

Analysis of water transport in polymer electrolyte fuel cells using neutron imaging

Doctoral Thesis

Author(s):

Oberholzer, Pierre

Publication date:

2012

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-007569647>

Rights / license:

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

DISS. ETH NO. 20548

Analysis of Water Transport in Polymer Electrolyte Fuel Cells using Neutron Imaging

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by
Pierre Oberholzer

MSc in Mechanical Engineering
EPFL LAUSANNE
born May 8th 1983
citizen of Goldingen (SG)

accepted on the recommendation of

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

2012

Abstract

The Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC), using hydrogen as fuel, represents a promising alternative to internal combustion engines in cars since it can be integrated in an energy conversion chain using renewable sources and reducing polluting emissions. Beyond the issues related to the hydrogen distribution, the main obstacles to overcome for a worldwide commercialization are the durability and cost of the PEFC. Understanding the major role of water on the performance losses is fundamental to mitigate its detrimental effects, improve the performance and reduce the cost of the system. This thesis originated from this general motivation.

By using neutron imaging as a visualization tool of liquid water combined with other *in situ* characterization methods, unique insights can be gained on the loss mechanisms occurring in an operating PEFC.

Deuterium labeling consists in replacing ^1H atoms by ^2H atoms and observing the subsequent change of intensity obtained with neutron imaging. By applying transient changes of isotopic composition in the gases surrounding a hydrated membrane, parameters related to the bulk and interfacial transport can be extracted. A methodology based on a simple diffusive model fitted on experimental data was developed. It allowed identifying a maximal exchange rate of H atoms between the membrane and the gas phase. It also permitted to investigate the effect of various diffusive limitations in the porous media on this exchange.

By using helox gas (79% He and 21% of O_2), a *helox pulsing* method was developed as a characterization tool of the bulk diffusive losses of oxygen occurring in a PEFC operating under air. In particular, validation experiments showed that the behavior of the cell was not changed by the application of this method.

A new experimental set-up, called *multi-cell*, that enables the simultaneous imaging and testing of six cells, was developed and used in combination with the discussed methods.

The study of the effect of the *microporous layer (MPL)* on performance and water distribution was investigated by means of the proposed methods. The role of this largely used component, still debated in the community, could be pointed out. The beneficial effects of this material appear to be a prevention of water accumulation in the *catalyst layer* environment rather than a reduction of the water saturation level in the *gas diffusion layer (GDL)*.

The comparison of different *flow fields* was realized with the same set of characterization tools, in order to assess the effect on the performance of the diffusive gas flow distribution of oxygen in the GDL. While the effect of the channel-rib distribution was identified, other results suggested the presence of important proton and mass transport losses in the electrode.

At last, *cold-starts* of a cell maintained at constant subfreezing temperature were visualized by dynamic neutron imaging. The observation of the water distribution and the final voltage drop strongly suggest the presence of water in super-cooled state in the system for most of the experiments realized.

Résumé

La Pile à Combustible à Electrolyte Polymère (PEFC en anglais), utilisant l'hydrogène comme combustible, représente une alternative prometteuse au moteur à combustion interne des voitures. En effet, cette technologie peut être intégrée dans une chaîne de conversion d'énergie utilisant des sources renouvelables et limitant les émissions polluantes. Au-delà des difficultés liées à la distribution de l'hydrogène, les principaux obstacles devant être surmontés pour une commercialisation mondiale sont la durabilité et le coût de la PEFC. La compréhension du rôle majeur de l'eau sur les pertes de performance est fondamentale en vue de limiter ses effets détritimaux, d'améliorer la performance et de réduire le coût du système. Cette thèse s'inscrit dans cette motivation générale.

L'utilisation de l'imagerie neutronique, en tant qu'outil de visualisation de l'eau liquide, combinée à d'autres méthodes de caractérisation *in situ* permet de mieux comprendre les mécanismes de pertes effectifs dans une PEFC en opération.

Le *traçage au deutérium* consiste à remplacer les atomes ^1H par des atomes ^2H et observer par imagerie neutronique le changement d'intensité qui s'ensuit. L'application de changements transitoires de composition isotopique des gaz dans l'environnement d'une membrane hydratée permet d'extraire des paramètres de transport volumique et interfacial. Une méthodologie basée sur un modèle diffusif simple ajusté aux données expérimentales fut développée. L'identification d'un taux d'échange maximal d'atomes H entre la membrane et la phase gazeuse fut obtenue par cette méthode. L'effet de différentes limitations diffusives dans les couches poreuses a également pu être testé.

Utilisant du gaz helox (79% He et 21% O_2), une méthode de *pulsage d'helox* a été développée afin de caractériser les pertes diffusives volumiques de l'oxygène d'une PEFC fonctionnant sous air. En particulier, des expériences de validation ont pu montrer que le comportement de la pile n'était pas affecté par l'application de cette méthode.

Une nouvelle station expérimentale, nommée *multi-pile*, permettant le test et l'imagerie neutronique de six piles simultanément, a été développée et utilisée en combinaison avec les méthodes discutées précédemment.

L'étude des effets de la *couche microporeuse* (*MPL* en anglais) sur la performance et la distribution de l'eau dans la pile a été effectuée au moyen des méthodes proposées. Le rôle de ce composant largement utilisé, encore débattu dans la communauté, a été mis en exergue. L'effet bénéfique de ce matériau semble plutôt être de prévenir l'accumulation d'eau dans l'environnement de la *couche catalytique* que de réduire le niveau de saturation d'eau dans la *couche de diffusion poreuse* (*GDL* en anglais).

La comparaison de différents *champs d'écoulement* fut réalisée avec le même ensemble d'outils de caractérisation dans le but de juger de l'effet sur la performance de la distribution du flux diffusif d'oxygène dans la couche GDL. Tandis que l'effet de distribution canal-nervure fut identifié, d'autres résultats suggèrent la présence d'importantes pertes par transport de masse et transport protonique dans la couche catalytique.

Enfin, des démarrages à froid d'une pile maintenue à température constante au-dessous de 0°C furent visualisés par imagerie neutronique dynamique. L'observation de la distribution d'eau et de la chute de tension finale laissent fortement supposer la présence d'eau surfondue dans le système pour la majorité des expériences réalisées.