

DISS ETH Nr. 18397

**ADVANCED CHARACTERIZATION OF
POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELLS USING
HIGH RESOLUTION NEUTRON IMAGING**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH
(ETHZ)

For the degree of
DOCTOR OF SCIENCES

Presented by
PIERRE BOILLAT

Dipl. Ing. Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL)

born December 31st 1973
citizen of Les Breuleux (JU)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. A. Wokaun, examiner
Prof. Dr. J.F. Mesot, co-examiner
Dr. G.G. Scherer, co-examiner

2009

Abstract

The work presented in this thesis consists in the application of high resolution neutron imaging to the measurement of liquid water distribution in operating Polymer Electrolyte Fuel Cells (PEFCs). It can be considered as a combination of the development of a method and the application of this method. For this reason, this work is structured into two distinctive parts.

In Part I, the methodological improvements brought to neutron imaging are described. These improvements were realized with the specific target of application to fuel cell *in plane* imaging, a configuration where the cell is “seen” from its side and whose characteristic feature is that spatial resolution requirements strongly differ in the directions across and along the membrane. Taking this fact as an advantage, anisotropic resolution enhancements were applied, including direction specific increase of the beam collimation and the use of detector tilting for effectively magnifying the image in a specific direction. A good spatial-time resolution tradeoff was obtained by optimizing the distance between the cell and detector, which resulted in the possibility to obtain images with an effective spatial resolution of 20 μm with exposure times of 10 seconds only. The possibility of resolving faster repetitive processes using cumulative imaging was explored as well. The opportunities offered by the isotopic sensitivity of neutron imaging were investigated, including the use of the contrast between the different isotopes of hydrogen, and the possibility to image the gas phase thank to the very high cross section of ^3He . Finally, the implications for image processing and for quantification of the new imaging configuration were analyzed, including the necessity of a precise alignment of working and reference images, and the errors still affecting quantitative analysis.

In Part II, the application of high resolution imaging to *in situ* experiments is presented. New *differential cells* were designed in order to allow *in plane* imaging while observing the distinction between channel and land areas of the cell, and the use of microstructures was applied to create a cell with diffusion limitations as low as possible. The comparison of different *gas diffusion layers* and operating conditions allowed getting a better understanding of the effect of liquid water on cell performance, as well as of the mechanisms of water transport in porous media. These studies were completed by the observation of transient operation, as allowed by the new combination of high spatial resolution and good temporal resolution. In these transient studies, we could observe that, in some cases, a better performance is reached than in any steady state condition, due to the different time constants of beneficial and detrimental processes. Finally, the use of ^2H labeling tracers was put into practice in order to study the relations between interfacial and bulk transport limitations in a polymer electrolyte membrane, emphasizing the importance of interfacial effects for water transport.

Résumé

Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse consiste en l'application de l'imagerie neutronique à haute résolution à la mesure de la distribution d'eau sous forme liquide dans des Piles à Combustible à Electrolyte Polymère (PEFC pour le sigle en anglais) en cours de fonctionnement. Il peut être considéré comme une combinaison du développement d'une méthode et de l'application de cette méthode. Pour cette raison, ce travail est structuré en deux parties.

Dans la Partie I, les améliorations apportées à la méthode de l'imagerie neutronique sont décrites. Ces améliorations ont été réalisées spécifiquement dans l'optique de leur application à l'imagerie *in plane* des piles à combustible, une configuration dans laquelle la pile est « vue » depuis le côté, et qui présente la caractéristique d'avoir des exigences très différentes en termes de résolution spatiale dans les directions perpendiculaire et parallèle à la membrane de la cellule. Profitant de cette situation, des améliorations anisotropiques de la résolution ont été expérimentées, incluant une augmentation de la collimation du faisceau de neutrons différenciée selon la direction, et un pivotement du détecteur de manière à amplifier l'image dans une direction spécifique. Le meilleur compromis possible entre résolution spatiale et temporelle a été obtenu en optimisant la distance entre la cellule et le détecteur, avec pour résultat la possibilité d'obtenir des images avec une résolution effective de 20 μm et des temps d'exposition de seulement 10 secondes. La possibilité d'observer des processus répétitifs plus rapides a aussi été explorée en utilisant une méthode cumulative. Les opportunités offertes par la sensibilité isotopique de l'imagerie neutronique ont été étudiées, incluant l'usage du fort contraste entre les différents isotopes de l'hydrogène, ainsi que la possibilité d'obtenir des images d'une phase gazeuse grâce à la très haute section efficace de l'isotope ^3He . Finalement, les implications pour le traitement d'image et la quantification de la nouvelle configuration d'imagerie ont été analysées, incluant la nécessité de réaliser un alignement précis des images de la cellule en opération avec l'image de référence, ainsi que les erreurs affectant la mesure quantitative.

Dans la Partie II, l'application de l'imagerie à haute résolution aux expériences *in situ* est présentée. Une nouvelle *pile différentielle* a été conçue, permettant l'imagerie *in plane* tout en maintenant possible la distinction entre les canaux et nervures de la plaque de distribution des flux. De plus, un design utilisant des micro-canaux a été réalisé pour certaines expériences où les limitations par diffusion doivent être réduites au minimum possible. La comparaison de différents types de *couches de diffusion* et de différentes conditions de fonctionnement de la pile ont permis d'améliorer la compréhension de l'effet de la condensation d'eau dans les couches poreuses, ainsi que des mécanismes de transport de l'eau dans ces couches. Ces études ont été complétées par l'observation de conditions transitoires, nouvellement possible en haute résolution grâce aux récentes améliorations

OUTLOOK AND CONCLUSIONS

de l'imagerie neutronique. Lors de ces observations, il a été possible de constater que, dans certains cas, une performance en régime transitoire supérieure à la meilleure performance obtenue en régime stationnaire est possible, due aux différentes constantes de temps liées aux processus bénéfiques et détritamentaux. Finalement, l'utilisation de traceurs basés sur un isotope de l'hydrogène (^2H) a été mise en pratique dans le but d'étudier la relation entre les processus ayant lieu dans le volume et aux interfaces d'une membrane en électrolyte polymère, permettant de mettre en évidence l'importance des processus interfaciaux.