

Strukturelle Analyse des Porenraumes von Gasdiffusionslagen in Brennstoffzellen mittels geometrischer 3D Graphen

Ralf Thiedmann¹⁾, Ingo Manke²⁾, Werner Lehnert³⁾ und Volker Schmidt¹⁾

- 1) Institut für Stochastik, Universität Ulm, Ulm
- 2) Institut für Angewandte Materialforschung, Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH, Berlin
- 3) Institut für Energieforschung – IEF3, Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich

Abstrakt - Deutsch

Eine wichtige Komponente von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen (PEMFC) ist die Gasdiffusionslage (GDL). Sie ist, unter anderem, für die Versorgung der Elektrode mit Reaktionsgasen sowie Abtransport des entstehenden Wassers verantwortlich. Um einen optimalen Wirkungsgrad der Brennstoffzelle erzielen zu können und eine vorzeitige Alterung zu verhindern, ist eine konstante und gleichmäßige Versorgung der Elektrode mit Reaktionsgasen erforderlich. Dazu muss vor allem sichergestellt werden, dass das bei der Reaktion entstehende Wasser abtransportiert wird, um den Gastransport nicht zu behindern. Um diese Stofftransportprozesse, die im Porenraum der GDL stattfinden, besser verstehen zu können, untersuchen wir in der vorliegenden Arbeit die Struktur des Porenraumes basierend auf einer Graphen-Darstellung. Diese Darstellung des Porenraumes gewinnen wir aus 3D Synchrotron-Daten mit Hilfe einer Skelettierung. In der vorliegenden Arbeit werden wir damit die Porenräume von zwei verschiedenen Typen von GDL (Papier-Typ und Vlies-Typ) strukturell untersuchen und deren Unterschiede quantitativ beschreiben.

Abstrakt - Englisch

A key component of polymer-electrolyte-membrane fuel cells (PEMFC) is the gas diffusion layer (GDL). Besides other tasks, it is responsible for the gas diffusion towards the electrode and for the drainage of the produced water. To achieve an optimal performance of the fuel cell and to avoid early degradation, a constant and uniform supply of the electrode with reaction gases is necessary. In particular, it has to be ensured that the produced water is drained off that the gas flow is not constrained. To improve the understanding of the transport processes in the pore space of GDL, we analyze its structure. For this reason we skeletonize the pore space to get a graph representation. Therefore 3D images, gained by means of synchrotron-tomography, are used. In the present manuscript, we investigate the pore spaces of two

different kinds of GDL (paper-type and felt-type) with respect to their structure and we describe the structural differences quantitatively.

Keywords: Gasdiffusionslage / gas diffusion layer; Porenraum / pore space; 3D Graph / 3D graph; Tortuosität / tortuosity

Einleitung

In der vorliegenden Arbeit wird der Porenraum von zwei verschiedenartig strukturierten GDL, wie sie typischerweise in PEMFC eingesetzt werden, untersucht und hinsichtlich transportrelevanter Kenngrößen miteinander verglichen. Der Porenraum der GDL ist für die Funktionalität einer Brennstoffzelle von entscheidender Bedeutung, da darin wichtige Transportprozesse stattfinden. So werden die Reaktionsgase vom Kanal zur Elektrode durch den Porenraum transportiert. Gleichzeitig wird das bei der Reaktion entstehende Wasser abtransportiert. Um diese Transportprozesse innerhalb des Porenraumes besser verstehen zu können, ist zunächst eine genaue Beschreibung der Struktur des Porenraumes erforderlich.

In der vorliegenden Arbeit verwenden wir dafür 3D Daten, die mit Hilfe von Synchrotron-Tomographie gemessen werden. Es werden zwei verschiedenen Arten von GDL Materialien untersucht, bei denen sich die Strukturen der Fasersysteme offensichtlich stark unterscheiden. Bei Papier-Typ-GDL (Bild 1) verlaufen die Fasern mehr oder weniger geradlinig, wohingegen sie bei Vlies-Typ-GDL (Bild 2) einen stark gekrümmten Verlauf haben. Wir sind allerdings nicht an den Fasersystemen, sondern am Porenraum, quasi dem komplementären Raum, interessiert, da darin die für unsere Untersuchungen wesentlichen Transportprozesse ablaufen.

Die strukturellen Untersuchungen des Porenraumes werden basierend auf geometrischen 3D Graphen durchgeführt, welche mit Hilfe einer Skelettierung gewonnen werden. Dabei werden Kenngrößen betrachtet, die wichtig für die Transportprozesse sind, wie z.B. Porengrößenverteilung, Tortuosität oder Koordinationszahl. Zusätzlich wird noch die Konnektivität des Porenraumes mittels einer Graphen-Darstellung bestimmt, wofür der

sogenannte Minimum-Spanning-Tree (MST) bestimmt wird, ein Standardverfahren in der Graphentheorie.

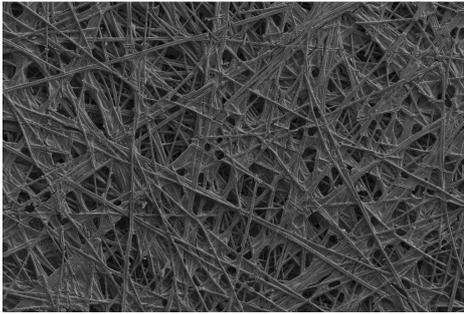


Bild 1: Papier-Typ-GDL

Figure 1: Paper-type GDL

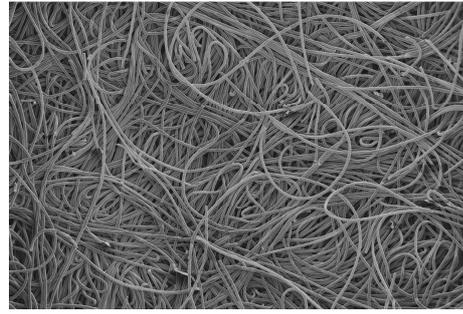


Bild 2: Vlies-Typ-GDL

Figure 2: Velt-type GDL

3D Daten

Für die Untersuchung des Porenraumes werden 3D Daten benutzt, die mit Hilfe von Synchrotron-Tomographie an der Bessy II (BAM-Line) in Berlin gewonnen wurden, siehe Manke et al. [1]. Der gesamte 3D Datensatz kann als eine 3D Matrix von Grauwerten betrachtet werden. Für die im Folgenden beschriebenen Untersuchungen ist allerdings ein Binärbild erforderlich. Um dieses möglichst artefaktfrei zu erhalten, wird wie in Thiedmann et al. [2] vorgegangen. Zunächst werden die Graustufenbilder mit Hilfe eines 3D Medianfilters geglättet und anschließend mit einem globalen Schwellenwert binarisiert. Durch dieses Verfahren wird der Porenraum von den Fasern getrennt. Da es dabei zu Artefakten kommen kann (z.B. entstehen kleine Gebiete, die als Fasern klassifiziert werden, aber nicht mit dem eigentlichen Fasersystem verbunden sind) führen wir noch eine korrigierende morphologische Schließung des Porenraumes durch. Dabei werden zunächst der Porenraum und anschließend die Feststoffphase dilatiert, was anschaulich als ein Aufblasen der betreffenden Phase aufgefasst werden kann. Eine detaillierte und formale Beschreibung der verwendeten Bildverarbeitungsmethoden kann z.B. in Jähne [3] oder Soille [4] nachgelesen werden. Im Ergebnis dieser morphologischen Operation werden kleine, zunächst als Fasern klassifizierte Gebiete, die nicht mit dem Fasersystem verbunden sind, nun zum Porenraum gerechnet. Beispiele von binarisierten Dünnschnitten der zwei betrachteten GDL-Typen sind in den Bildern 3 und 4 zu sehen.

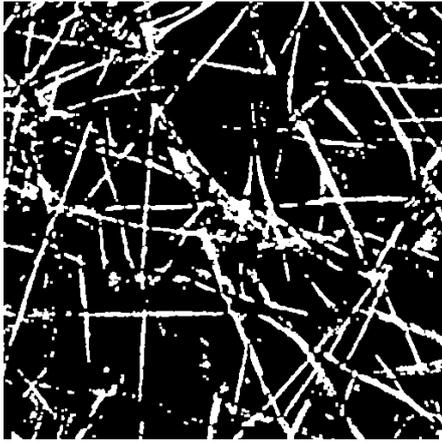


Bild 3: Dünnschnitt einer binarisierten
Papier-Typ-GDL



Bild 4: Dünnschnitt einer binarisierten Vlies-
Typ-GDL

Figure 3: Thin section of a binarised paper-
type GDL

Figure 4: Thin section of a binarised felt-type
GDL

Um den rechentechnischen Aufwand bei der Bildverarbeitung zu verringern und, um die Vergleichbarkeit zu verbessern, werden die im nächsten Abschnitt beschriebenen Kenngrößen nicht für den ganzen Datensatz ermittelt, sondern es werden kleinere Ausschnitte betrachtet. Die Aufteilung des gesamten Datensatzes in (zufällige) Ausschnitte geschieht mit Hilfe von sog. Bootstrap-Methoden. Die Idee dieses Verfahrens ist, dass die Ausschnitte zufällig gewählt werden, wobei es durchaus erlaubt ist, dass sich dabei die Gebiete z.T. überlappen. Solche Verfahren können angewandt werden, um bei gegebenen Daten den Stichprobenumfang zu erhöhen, siehe auch Lahiri [5]. Die Größe der Beobachtungsgebiete, in denen im Folgenden die Berechnungen stattfinden, ist konstant $512 \times 512 \times 100$ Voxel, was einer Größe von $768 \times 768 \times 150 \mu\text{m}^3$ entspricht.

Definition von Kenngrößen mittels Graphen-Darstellung des Porenraumes

In diesem Abschnitt werden die betrachteten Kenngrößen, die bereits in Thiedmann et al. [6] beschrieben bzw. eingeführt worden sind, kurz erläutert. Da diese auf einer Graphen-Darstellung des Porenraumes beruhen, werden zunächst die Gewinnung des Graphen aus 3D Daten und erst anschließend die Kenngrößen, die speziell für Transporteigenschaften eines Materials von Bedeutung sind, dargestellt.

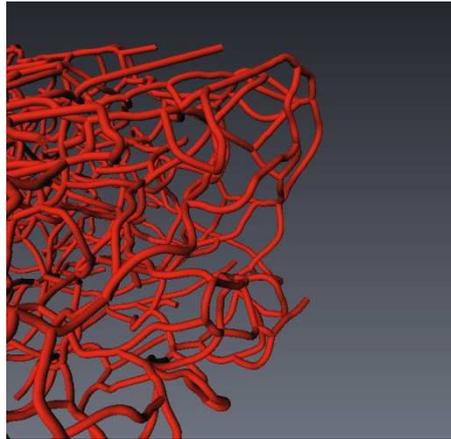


Bild 5: Extrahierter Graph des Porenraumes

Figure 5: Extracted graph of pore space

Graphen-Darstellung mittels Skelettierung

Die Graphen-Darstellung des Porenraumes wird mit Hilfe einer 3D Skelettierung der binarisierten 3D Daten gewonnen, siehe Fourard et al. [7]. Die Idee der Skelettierung ist dabei eine Transformation des Porenraumes, wobei die den Porenraum beschreibende Voxel-Menge soweit verkleinert wird, bis nur noch eine Voxel-Menge mit Stärke eins vorhanden ist. Dieses sogenannte Skelett ist eine vereinfachte Darstellung der komplexen Geometrie des Porenraumes, die aber wichtige Struktureigenschaften, wie z.B. die Konnektivität, nicht verändert. Das Skelett des Porenraumes kann nun in einem weiteren Schritt in Vektordaten transformiert werden. Dazu werden die Voxel des Skeletts in verschiedene Klassen eingeteilt. Voxel mit genau einem Nachbarn aus dem Skelett werden als „Endvoxel“, Voxel mit genau zwei Nachbarn als „Linienvoxel“ und Voxel mit mehr als zwei Nachbarn als „Knotenvoxel“ klassifiziert. Im Fall, dass es einen zusammenhängenden Cluster von Knotenvoxeln gibt, wird dieser Voxel-Cluster zu einem Knotenvoxel zusammengefasst, der z.B. der Clusterschwerpunkt sein kann. Für die Transformation in Vektordaten werden nun zwei Endvoxel durch ein Liniensegment direkt verbunden, falls es eine direkte Verbindung nur durch Linienvoxel gibt; das gleiche wird gemacht, falls zwei Knotenvoxel bzw. ein Knoten- und ein Endvoxel nur durch Linienvoxel miteinander verbunden sind. Falls Verbindungen zu stark gekrümmt sind, um durch Liniensegmente adäquat dargestellt werden zu können, werden Polygonzüge verwendet. Diese detailgetreuere Darstellung ist insbesondere bei der Bestimmung der Tortuosität notwendig, die auf der Berechnung von kürzesten Wegen entlang der Kanten des Porenraum-Graphen beruht. Ein Ausschnitt eines extrahierten Graphen ist in Bild 5 dargestellt.

Geometrische Tortuosität

Eine wichtige Kenngröße zur Beschreibung von Transporteigenschaften in porösen Strukturen ist die Tortuosität. Sie beschreibt die Gewundenheit der Transportwege durch ein Material und ist definiert als das Verhältnis von effektiver Weglänge durch ein Material zu dessen Dicke. Dieser (Mittel-)Wert wird in globalen Gleichungen zur Beschreibung von Transportprozessen benutzt. Wir betrachten in der vorliegenden Arbeit eine leicht abgewandelte Größe, genauer eine geometrische Größe, die aber einen sehr ähnlichen Sachverhalt beschreibt. Anstelle von effektiven Weglängen betrachten wir kürzeste Weglängen, die entlang der Kanten des oben beschriebenen Graphen verlaufen. Die Startpunkte für die Bestimmung der kürzesten Wege werden zufällig gewählt, gemäß dem „Complete Spatial Randomness“ Prinzip. Anders formuliert, wir benutzen eine Realisierung eines Poissonschen Punktprozesses auf der Materialoberfläche, um die Startpunkte zu generieren, siehe z.B. Stoyan et al. [8]. Ausgehend von diesen Startpunkten berechnen wir die kürzesten Wege entlang der Kanten des Porenraum-Graphen durch das Material und setzen sie in das Verhältnis zur Materialstärke. Diese Vorgehensweise erlaubt uns, nicht nur einen Mittelwert, wie es die herkömmliche Definition von Tortuosität vorsieht, sondern eine ganze Verteilungsfunktion zu betrachten, was wesentlich mehr Information enthält. Die Bestimmung der kürzesten Wege erfolgt mit Hilfe des Dijkstra-Algorithmus, siehe z.B. Diestel [9].

Porengrößenverteilung

Eine weitere wichtige Kenngröße, um ein poröses Material hinsichtlich seiner Transporteigenschaften zu charakterisieren, ist die Bestimmung von Porengrößen und deren Verteilung. Dies kann z.B. mit obiger Graphen-Darstellung erfolgen, wie in Thiedmann et al. [6] beschrieben. Dieses Porenmodell geht davon aus, dass jede Pore als Kugel dargestellt werden kann. Bei der praktischen Bestimmung der Poren wird dabei wie folgt vorgegangen. Zunächst werden alle Knoten des Graphen als potentielle Porenmittelpunkte aufgefasst. Dann wird, ausgehend von den Knoten, jeweils der maximale Radius einer Kugel bestimmt, die vollständig im Porenraum enthalten ist. Um eine zu starke Überlappung der einzelnen Kugeln (bzw. Poren) zu vermeiden, werden jedoch nicht alle Knoten des Graphen als Porenmittelpunkte akzeptiert. Zur Bestimmung der endgültigen Poren wird wie folgt vorgegangen. Die potentiellen Poren werden der Größe nach sortiert und zunächst wird nur die größte Pore in die endgültige Liste der Poren eingetragen. Anschließend werden alle potentiellen Poren, deren Mittelpunkte in dieser größten Pore liegen, gelöscht. Nun wird

genauso mit der noch verbleibenden größten potentiellen Pore vorgegangen. Diese Vorgehensweise wird solange fortgesetzt, bis die Liste der potentiellen Poren komplett abgearbeitet ist. Das Ergebnis ist eine Menge von Poren, bei denen kein Mittelpunkt in einer anderen Pore enthalten ist.

Die oben benutzte Definition von Porengröße ist nicht direkt mit Werten vergleichbar, die durch Standardmethoden, z.B. Quecksilberporosimetrie, gemessen werden können. Das Herleiten eines direkten Bezugs zwischen solchen gemessenen Größen und Größen, die aus Bilddaten gewonnen werden, geht über die hier vergleichende Studie hinaus und wird Thema einer separaten Arbeit sein.

Koordinationszahl

Aufbauend auf der Definition der Poren lässt sich mit Hilfe des Porenraum-Graphen eine weitere Kenngröße einführen, die die Konnektivität des Porenraumes beschreibt: die Koordinationszahl. Sie ist definiert als die Anzahl der von einer Pore ausgehenden Hälse. Wegen der Graphen-Darstellung des Porenraumes kann sie einfach als die Anzahl der Kanten, die aus einer Pore ragen, bestimmt werden. Diese Kenngröße wird nicht nur in der Graphentheorie selbst, in der sie Knotengrad genannt wird, sondern auch bei Anwendungen z.B. in der Geologie betrachtet, siehe Diestel [9], Blunt et al. [10].

Minimum-Spanning-Tree

Die Konnektivität eines Graphen lässt sich auch durch den Minimum-Spanning-Tree (MST) beschreiben. Er ist definiert als der kürzeste Teilgraph, der jedoch immer noch alle Knoten verbindet, die im ursprünglichen Graphen verbunden waren. Als Kenngröße betrachten wir dabei die relative Länge des MST, d.h. das Verhältnis von MST-Länge zu Länge des ursprünglichen Graphen. Diese Kenngröße kann wie folgt interpretiert werden. Ist ihr Wert nahe bei eins, so bedeutet dies, dass kaum Kanten entfernt werden können, ohne die Konnektivität zu verändern. Ist der Wert hingegen nahe bei null, bedeutet dies, dass sehr viele Kanten entfernt werden können, ohne die Konnektivität zu verändern. Hierbei ist zu beachten, dass sich bei der Erstellung des MST, z.B. mit Prim's Algorithmus (Diestel [9]), die Koordinationszahlen der Knoten ändern.

Sphärische Kontaktverteilungsfunktion

Eine weitere strukturelle Kenngröße, die aber nicht auf der Graphen-Darstellung des Porenraumes beruht, ist die sog. sphärische Kontaktverteilungsfunktion aus der räumlichen

Statistik, siehe z.B. Illian et al. [11]. Hierbei wird der Abstand eines zufällig gewählten Punktes des Porenraumes zur Feststoffphase betrachtet. Genauer gesagt, wir betrachten die Verteilung des kürzesten Abstandes eines zufällig ausgewählten Punktes im Porenraum zum Fasermaterial. Diese Kenngröße beschreibt in einem gewissen Sinne die Größe von zusammenhängenden Gebieten des Porenraumes.

Struktureller Vergleich von Papier- und Vlies-Typ-GDL

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse des strukturellen Vergleichs zwischen Papier- und Vlies-Typ-GDL im Hinblick auf die oben beschriebenen Kenngrößen vorgestellt. Wie bereits in Bild 1 und 2 zu sehen ist, unterscheiden sich die GDL wesentlich im Hinblick auf die Struktur der Fasersysteme. Papier-Typ-GDL haben überwiegend geradlinige Fasern, während die Fasern bei Vlies-Typ-GDL stark gekrümmt sind. In diesem Abschnitt möchten wir einen strukturellen Vergleich der Porenräume durchführen, d.h. wir betrachten den komplementären Raum zu den Fasern. Wir untersuchen, ob sich die offensichtlichen Unterschiede der Fasersysteme auch in Struktureigenschaften der Porenräume widerspiegeln, d.h., ob auch die Porenräume deutlich unterschiedliche Struktureigenschaften aufweisen. Die Ergebnisse werden im Folgenden durch Histogramme bzw. Verteilungsfunktionen dargestellt, wobei zusätzlich in Tabelle 1 die Mittelwerte und Standardabweichungen aufgelistet sind. Die Berechnungen wurden im Vergleich zu den in Thiedmann et al. [6] vorgestellten Ergebnissen neu durchgeführt, weshalb sich geringfügige Abweichungen ergeben können.

Ergebnisse für die verschiedenen Kenngrößen

Zunächst betrachten wir die Porosität, d.h. den Volumenanteil des Porenraumes, als die wohl wichtigste Strukturkennggröße. Für die Papier-Typ-GDL wurde eine Porosität von ca. 78 % und bei der Vlies-Typ-GDL von ca. 75 % bestimmt, was auch mit den in der Literatur bekannten bzw. vom Hersteller angegebenen Werten übereinstimmt, siehe auch Gostick et al.[12].

Als nächste Kenngröße betrachten wir die geometrische Tortuosität, d.h. das Verhältnis von kürzestem Weg durch die GDL zu GDL-Stärke. Die aus den Realdaten bestimmten Dichten sind in den Bildern 6 und 7 dargestellt.

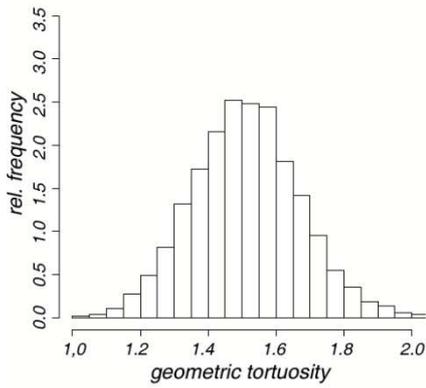


Bild 6: Verteilung der geometrischen Tortuosität von Papier-Typ-GDL

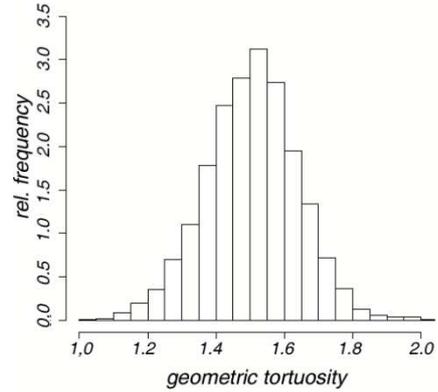


Bild 7: Verteilung der geometrischen Tortuosität von Vlies-Typ-GDL

Figure 6: Distribution of geometric tortuosity of paper-type GDL Figure 7: Distribution of geometric tortuosity of velin-type GDL

Eine weitere für Transportprozesse wichtige Kenngröße ist die Porengrößenverteilung, bei der die oben beschriebene Definition, die die Poren als Kugeln auffasst, verwendet wird. Die Ergebnisse sind in den Bildern 8 und 9 zu sehen.

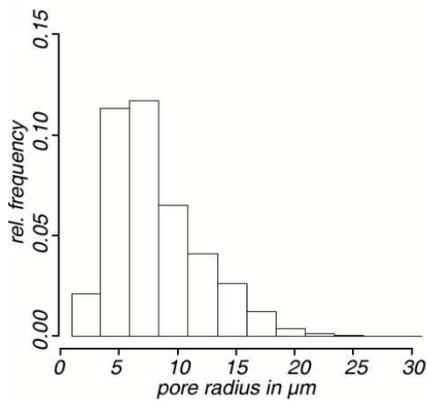


Bild 8: Porengrößenverteilung von Papier-Typ-GDL

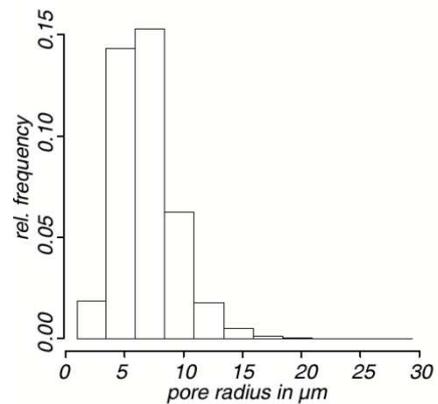


Bild 9: Porengrößenverteilung von Vlies-Typ-GDL

Figure 8: Pore size distribution of paper-type GDL Figure 9: Pore size distribution of velin-type GDL

Eine mit der Definition der Poren eng zusammenhängende Kenngröße, die die Konnektivität des Porenraumes beschreibt, ist die Koordinationszahl, d.h., die Anzahl ausgehender Hälse

pro Pore. Die Ergebnisse bei der Bestimmung dieser Kenngröße sind in den Bildern 10 und 11 dargestellt.

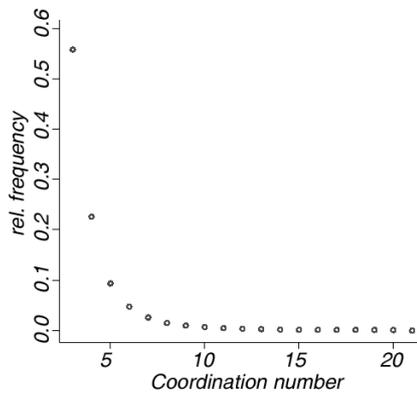


Bild 10: Verteilung der Koordinationszahl von Papier-Typ-GDL

Figure 10: Distribution of coordination number of paper-type GDL

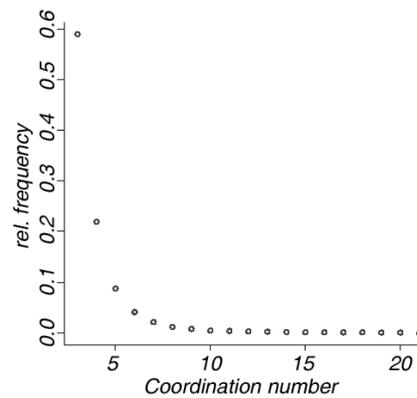


Bild 11: Verteilung der Koordinationszahl von Vlies-Typ-GDL

Figure 11: Distribution of coordination number of velt-type GDL

Eine weitere Möglichkeit, um die Konnektivität des Porenraumes zu beschreiben, bietet der Minimum-Spanning-Tree (MST). Die Ergebnisse bei der Bestimmung seiner relativen Längen sind in Tabelle 1 angegeben.

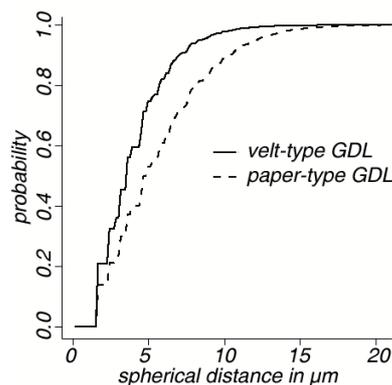


Bild 12: Sphärische Kontaktverteilungsfunktionen

Figure 12: Spherical contact distribution function

Die Ergebnisse bei der Schätzung der sphärischen Kontaktverteilungsfunktion, einer Strukturkenngöße aus der räumlichen Statistik, werden in Bild 12 gezeigt.

Tabelle 1: Mittelwerte und Standardabweichungen der betrachteten Kenngrößen

Table 1: Mean values and standard deviations of the considered characteristics

	Papier-Typ-GDL	Vlies-Typ-GDL
Porosität	78%	75%
Tortuosität		
Mittelwert	1.514	1.505
Standardabweichung	0.164	0.135
Porengrößen		
Mittelwert	8.05 μm	6.73 μm
Standardabweichung	3.74 μm	2.38 μm
Sphärische Kontaktverteilung		
Mittelwert	5.53 μm	3.89 μm
Standardabweichung	3.41 μm	2.27 μm
Koordinationszahl		
Mittelwert	4.38	4.13
Standardabweichung	5.31	4.12
Relative MST Länge	0.44	0.45

Interpretation der Ergebnisse

Im vorhergehenden Abschnitt wurden die Ergebnisse bei der Bestimmung der betrachteten Kenngrößen für die verschiedenen GDL-Typen dargestellt. Wie man sehen kann, zeigen manche Kenngrößen kaum Unterschiede, wie z.B. die Tortuosität. Hier sind die Mittelwerte mehr oder weniger identisch, allerdings sind gewisse Unterschiede bei den Varianzen bzw. Dichten feststellbar. Die Varianz der Tortuosität von Papier-Typ-GDL ist größer als die für Vlies-Typ-GDL berechnete Varianz. Entsprechend hierzu ist das in Bild 6 dargestellte Histogramm breiter als das in Bild 7 gegebene Histogramm der geometrischen Tortuosität von Vlies-Typ-GDL. Beim Vergleich der Konnektivität des Porenraumes lassen sich kaum Unterschiede feststellen. Sowohl die Koordinationszahl als auch die relative Länge der Minimum-Spanning-Trees sind für beide GDL-Typen sehr ähnlich ausgeprägt. Lediglich die Varianz der Koordinationszahl ist bei Papier-Typ-GDL größer als bei Vlies-Typ-GDL.

Deutliche Differenzen lassen sich jedoch bei den Verteilungen der Porengrößen ausmachen. Hierbei zeigen nicht nur die Histogramme sondern auch die Erwartungswerte bzw. die Varianzen deutliche Abweichungen voneinander für die untersuchten GDL-Typen. Und zwar besteht die Tendenz, dass die Poren der Papier-Typ-GDL größer als die Poren der Vlies-Typ-GDL sind. Das gleiche gilt auch für die Varianz der Porengrößen. Die sphärischen Kontaktverteilungsfunktionen unterscheiden sich ebenfalls stark voneinander. Hierbei sind die sphärischen Kontaktabstände bei der Papier-Typ-GDL ebenfalls größer als bei der Vlies-Typ-GDL.

Dies lässt den Schluss zu, dass sich die hier untersuchten Materialien zwar wesentlich in der Struktur der Fasersysteme unterscheiden, was bei Betrachtung der Bilder 1 und 2 offensichtlich wird; allerdings zeigen die Porenräume in gewisser Hinsicht sogar strukturelle Ähnlichkeiten. Vor allem die Konnektivitätskennzahlen lassen kaum Unterschiede erkennen. Auf der anderen Seite sind bei den volumenorientierten Größen deutliche Abweichungen feststellbar.

Schlussfolgerungen und Ausblick

In dieser Arbeit wurden die morphologischen Strukturen der Porenräume zweier unterschiedlicher GDL-Typen untersucht und miteinander verglichen. Bei der Betrachtung von 2D REM-Bildern wird offensichtlich, dass sich die Strukturen der Fasersysteme stark unterscheiden. Bei Papier-Typ-GDL haben die Fasern einen geradlinigen Verlauf, wohingegen sie bei Vlies-Typ-GDL deutlich gekrümmt sind. Da der Transport der Reaktanden, d.h. Wasserstoff und Sauerstoff, und Reaktionsprodukte, d.h. Wasser, im Porenraum stattfindet, haben wir uns in der vorliegenden Arbeit auf den Vergleich der Strukturen der Porenräume fokussiert, wozu wir von beiden GDL-Typen strukturelle Kenngrößen des Porenraumes betrachtet und miteinander verglichen haben. Diese Untersuchungen wurden mit Hilfe von 3D Bildern durchgeführt, die mit Synchrotron-Tomographie erstellt wurden.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich mit einigen Strukturkenngößen starke, mit anderen jedoch nur marginale Unterschiede feststellen lassen. Bei der Tortuosität, der Koordinationszahl und der relativen Länge des MST, die vor allem Konnektivitätseigenschaften der Porenräume beschreiben, lassen sich nur relativ geringfügige Unterschiede zwischen den beiden GDL-Typen ausmachen. Auf der anderen Seite zeigen Strukturkenngößen wie die Porengrößenverteilung oder die sphärische Kontaktverteilung, die sich eher auf die Clusterung des Porenraumes beziehen, deutliche Unterschiede. Diese Feststellung von strukturellen Unterschieden ist auch im Einklang mit experimentellen Ergebnissen, bei denen dargelegt werden konnte, dass bei sonst gleichen Betriebsbedingungen die Leistung von Brennstoffzellen mit unterschiedlichen GDL-Typen variiert, siehe Hartnig et. al [13].

Die Ergebnisse zeigen aber auch, dass die in Thiedmann et al. [6] eingeführten strukturellen Kenngrößen, die hauptsächlich auf einer Graphen-Darstellung des Porenraumes beruhen,

geeignet sind, um Strukturunterschiede des Porenraumes verschiedener GDL-Typen quantitativ zu beschreiben.

Die in der vorliegenden Arbeit durchgeführte deskriptive Analyse des Porenraumes von GDL wird in einem nächsten Schritt als Ausgangspunkt zur Entwicklung eines direkten Modells des Porenraumes durch einen zufälligen 3D Graphen dienen. Dazu werden die aus Realdaten extrahierten Graphen als Grundlage verwendet, um ein solches Porenraum-Modell zu entwickeln und an Realdaten anzupassen. Die oben betrachteten Kenngrößen werden dabei zur Validierung des Graphen-Modells eingesetzt.

Danksagung

Diese Forschungsarbeit wurde vom Bundesministerium für Bildung und Forschung der Bundesrepublik Deutschland (BMBF) unter der Zuwendungsnummer 03SF0324C/E/F unterstützt.

Kurzvitae

Ralf Thiedmann: Ralf Thiedmann wurde 1979 geboren und studierte von 2000 bis 2006 Wirtschaftsmathematik an der Universität Ulm. Er schloss 2006 sein Studium mit dem Diplom in Wirtschaftsmathematik ab und ist seither am Institut für Stochastik an der Universität Ulm beschäftigt, wo er sich vor allem mit stochastischer Modellierung von porösen Medien beschäftigt.

Ingo Manke:

Werner Lehnert: Dr. Werner Lehnert studierte Physik an der Universität Bonn, promovierte an der Universität Düsseldorf und habilitierte an der Universität Ulm. Im Rahmen seiner beruflichen Laufbahn forschte er auf den Gebieten der Hochtemperatur- (SOFC) und Niedertemperaturbrennstoffzelle (PEMFC) sowohl in Forschungsinstituten als auch in Industrieunternehmen. Derzeit leitet er die Abteilung "Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen" im Institut für Energieforschung (IEF-3) des Forschungszentrums Jülich.

Volker Schmidt: Volker Schmidt ist Professor für Stochastik an der Universität Ulm. Er studierte Mathematik an der Universität Wroclaw (Polen). Danach erfolgten Promotion und Habilitation an der TU Bergakademie Freiberg. Seit 1992 gehört er der Fakultät für Mathematik und Wirtschaftswissenschaften der Universität Ulm an. Seine Forschungsinteressen liegen auf dem Gebiet der stochastischen Geometrie und der räumlichen Statistik. Dabei wendet er dieses Kalkül u.a. zur Entwicklung von realdatenbasierten Simulationsmodellen für poröse Werkstoffe an, um Zusammenhänge zwischen Mikrostruktur und makroskopischen Nutzungseigenschaften quantitativ zu untersuchen.

Literaturangaben

- [1] Manke I., Hartnig C., Grünerbel M., Lehnert W., Kardjilov N., Haibel A., Hilger A., Banhart J. (2007) Investigation of water evolution and transport in fuel cells with high resolution synchrotron X-ray radiography. *Applied Physics Letters*, **90**, 174105-1 – 174105-3.
- [2] Thiedmann R., Fleischer F., Hartnig C., Lehnert W., Schmidt V. (2008) Stochastic 3D modeling of the GDL structure in PEM fuel cells based on thin section detection. *Journal of the Electrochemical Society*, **155**, B391- B399.
- [3] Jähne B. (2005) *Digital Image Processing*. 6th revised and extended ed., Berlin: Springer.
- [4] Soille P. (1999) *Morphological Image Analysis*. Berlin: Springer.
- [5] Lahiri S.N. (2003). *Resampling Methods for Dependent Data*. New-York: Springer.
- [6] Thiedmann R., Hartnig C., Manke I., Schmidt V., Lehnert W. (2009) Local structural characteristics of pore space in GDL's of PEM fuel cells based on geometric 3D graphs. *Journal of the Electrochemical Society*, **156**, B1339-B1347.
- [7] Fourard C., Malandain G., Prohaska S., Westerhoff M. (2006) Blockwise processing applied to brain microvascular network study. *IEEE Transactions on Medical Imaging*, **156**, B1339- B1347.
- [8] Stoyan D., Kendall W.S., Mecke J. (1995) *Stochastic Geometry and its Applications*. 2nd ed. Chichester: J. Wiley & Sons.
- [9] Diestel R. (2005) *Graph Theory*. Heidelberg: Springer.
- [10] Blunt M.J., Jackson M.D., Piri M., Valvatne P.H. (2002) Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow. *Advances in Water Resources*, **25**, 1069-1089.
- [11] Illian J., Penttinen A., Stoyan H., Stoyan D. (2008) *Statistical Analysis and Modelling of Spatial Point Patterns*. Chichester: J. Wiley & Sons.
- [12] Gostick J. T., Fowler M. W., Ioannidis M. A., Pritzker M. D., Volfkovich Y. M., Sakars A. (2006) Capillary pressure and hydrophilic porosity in gas diffusion layers for polymer electrolyte fuel cells. *Journal of Power Sources*, **156**, 375-387.
- [13] Hartnig C., Jörissen I., Kerres J., Lehnert W., Scholta J. (2008) Polymer electrolyte membrane fuel cells (PEMFC) in: *Materials for Fuel Cells*, 101 – 184, Ed. M. Gasik. Cambridge: Woodhead Publishing.