnten die Reaktandenkonzentrationen in der Katalysatorschicht gesteigert und gleichzeitig die Temperaturverteilung homogenisiert werden. Umformsimulationen bei EKPO zeigten, dass die vorliegende Designiteration grundsätzlich fertigbar ist. Abbildung 47 zeigt den Ablauf des Entwurfs und der praktischen Umsetzung des "generischen Stacks" als Interaktion mehrerer Beteiligter.

Abbildung 47: Ablauf des Entwurfs und der praktischen Umsetzung des generischen Stacks.

Abbildung 48 zeigt einen 2D-Zeichnungssatz der Bipolarplatte des "generischen Stacks".

Abbildung 48: 2D-Zeichnungssatz für die Bipolarplatte des generischen Stacks.

Neben den Reaktanden- und Kühlmittelverteilfeldern sowie dem Dichtbereich enthält die Bipolarplattenkonstruktion zusätzlich Ausrichtungspunkte und –kanten zur Stapelherstellung mit unterschiedlichen Toleranzen sowie Kontakte zur Anbringung einer Einzelzellspannungsüberwachung.

Das zur Fertigung der Bipolarplatten erforderliche Werkzeug wurde bei der Firma EKPO konstruiert und hergestellt. Die Bipolarplatten wurden mit einer sogenannten Sickendichtung ausgeführt. Dies erlaubt eine Minimierung des Einsatzes teurer Elastomere im Dichtbereich. Ein erstes Musterlos an Bipolarplatten wurde gefertigt und erfolgreich geometrisch vermessen.

Abgestimmt auf die Dimensionierung der Bipolarplatten wurde die Membran-Elektrodeneinheit (MEA) als 7-lagige Konstruktion mit Dichtrahmen umgesetzt (Abbildung 49). Die MEA bietet ebenfalls die in der Bipolarplatte angelegten Ausrichtungspunkte und -kanten.

Abbildung 49: 7-Lagen MEA-Konstruktionsunterlagen

Zusätzlich zum Entwurf und der Umsetzung der Bipolarplatte und der MEA wurden die Komponenten der sogenannten Balance of Stack (BoS) konstruiert. Hierbei handelt es sich um Stromsammler, Isolierplatten, Druckplatten, Federpakete, Verspanneinrichtungen und Endplatten. Abbildung 50 zeigt eine Explosionszeichnung des "generischen Stacks" sowie die Umsetzung der BoS. Die entsrechenden Unterlagen zur Bipolarplatte, MEA und BoS sind auf Nachfrage beim ZSW erhältlich.

Zur Überprüfung der Stackassemblierung und der Fertigungstoleranzen wurde ein nicht funktionaler Dummystapel mit 320 Zellen handwerklich aufgebaut und geometrisch vermessen. Abbildung 51 zeigt ein 3D-Rendering des "generischen Stacks" sowie ein Foto des aufgebauten Dummystapels.

Durch diesen Versuch konnte die Stimmigkeit der Toleranzketten, des BoS-Konzepts und des handwerklichen Fertigungsprozesses gezeigt werden. Der Dummystapel und die zugehörige Bipolarplatte wurde auf der Hannover-Messe 2023 sowie auf der Hyfcell 2023 einem Fachpublikum vorgestellt. Die Resonanz auf Konzept und Ausführung war durchweg positiv.

a)

b)

Abbildung 50: Explosionszeichnung und Umsetzung der Balance of Stack des generischen Stacks.

Abbildung 51: Generischer Stack: vom 3D-Rendering zur Realisierung eines 320zelligen Stacks.

Zum Projektabschluss wurde ein 11-zelliger Kurzstapel unter Verwendung kommerziellen CCMs und GDLs gebaut und getestet. Abbildung 52 zeigt die zugehörige Kennlinie sowie ein Bild des Kurzstapels auf dem Teststand. Mit diesem

Test konnte die Funktionsfähigkeit des Stapels sowie die Einhaltung des Leistungsziels unter noch nicht optimierten Betriebsbedingungen nachgewiesen werden.

Abbildung 52: Kurzstapel-Kennlinie des "generischen Stacks" unter Referenzbedingungen (kommerzielle CCM) bei nicht optimierten Betriebsbedingungen

Weitere Untersuchungen zum Betriebsverhalten des Stapels sind in Arbeit.

AP H5 Fabrikabnahmetest und H6 Inbetriebnahme

Die während einer Fabrikabnahme durchzuführenden Tests sind als Typtests und Einzeltests in DIN / ISO 62282-02 beschrieben. Weitere Tests wurden während des Projekts nicht definiert.

Zur Durchführung von Fabrikabnahmetests wurden am ZSW zwei Prüfstände für Kurzstapel bis 3 kW sowie vier Prüfstände mit einer Leistung bis 10 kW beschafft und im der neu errichteten Testhalle aufgebaut (Abbildung 53).

b)

Abbildung 53: HyFaB-Prüfstände a) Leistungsklasse bis 3 kW b) Leistungsklasse bis 10 kW

Inbetriebnahmeversuche von Musterstacks

Die Erstinbetriebnahme von Brennstoffzellenstapeln die Aufgabe hat die Aktivkomponenten so weit zu konditionieren, dass einerseits ihre Funktionsfähigkeit gewährleistet wird und andererseits Verunreinigungen und ggf. Abbauprodukte, die während der MEA und Stapelherstellung entstehen oder eingebracht wurden, wieder aus der Zelle dem Stapel entfernt werden. Literaturbekannte 1 Konditionierungsprozeduren bestehen häufig aus einer Abfolge von Strompulsen mit niedriger und hoher Stromstärke, die sich teilweise über mehrere Stunden hinziehen. Die dadurch verursachte lange Konditionierungsdauer und der damit verbundene Verzehr an Betriebsstoffen wie Wasserstoff und konditionierte Druckluft, stellt für die Erstinbetriebnahme eines Stapels einen nicht unbeträchtlichen Kostenfaktor dar.

In einer Studie wurden MEAs mit einer Aktivfläche von ca. 100 cm² zwei verschiedenen Einfahrprozeduren unterzogen. In einer schnellen Prozedur wurde der Strom in einer zweistufigen Rampe bis zum Erreichen einer mittelern Zellspannung von ca. 500 mV erhöht und bis zum Ablauf einer Versuchsdauer von 10 Minuten gehalten (Abbildung 54). In einem zweiten, zweistufigen Einfahrprotokoll (Abbildung 54 b) wurde der Stapel zunächst demselben Protokoll unterzogen und nach Stillstand im feuchten Zustand übers Wochenende wurde erneut eine zweistufige Rampe bis zum Erreichen einer mittleren Zellspannung von 500 mV gefahren. Anschließend wurden die Zellen in einem Dauerversuch unter verschiedenen Betriebsbedingungen unterzogen.

Abbildung 54: Einfahrprotokolle a) einstufig, b) zweistufig

Auffällig ist, dass die Stromstärke, bei der eine mittlere Zellspannung von 500 mV erreicht wird in der zweiten Phase des zweistufigen Einfahrprotokolls sich mehr als verdoppelt hat (von 66 A auf 127 A).

Die nach den oben dargestellten Prozeduren konditionierten Kurzstapel wurden anschließend einem Lebensdauertest nach dem im EU-Projekt Stack-Test definierten Protokoll (Abbildung 55) unterzogen. Das Testprotokoll bildet annähernd den PKW-Fahrzeugbetrieb nach und beinhaltet Last- und Ruhephasen sowie Kaltstarts mit Luft auf beiden Elektroden (Air-Air-Starts), die als besonders belastend gelten.

Abbildung 55: Dauertestprotokoll

- a) Lastzyklus (100% Last entsprechen einer Stromdichte von
- 1.5 A•cm⁻²)
- b) Testprotokoll

Der Dauerversuch in der ersten Versuchsreihe wurde in verschiedenen Phasen durchgeführt (Tabelle 9), die sich durch die Betriebstemperatur, den Befeuchtungsgrad sowie die Kathodenstöchiometrie unterscheiden. Zu Beginn und an den Schnittstellen des Dauerversuchs wurde eine ausführliche Charakterisierung der Zellen vorgenommen.

Tabelle 9:Betriebsphasen des Dauerversuchs.

| B | Betriebsphasen | | | | | | | |
|---|--------------------|--------------|-----------------|---------|---------|-----------------|--------------|--|
| | Operation phase | T.Cl / °C | DPT.A/C / °C | stoic.C | stoic.A | p.A/C / barg | H2/N2 / % | |
| | Ι. | 73 (in) | 58/43 | 1.6 | | | | |
| | II. | 95 (out) | 72/57 | 1.8 | | | | |
| | III. | 95 (out) | 72/57 | 1.6 | 1.4 | 1.2/1.0 | 70/30 | |
| | IV. | 73 (in) | 58/43 | 1.8 | | | | |
| | V. | 95 (out) | 58/43 | 1.8 | | | | |
| | | | | | | | | |

Performance Characterization

Abbildung 56: Spannungsentwicklung über Zeit in einem Dauerversuch mit dynamischem Lastprofil

Abbildung 56 zeigt die Spannungsentwicklung über Zeit der beiden nach Einfahrprotokoll a) und b) konditionierten Zellen im jeweils höchsten Lastpunkt des dynamischen Zyklus. Auffällig ist, dass sich die Spannungslage der Zellen nach Einfahrprotokoll a) noch über eine Dauer von mehr als 100 Stunden erhöht, bevor eine Spannungsabnahme einsetzt. Bei Anwendung der zweistufigen Einfahrprozedur b) wird die Maximalspannung bereits nach weniger als 50 Stunden erreicht.

Ferner beginnt die Degradation von einem niedrigeren Spannungsniveau. Überraschenderweise führte die erste Heißbetriebsphase (Phase II) bei den nach Protokoll b) konditionierten Zellen zu einer Erhöhung der Zellspannung, wobei in allen Fällen das absolute Spannungsniveau geringer blieb als bei den nach Protokoll a) eingefahrenen Zellen. Einschränkend muss gesagt werden, dass in der Post-test-Untersuchung der MEAs die Zellen nach Protokoll b) eine höhere Anzahl an Hotspots in der Infrarot-Bildgebung aufwiesen als die nachProtokoll a) eingefahrenen Zellen.

a)

b)

Abbildung 57: Auswahl an Infrarotbildgebung von rückseitig mit Wasserstoff bespülten MEAs, die nach Protokoll a) und b) eingefahren wurden.

In einer zweiten Versuchsreihe wurden zwei weitere Einfahrprotokolle erprobt.

- Standardprotokoll mit einer Dauer von acht Stunden
 - Stromrampe mit einer Steigung von 1 A•min⁻¹ bis zu einer Stromdichte von 1.5 A•cm⁻²
 - 20 nacheinander durchgeführte H₂-Soaks gefolgt einer Strombelastung von 1.5 A·cm⁻² je 10 min
- Schnelleinfahrprozedur mit einer Dauer von 20 Minuten
 - 1. Schnelle Stromrampe auf 1.5 A·cm⁻² (ca. 8 min)
 - 2. 10 min Betrieb bei 1.5 A·cm⁻²

Beide Prozeduren wurden bei einer Stackeinlasstemperatur von 73 °C sowie anodenund kathodenseitig mit 100 % relativer Feuchte am Stackeinlass durchgeführt.

Abbildung 58 zeigt die Entwicklung der Zellspannung am Lastpunkt von 1.5 A·cm⁻² über die Versuchszeit. Man erkennt, dass bei beiden Konditionierungsprotokollen im Dauerversuch eine weitere Spannungssteigerung bis zu einem quasi identischen Maximum zu beobachten ist. Dieses wird von den langsam konditionierten Zellen früher erreicht.

Nachfolgend erfolgt im Regelbetrieb eine langsame Abnahme der Zellspannung, wobei die Degradationsraten nicht eindeutig vom Konditionierungsprotokoll abhängig sind. Bei Heißbetriebsphasen brechen jedoch die Spannungen der schnell konditionierten Zellen tiefer ein. Das Ausmaß des Einbruchs ist bei beiden Versuchen unterschiedlich.

Die Regeneration der Zellspannungen im Normalbetrieb erfolgt bei den langsam konditionierten Zellen zu höheren Spannungen. Auffällig sind die Unterschiede im Degradationsverhalten während der ersten Betriebsphase. Im Erstversuch wird ein deutlicher ausgeprägter Spannungsverlust bei den schnell konditionierten Zellen beobachtet während beim Wiederholungsversuch die schnell konditionierten Zellen bei höherer Spannung unter Last betrieben werden konnten. Auch zeigten sich Unterschied im Ausmaß der Spannungsdifferenzen bei Heißbetrieb.

Abbildung 58: Entwicklung der Zellspannung bei einem Laststrom von 1.5 A·cm⁻² über die Versuchsdauer

a) Erstversuch b) Wiederholung des Versuchs

Abbildung 59 zeigt den zeitlichen Verlauf der Analyse von Impedanzspektren nach dem dargestellten Ersatzschaltbild. Der zu Beginn des Tests (BOT) geringfügig höhere Elektrolytwiderstand (R_{el}) lässt sich auf eine noch nicht vollständig erfolgte Durchfeuchtung der Zellen nach der schnellen Konditionierung zurückführen. Auffällig ist die Verschiebung der zu Beginn des Tests kapazitiv dominierten Stofftransports hin zu stärker resistiven Anteilen (C_N und R_N)

Abbildung 59: Analyse der Impedanzspektren über die Betriebszeit (b in Abbildung 58)

60 Abbildung zeigt rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von Elektrodenguerschnitten nach der Konditionierung. Auffällig sind hier die höheren Ionomeranteile (matte Bereiche) in den Elektroden nach der Schnellkonditionierung im Vergleich zur Situation nach der langsamen (Referenz) Konditionierung. Der über Bildanalyse bestimmte höhere Ionomeranteil in den Elektroden nach Schnellkonditionierung wird auch durch ein stärkeres Schwefelsignal in den EDX-Spektren bestätigt.

Die hier dargestellten Befunde unterstützen die in der ersten Versuchsreihe gewonnenen Ergebnisse vor allem im Hinblick auf Unterschiede im Betriebsverhalten bei erhöhter Temperatur in Abhängigkeit der Konditionierungsprozedur.

Abbildung 60: Elektrodenquerschnitte nach Konditionierung. Man erkennt einen höheren Ionomeranteil in den Proben nach Schnellkonditionierung

Die beobachteten Unterschiede im Heißbetrieb während der zweiten Versuchsreihe deuten auf die Ausbildung eines unterschiedlichen Wassermanagements bzw. Wasserspeicherfähigkeit der Elektroden in Abhängigkeit der Konditionierungsprozedur hin. Ursächlich hierfür könnten unterschiedliche Ionomerverluste während der Konditionierung sein.

Die Versuchsreihen zeigten, dass schnelle Inbetriebnahmeprozeduren auf Stackebene möglich sind und zu vergleichbaren Leistungscharakteristiken führen. Die Versuche geben allerdings deutliche Hinweise auf die Ausbildung von Unterschieden im Wassermanagement und in der Ionomerverteilung in den Elektroden in Abhängigkeit der Konditionierungsprozedur. Weitere Arbeiten zur Klärung der Unterschiede im Dauer- und Heißbetriebsverhalten sind in nachfolgenden Projekten erforderlich.

Arbeitspaket T

Im Lauf des Projekts wurde bei mehreren Unternehmen ein erheblicher Schulungsbedarf für Themen rund um Wasserstoff und Brennstoffzellen erkennbar. Im Rahmen des Arbeitspakets T wurden Schulungsunterlagen vorbereitet und zunächst individuelle Schulungen für Unternehmen durchgeführt. Die Schulungen wurden in der Regel als Online Seminare durchgeführt

| Schulungsnehmer | Datum | Thema |
|----------------------------------|--------------|---------------------------|
| | | |
| Robert Bosch GmbH Homburg | 24.01.2020 | BZ-Grundlagen |
| MAN Truck & Bus Deutschland GmbH | | BZ-Schulung Grundlagen |
| Robert Bosch GmbH Homburg | 26.05.2020 | [Brennstoffzelle Kompakt- |
| Robert Bosch GmbH | 24.6.2020 | Brennstoffzelle Kompakt |
| Bremer Energie-Konsens GmbH | | Vortrag BZ-Heizung |
| MOEHWALD GmbH, Homburg | 8./9.07.2020 | BZ-Grundlagen |
| REINZ-Dichtungs-GmbH, Neu-Ulm | | BZ-Grundlagen |
| REINZ-Dichtungs-GmbH, Neu-Ulm | | BZ-Grundlagen |
| Robert Bosch GmbH | 20.10.2020 | Brennstoffzelle Kompakt |
| REINZ-Dichtungs-GmbH, Neu-Ulm | | BZ-Grundlagen |

 Tabelle 10:
 Schulungen zu BZ-relevanten Themen

| Schulungsnehmer | Datum | Thema |
|--------------------------|-----------------------|--------------------------|
| | | |
| Robert Bosch GmbH | 30.11./01.12.2020 | BZ-Grundlagen |
| Robert Bosch GmbH | 20. & 21. 04.2021 | BZ-Grundlagen |
| IVECO | 30. & 31.03.2021 | BZ-Grundlagen |
| Eberspächer | 3.,4.&11.03. 2021 | BZ-Grundlagen |
| MAFU-Robotics | 06. & 07.07.2021 | BZ-Grundlagen |
| Siemens | 27. & 28.07.2021 | BZ-Grundlagen |
| Robert Bosch GmbH | 21. & 22.09.2021 | BZ-Grundlagen |
| IHK-Schwarzwald | 14. & 15. 12.2021 | BZ-Grundlagen |
| ZF | 29.11.&01.12. 2021 | BZ-Grundlagen |
| Liebherr | 14. & 15.12.2021 | BZ-Grundlagen |
| IHK-Schwarzwald | Februar 2022 | BZ-Grundlagen |
| Reinz Dichtungs GmbH | März 2022 | Grundlagen Elektrochemie |
| DB-Regio AG / Siemens AG | Mai 2022 | BZ-Grundlagen |
| H2-Regio | Juli 2022 | BZ-Workshop |
| BOSCH | September 2022 | BZ-Grundlagen |

Tabelle 11:Durchgeführte Workshops

| Workshop | Datum | Thema |
|---------------------------|-----------------------|---|
| VDMA-Workshop | 28. & 29. Januar 2020 | ZBT, Duisburg: Automatisierte Stackstapelung von Membran- Brennstoffzellen |
| VDMA-/NRC-Workshop | 1. & 2. Oktober 2020 | Fraunhofer ISE, Web-Seminar: Factory Acceptance Testing & Break- in of Fuel Cell Stacks |
| International QC Workshop | 05. & 06.05.2021 | HFTO/NREL (Mitorganisation Fraunhofer ISE) |
| VDMA AG Brennstoffzellen | 18.05.2021 | Workshop Degradation / Lebensdauer von Brennstoffzellen |
| International Web Seminar | 24. & 25.11.2021 | Fraunhofer ISE, Fuel Cell MEA Production Research |
| International Web Seminar | 15. & 16.11.2022 | Fraunhofer ISE, Fuel Cell MEA Production |

Verwertung

Die Ergebnisse der Forschungsarbeiten wurden in der wissenschaftlichen Literatur und auf wissenschaftlichen Konferenzen veröffentlicht. Verschiedene Schulungsmaßnhamen und die Durchführung von Workshops dienten zur Verbreitung der Forschungsergebnisse sowie der Anregung neuer Forschungs- und Entwicklungsthemen. Die bei den Partnern aufgebaute Forschungsinfrastruktur steht der Branche für weitere Forschungs- und Entwicklungsvorhaben zur Verfügung.

Veröffentlichungen

Veröffentlichungen

Y. Wang, B. Seo, B. Wang, N. Zamel, K. Jiao, X. Cordobes Adroher. Fundamentals, materials, and machine learning of polymer electrolyte membrane fuel cell technology. Energy and AI, 2020; 1:100014. <u>https://doi.org/10.1016/j.egyai.2020.100014</u>

X.-Z. Yuan, C. Nayoze, N. Shaigan, D. Fisher, N. Zhao, N. Zamel, P. Gazdzicki, M. Ulsh, K. A. Friedrich, F. Girard, U. Groos. A review of functions, attributes, properties and measurements for the quality control of proton exchange membrane fuel cell components. Journal of Power Sources, Vol. 491, 2021, <u>https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2021.229540</u>

K. Christmann et al., Activation mechanisms in the catalyst coated membrane of PEM fuel cells, 2021; <u>https://doi.org/10.1016/j.pecs.2021.100924</u>

Ney et al. "Challenges of fabricating catalyst layers for PEM fuel cells using flatbed screen printing", Journal of Coatings Technology and Research, 2022. DOI: <u>https://doi.org/10.1007/s11998-022-00710-1</u>

H. Liu, L. Ney, N. Zamel, X. Li "Effect of Catalyst Ink and Formation Process on the Multiscale Structure of Catalyst Layers in PEM Fuel Cells", Applied Sciences 2022, 12 (8), 3776. DOI: https://doi.org/10.1016/j.electacta.2022.140680

Ney et al. "Impact of the Drying Temperature during Catalyst Layer Manufacturing on PEM Fuel Cell Performance", Meet. Abstr. ECS 2022, MA2022-01 (35), 1422. DOI: <u>https://doi.org/10.1149/MA2022-01351422mtgabs</u>

Konferenzbeiträge

Zamel et al. *"Catalyst coated membranes – their structure, their performance and their durability"*. World Fuel Cell Conference 2021, August 16 – 20, 2021

Ney et al., *"Modeling the Flow Behavior of Catalyst Inks for PEM Fuel Cells by an Evolutionary Algorithm"*; Annual European Rheology Conference 2021, 2021. DOI: 10.13140/RG.2.2.20968.19209.

Ney et al., *"Challenges of Fabricating Catalyst Layers for PEM Fuel Cells Using Flatbed Screen Printing"*, European Coating Symposium 2021, T-55, https://www.european-coating-symposium.eu/index.html

Ney et al., *"HyFab PEM Fuel Cell MEA Production Research at ISE"*, 20th Virtual International Coating Symposium by COATEMA Coating Machinery GmbH, 08.09.2021

Zamel et al., "Application of artificial intelligence in the context of fuel cells", f-cell 2021, 15.09.2021

Groos et al., *"From catalyst powder to membrane electrode assembly – results from HyFab"*, f-cell 2021, 15.09.2021

Ney et al. *"Fabricating Catalyst Layers for PEM Fuel Cells by Screen Printing*", 6th Advanced Screen Printing Workshop SPF 2021 by ASADA MESH Co. LTD., Valencia, Spain, https://edu.asada-mesh.com/screen-printing-forever-2021/, 27.10.2021

Ney et al. *"Modeling the flow behavior of catalyst inks for PEM fuel cells by an evolutionary algorithm"*, AERC (Annual European Rheology Conference) Presentation, online, 15.04.2021, *https://nrs.blob.core.windows.net/pdfs/nrc-4-f2974757-c356-412a-b546-34f081567f8e.pdf*

Ney et al. *"Challenges of fabricating catalyst layers for PEM fuel cells using flatbed screen printing"*, European Coating Symposium, Presentation, online, 07.09.2021

Ney et al. *"Impact of the Drying Temperature during Catalyst Layer Manufacturing on PEM Fuel Cell Performance"*, ECS 241st Meeting Electrochemical Society, Presentation, Vancouver, Canada, 29.05.2022, <u>https://www.electrochem.org/241</u>

Konferenzbeiträge

Ney et al. "Optimizing Ink Formulations to Enable Advanced Production Technologies for Catalyst Layer Manufacturing of PEMFC", Gordon Research Seminar & Conference for Fuel Cells, Presentation and Poster, Smithfield, USA, 23.07.2022, <u>https://www.grc.org/fuel-cells-grs-conference/2022/</u>

Ney et al. "*HyFab – PEM FC MEA production research at Fraunhofer ISE*" 20th Coatema Coating Symposium, Presentation, online, 08.09.2021

Keding et al. "*New technologies in fuel cells*", Presentation, 21th Coatema Coating Symposium, Dormagen, 08.11.2022

Groos et al., "Screen Printed Catalyst Coated CCMs for Fuel Cells", VDD Seminar, 07.04.2022, online

Ney et al., Poster "Manufacturing the Electro-Chemical Heart of a PEM fuel cell – Production Research for Membrane Electrode Assembly", 14.-15.06.23, UECT, Ulm

Thombra et al., Poster "Upscaling the CCM manufacturing process to enable industrial active areas", 14.-15.06.23, UECT, Ulm

Miriam Koprek, Ildiko Lüdeking, Fabian Regnet, Jürgen Hunger, Ludwig Jörissen "*Investigation of the Impact of PEMFC Break-In Procedures on Long-term Durability Behavior*", UECT 2021, Ulm

Preise

Der f-cell Award wurde von Baden-Württembergs Umwelt-minister Franz Untersteller (links) an Dr. Roman Keding (Mitte) und Dr. Matthias Klingele (rechts) übergeben.