

# Abschlussbericht

## HyFaB2-Basislinie Stack

von

Ludwig Jörissen\*, Frank Häußler\*, Linda Ney\*\*, Ulf Groos\*\*

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

Förderkennzeichen: L75 23108 - 23109

Laufzeit: 28.07.2023 – 29.02.2024

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

Februar 2024



## Baden-Württemberg

MINISTERIUM FÜR UMWELT, KLIMA UND ENERGIEWIRTSCHAFT

---

# Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis .....	2
Tabellenverzeichnis .....	4
Kurzbeschreibung der Forschungsergebnisse .....	5
Motivation und Hintergrund des Vorhabens .....	5
Ausgangspunkt: Das Projekt HyFaB-Baden-Württemberg.....	5
Weiterführung im Projekt HyFaB-Basislinie .....	6
Arbeitspakete.....	6
Arbeitspaket ZSW-1: Assemblierung von 7-Lagen MEAs .....	7
Arbeitspaket ZSW-2: Stackfertigung .....	7
Arbeitspaket ZSW-3: Leistungstests .....	7
Arbeitspaket ISE-1: Katalysatorschichten .....	7
Arbeitspaket ISE-2: 5-Lagen MEAs .....	7
Arbeitspaket ISE-3: Charakterisierung.....	8
Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde.....	8
Planung und Ablauf des Vorhabens .....	8
Zusammenarbeit mit anderen Stellen.....	9
Beitrag der Ergebnisse zu den Zielen des Förderprogramms .....	9
Erzielte Ergebnisse.....	10
Arbeitspaket ZSW-1: Assemblierung von 7-Lagen MEAs .....	10
AP ZSW-1.1: Vorrichtungskonstruktion und –bau zur präzisen, handwerklichen Assemblierung von MEAs. Materialauswahl für Rahmenfolien und Kleber. Prozessentwicklung. Sicherstellung einer falten- und blasenfreien Lamination. 10	
AP ZSW-1.2: Fertigung von MEAs zur Stackherstellung unter Verwendung von mindestens 2 verschiedenen CCM-Sorten .....	11
AP ZSW-1.3: Prozessdokumentation und Erarbeitung von Automatisierungsoptionen .....	12
Arbeitspaket ZSW-2: Stackfertigung .....	14
AP ZSW-2.1: Adaption der raumluftechnischen Anlagen, Medien und Umgebungsconditionierung.....	14
AP ZSW-2.2: Adaption der automatischen Referenz-Stackinganlage, Verbindung zur Gebäudetechnik, Einfahren der Anlage in Kombination mit der Gebäudetechnik .....	17
AP ZSW-2.3 Handwerkliche Fertigung von Stacks .....	18
AP ZSW-2.4: Automatisierte Fertigung von Stacks .....	22
Arbeitspaket AP ZSW-3: Leistungstests .....	22
AP ZSW-3.1: Erstellung und Validierung des Testprogramms, Kalibrierung und Validierung der Prüfstände .....	22
AP ZSW-3.2: Leistungstests an Kurzstacks .....	25

Arbeitspaket AP ISE-1: Katalysatorschicht .....	27
AP ISE-1.1: Entwicklung der Katalysatortinten.....	28
AP ISE-1.2: Entwicklung der Anoden- und Kathodenkatalysatorschicht .....	29
Arbeitspaket AP ISE-2: Fünf-Lagen MEA .....	31
AP ISE-2.1: Entwicklung des Transferprozesses .....	31
AP ISE-2.2: Entwicklung der Subgasket-Lamination.....	33
AP ISE-2.2: Entwicklung der GDL-Lamination .....	35
Arbeitspaket AP ISE-3: Charakterisierung .....	35
AP ISE-3.1: Ex-situ Analytik der Katalysatorschichten, der CCM und der MEA	35
AP ISE-3.2: In-situ Charakterisierung der MEA.....	36
Zusammenfassung .....	39
Verwertung .....	40
Präsentationen / Veröffentlichungen .....	40
Weiterführende Arbeiten .....	40

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: a) Funktionsmuster des generischen Brennstoffzellenstapels auf dem Prüfstand. b) Kennlinie des generischen Brennstoffzellenstapels zeigt die Erfüllung der Spezifikation. ....	5
Abbildung 2: Stapel- und Ausrichtvorrichtung zur Laminierung von CCMs.....	10
Abbildung 3: Typ 2 CCM Laminierung: links vorher, rechts nachher .....	12
Abbildung 4: Verbundkante zwischen Typ 2 CCM und Heißsiegelkleber Randverstärkungsfolie .....	12
Abbildung 5: Schema einer MEA Fertigungsanlage für eine 7-Lagen MEA.....	13
Abbildung 6: Aktueller Fertigungsstand der MEA Fertigungsanlage.....	14
Abbildung 7: Elektrische und medienseitige Anschlüsse wie Druckluft, Kühlwasser, Stickstoffversorgung sowie Zu- und Abluft in HyFaB2 .....	16
Abbildung 8: Übersicht des Layouts der Referenzstapelanlage .....	17
Abbildung 9: Aktueller Stand bei Inbetriebnahme bei Mühlbauer .....	18
Abbildung 10: Baugruppe Kathodenendplatte (links) und Anodenendplatte (rechts).	20
Abbildung 11: Darstellung der Stapelvorrichtung zum Aufbau des Generischen Stacks mit Führungsschienen der Genaukanten (1) und Positionierstifte (2) .....	21
Abbildung 12: Prozess Zellstapelung und Stapelaufbau .....	21
Abbildung 13: HyFaB Prüfstände .....	22
Abbildung 14: Kalibrierprotokoll für Massendurchflussmesser (MFC) Luft .....	23
Abbildung 15: Übersicht der Skripte der einzelnen Prüfprogramme .....	24
Abbildung 16: Script für Feuchtekenlinie Anode .....	25
Abbildung 17: Übersicht über aufgebaute Generische Stack .....	25
Abbildung 18: Kennlinienscharen der Sensitivitätsanalysen.....	26
Abbildung 19: Herstellung der Membran-Elektroden-Einheit mit Schlitzdüsenbeschichtung .....	28
Abbildung 20: Neu beschaffter Siebdruck-Halbautomat EKRA XH STS für die Herstellung von Katalysatorschichten.....	28

Abbildung 21: Verwendete Geräte zum Mischen und Dispergieren der Anoden und Kathodentinte für Schlitzdüsenbeschichtung. Links: Speedmixer in der Glovebox, Rechts: Ultraschallhorn.....	29
Abbildung 22: Schlitzdüse während des Druckprozesses mit Shim-Breite von 15cm	29
Abbildung 23: Schematische Darstellung der Schlitzdüse mit Druckprozessparametern.....	30
Abbildung 24: Trocknungsprozess der Katalysatorschichten, Links: Nasse Schicht, Rechts: Nach der Trocknung .....	30
Abbildung 25: Hochauflösende Fotobox-Bilder von Katalysatorschichten unterschiedlicher Beladung mit $\mu$ XRF-Messungen .....	31
Abbildung 26 Rollen-Kalander und Transferprozess durch Heißpressen und Abziehen der Decalfolien .....	32
Abbildung 27 Decalfolien vor und nach dem Transferprozess via Rollen-Kalander zur optischen Analyse der Transfergüte .....	32
Abbildung 28 Quantifizierung der gravimetrischen Transfergüte von 7 großflächigen Kathoden .....	33
Abbildung 29: Stanzen der CCM auf die Maße für den Generischen Stack; unten: Schneidplotter zum automatisierten Schneiden von CCMs und Subgaskets .....	33
Abbildung 30: MEA mit laminierten Subgaskets (links), mögliche Defektbilder im Subgasketing-Prozess (rechts).....	34
Abbildung 31: Schnittkanten der FB H23C9 (links) und FB H14CX653 (rechts).....	35
Abbildung 32: STEM-EDX Bilder mit Elementverteilung der Kathoden-Katalysatorschicht; Erstellt durch Prof. Jasna Jankovic, UCONN.....	36
Abbildung 33: Stromdichte des Wasserstoff-Crossovers für verschiedene MEA-Prozessierungen.....	37
Abbildung 34: Polarisationskurven, gemessen unter nassen (RH 100%) und trocknen (RH 40%) Bedingungen für 3 CCMs, beschrieben in Tabelle 5.....	38
Abbildung 35: Polarisationskurven und Hochfrequenzwiderstand in feuchten und trockenen Bedingungen der CCMs für den Generischen Stack, auf 12cm <sup>2</sup> Baltic Cell.....	39

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Generelle Arbeitspakete des Vorhabens .....	6
Tabelle 2:	Schrittweise Beschreibung des Aufbaus der Baugruppe Kathoden- Endplatteneinheit .....	18
Tabelle 3:	Schrittweise Beschreibung des Aufbaus der Baugruppe Anoden- Endplatteneinheit .....	19
Tabelle 4:	Verpressvorgang des generischen Stacks.....	21
Tabelle 5:	Unterschiedliche Transfer und Laminierschritte der 5-Lagen MEA.....	37

## Kurzbeschreibung der Forschungsergebnisse

Das Projekt HyFaB-Basislinie ist eine Fortsetzung des Projekts HyFaB Baden-Württemberg mit dem Ziel, die dort entworfenen Konzepte zur Fertigung eines generischen Brennstoffzellenstapels und zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) im Sinne der Vorbereitung der Industrialisierung der Brennstoffzellentechnik weiterzuführen und zu skalieren. Der Projektverbund HyFaB ist eine gemeinsame Aktion des ZSW am Standort Ulm, des Fraunhofer Instituts für Solare Energiesysteme (ISE) in Freiburg und des VDMA.

Im Projekt Basislinie wurden die Konzepte zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen als Vorbereitung für einen späteren kontinuierlichen Beschichtungsablauf vom Siebdruckverfahren auf eine Schlitzdüsenbeschichtung überführt. Die Prozesse zur Herstellung von 5-lagigen und 7-lagigen Membran Elektroden Einheiten (MEA) sowie von Brennstoffzellenstapeln wurden handwerklich weiter optimiert und die so gewonnenen Erkenntnisse an die Anlagenhersteller übergeben und für die Konzeption der in der Beschaffung befindlichen automatisierten Anlagen genutzt. Zur Validierung der Prozessschritte wurde handwerklich eine Kleinserie von CCMs, MEAs und Kurzstapeln gefertigt und als Kurzstapel elektrochemisch vermessen.

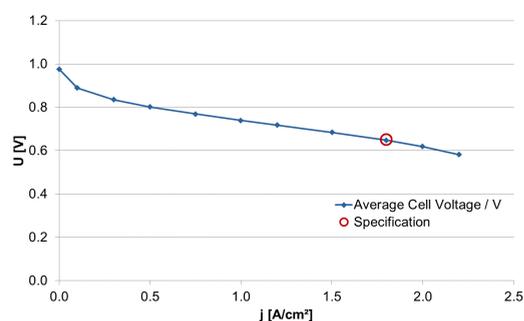
## Motivation und Hintergrund des Vorhabens

### Ausgangspunkt: Das Projekt HyFaB-Baden-Württemberg

Der HyFaB-Projektverbund begleitet die gerade stattfindende Industrialisierung von PEM-Brennstoffzellen und deren Komponenten. In einem ersten Projekt, HyFaB-Baden-Württemberg, wurde auf Basis einer im Industriedialog erarbeiteten „High-Level-Spezifikation“ ein generischer Brennstoffzellenstack entwickelt, dessen Bipolarplatten in Kooperation mit der Firma EKPO auskonstruiert und zu einem industrialisierungsfähigen Funktionsmuster entwickelt wurden. Hierbei wurden neben funktionalen Kriterien auch fertigungstechnische Randbedingungen nicht nur für die unmittelbare Bipolarplattenfertigung sondern auch für die spätere Stapelassemblierung einbezogen.



a)



b)

Abbildung 1: a) Funktionsmuster des generischen Brennstoffzellenstapels auf dem Prüfstand.

b) Kennlinie des generischen Brennstoffzellenstapels zeigt die Erfüllung der Spezifikation.

Für die Bipolarplattenfertigung wurde bei der Firma EKPO ein Folgeverbundwerkzeug hergestellt, mit dem in einem industriellen Prozess Bipolarplattenrohlinge in für eine

Industrialisierung des Assemblierungsprozesses relevanter Stückzahl geprägt und nachfolgend auf den Anlagen von EKPO zu funktionsfähigen Bipolarplatten finalisiert werden. Die zur Komplettierung des Stapels (Balance of Stack, BoS) erforderlichen weiteren Bauteile wurden am ZSW konstruiert und gefertigt. Die Assemblierung eines Kurzstapels erfolgte unter Verwendung kommerzieller Membran-Elektroden-Einheiten (MEA). Durch einen ersten Leistungstest konnte die Erfüllung der Spezifikation nachgewiesen werden.

Am Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme (ISE) in Freiburg wurden in der ersten Projektphase Methoden zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen (CCM) erarbeitet und deren Leistungsfähigkeit in Einzelzellen nachgewiesen.

Mit der Verfügbarkeit des generischen Brennstoffzellenstapels und dem Aufbau der CCM Fertigungskapazitäten in Freiburg stehen der Branche nun ein „open Source“ Brennstoffzellenstapel sowie Methoden zur CCM-Herstellung nach dem Stand der Technik für Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Verfügung.

### Weiterführung im Projekt HyFaB-Basislinie

Logische nächste Schritte sind daher die weitere Automatisierung der CCM-Fertigung sowie der MEA- und Stapel-Assemblierung. Die vorbereitenden Arbeiten sind Inhalt des hier beschriebenen Projekts. Hierfür wurden bei ZSW und ISE entsprechende Anlagen mit kompetenten Industrieunternehmen konzipiert und deren Beschaffung beauftragt.

Ferner sind auch weiterhin vertiefte Kenntnisse der Einflüsse von Fertigungstoleranzen, Umweltbedingungen und Verschmutzungen bei der Montage, Maßketten auf Komponentenebene sowie Fehlerbilder bei Qualitätssicherungsmaßnahmen, wie sie in Industrieworkshops ausgearbeitet wurden, teilweise nicht vorhanden und müssen erarbeitet werden.

Ziele des hier vorgestellten Projekts waren die Qualifizierung des generischen Brennstoffzellenstapels und der zugehörigen Komponenten als Basis für Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zu Themen der automatisierten MEA-Fertigung und Stapelassemblierung. Eine wesentliche Voraussetzung dafür ist die Schaffung einer geeigneten Aufstellungsumgebung für Anlagen zur Teilautomatisierung bzw. weitgehenden Vollautomatisierung der Prozesse zur CCM-Herstellung sowie MEA- und Stapelassemblierung. Dies dient der Etablierung einer Basislinie für weitergehende F&E-Arbeiten.

### Arbeitspakete

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

Tabelle 1: Generelle Arbeitspakete des Vorhabens

AP 0 Koordination	AP ZSW-1 7-Lagen MEA	AP ZSW-2 Stackfertigung	AP ZSW-3 Leistungstests	AP ISE-1 Katalysatorschicht	AP ISE-2 5-Lagen MEA	AP ISE-3 Charakterisierung
	AP ZSW-1.1 Vorrichtungskonstruktion	AP ZSW-2.1 Adaption raumlufttechnischer Anlagen	AP ZSW-3.1 Erstellung des Testprogramms	AP ISE-1.1 Entwicklung Katalysatorintinten	AP ISE 2.1 Entwicklung Transferprozess	AP ISE-3.1 Ex-situ Analysen der Katschicht, CCM, MEA

AP 0 Koordination	AP ZSW-1 7-Lagen MEA	AP ZSW-2 Stackfertigung	AP ZSW-3 Leistungstests	AP ISE-1 Katalysatorschicht	AP ISE-2 5-Lagen MEA	AP ISE-3 Charakterisierung
	AP ZSW-1.2 MEA-Assemblierung	AP ZSW-2.2 Adaption der Referenz-Stackiganlage	AP ZSW-3.2 Durchführung von Leistungstests an Kurzstapeln	AP ISE 1.2 Entwicklung Anoden und Kathodenschichten	AP ISE-2.2 Entwicklung Subgasket Lamination	AP ISE-3.2 MEA in-situ Charakterisierung
	AP ZSW-1.3 Prozessdokumentation	AP ZSW-2.3 Handwerkliche Stapelfertigung				
		AP ZSW-2.4 Automatisierte Stapelfertigung				

### **Arbeitspaket ZSW-1: Assemblierung von 7-Lagen MEAs**

- Verbesserung der Vorrichtung, Verfeinerung des handwerklichen Herstellverfahrens
- Herstellung von 7-Lagen MEAs
- Ableitung / Optimierung von Prozessschritten für die kontinuierliche Fertigung

### **Arbeitspaket ZSW-2: Stackfertigung**

- Vorbereitung der Gebäudeumgebung für die automatisierte 7-lagen-MEA und Stapelfertigung
- Aufbau und Vermessung von Stapeln
- Ableitung / Optimierung von Prozessschritten für die automatisierte Stapelfertigung

### **Arbeitspaket ZSW-3: Leistungstests**

- Erstellung eines Testprogramms zur Ermittlung der Leistungscharakteristik (Leistung, Sensitivität gegenüber Betriebsparametern)
- Implementierung des Programms auf mehreren Prüfständen
- Durchführung von Leistungs- und Sensitivitätstests

### **Arbeitspaket ISE-1: Katalysatorschichten**

- Entwicklung von Tintenrezepturen
- Erforschung / Optimierung von Misch- und Auftragungsprozessen
- Herstellung von Katalysatorschichten

### **Arbeitspaket ISE-2: 5-Lagen MEAs**

- Transfer Katalysatorschicht auf Elektrolytmembran
- Skalierung der MEA-Fläche
- Applikation des Folienrahmenms und GDL

## **Arbeitspaket ISE-3: Charakterisierung**

- Ex-Situ Charakterisierung der Katalysatorschichten, CCM, MEA
- MEA-Tests
- Untersuchung des Einflusses des Laminierprozesses
- Untersuchung des Einflusses des Schichtauftragsverfahrens

## **Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde**

Die Industrialisierung der Brennstoffzellenfertigung ist im Gange. Sowohl asiatische (unter anderem TOYOTA, Hyundai, Refire) als auch europäische (unter anderem Bosch, EKPO, Cellcentric, SYMBIO) Hersteller errichten Pilotlinien zur automatisierten Herstellung von Brennstoffzellenstapeln. Auch die Komponentenindustrie (z.B. Bipolarplatten, Elektrolytmembranen, CCM, MEA sowie Gasdiffusionslagen) transferiert aktuell ihre Pilotprozesse auf Produktionsanlagen. In diesem Zug suchen mehr und mehr Unternehmen der traditionellen Automobil-Zulieferindustrie Chancen im sich entwickelnden Feld der Wasserstoffherzeugung.

Der Stand der Technik bei Unternehmen wird in der Regel nicht geschlossen in der wissenschaftlichen Literatur publiziert. Auch in der Patentliteratur werden Fertigungsprozesse nur in geringem Umfang beschrieben, da derartige Patente in der Regel die Fertigungsprozesse einerseits offenlegen und andererseits diese Prozesse dann leicht zu umgehen sind.

ZSW und ISE knüpfen an ihre jeweiligen Vorerfahrungen in Konstruktion und Auslegung von Brennstoffzellenstapeln sowie zu Fragen der Gestaltung von Katalysatorschichten und MEAs an. Hier wurden im Vorgängerprojekt HyFaB-Baden-Württemberg erhebliche Fortschritte erzielt.

## **Planung und Ablauf des Vorhabens**

Die Arbeiten am ZSW beinhalteten die Übertragung handwerklicher Aufgaben bei der MEA und Stackassemblierung auf automatisierungsfähige Lösungen. Ausschlaggebend hierfür ist eine Betrachtung des Lieferzustands und der Verarbeitungseigenschaften der Grundmaterialien wie Bipolarplatten, CCM, Randverstärkungsfolien, Gasdiffusionslagen sowie BoS-Komponenten. Hierzu gehören die visuelle Inspektion der Teile, Probemontagen von MEAs und Brennstoffzellenstapeln, Betrachtung und Vermessung von Ausrichtungspunkten etc.. Aus den Ergebnisse werden im Dialog mit den Herstellern der Anlagen zur automatisierten Assemblierung von MEAs und automatisierten Stapelbildung automatisierungsfähige Lösungen erarbeitet, die in automatisierten Anlagen umgesetzt werden können. Gleichzeitig müssen die Anforderungen an die Räume zur späteren Aufstellung der Anlagen definiert und bauseitig umgesetzt werden.

Die konzeptionelle Arbeit wurde begleitet durch Versuche zur handwerklichen Assemblierung von MEAs, und Brennstoffzellenstapeln, bei der potenzielle Prozessvarianten erprobt wurden sowie der Charakterisierung von Stapeln.

Die gefundenen Lösungsansätze wurden an die Hersteller der mit Fördermitteln des Bundesministeriums für Digitales und Verkehr finanzierten Fertigungsanlagen erfolgreich übergeben. Beim Aufbau der Maschinen zur MEA-Assemblierung sowie zur automatisierten Stapelfertigung traten bei den Anlagenherstellern Verzögerungen

auf. Daher konnte im Projektzeitraum die endgültige Inbetriebnahme der Anlagen zur MEA- und Stapelassembly in den HyFaB-Gebäuden nicht erfolgen. Im Rahmen des Projekts wurden jedoch die vorbereitenden Arbeiten zur Schaffung einer Reinraumumgebung und zum Maschinenanschluss am Aufstellungsort im HyFaB-Technikumsgebäude durchgeführt.

Zur Herstellung von CCM wurden Katalysatorschichten zusätzlich zum Siebdruckverfahren auch mittels Schlitzdüsenauftrag hergestellt und die zugehörigen Prozessparameter erarbeitet. Dies beinhaltete sowohl die Zusammensetzung der zugehörigen Tinten als auch deren Verarbeitung zu CCMs in einem Format, das mit dem generischen Brennstoffzellenstapel kompatibel ist. Ferner gehörte dazu die Übertragung der Katalysatorschichten auf die Elektrolytmembran, die Einbindung in einen Folienrahmen sowie die Applikation von GDL. Auch hier waren die relevanten Prozessparameter zu entwickeln und zu optimieren.

Begleitend zu den Fertigungsprozessen wurden begleitende Methoden und Prozesse zur Qualitätssicherung von Katalysatorschichten, CCMs, und MEAs entwickelt.

Die dargestellten Arbeiten bilden die Voraussetzung für die weitere F&E-Projekte mit Beiträgen zur Industrialisierung der Brennstoffzellenfertigung. Die HyFaB Plattform hat dadurch weiter an Attraktivität gewonnen.

## **Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

Im Projekt ergab sich ein intensiver Austausch mit den Lieferanten der automatisierten Fertigungsanlagen zur Umsetzung der zunächst handwerklich entwickelten Prozesse. Der Dialog mit den anderen Instituten der Fraunhofer-Gesellschaft zu Konstruktion und Auslegung des generischen Stapels wurden fortgesetzt. Der generische Brennstoffzellenstapel wird mittlerweile an verschiedenen Instituten als Referenz eingesetzt.

Weitere Interaktionen bestanden mit dem Industriesteuerkreis sowie mit dem VDMA-Innovationscluster Go-Start BZ.

## **Beitrag der Ergebnisse zu den Zielen des Förderprogramms**

Die PEM-Technologie ist von wesentlicher Bedeutung für die Wasserstoffnutzung zur Stromerzeugung sowohl für Anwendungen in Fahrzeugen als auch für den stationären Einsatz sowie für die Wasserstoffherzeugung mittels Wasserelektrolyse. Durch die schnelle Reaktionszeit auf Laständerungen sowohl als Stromerzeuger als auch in der Wasserstoffherzeugung ist die PEM-Technologie prädestiniert für Anwendungen mit stark fluktuierenden Lastprofilen. Grüner Wasserstoff wird in der Zukunft als klimafreundlicher Treibstoff und als Energieträger weiter an Bedeutung gewinnen. Das Projekt trägt so dazu bei, die anspruchsvollen Klimaschutzziele des Landes Baden-Württemberg zu erreichen.

Die Ergebnisse sind in Einklang mit den folgenden Teilzielen des BWPLUS-Programms:

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

Im Projekt wurde die im Vorgängerprojekt HyFaB-Baden-Württemberg etablierte Forschungs- und Entwicklungsplattform weiter entwickelt die in Kooperation mit Forschungsorganisationen und Industrieunternehmen weiter genutzt wird.

## Erzielte Ergebnisse

### Arbeitspaket ZSW-1: Assemblierung von 7-Lagen MEAs

#### **AP ZSW-1.1: Vorrichtungskonstruktion und –bau zur präzisen, handwerklichen Assemblierung von MEAs. Materialauswahl für Rahmenfolien und Kleber. Prozessentwicklung. Sicherstellung einer falten- und blasenfreien Lamination**

Im vorhergegangenen Bericht wurde der Prozess zur Laminierung der CCM beschrieben. Die dort erläuterte hierfür verwendete Vorrichtung wurde für diesen Schritt auch weiterhin genutzt. Für die Verbesserung der Laminierung wurden daher Prozessparameter, Materialien und weitere kleine Änderungen der Vorrichtung vorgenommen, die der Verbesserung der Handhabung und Prozessstabilität dienen.



Abbildung 2: Stapel- und Ausrichtvorrichtung zur Laminierung von CCMs

Nachdem nach weiterer Optimierung der Verpressparameter, wie Temperatur, Dauer und Druck, mit Dummy-CCMs sehr gute Laminierungsergebnisse erzielt wurden, wurde im nächsten Schritt eine im ZSW Lager verfügbare CCM eines gängigen Herstellers (Typ 1) eingesetzt. Hierbei wurde der Einfluss der Laminierung bei den zuvor bestimmten Parametern auf die CCM untersucht. Die Qualität der Laminierung wich im Vergleich zu den Ergebnissen der Dummy-CCM leicht nach unten hin ab.

Die verwendete CCM reagierte sensibel auf Luftfeuchte, was sich besonders beim Verpressvorgang in der Heißpresse als kritisch herausstellte. Durch die hohen Temperaturen trocknet die CCM stark aus, was zu Wellen- und vermehrter Blasenbildung führte. Um dem entgegenzuwirken, wurden Versuche mit einer Klebefolie durchgeführt, welche lediglich durch Druck und nicht durch Hitze gefügt werden konnte. Den ersten Versuchen war als positiv zu entnehmen, dass die Haftung zwischen Folie und CCM, sowie die Haftung der Folien zueinander sehr gut war. Durch die entfallene Erhitzung der CCM fand ebenfalls keine Wellenbildung statt. Die bei der

Erstfügung entstehenden Lufteinschlüsse ließen sich beim Verpressvorgang jedoch nicht entfernen.

Auch eine Erhöhung des Drucks resultierte in keiner merklichen Verbesserung des Ergebnisses. Bei weiteren Versuchen wurde eine Seite der Folie mit verschiedenen Einschnitten versehen, über welche die Lufteinschlüsse beim Pressvorgang entweichen können. Mittels diesen Ansatzes konnte die Blasenbildung weitestgehend unterdrückt werden. Da ohne umfangreiche Dauertests keine Aussage über den Einfluss der Schnitte oder Kleberaustritte durch Öffnungen in der Folie auf Leistung und Lebensdauer getroffen werden konnte wurde dieser Ansatz zunächst zurückgestellt.

Die getestete Klebefolie bot vor allem aufgrund der Kaltlaminiertfähigkeit Potential, war jedoch für die händische Fertigung der MEAs mit der vorhandenen Stapel- und Ausrichtevorrichtung nicht geeignet.

In Zukunft könnte die Klebefolie Anwendung in einem Rolle-zu-Rolle Verfahren finden, da sich durch ein automatisiertes Aufbringen der Folie in einem gekrümmten Bahnverlauf der Einschluss von Luft zwischen zwei Klebefolien bei der Fügung deutlich reduzieren lässt.

### **AP ZSW-1.2: Fertigung von MEAs zur Stackherstellung unter Verwendung von mindestens 2 verschiedenen CCM-Sorten**

Im Folgenden wurden CCMs eines weiteren Herstellers (Typ 2) für Laminierungsversuche verwendet. Mit den verwendeten Parametern wurden zuvor Typ 1 CCMs laminiert und gute Ergebnisse erzielt. Die in den Versuchen verwendeten Typ 2 CCMs reagierten schon vor der Laminierung stark auf die relativ trockene Umgebungsluft. Nach Fügung mit der Randverstärkungsfolie stabilisierte sich die CCM. Nach Verpressung in der Heißpresse wellte sich die MEA nun jedoch sehr stark.

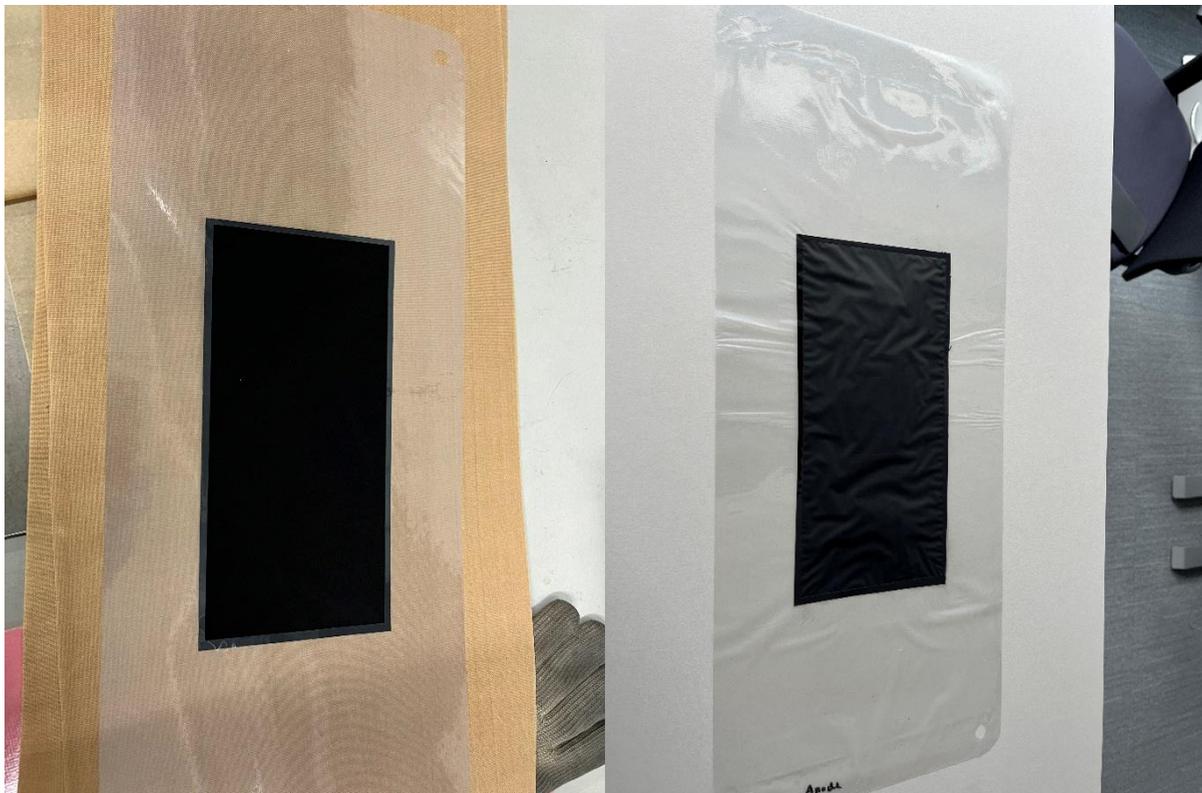


Abbildung 3: Typ 2 CCM Laminierung: links vorher, rechts nachher



Abbildung 4: Verbundungskante zwischen Typ 2 CCM und Heißsiegelkleber  
Randverstärkungsfolie

Die sehr unterschiedlichen Ergebnisse verschiedener CCMs nach Laminierung verdeutlichen, dass eine händische Fertigung der MEAs möglich ist, jedoch zu deutlichen streuenden Qualitäten führen kann. Vor allem das Potential einer Klebefolie und die damit verbundene Möglichkeit kalt zu laminieren konnte durch eine händische Fertigung nicht ausgenutzt werden.

### **AP ZSW-1.3: Prozessdokumentation und Erarbeitung von Automatisierungsoptionen**

Aus den Ergebnissen aus AP ZSW-1.1 und AP ZSW-1.2 konnte gezeigt werden, dass eine sichere Lamination der CCM mittels der entwickelten Vorrichtungen nicht immer gegeben war. Die unterschiedlichen verwendeten CCMs verhielten sich im Laminationsprozess sehr inhomogen und sensitiv auf die Umgebungsbedingungen. Für jeden CCM-Typ traten unterschiedliche Herausforderungen auf, welche eine aufwändige Adaption des Fertigungsverfahrens notwendig machten. Insbesondere die Umgebungsbedingungen stellten einen großen Einflussparameter dar.

Für eine prozesssichere MEA-Assemblierung wird daher zwingend eine kontrollierte temperatur- und feuchtegeregelte Umgebung benötigt. Zudem konnte gezeigt werden, dass das Applizieren der Randverstärkungsfolie über den linearen Fügeprozess über das Falten der einzelnen Vorrichtungsteile nicht gesichert zu blasenfreien Laminaten führte.

Die Automatisierung dieses Prozesses kann nach unserem Erachten zukünftig über mehrere Konzepte erfolgen. Eine reine Pick-and-Place Anwendung ist ebenso denkbar wie eine bahngesteuerte Rollen-Verarbeitung.

Die Pick-and-Place Automation stellt große Herausforderungen an das positionsgenaue Abholen und Platzieren der einzelnen Lagen. Hierbei ist insbesondere zu überlegen, wie die einzelnen Blätter dem Greifer zugeführt werden können. Ein mit mehreren Einzelblättern bestücktes Magazin ist aufgrund der sehr labilen und aneinander haftenden Einzelkomponenten extrem herausfordernd. Eher wird beim Pick-and-Place Konzept eine manuelle Positionierung der Einzelsheets zum Tragen kommen, was den Automatisierungsgrad deutlich einschränkt. Das lagerichtige Applizieren der Sheets aufeinander ist mit aufwändiger Kameratechnik mit hoher Wahrscheinlichkeit technisch lösbar. Der Fügeprozess selbst sollte in einer Rollbewegung erfolgen, sodass eine Blasenbildung ausgeschlossen werden kann.

Die bahngesteuerte Rollen-Verarbeitung zeichnet sich dadurch aus, dass die einzelnen Materialien als Rollenware mittels einer definierten Bahnspannung gehalten und fortbewegt werden. Diese Technologie wird aktuell von mehreren Maschinen- und Anlagenbauern verwendet. Diese bahngesteuerten Prozesse sind in anderen Industriezweigen bereits seit langen Jahren im Einsatz, z.B. in der Wundauflagen, Etikettier und Verpackungsindustrie. Hierbei werden die Einzelmaterialien von der Rollenware weg direkt in einen Bahnprozess eingesteuert. Dies ermöglicht einen kontinuierlichen und definierten Prozess und hat mit Abstand das größte Automatisierungs und Massenfertigungspotenzial.

Die Beschaffung einer automatisierten Anlage zur Lamination von MEAs war Bestandteil eines vom Bundesministeriums für Digitales und Verkehr geförderten Projekts innerhalb des HyFaB-Projektverbands. Nach einer intensiven Markterkundung und vielen Gesprächen mit in Frage kommenden Lieferanten für solch eine Rollen-Verarbeitungs Anlage konnten wir in einer europaweiten Ausschreibung die Fa. Optima als Hersteller eine Pilotanlage gewinnen. In die Konzeption der Anlage sind wesentliche Erkenntnisse aus dem Projekt HyFaB-Basislinie eingeflossen. Die Anlage wird mehrere Prozessschritte durchfahren in welchen die Zwischenprodukte aus den vorigen Prozessschritten wieder eingespurt werden müssen. Im letzten Prozessschritt wird schlussendlich eine vollständige 7-Lagen MEA inklusive der Gasdiffusionslagen vorliegen. Die Anlage ist für die Herstellung einer 7-Lagen MEA für den „Generischen Stack“ ausgelegt, und wird in der Lage sein, unterschiedliche Materialien zu verarbeiten. Zudem ist eine Formatflexibilität durch Umbau diverser Anlagenbauteile gegeben. Abbildung 5 zeigt ein Übersichtsschema der Anlage im Prozessschritt der CCM Assemblierung.

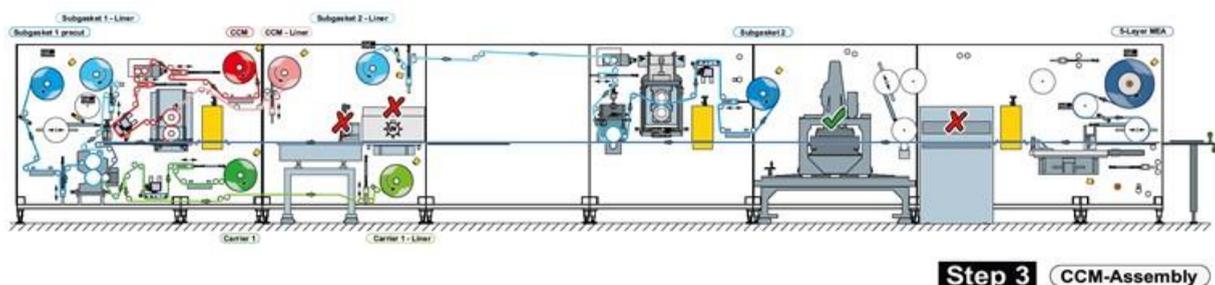


Abbildung 5: Schema einer MEA Fertigungsanlage für eine 7-Lagen MEA

Aktuell befindet sich die Anlage im Aufbau (Abbildung 6) und wird in Q3 des Jahres 2024 ans ZSW in die HyFaB Halle geliefert.



Abbildung 6: Aktueller Fertigungsstand der MEA Fertigungsanlage

## Arbeitspaket ZSW-2: Stackfertigung

### AP ZSW-2.1: Adaption der raumluftechnischen Anlagen, Medien und Umgebungskonditionierung

Wie in AP ZSW-1.3 beschrieben ist die Kontrolle der Temperatur- und Feuchtebedingungen in der Fertigungsumgebung von besonderer Bedeutung für die Stabilität der Fertigungsprozesse bei der MEA- und Stapelassembly. Zudem ist es von großer Bedeutung, dass die MEA- und Stackfertigung in einer Umgebung mit definierter Partikelzahl und -größe stattfindet. Hierzu wurde im Rahmen des HyFaB-Basislinie Projekts im zweiten Bauabschnitt des HyFaB-Gebäudes eine Sauber- und Reinraumumgebung aufgebaut.

Für die geplanten Arbeiten mussten die Bestands- und Neuanlagen mit der Infrastruktur im HyFaB-Neubau verbunden werden. Hierzu gehörte auch die Einbringung der Anlagen in Reinräume und die Verbindung mit Medien und raumluftechnischen Anlagen sowie die Bereitstellung von Elektroanschlüssen.

Ergänzend dazu wurden die zum Betrieb der Anlagen benötigten Anschlüsse für Kühlwasser, Prozessabluft und Explosionsschutz-Abluft aufgebaut.

In Abbildung 7 zeigen diverse Bilder aus den Hallenteilen die aufgebauten Räume und die für die Anlagen zugehörigen und benötigten elektrischen und medienseitigen Anschlüsse wie Druckluft, Kühlwasser, Stickstoffversorgung sowie Zu- und Abluft.





Abbildung 7: Elektrische und medienseitige Anschlüsse wie Druckluft, Kühlwasser, Stickstoffversorgung sowie Zu- und Abluft in HyFaB2

## AP ZSW-2.2: Adaption der automatischen Referenz-Stackinganlage, Verbindung zur Gebäudetechnik, Einfahren der Anlage in Kombination mit der Gebäudetechnik

Im Rahmen eines vom Bundesministerium für Digitales und Verkehr geförderten Projekts aus dem HyfaB-Projektverbund konnte eine Referenzstapelanlage beschafft werden, in deren Konzeption wesentliche Erkenntnisse aus dem Projekt HyFaB-Basislinie eingebracht wurden.

Die Anlage wurde ausgelegt zum Stapeln von Brennstoffzellen mit der Möglichkeit einer frei einstellbaren Ablageposition jeder einzelnen Wiederholeinheit incl. eines hochauflösenden optischen Prüfsystems für Oberflächen- und Geometrieprüfung der BZ-Komponenten. Gewinner des europaweiten Ausschreibungsverfahrens war die Firma Mühlbauer. In Abbildung 8 ist das generelle Anlagenlayout dargestellt.

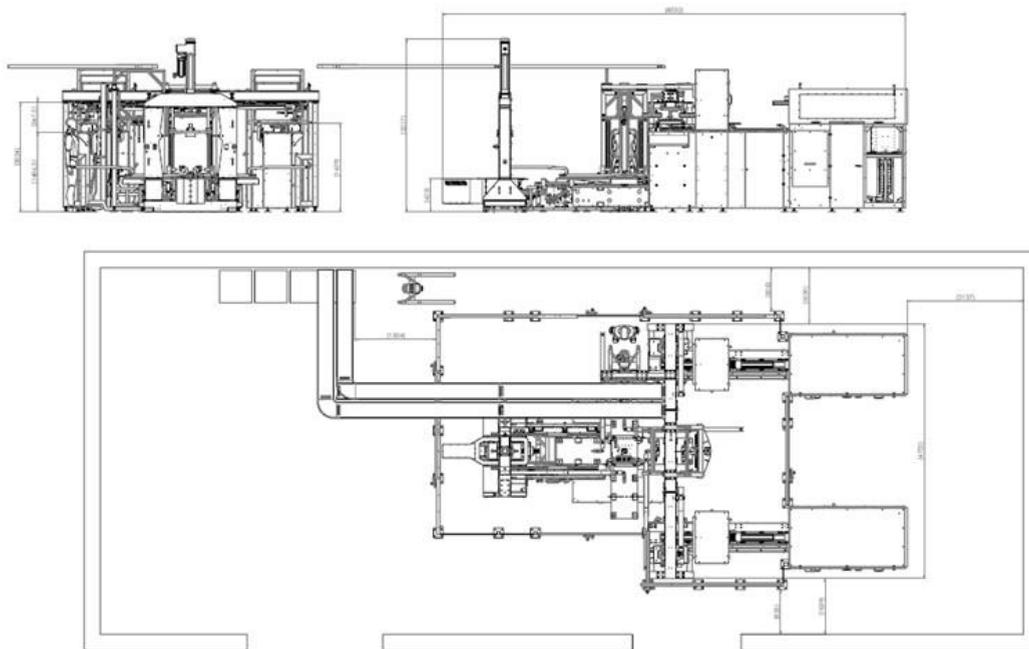


Abbildung 8: Übersicht des Layouts der Referenzstapelanlage

Das Anlagenlayout und die funktionellen Spezifikationen der Anlage wurden in mehreren Abstimmungsrunden und persönlichen Meetings unter Verwendung wichtiger Erkenntnisse aus dem Projekt HyFaB-Basislinie erstellt.

Die Vorabnahme der Anlage beim Auftragnehmer (FAT) erfolgte am 06.07.2023. Danach mussten infolge von parallel aus dem Projekt HyFaB-Basislinie gewonnenen Erkenntnissen Modifikationen im Hinblick auf Genauigkeit / Toleranzen der Teileablage und der Bedienerschnittstelle erfolgen. In Abbildung 9 ist der Anlagenstand während der Fabrikabnahme dargestellt. Die Anlage wird in Q2/2024 angeliefert werden

Durch die Verzögerungen in der Lieferung konnte das Arbeitspaket „automatisierte Stapelung“ im Projekt HyFaB-Basislinie nicht vollständig umgesetzt werden.

Sämtliche gebäudetechnischen Verbindungen zur Anlage wie Elektroanschluß und Medienanschluß sind vorbereitet. Die Raum Einbauten sind abgeschlossen, die Luft- und Klimatechnik wird in den nächsten Wochen in Betrieb gehen.



Abbildung 9: Aktueller Stand bei Inbetriebnahme bei Mühlbauer

### AP ZSW-2.3 Handwerkliche Fertigung von Stacks

Der Aufbau eines Brennstoffzellenstapels erfolgt in mehreren Phasen:

- Vorfertigung der „Balance of Stack“ Komponenten (Kathoden- und Anodenbaugruppe)
- Stapelung der Wiederholeinheiten
- Montage der Abschlussbaugruppen
- Komprimierung des Stapels
- Verpressen des Stapels
- Schließen der Verspanneinheiten
- Abschlussprüfung

Im Folgenden werden Schlüsselprozesse der handwerklichen Stapelfertigung beschrieben, wie sie im Projektverlauf durchgeführt wurden..

#### *Aufbau der Endplatten Baugruppen*

Noch vor der Stapelung der Zellen zum fertigen Stack müssen die Endplattenbaugruppen aus den entsprechenden Einzelteilen zusammengebaut werden. Hierfür müssen die Einzelkomponenten wie Tabelle 2 und Tabelle 3 zu entnehmen verbunden werden.

Tabelle 2: Schrittweise Beschreibung des Aufbaus der Baugruppe Kathoden-Endplatteneinheit

Schritt	Komponente	Anzahl	Beschreibung
1	Endplatte Kathode	1	
2	Sechskantmutter M8	1	In Ausschnitt des Isolierblocks legen

Schritt	Komponente	Anzahl	Beschreibung
3	Unterlagscheibe 8,4 mm	1	In Ausschnitt des Isolierblocks legen (auf Mutter M8)
4	Unterlagscheibe 5,3 mm	2	In Bohungen des Isolierblocks stecken
5	Zylinderkopfschraube M5x14	2	In Bohungen des Isolierblocks stecken (auf Unterlagscheibe 5,3 mm)
6	Isolierblock	1	mit Endplatte Kathode verschrauben, auf Langer Seite mittig liegende Bohrungen (Schritt 2-5)
7	Manifoldeinsätze	2	in Ausfräsungen der Endplatte Anode einlegen
8	4x10 Zylinderstifte	2	in Bohrung auf Oberseite der Endplatte Kathode stecken und mit Kunststoffhammer einsetzen
9	54x2,5 mm O-Ring	2	in Manifoldeinsätze einlegen
10	45x2,5 mm O-Ring	2	in Manifoldeinsätze einlegen
11	66x2,5 mm O-Ring	2	in Manifoldeinsätze einlegen
12	Isolierplatte Kathode	1	auf Endplatte aufsetzen, Zylinderstife in vorgesehene Bohrungen einführen, Öffnung für Abgriff Stromabnehmer liegt über Isolierblock
13	Stromabnehmer Kathode	1	aus Isolierplatte setzten, Abgriff zeigt nach unten

Tabelle 3: Schrittweise Beschreibung des Aufbaus der Baugruppe Anoden-Endplatteneinheit

Schritt	Komponente	Anzahl	Beschreibung
14	Isolierplatte Anode	1	
15	Stromabnehmer Anode	1	in den Ausschnitt der Isolierplatte Anode legen, Abgriff zeigt nach unten, beide Komponenten drehen (Stromabnehmer liegt unten, Abgriff zeigt nun nach oben)
16	Mutter M8	1	In Ausschnitt des Isolierblocks legen
17	Unterlagscheibe 8,4 mm	1	In Ausschnitt des Isolierblocks legen (auf Mutter M8)
18	Unterlagscheibe 5,3 mm	2	In Bohungen des Isolierblocks stecken
19	Zylinderkopfschraube M5x14	2	In Bohungen des Isolierblocks stecken (auf Unterlagscheibe 5,3 mm)
20	Isolierblock	1	mit Endplatte Anode verschrauben, auf Langer Seite mittig liegende Bohrungen (Schritt 16-19)
21	Spannplatte	1	mit glatter Seite nach unten auf Isolierplatte legen, Abgriff Stromabnehmer liegt über Isolierblock
22	Führungsdorn (Ronde)	2	flache Seiten (Scheibe) auf die Spannplatte legen
23	Tellerfedern	4	jeweils zwei Tellerfedern auf Rondon legen (jeweils Bauch aufeinander, x-Form)
24	Enplatte Anode	1	auf Rondon legen (Dorne in Bohrungen der Endplatte einführen)
25	Hilfsschrauben	2	bis zur Verpressung des Stacks muss die Baugruppe verschraubt werden, hierzu Endplatte Anode mit Messschieber und Haarlineal mittig ausrichten und festziehen

In der folgenden Abbildung 10 sind Explosionszeichnungen der beiden Baugruppen Kathodenendplatte und Anodenendplatte mit den entsprechenden Komponenten dargestellt.

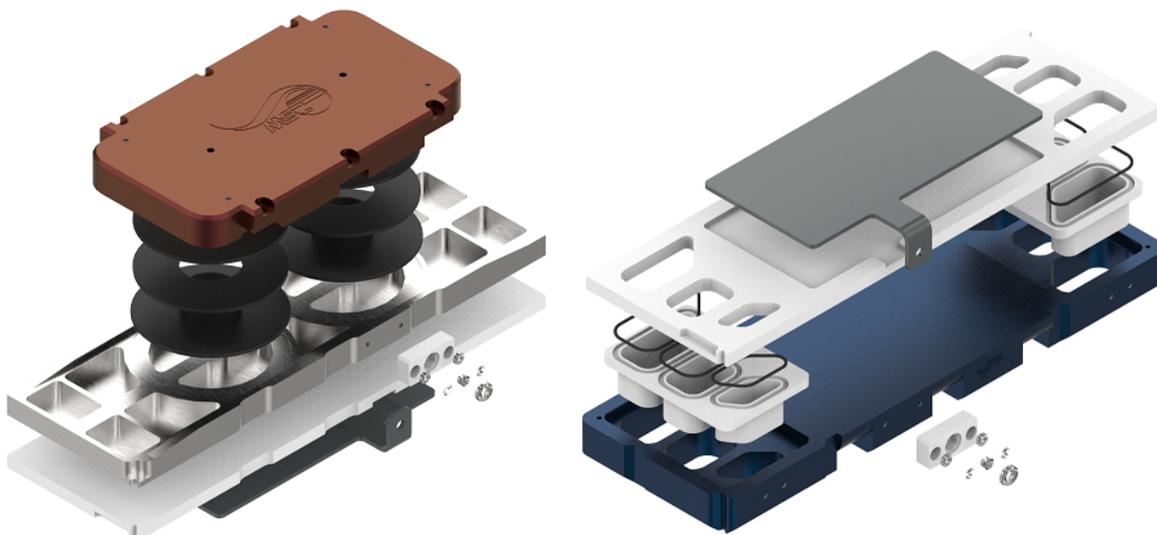


Abbildung 10: Baugruppe Kathodenendplatte (links) und Anodenendplatte (rechts)

### *Zellstapelung und Stack Aufbau*

Nachdem, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, die BoS für den Generischen Stack aufgebaut wurde, wird im Folgenden auf die Stapelung der Zellen, den Stackaufbau und den Verpressvorgang des Stacks eingegangen.

Zum Aufbau des Stacks, bzw. Stapelung der Zellen wurde eine Stapelvorrichtung konstruiert, welche sowohl das Handling des Aufbaus erleichtern sowie die Qualität des Stapelergebnisses verbessern soll. Hierfür wurden, wie der Darstellung in Abbildung 11 zu entnehmen, verschiedene Ausrichtpunkte festgelegt, welche die zu stapelnden Komponenten, aber vor allem die Bipolarplatten und MEAs gleichmäßig aufeinander ausrichten sollen.

Die Stapelvorrichtung wird im ersten Schritt in die Presse gestellt. Nachdem die Baugruppe Kathodenendplatte auf der Vorrichtung plaziert wurde, können die verschiedenen Positioniereinheiten fixiert werden. Im Folgenden kann mit dem Stapelvorgang der Bipolarplatten-MEA-Einheiten begonnen werden.

Startpunkt ist die Endbipolarplatte Anode (Kathode blind). Die Gaszuführungskanäle sind bei dieser Abschlussplatte auf Kathodenseite geschlossen. Um eine gleichmäßige Verpressung der Einheit gewährleisten zu können, muss auf der „blind“ Seite eine GDL fixiert werden, was mit kleinen Klebepunkten an den Ecken realisiert wird. Die Bipolarplatte wird über die Führungseinheiten auf der Baugruppe Kathodenendplatte ausgerichtet. Nach gewünschter Zellzahl werden nun abwechselnd MEAs und Bipolarplatten (Wechselnd Typ A und B) gestapelt. Beendet wird die Einheit wieder mit einer Abschlussplatte, nun jedoch mit der Endbipolarplatte Kathode (Anode blind). Nachdem die Baugruppe Kathode auf die gestapelten Zellen aufgelegt wurde, kann mit dem Verpressvorgang begonnen werden.

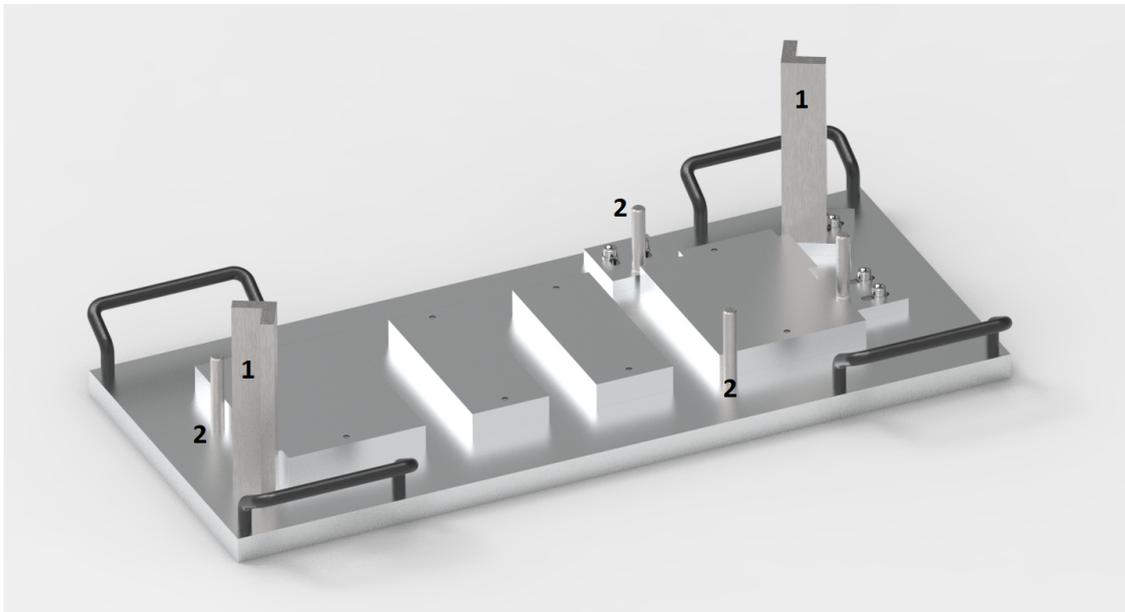


Abbildung 11: Darstellung der Stapelvorrichtung zum Aufbau des Generischen Stacks mit Führungsschienen der Genaukanten (1) und Positionierstifte (2)

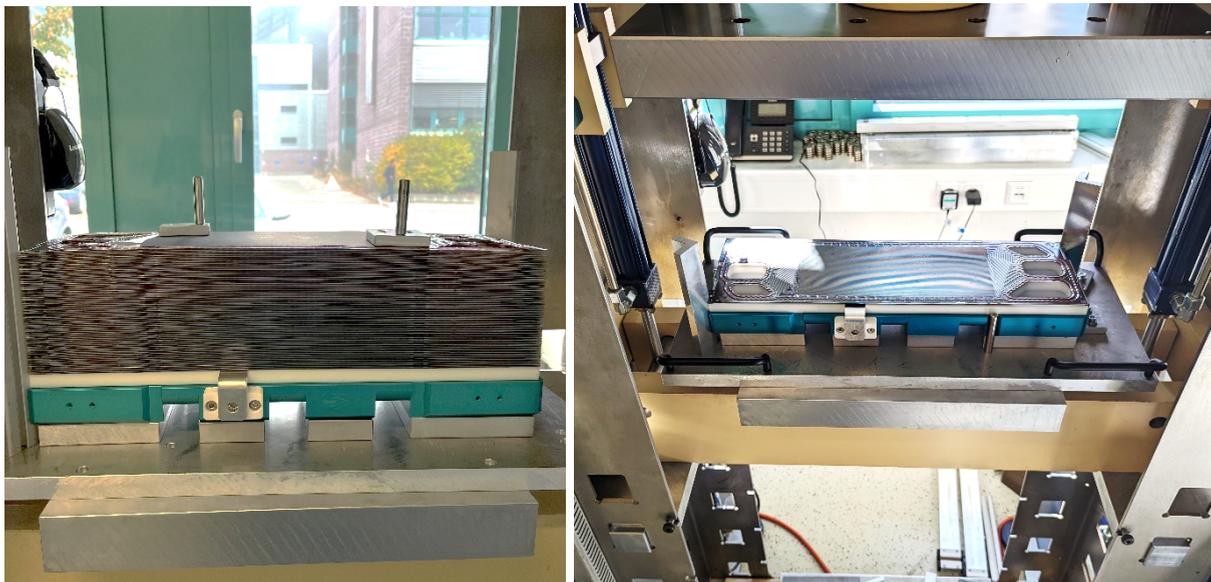


Abbildung 12: Prozess Zellstapelung und Stapelaufbau

Je nach Anzahl der Zellen wird die passende Länge der Spannbänder gewählt. Diese werden für die später richtige Positionierung vorweg vorgebogen. Als geeignet hat sich eine Verpressvorgang des Stacks nach folgendem Schema herausgestellt.

Tabelle 4: Verpressvorgang des generischen Stacks

Schritt	Komponente	Beschreibung
1	Presse	Verpressung mit 17,5 kN
2	Spannbänder	Befestigen der Bänder an Endplatte Anode und Anzug auf jeweils 1 kN, gegebenenfalls Verwendung von längeren Hilfsschrauben)

Schritt	Komponente	Beschreibung
3	Presse	Entlastung der Presse zur Vorkonditionierung der Bänder
4	Presse	Verpressung mit 35 kN
5	Spannbänder	Verschraubung der Spannbänder mit Schrauben (Festigkeitsklasse 10.9 und Unterlagscheiben) an Endplatte Anode und Anzug auf jeweils 1 kN
6	Presse	Entlastung der Presse

Mit Abschluss des Verpressvorganges wird der Stack entnommen und mittels eines Dichtigkeitstests überprüft. Nach erfolgreichem Test kann der Stack dann auf einem Teststand montiert und betrieben werden.

### **AP ZSW-2.4: Automatisierte Fertigung von Stacks**

Wie bereits in AP ZSW-2.2 erläutert, konnte durch die verzögerte Auslieferung der automatischen Referenzstapelanlage keine Stacks automatisiert aufgestapelt werden. Erste Inbetriebnahmestapel wurden bei Fa. Mühlbauer bereits gefertigt. Erwartungsgemäß führten Schwankungen der Luftfeuchtigkeit in der Fertigungsumgebung zu hohen Qualitätsschwankungen.

Vollständig betriebsfertige, qualitätsgesicherte Stapel können somit erst nach Transfer der Anlage in die kontrollierte und klimatisierte Umgebung im HyFaB-Gebäude die tatsächlich betriebsbereiten Zellen aufgebaut werden.

### **Arbeitspaket AP ZSW-3: Leistungstests**

#### **AP ZSW-3.1: Erstellung und Validierung des Testprogramms, Kalibrierung und Validierung der Prüfstände**

Im Verlauf des HyFaB-Basislinien Projekts wurden mehrere Stacks manuell aufgebaut und getestet. Dazu mussten die entsprechenden Prüfstände (Abbildung 13), auf welchen die Tests gefahren wurden, kalibriert und validiert werden.



Abbildung 13: HyFaB Prüfstände

Dabei wurden sämtliche Aktoren und Sensoren mittels von Kalibriergeräten überprüft und ggf. eingeregelt. Temperatur, Druck, Durchfluss und Feuchtesensoren sowie der Strom und alle Spannungseingänge wurden mit auf nationale Standards rückführbare Normale geprüft.

Diese Kalibrierung wird je nach Testprogramm und Bedarf oder Vorgabe vom Kunden bei Inbetriebnahme und mindestens im jährlichen Turnus durchgeführt. Exemplarisch ist in Abbildung 14 ein Kalibrierprotokoll der Massendurchflussregler für Luft dargestellt.



**Kalibrierschein für MFC**

Kalibriergegenstand:		Durchführung der Kalibrierung:			
Art des Prüfmittels:	MFC	Datum:	2024-02-19		
Teststand:	TST#09	Bearbeiter:	P. Stein		
Prüfmittel-ID:	TST09_F_Air_CAO	Ort:	HyFaB 1		
Hersteller:	Bronkhorst	letzte Kalibrierung:	2022-01-19		
	M21 203 044 B				
Medium:	Air				
Durchfluss max.:	200,0 NL/min				
Genauigkeit:	+/-0.7% Rate +/-0.2% F.S.				
<b>Verwendung des Kalibriergegenstand im Teststand:</b>					
Verwendetes Medium im TST:	Air				
Durchfluss max. in TST-Software:	200,0 NL/min				
Genauigkeit Messumformer TST	+/-0.5% Rate				
<b>Kalibrierverfahren (Referenzgerät):</b>		<b>Referenzbedingungen:</b>			
Referenzgerät:	LaminarFlowElement	T [°C]	0		
Hersteller:	TetraTec	p [mbar]	1013		
Kalibriergas:	H2				
Genauigkeit:	+/-0.65% v.M (mit k=2)				
LFE Einheit:	LFE 2				
Zuletzt kalibriert am:	2023-05-10				
<b>Bewertung des Messwertes (MW):</b>					
Abweichung des Messwertes liegt innerhalb der Toleranz					✔
Abweichung des Messwertes liegt außerhalb Toleranz					✘
<b>Messergebnisse der Kalibrierung:</b>					
Sollwert [%] vom maximalen Durchfluss	Soll TST [NL/min]	Ist Referenz [NL/min]	erlaubte Abw. [%]	relative Abw. [%]	Bewertung
0,0	0,0	0,0	+/- 0,00	0,00	✔
20,0	40,0	40,1	+/- 2,20	0,25	✔
40,0	80,0	80,2	+/- 1,70	0,25	✔
60,0	120,0	119,9	+/- 1,53	-0,08	✔
80,0	160,0	159,9	+/- 1,45	-0,06	✔
100,0	200,0	198,3	+/- 1,40	-0,85	✔
<b>Bemerkungen:</b>					
<b>Sonstiges:</b>					

Abbildung 14: Kalibrierprotokoll für Massendurchflussmesser (MFC) Luft

Nach erfolgter Kalibrierung kann eine Validierung des Teststandes mit dem abzufahrenden Testprogramm über einen Referenzstack erfolgen. Dies wird in der Regel bei neuen Testprogrammen, Betriebsbedingungen oder unbekanntem Stapeln durchgeführt, da ein entsprechender Referenzstack mit jedem Test und der unvermeidlichen zwischenzeitlichen Lagerzeit elektrochemisch altert und damit keinen definierten dauerhaften Leistungszustand garantieren kann.

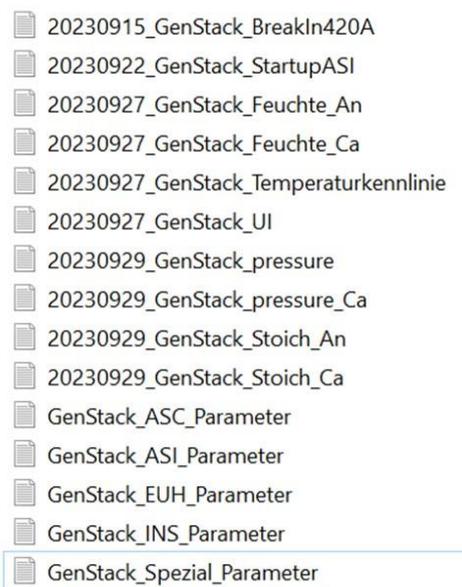


Abbildung 15: Übersicht der Skripte der einzelnen Prüfprogramme

Für die Generischen Stacks wurde ein erstes Prüfprogramm entwickelt. Hierbei wurde an gängigen Prozeduren orientiert, welche dann auf die speziellen Gegebenheiten des Generischen Stacks adaptiert wurden. So sind zum Beispiel die aktive Fläche, der zu erwartende Druckabfall auf Gas- und Kühlwasserseite oder die hydraulischen Strömungseigenschaften von Relevanz. Die Prüfprogramme sind als einzelne Skripte angelegt (Abbildung 15). Diese beinhalten die jeweiligen Ablaufprozeduren für die unterschiedlichen, abzu prüfenden Basisparameter wie Druck-, Temperatur-, Durchfluss, und Feuchteabhängigkeit. Exemplarisch ist in Abbildung 16 ein Script für den Testlauf zur Prüfung der Feuchteabhängigkeit auf der Anodenseite dargestellt.

```

X-Cue Editor Version      3.3.1.2
Format Version           5
Title
Author
Tag Database Path default tag database
Run in E-Stop           FALSE
Hidden                   FALSE
-----
@@@
STEP_TIME               250 msec
WAIT                     5 sec
SET_VALUE                @1.00 s/step
  current_set            =      420.0   (Ramp: 1.00 A/s)
  temp_coolant_set       =              70.00
  temp_cathode_dewpoint_set =          60.00
  temp_anode_dewpoint_set =          50.00
  anode_stoich_set       =          1.40   (Ramp: 15.00 s)
  cathode_stoich_set     =          1.60   (Ramp: 15.00 s)
  pressure_anode_set     =          170.00 (Ramp: 20.00 s)
  pressure_cathode_set   =          140.00 (Ramp: 20.00 s)
  pressure_coolant_set   =          50.00 (Ramp: 20.00 s)
  min_stoich_current_set =          120.00
  flow_coolant_set       =           5.00
  temp_anode_gas_inlet_set =          75.00
  temp_cathode_gas_inlet_set =          75.00
END_SET
WAIT                     300 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          50.00
WAIT                     1800 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          55.00
WAIT                     1800 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          58.50
WAIT                     1800 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          62.00
WAIT                     1800 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          65.00
WAIT                     1800 sec
SET_VALUE                temp_anode_dewpoint_set =          67.50
WAIT                     1800 sec
END

```

Abbildung 16: Script für Feuchtekenlinie Anode

### AP ZSW-3.2: Leistungstests an Kurzstacks

Für die Leistungstest wurden im Projektzeitraum insgesamt 6 Generische Stapel aufgebaut. Diese sind in Abbildung 17 aufgelistet. Dabei wurden insgesamt 5 unterschiedliche MEAs verwendet. Die Nomenklatur der Stacks ist so zu verstehen, dass die 4-stellige Nummer die laufende Identifikationsnummer darstellt und die 2-stellige Nummer die Anzahl der Zellen repräsentiert.

-  GenStack\_1397-7-B
-  GenStack\_1397-14-A
-  GenStack\_1424-15
-  GenStack\_1435-20
-  GenStack\_1436-20
-  Genstack\_1472-26

Abbildung 17: Übersicht über aufgebaute Generische Stack

Die Kennlinien in Abbildung 18 dargestellten Kennlinien zeigen die gefahrenen Sensitivitäts- und Performance-Analysen der jeweiligen Stacks.

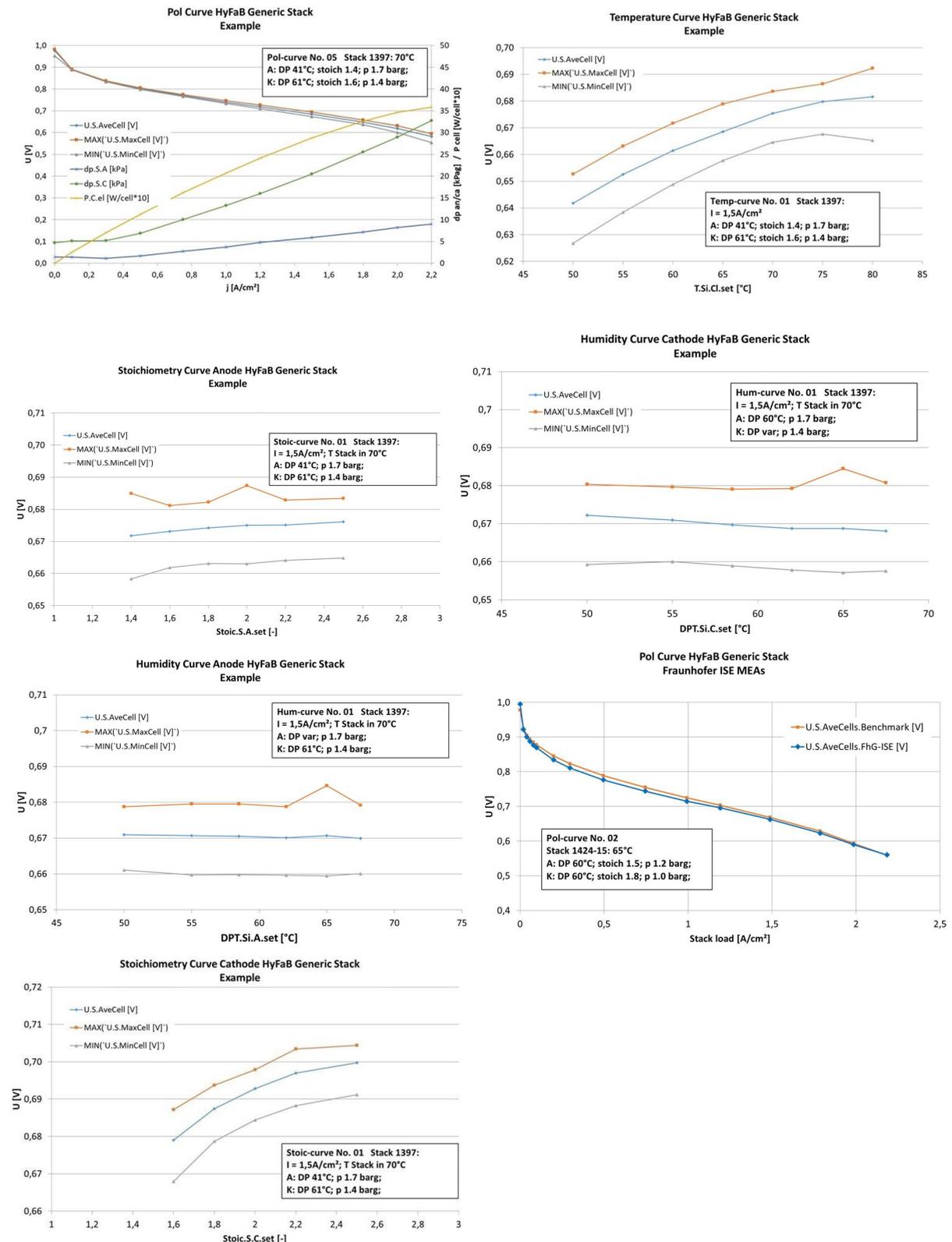


Abbildung 18: Kennlinienscharen der Sensitivitätsanalysen

Wie im Bericht zum Projekt HyFaB-BaWü bereits dargestellt, werden mit dem Generischen Stack die zu Projektbeginn gesetzten Leistungsspezifikationen in vollem Umfang getroffen. Dies konnte mit MEAs aus mehreren Quellen bestätigt werden.

Der kathodenseitige Druckabfall war unter den angelegten betriebsbedingungen höher als erwartet. Dies lässt sich durch Auftreten einer kondensierten Phase und der damit einher gehenden Verengung der Gaskanalstruktur erklären. Durch Variation der Betriebsbedingungen konnte der kathodenseitige Druckabfall beeinflusst werden. Zukünftige Konstruktionen müssen jedoch das Auftreten der Flüssigphase im Betrieb berücksichtigen. Mit dem generischen Stack existiert ein Werkzeug, um die Effekte experimentell zu ermitteln und entsprechende Modelle für zukünftige Gestaltungsrichtlinien für Kathodenkanäle zu erarbeiten.

Die Sensitivität der Stapelcharakteristik hinsichtlich Temperatur, Druck, Feuchtigkeit und Stöchiometrie bewegten sich im Rahmen der Erwartungen. Die abnehmende Spannung des Generischen Stacks mit zunehmender Kathodenfeuchte ist im Einklang mit der Ausbildung einer Zweiphasenströmung auf der Kathode (s.o.). Bemerkenswert ist die sehr geringe und in dieser Art nicht erwartete Sensitivität des Stapels gegen Variation der Anodenfeuchte.

Experimentelle Optimierungen der Betriebsbedingungen sind in Arbeit. Mit fortlaufenden Tests werden zunehmend auch Lebensdauerdaten verfügbar sein, welche einen guten Abgleich mit vergleichbaren Stacks anderer Hersteller erlauben.

### **Arbeitspaket AP ISE-1: Katalysatorschicht**

Die Herstellung der Katalysatorschicht in diesem Projekt erfolgte über die Weiterentwicklung des Schlitzdüsenprozesses. Im vorherigen Projekt „HyFab-BaWü“ wurden Geräte beschafft für den Aufbau einer teilautomatisierten Fertigung von PEM-Brennstoffzellen. Dabei wurde bisher der Siebdruck-Prozess für die Produktion der Vollformat-Katalysatorschichten verwendet und optimiert. Nun wurde in „HyFab2“ die Herstellung von Katalysatorschichten mittels Schlitzdüse etabliert, da sie Vorteile in die Auswahl der Lösungsmittel und damit kürzere Trocknungszeiten mit sich bringt. Die Einstellbarkeit der Nassschichtdicke ist vergleichbar zu einem kontrollierten Dosierprozess, wobei im Siebdruck u.a. das Siebgewebe selbst den Nassauftrag bestimmt.

Der Prozessablauf für dieses Projekt ist in Abbildung 19 dargestellt. Zwischen den letzten beiden Prozessschritten wird das Subgasket an die fertig beschichtete CCM angebracht, wodurch eine 5-Lagen MEA entsteht. Zusammen mit den Gasdiffusionslagen (GDL) entsteht eine fertige 7-Lagen MEA.

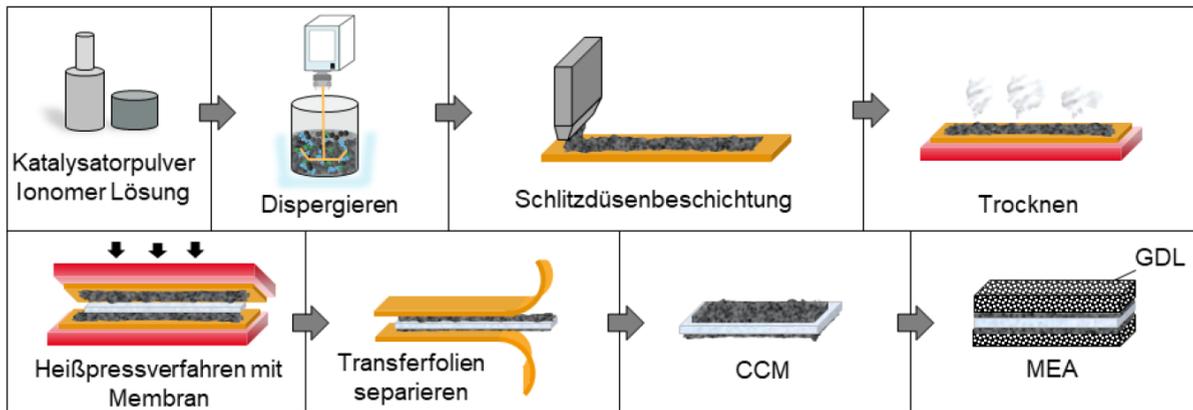


Abbildung 19: Herstellung der Membran-Elektroden-Einheit mit Schlitzdüsenbeschichtung

Zur Herstellung der Katalysatorschichten wurde ein Siebdrucker angeschafft (siehe Abbildung 20).

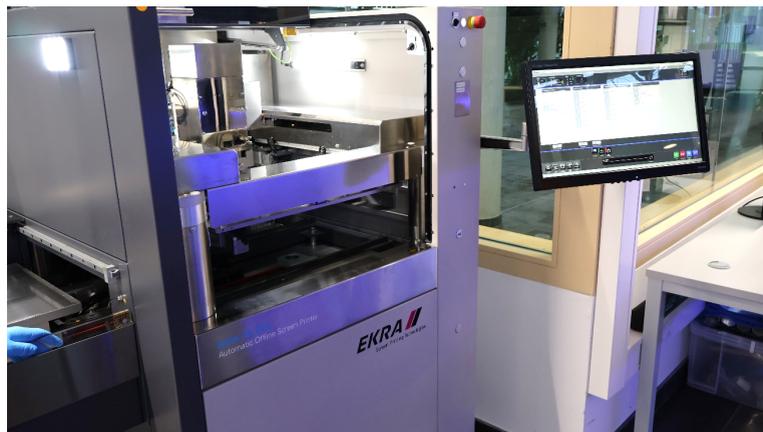


Abbildung 20: Neu beschaffter Siebdruck-Halbautomat EKRA XH STS für die Herstellung von Katalysatorschichten

### AP ISE-1.1: Entwicklung der Katalysatortinten

Für den Schlitzdüsenprozess wurde ein Tintenrezept für jeweils Anode und Kathode erarbeitet, welches im Vergleich zu Siebdruckpasten, gesteuert durch den Feststoffanteil in der Tinte, eine deutlich niedrigere Viskosität aufweist. Dennoch sollen Beladungen von  $0.4\text{mg/cm}^2$  auf der Kathodenseite und  $0.1\text{mg/cm}^2$  auf der Anodenseite erreicht werden. Dies bedeutet, dass eine höhere Nassschicht auf die Decalfolie aufgebracht und getrocknet werden musste. Die Wahl der Lösungsmittel orientierte sich stark an der verfügbaren Literatur. Hierbei werden üblicherweise Gemische aus 1-Propanol und DI-Wasser verwendet, da diese im Trocknungsprozess schneller verdampfen. Die restlichen eingesetzten Materialien sind das Katalysatorpulver von Umicore und das Ionomer von Sigma Aldrich: Aquivion.

Der Mischprozess wurde ebenfalls an die niedrigviskosen Tinten angepasst. Hierfür wurde ein Ultraschallhorn (Abbildung 21) verwendet sowie der Speedmixer innerhalb der Glovebox zum initialen Dosieren bzw. Mischen und am Ende zur Entfernung von Luftblasen. Dazu ein Magnetrührer zur Tintenhomogenisierung über Nacht. Pro Elektrode wurden 105g Tinte hergestellt, um auch mögliche Totvolumina auszugleichen zu können.



Abbildung 21: Verwendete Geräte zum Mischen und Dispergieren der Anoden und Kathodentinte für Schlitzdüsenbeschichtung. Links: Speedmixer in der Glovebox, Rechts: Ultraschallhorn

### AP ISE-1.2: Entwicklung der Anoden- und Kathodenkatalysatorschicht

Für die Beschichtung mittels Schlitzdüse wurde der Coatema Easy-Coater EC80 verwendet (Abbildung 22), welcher im Projekt „HyFab-BaWü“ beschafft wurde.

Zum Schichtauftrag fährt ein präziser Vakuumentisch mit kontrollierter Geschwindigkeit unter der Schlitzdüseneinheit hindurch, welche über eine Pumpe den Volumenstrom regeln kann. Die zu verdruckende Katalysatorfarbe wird mithilfe dieser dosierenden Pumpe aus einer Spritze in den Druckkopf gepumpt. Dort gelangt sie zunächst in einen Expansionsraum, in dem sich die Farbe gleichmäßig über die gewählte Beschichtungsbreite ausbreitet, um von dort aus mit Druck durch einen Schlitz Richtung Substrat gepresst zu werden. Die Düse befindet sich knapp über dem Substrat, sodass sich ein Meniskus zwischen beiden ausbilden kann. Dadurch wird die Farbe in einem dünnen Film auf das Substrat aufgetragen. Abbildung 23 zeigt schematisch den Querschnitt des Prozesses und die zugehörigen Prozessparameter.

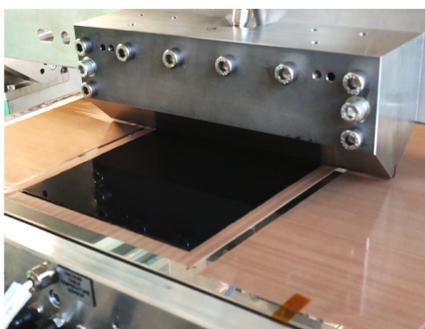


Abbildung 22: Schlitzdüse während des Druckprozesses mit Shim-Breite von 15cm

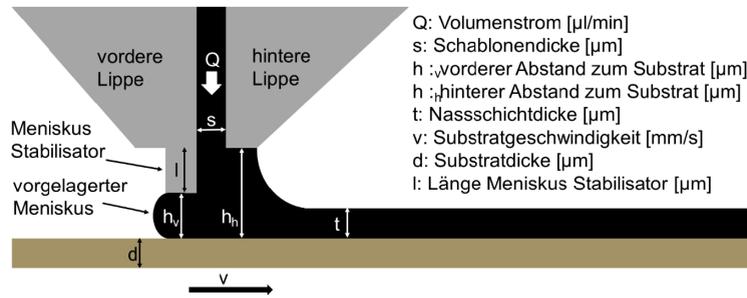


Abbildung 23: Schematische Darstellung der Schlitzdüse mit Druckprozessparametern

Die somit hergestellten Katalysatorschichten auf Decalfolie wurden bei  $60^\circ\text{C}$  und  $40\text{cm}/\text{min}$  in einem Durchlaufkonvektionstrockner schonend getrocknet, da die Lösungsmittel verglichen mit Siebdruckpasten deutlich volatiler sind.

Während des Ausschaltens der Pumpe im Beschichtungsprozess kann es zum Nachlaufen der Tinte kommen, wodurch ungewollt viel Tinte am Ende auf die Decalfolie floss. Durch ein Weiterfahren des Tisches, nachdem die Pumpe ausgeschaltet ist, konnte dieser erhöhte Schichtauftrag zu einem gewissen Grad reduziert werden, allerdings noch nicht vollständig.

Dies lässt sich anhand der Bilder in Abbildung 24 erkennen, da nach der Trocknung an genau diesem Rand die Schicht aufreisst und abplatzt. Da allerdings die beschichtete Fläche größer war als die aktive Fläche im Generischen Stack, konnten die Anlauf- und Auslaufstellen u.a. durch Beschneiden der Katalysatorschicht oder Maskierung durch die Randverstärkung beseitigt werden und spielten daher keine leistungsbeeinflussende Rolle.

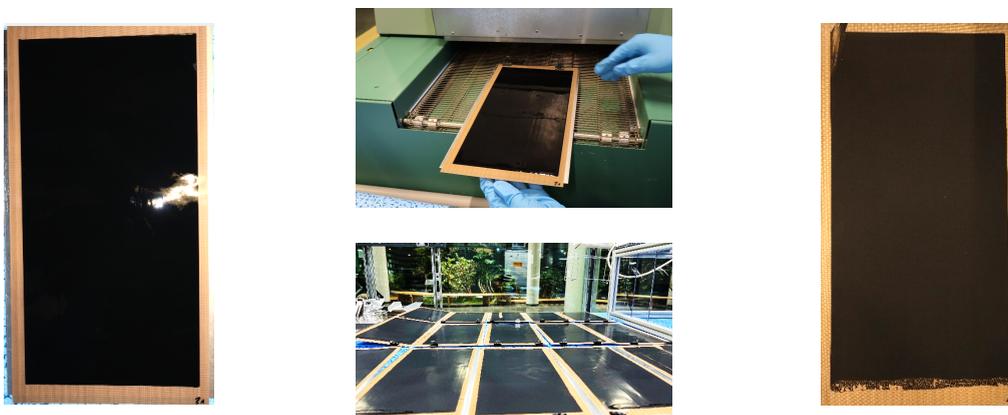


Abbildung 24: Trocknungsprozess der Katalysatorschichten, Links: Nasse Schicht, Rechts: Nach der Trocknung

Durch Wiegen der trockenen Katalysatorschichten konnte die durchschnittliche Platinbeladung bestimmt werden. Allerdings ist diese Methode recht fehleranfällig, da wie zuvor beschrieben, die Schichten durch das Nachlaufen von Tinte im Beschichtungsprozess inhomogene Schichtdicken aufweisen. Daher wurde die durchschnittliche Beladung mittels  $\mu\text{XRF}$  überprüft. Da diese Messungen besonders für große Katalysatorflächen sehr lange dauern, wurde ein Messprotokoll entwickelt, in welchem streifenförmig die Pt-Beladung quer zu Beschichtungsrichtung gemessen wurde. In Kombination mit der Information aus den hochauflösenden Fotobox-Bildern in Abbildung 25 lassen sich Beladungsunterschiede über Kontraste ableiten. Hierbei

ist besonders auffällig, dass z.B. eine vergleichsweise geringe Änderung der Beschichtungsgeschwindigkeit von 0.6m/min zu 0.51m/min bereits zur Halbierung der Platinbeladung führt. Aus den Bildern ist ebenfalls abzuleiten, dass eine zu hohe Nassschichtdicke zu Rissen während der Trocknung führte, wobei Beladungen von 0.24mg/cm<sup>2</sup> noch keine Risse aufwiesen.

Risse in der katalysatorschicht bewirken, dass mehr Licht von unten durch die Decalfolie scheinen kann, wodurch die Katalysatorschicht transparenter erscheint, aber dennoch eine deutlich höhere Schichtdicke aufweist. Besonders deutlich ist dieses Phänomen in den  $\mu$ XRF-Streifen zu erkennen, da Zonen mit niedrigerer Schichtdicke (Pt-Beladung) im Bild schwarz erscheinen und solche mit erhöhter Dicke heller.

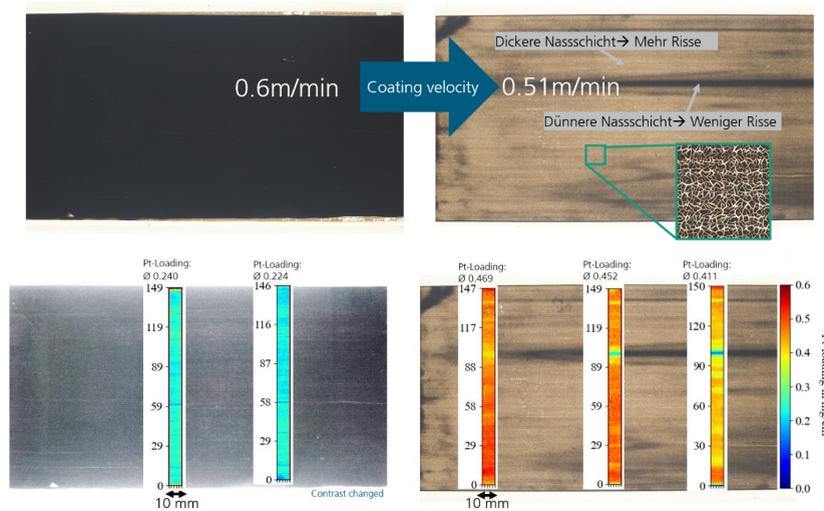


Abbildung 25: Hochauflösende Fotobox-Bilder von Katalysatorschichten unterschiedlicher Beladung mit  $\mu$ XRF-Messungen

## Arbeitspaket AP ISE-2: Fünf-Lagen MEA

### AP ISE-2.1: Entwicklung des Transferprozesses

Der Decal-Transferprozess für Katalysatorschichten im Vollformat (Generischer Stack) wurde ausschließlich über einen Rollen-Kalender durchgeführt. Dabei wurde das Transfer-Sandwich aus Decal-Kathode, Membran und Decal-Anode gebildet, wie in Abbildung 26 dargestellt.

Die Transfergüte, d.h. wieviel Prozent der Katalysatorschicht tatsächlich auf die Membran übertragen wurde, liess sich durch entweder die optische Inspektion der Decalfolien nach dem Transfer oder durch Wiegen der Decalfolien analysieren.

Beide Methoden wurden standardmäßig angewendet, um die CCM-Qualität sicherzustellen. In Abbildung 27 ist die optische Transfergüte qualitativ dargestellt. Sowohl Anode als auch Kathode konnten erfolgreich transferiert werden. Anodenseitig gab es im Randbereich leichte Rückstände, die im folgenden Prozessschritt „Schneiden der CCM“ entfernt werden.

Insgesamt konnten 7 CCMs, zum ersten Mal via Schlitzdüse im großen Format, mit 0.4mg/cm<sup>2</sup> Kathodenbeladung und 0.1mg/cm<sup>2</sup> Anodenbeladung hergestellt und erfolgreich transferiert werden (Abbildung 28).

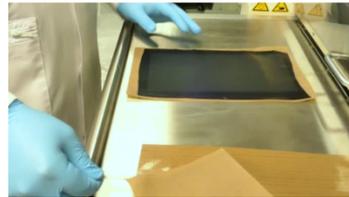
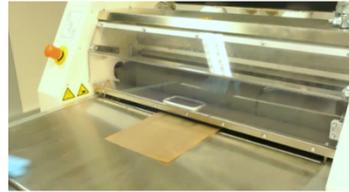


Abbildung 26 Rollen-Kalander und Transferprozess durch Heißpressen und Abziehen der Decalfolien

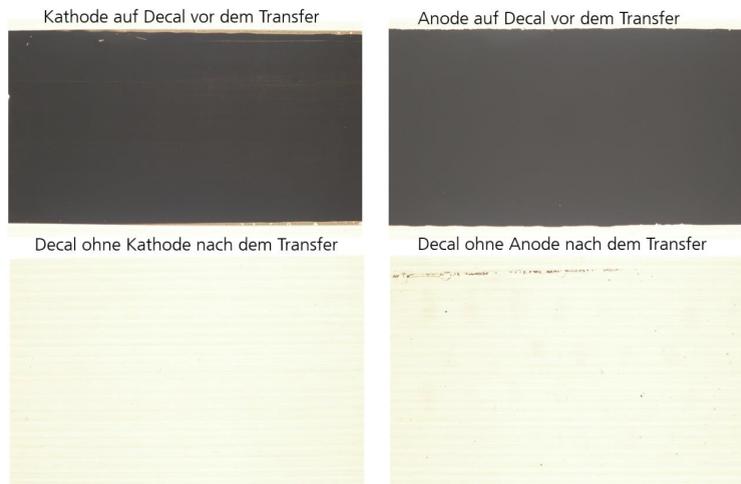


Abbildung 27 Decalfolien vor und nach dem Transferprozess via Rollen-Kalander zur optischen Analyse der Transfergüte

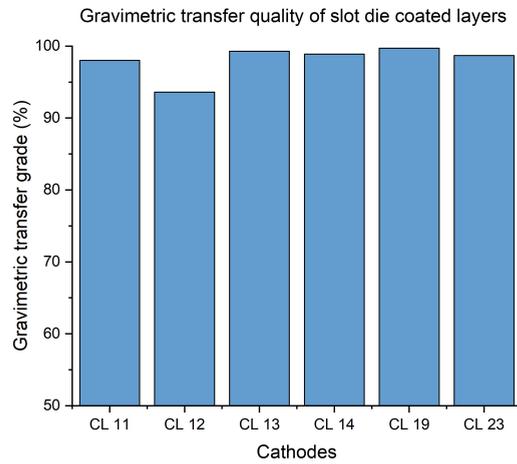


Abbildung 28 Quantifizierung der gravimetrischen Transferrgüte von 7 großflächigen Kathoden

### AP ISE-2.2: Entwicklung der Subgasket-Lamination

Die aus dem Rollen-Kalender kommenden CCMs haben noch nicht das richtige Format für den Generischen Stack und müssen somit zugeschnitten werden. Dabei kommt eine Stanze zum Einsatz, wie in Abbildung 29 dargestellt. Dieser manuelle Prozess wurde über den in diesem Projekt beschafften Schneidplotter deutlich automatisierter und damit reproduzierbarer realisiert.



Abbildung 29: Stanzen der CCM auf die Maße für den Generischen Stack; unten: Schneidplotter zum automatisierten Schneiden von CCMs und Subgaskets

Nach dem Schneiden der CCM, wurden die Subgaskets vorbereitet. Dabei wurde zunächst nur das Fenster für die aktive Fläche der CCM über Laserschneiden herausgenommen. Das erste Subgasket wurde ohne Schutzfolie auf einem Vakuumentisch platziert, die CCM auf die Öffnung, sowie das zweite Subgasket darübergelegt. Dieser zunächst lose Verbund wird leicht miteinander verpresst, sodass er nach der Ausrichtung nicht mehr verrutschen kann. Danach wurde der Kleber auf der adhäsiven Seite zwischen den Subgaskets in einer Heißpresse aktiviert. Damit wurde die CCM eingerahmt, verstärkt und gegen Gasdurchlässigkeit versiegelt.

Anschließend wurden wieder über einen Laserschneidprozess die Ports und die finale Außenkontur zugeschnitten.

Eine fertiggestellte 5-Lagen-MEA ist in Abbildung 30 (links) dargestellt. Auch der Subgasketing-Prozess musste durch eine Prozessparameter-Variation optimiert werden.

So können beispielsweise durch Luftblaseneinschlüsse, Fremdkörpereinschlüsse, unscharfe Laser-Schneidkanten, Knicke oder Faltenbildung unterschiedliche Defekte entstehen, die nur durch eine sauberen und optimierte Prozessführung verhindert werden können.

Die Bewertung dieser Defekte bzw. deren Auswirkung auf die Dichtigkeit oder Langlebigkeit der MEA im Betrieb konnte im Projekt noch nicht untersucht werden.

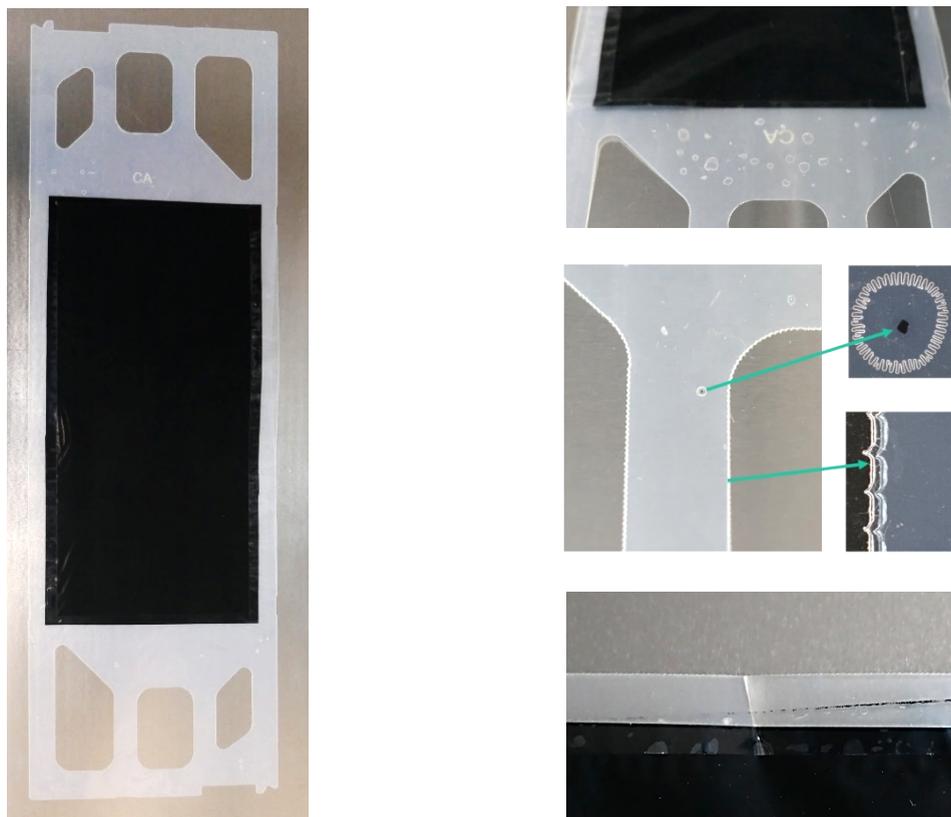


Abbildung 30: MEA mit laminierten Subgaskets (links), mögliche Defektbilder im Subgasketing-Prozess (rechts)

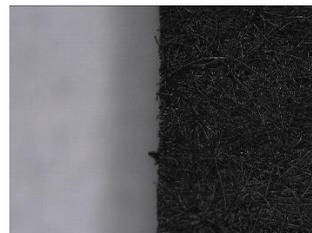
## AP ISE-2.2: Entwicklung der GDL-Lamination

Noch vor der GDL-Applikation, muss diese auf das entsprechende Format gestanzt werden. Dabei ist darauf zu achten, dass die GDL-Fasern an der Schnittkante nicht stark abstehen und somit kein Risiko für eine mögliche Beschädigung der CCM oder des Subgasket darstellen. Außerdem sollte ein Herausbrechen der GDL im Kantenbereich verhindert werden.

Zwei typischerweise verwendete GDLs wurden auf ihre Schnittkantenqualität untersucht: Freudenberg H14CX653 und H23C9.. Die in Abbildung 31 dargestellten Bilder wurden mit einem in „HyFaB-BaWü“-Projekt beschafften konfokalen Laserscanning-Mikroskop von Keyence erstellt. Es ist zu erkennen, dass der Schneidprozess vor allem für die FB H23C9 abhängig von den Eigenschaften des jeweiligen Materials und dessen Porosität weiter verbessert werden muss.



GDL-Seite FB H23C9



GDL-Seite FB H14CX653

Abbildung 31: Schnittkanten der FB H23C9 (links) und FB H14CX653 (rechts)

## Arbeitspaket AP ISE-3: Charakterisierung

### AP ISE-3.1: Ex-situ Analytik der Katalysatorschichten, der CCM und der MEA

Neben der Standard-ex-situ Charakterisierung der CLs, CCMs und MEAs, welche in den vorherigen Arbeitspaketen beschrieben und angewendet wurde, wurden zusätzlich Messungen der University of Connecticut, Prof. Jasna Jankovic durchgeführt. Am Fraunhofer ISE hergestellte CCMs via Siebdruck und Decal-Transfermethode wurden durch Spezial-Mikroskope, wie z.B. SEM und STEM-EDX im Querschnitt näher analysiert. Dabei war von besonderem Interesse, ob bei einem Mehrfachdruck von Katalysatorpaste auf Decalfolie eine im Hinblick auf die „through-plane“ Ionomerverteilung (zwischen GDL und Membran) homogene oder inhomogene Katalysatorschicht entstand.

Ein Beispiel dieser Messungen ist in Abbildung 32 dargestellt. Zunächst wurde durch aufwändige Probenpräparation eine Lamelle einer Kathoden-Katalysatorschicht hergestellt und in einem TEM-Grid verankert. Die dargestellten Bilder zeigen die Verteilung von Elementen, wie z.B. Fluor (grün; Ionomer) und Platin (rot). Generell führte der 3-fach-Druck zu einer Beladung von  $0.4\text{mg/cm}^2$  und einer Schichtdicke zwischen  $9\text{-}10\mu\text{m}$ . Die Verteilung des Platins zeigte leichte Inhomogenitäten durch ggf. Agglomerate in Tinte oder Pulver, sog. Platin-Cluster. Die Ionomerverteilung war allerdings sehr homogen und zeigte keine Anzeichen von Grnzsichten in einem 3-fach-Druck. Dies bestätigte, dass durch mehrmaliges Drucken übereinander eine homogene Katalysatorschicht entstanden ist. Diese tieferen Einblicke in die

Katalysatorschicht sind besonders wertvoll, da sie Rückschlüsse auf die Tinte, die Materialien und den Produktionsprozess zulassen.

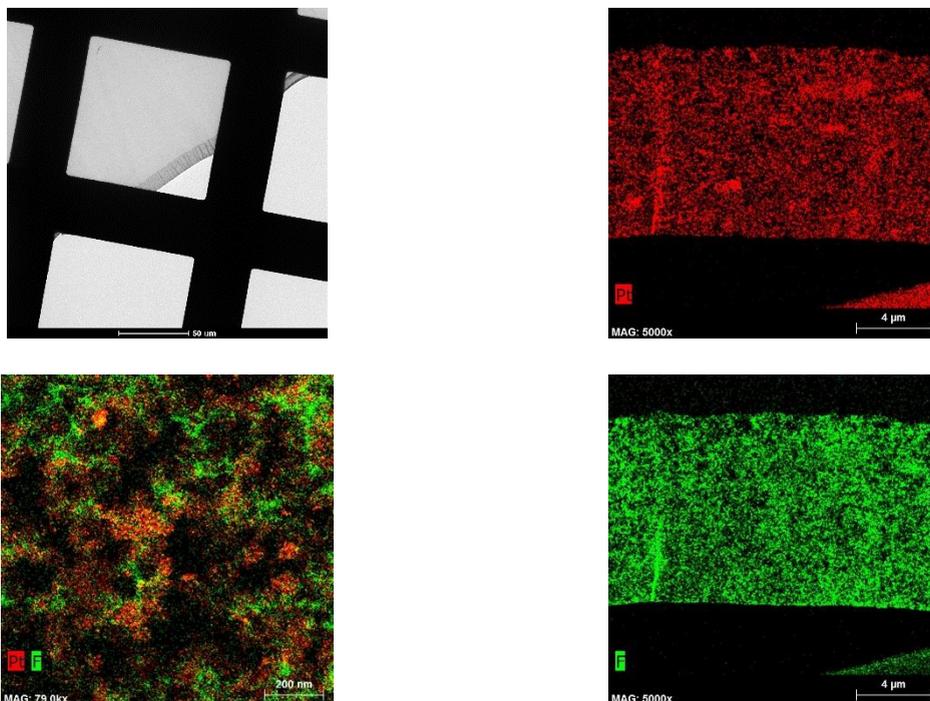


Abbildung 32: STEM-EDX Bilder mit Elementverteilung der Kathoden-Katalysatorschicht; Erstellt durch Prof. Jasna Jankovic, UCONN

### AP ISE-3.2: In-situ Charakterisierung der MEA

#### *Einfluss des Laminierprozesses auf die Leistung*

In einer industriellen Fertigung erfolgt das Anbringen der Subgaskets erst als letzter Prozessschritt, nachdem die CCM bereits hergestellt wurde. Dieser Laminier-Schritt, zum Versiegeln der beiden Subgasket-Folien kann mit einer gewöhnlichen Heißpresse durchgeführt werden, allerdings üben dabei die Platten Druck und Temperatur auch auf die aktive Fläche der CCM aus. Alternativ kann eine Aussparung der Heißpressplatten an der Stelle der aktiven Fläche vorgesehen werden. Um zu untersuchen, ob diese Aussparung notwendig ist, bzw. ob ein erneutes Erhitzen der CCM einen Einfluss auf die Leistung der Brennstoffzelle hat, wurden die folgenden Proben in Tabelle 5 vorbereitet.

CCM 1 hat den Vorteil, dass in einem einzigen Prozessschritt der Transfer der Elektroden auf die Membran, sowie das Laminieren der Subgaskets stattfindet. Dies ist in kleiner Laborskala gut machbar, allerdings in R2R Prozessen schwierig zu realisieren. Der Transferprozess auf die Membran für CCM 2 fand via Rollen-Kalender statt. Erst danach wurde das Subgasket aufgebracht, wodurch die aktive Fläche der CCM ein zweites Mal erhitzt wurde. Bei CCM 3 kam nur die Heißpresse statt dem Rollen-Kalender für den Transferschritt zum Einsatz.

Damit ist der Vergleich der CCM 1 und CCM 3 geeignet, um den Einfluss des Laminierprozesses, d.h. das zweite Erhitzen der CCM, auf die Leistung im Teststand zu untersuchen. Im Vergleich von CCM 2 und CCM 3 kann abgelesen werden, inwiefern unterschiedliche Geräte, wie Rollen-Kalender oder die Heißpresse im Transfer möglicherweise die Leistung beeinflussen.

Tabelle 5: Unterschiedliche Transfer und Laminierschritte der 5-Lagen MEA

	CCM 1	CCM 2	CCM 3
Transferprozess	Heißpresse	Rollen-Kalander	Heißpresse
MEA Konfiguration			
CCM wurde Hitze ausgesetzt	1x	2x	2x
Pt-Beladung Kathode [mg <sub>Pt</sub> /cm <sup>2</sup> ]	0.223	0.227	0.217
Pt-Beladung Anode [mg <sub>Pt</sub> /cm <sup>2</sup> ]	0.05	0.05	0.03

Die relevantesten in-situ Ergebnisse sind nachfolgend dargestellt. Abbildung 33 zeigt die durch den Wasserstoff-Crossover durch die Membran entstehende Stromdichte. Schon hier lässt sich erkennen, dass sich die Membranqualität durch einen zweiten thermischen Prozessschritt, wie das Laminieren, verschlechtert. CCM 1 zeigt hier den geringsten Wasserstoff-Crossover, d.h. die Membran wurde bei der MEA-Herstellung am wenigsten beansprucht.

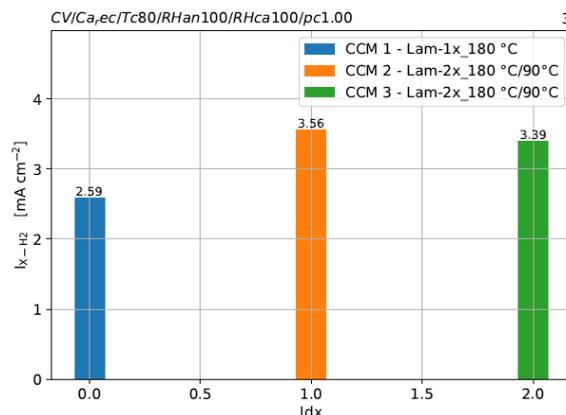


Abbildung 33: Stromdichte des Wasserstoff-Crossovers für verschiedene MEA-Prozessierungen

Die Polarisationskurven in feuchten (RH 100%) und trocknen (RH 40%) Bedingungen zeigen (Abbildung 34), dass zunächst kein signifikanter Unterschied zwischen den Transfermaschinen Rollen-Kalander CCM 2 und Heißpresse CCM 3 zu erkennen ist. Beide Anlagen sind also aus Sicht der Leistung der Brennstoffzelle für den Transfer der Elektroden auf die Membran geeignet. Allerdings zeigt sich der Einfluss eines Laminierschrittes zum Versiegeln der Subgaskets deutlich. Wenn die Hitze und der Druck erneut auf die aktive Fläche einwirken, ist eine Verschlechterung im ohmschen Bereich der Polarisationskurven unter beiden Betriebsbedingungen zu sehen, speziell im Betriebspunkt von 0.6V.

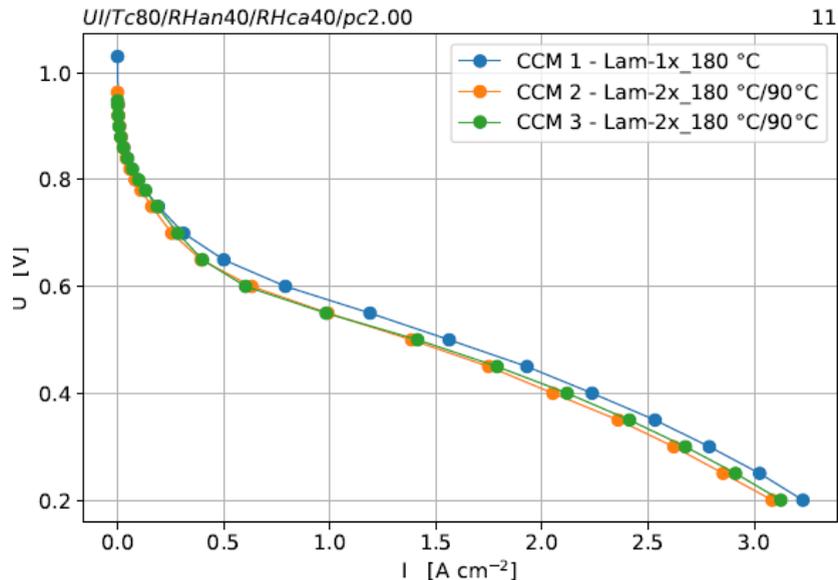


Abbildung 34: Polarisationskurven, gemessen unter nassen (RH 100%) und trocknen (RH 40%) Bedingungen für 3 CCMs, beschrieben in Tabelle 5

Das Fazit daraus ist, dass der Subgasket-Laminierprozess nur auf der Subgasket-Fläche und nicht auf der aktiven Fläche stattfinden sollte. Dies konnte auf kleiner Fläche über die Baltic Cell Formate  $12\text{cm}^2$  herausgefunden werden, sodass bei der Herstellung der großen MEAs für den Generischen Stack darauf Rücksicht genommen werden konnte.

Für die Vollformat CCMs fand der Transferprozess in dem Rollen-Kalender statt und das anschließende Laminieren der CCM in der Heißpresse, wobei hier Zwischenlegplatten konturiert wurden, welche eine Aussparung an der Stelle der aktiven Fläche haben. Dadurch wird diese weniger beheizt und es wird kein zusätzlicher Druck ausgeübt.

#### *Leistung der MEAs: Schlitzdüse vs. Siebdruck*

In diesem Projekt wurden 7 Fünf-lagen MEAs an das ZSW für den Einbau in den Generischen Stack übergeben, welche über die zuvor beschriebenen Prozesse, u.a. Schlitzdüse, gefertigt wurden. Im vorangegangenen Projekt „HyFab-BaWü“ wurden die Vollformat-CCMs mittels Siebdruck-Prozess produziert und durch das ZSW vermessen. Generell wird allerdings am Fraunhofer ISE immer auch die Leistung auf kleinem Format, der Baltic Cell mit  $12\text{cm}^2$ , ebenfalls gemessen. Dadurch kann bereits abgeschätzt werden, ob auch die CCMs in einem Stack eine ausreichend gute Leistung bringen.

Die Ergebnisse der „Slot Die“-CCM werden in Abbildung 35 verglichen mit den „Screen Printed“-CCMs. Dabei ist zu erkennen, dass die Siebdruck-CCMs im ohmschen Bereich (Betriebspunkt von  $0.6\text{V}$ ) etwas bessere Leistung zeigen als die neu hergestellten CCMs via Schlitzdüse, da die Katalysatorschicht der mittels Schlitzdüse hergestellten CCMs während des Trocknungsprozesses sehr viele Risse aufwies (Abbildung 25). Diese Rissstrukturen können die protonische und elektrische Leitfähigkeit in der Elektrode verschlechtern. Allerdings erfolgt der Gas- und Wassertransport durch diese Risse besonders, weshalb die Schlitzdüsen-CCM im Massentransportbereich eine deutlich bessere Leistung zeigte. Es bleibt offen zu untersuchen, welchen Einfluss diese Risse auf die Langlebigkeit der MEA im Betrieb haben.

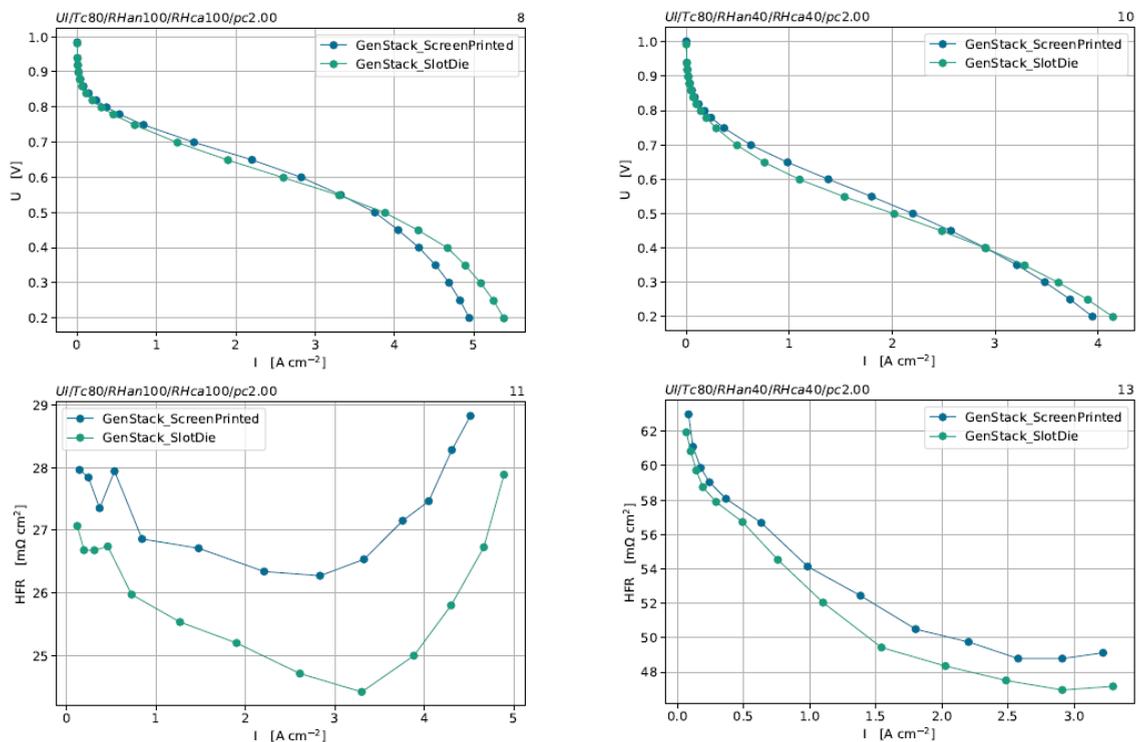


Abbildung 35: Polarisationskurven und Hochfrequenzwiderstand in feuchten und trockenen Bedingungen der CCMs für den Generischen Stack, auf 12cm<sup>2</sup> Baltic Cell

## Zusammenfassung

Im Projekt HyFaB-Basislinie konnte der Übertrag der Fertigung von Katalysatorschichten vom Siebdruckverfahren auf ein Schlitzdüsenverfahren erfolgreich gezeigt werden. Der geringere Feststoffanteil und die leichter flüchtigen Tintenbestandteile beim Schlitzdüsenverfahren führten zu einer vermehrten Bildung von Mikrorissen in der Katalysatorschicht, die einen erhöhten Innenwiderstand aber einen geringeren Massentransportwiderstand zur Folge hatten. Die Auswirkung der Mikrorisse auf die Lebensdauer der CCM muss noch ermittelt werden.

Im Projekt wurden verschiedene Verfahren zur Assemblierung von 5- und 7-Lagen MEAs erfolgreich erprobt. Es konnte gezeigt werden, dass eine mehrfache thermische Belastung der Katalysatorschichten leistungsmindernd wirkt. Besonders herausfordernd für automatisierte Anlagen zur MEA-Assemblierung ist die Vermeidung von Lufteinschlüssen zwischen den Randverstärkungsfolien. Rolle zu Rolle-Anlagen können hier über eine gekrümmte Zuführung der Folien Stärken ausspielen. Der Zuschnitt von GDL muss abhängig vom gewählten Substrat optimiert werden, um die Folgen ungleichmäßiger Schnittkanten und die Freisetzung loser Fasern zu minimieren.

Im Projekt konnte die Leistungscharakteristik des Generischen Stacks auch unter Verwendung verschiedener MEAs mehrfach reproduziert werden. Der Stapel erfüllt die Leistungsspezifikation vollständig, weist jedoch einen höher als vorhergesagten kathodischen Druckabfall auf, der über die Bildung einer Flüssigphase im Kathodenkanal erklärt werden kann. Hierzu müssen in Zukunft weitere Detailuntersuchungen durchgeführt werden, um die zur Stapelauslegung genutzten Strömungssimulationen durch Berücksichtigung der Zweiphasenströmung realitätsnäher gestalten zu können.

Handwerkliche Stapelmontagen konnten reproduzierbar durchgeführt werden. Die Leistungscharakteristik der Stapel bei Testbeginn wies nur geringe Streuungen auf. Die Bedeutung einer konstanten Umgebungsfeuchte auf den Montagerefolg konnte gezeigt werden. Weitere Untersuchungen zum Einfluss der Montageparameter auf die Lebensdauer der Stapel müssen noch erfolgen.

## Verwertung

Die Ergebnisse der Forschungsarbeiten wurden in der wissenschaftlichen Literatur und auf wissenschaftlichen Konferenzen veröffentlicht. Verschiedene Schulungsmaßnahmen und die Durchführung von Workshops dienten zur Verbreitung der Forschungsergebnisse sowie der Anregung neuer Forschungs- und Entwicklungsthemen. Der generische Stack wurde als Plattform für verschiedene Forschungsprojekte

Die bei den Partnern aufgebaute Forschungsinfrastruktur steht der Branche für weitere Forschungs- und Entwicklungsvorhaben zur Verfügung.

## Präsentationen / Veröffentlichungen

Ulf Groos, Produktionsforschung zur membranelektrodeneinheit für Brennstoffzellen, H<sub>2</sub>-Kolloquium Baden-Württemberg, Baden-Baden, 2024.

Ludwig Jörissen, Frank Häußler, generischer Stack und Stapelanlage, H<sub>2</sub>-Kolloquium Baden-Württemberg, Bade.-Baden, 2024-

Ulf Groos: HyFaB: Produktionsforschung für Brennstoffzellenstacks, Jahresversammlung VDMA-Arbeitskreis Brennstoffzellen, Magdeburg 2024.

Joachim Scholta, Frank Häußler, Ludwig Jörissen, Markus Hölzle, The Generic Stack - A platform for Testing and System R&D, 33. Aachen Colloquium, 2024.

Linda Ney et al., From catalyst Ink to PEM Fuel Cell Stack: First Full Size Screen Printed Catalyst Layers Tested within a Generic Stack, PRIME 2024, Honolulu, Hawaii

Joachim Scholta, Sabina Schneider, Lukas König, Theresa Uhlemayr, Jürgen Hunger, Simon Hopp, Lukas Klass, Frank Häußler und Markus Hölzle, GENERISCHER STACK – KONZEPT, TEST UND MODELLIERUNG, Proceedings FC3 2024, FC3 Fuel Cell Conference Chemnitz 2024, PEM 19, Verlag Wissenschaftliche Scripten, 08209 Auerbach/V.

Die freigegebenen Konstruktionsunterlagen sowie Testdaten des generischen Stacks können unter der E-Mail Adresse [Hyfabstack@zsw-bw.de](mailto:Hyfabstack@zsw-bw.de) angefordert werden.

## Weiterführende Arbeiten

Die Arbeiten im HyFaB-Projektverbund werden weitergeführt durch die Projekte:

**HyFaB3:** Produktionsforschung für membranbasierte Wasserstofftechnologien. Das Projekt baut auf die beiden Vorläufer HyFaB1 und HaFaB2 auf. Hierbei optimiert das Fraunhofer ISE seine teilautomatisierte Basislinie zur Herstellung von Vollformat Membran-Elektroden-Einheiten für PEM-Brennstoffzellen im sogenannten Back-Endbereich (Schneiden und Laminieren) und überträgt das Prozess-Know-How für diese Basislinie auf Produktionsverfahren für membran-Elektroden-Einheiten zur Wasserstofferzeugung sowohl mit sauren als auch mit basischen Membranen.

**Robo-MEA-Prep:** Zur Beschleunigung der Membran-Elektroden-Einheiten (MEA) Entwicklung soll im Projekt Robo-MEA-Prep eine roboterunterstützte Fertigung für kleinformatische MEAs aufgebaut werden. Dabei sollen mobile Roboter die Funktion von Händen übernehmen und den heute etablierten Fertigungsablauf für MEAs abbilden. Die so hergestellten MEAs (Zielwert: 4 Rezepturen pro Tag) werden in einer parallelisierten Testanlage der Firma hte aus Heidelberg reaktionstechnisch vermessen werden. ZSW und das FZI (Forschungszentrum Informatik) in Karlsruhe werden die Anlage zur MEA-Fertigung gemeinsam auslegen. Die Anlage wird dann beim FZI entwickelt, aufgebaut und erstmalig in Betrieb genommen. Danach wird sie final zum ZSW Standort Ulm umziehen und dort erprobt. Nach Inbetriebnahme von roboterunterstützter Fertigung und parallelisierter Testung werden am ZSW Entwicklungsarbeiten zu Hochlastkatalysatoren mit dem Fokus auf PEM-Elektrolyse stattfinden. Ziel ist es, sowohl bei der Elektrolyse als auch im Brennstoffzellenbetrieb hohe Flächenstromdichten bei geringer Edelmetallbeladung zu erreichen.

Zur Qualitätssicherung der Ergebnisse der beiden Vorhaben sind Vergleichsmessungen an MEAs der beiden Projekten vorgesehen.