

Novel Gas Diffusion Layers with Patterned Wettability for Advanced Water Management Strategies in Polymer Electrolyte Fuel Cells

Doctoral Thesis**Author(s):**

Fornier-Cuenca, Antoni

Publication date:

2016

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010811344>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

DISS. ETH N° 23941

**Novel Gas Diffusion Layers with Patterned
Wettability for Advanced Water Management
Strategies in Polymer Electrolyte Fuel Cells**

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

Presented by

ANTONI FORNER-CUENCA

Chem. Eng., University of Alicante

born on *December 29th, 1989*

citizen of Spain

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Thomas J. Schmidt, examiner
Prof. Dr. Alexander Wokaun, co-examiner
Dr. Pierre Boillat, co-examiner

2016

Summary

Research in academia and industry strives to develop more efficient and clean energy technologies to power stationary and mobile applications. Pursuant to this goal, extensive developments have been made in the field of polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) over the last 20 years. PEFCs are one of the most promising candidates for automobile applications due to their high efficiency, power density and lack of pollutants. As a result, the first fuel cell cars are available on the market; however, still at elevated price. To facilitate the vast market integration of PEFC vehicles, the efficiency needs to be further improved, especially under high current densities. In other words, for a given power output cost would be reduced if performance is maximized. In this context, this dissertation work aims to improve power density of PEFCs through an advanced water management. While some water is needed to humidify membrane and ionomer in catalysts layers, excessive amounts of water in the porous layers lead to increased mass transport resistances for the gases, reducing thereby the performance. By using the materials developed within this work, water leaves the cell throughout pre-designed hydrophilic regions, while gases travel preferentially through the remaining hydrophobic, dry, low-resistance pathways.

A novel type of gas diffusion layer (GDL), consisting on an arrangement of hydrophilic and hydrophobic domains, has been developed within this PhD work. This thesis starts by describing the concept of GDLs with patterned wettability and the synthetic method which is based on electron radiation grafting of the polymeric coating. This first part contains an introduction and a collection of experimental methods and techniques. At the end of this part, a proof-of-concept showing the promising potential of these materials is provided.

Later, a thorough systematic study focuses on finding experimental conditions to synthesize hydrophilic surfaces by free radical polymerization reactions. Once successful conditions were found, they were applied to locally irradiated materials by using blocking masks. A combination of experiments and numerical simulations is presented aiming the production of high quality patterns. Then, the modified materials were characterized based on their capillary pressure characteristic. From this study, it was learnt that microstructure and coating load are the material parameters affecting water

segregation the most. Finally, the best candidates were tested *operando* in fuel cells under various conditions (temperatures, gas humidities and assemblies). Positively, it was found that the use of GDLs with patterned wettability improve PEFC performance due to a reduction in mass transport losses. The simultaneously obtained neutron radiographs proved that the new water distribution, according to the engineered hydrophilic patterns, justifies the improvements in power density.

Zusammenfassung

Bemühungen in der industriellen und akademischen Forschung streben nach effizienteren und saubereren Technologien, um die aktuellen auf fossilen Brennstoffen basierenden Energiequellen abzulösen. In den letzten 20 Jahren wurden in diesem Zusammenhang signifikante Entwicklungen im Bereich von Polymerelektrolytbrennstoffzellen (PEFCs) erzielt. Für Anwendungen in der Automobilindustrie sind PEFCs eine der vielversprechendsten Hoffnungsträger – aufgrund ihrer hohen Effizienz, Leistungsdichte und der geringen Umweltverschmutzung. Die ersten PEFC-betriebenen Automobile sind bereits auf dem Markt, jedoch zu einem eher erhöhten Preis. Um einen Eintritt dieser Technologie in mehr Marktsegmente zu erleichtern, muss ihre Effizienz gesteigert werden, vor allem bei hohen Stromdichten. Anders gesagt ist eine verbesserte Effizienz gleichbedeutend mit einer Kostenreduktion. Vor diesem Hintergrund hat die vorliegende Dissertation zum Ziel, die Leistungsdichte von PEFCs mit Hilfe eines verbesserten Wassermanagements zu erhöhen. Während wenig Wasser für das Befeuchten der Membran und des Ionomers der Katalysatorschichten notwendig ist, führt zu viel Wasser in den porösen Schichten zu einer Erhöhung von Massentransport-Widerständen, was die Leistung reduziert. Unter Verwendung der in dieser Arbeit entwickelten Materialien verlässt das Wasser die Zelle durch vordefinierte hydrophile Regionen. Gase bewegen sich bevorzugt durch die verbleibenden hydrophoben, trockenen Bereiche mit geringem Massentransport-Widerstand.

Ein neuartiger Typ von Gasdiffusionsschichten (GDL) bestehend aus hydrophilen und hydrophoben Regionen wurde in dieser Doktorarbeit entwickelt. Die Dissertation beginnt mit einer Beschreibung des Konzepts von GDLs mit lokal definierten Benetzungseigenschaften und der synthetischen Methode, welche auf Strahlen-Pfropfen basiert. Dieser erste Teil beinhaltet eine Einführung und eine Darstellung von experimentellen Methoden und Techniken. Anschliessend wird ein *Proof of Concept* präsentiert, welcher das Potential dieser Materialien verdeutlicht.

Danach legt eine genaue systematische Untersuchung dar, wie Versuchsbedingungen gefunden werden, um hydrophile Oberflächen mit freier radikalischer Polymerisation zu synthetisieren und wie dieses Wissen für die Herstellung poröser Substrate transferiert

wird. Nach erfolgreicher Definition dieser Bedingungen konnten Proben zielgerichtet durch lokale Maskierung bestrahlt werden, um klare Muster von hydrophilen und hydrophoben Bereichen zu erhalten. Dies konnte sowohl durch Experimentelle Daten als auch durch Modellierung bestätigt werden. Die Charakterisierung der Materialien erfolgte über Messungen des Kapillardrucks. Daraus resultierend kann gesagt werden, dass die Mikrostruktur und die *Beschichtungsbeladung* die Wassersegregation am stärksten beeinflussen. Schliesslich wurden die vielversprechendsten Kandidaten in Brennstoffzellen unter verschiedenen Bedingungen (variierende Temperaturen, Gaskonzentrationen und -zusammensetzungen) getestet. Als Erkenntnis konnte gewonnen werden, dass die Verwendung von GDLs mit *strukturierter Benetzbarkeit* die Leistung von PEFCs aufgrund einer Reduktion von Massentransportverlusten verbessert. Die simultan aufgenommenen Neutron Radiographie-Daten bewiesen, dass die Wasserverteilung – entsprechend den strukturierten hydrophilen Mustern – die Verbesserung der *Leistungsdichte* erklären kann.