

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
19. Juni 2003 (19.06.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/050902 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **H01M 8/00**

GMBH [DE/DE]; Rodheimer Strasse 59, 35452 Heuchelheim (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/13997

(72) Erfinder; und

(22) Internationales Anmeldedatum:
10. Dezember 2002 (10.12.2002)

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **RINN, Günter** [DE/DE]; Dahlienweg 10, 35633 Lahnu (DE). **BAN-HARDT, Volker** [DE/DE]; Nibelungenstrasse 32, 64625 Bensheim (DE). **KEHR, Dietrich** [DE/DE]; Kofdorfer Strasse 53, 35444 Biebertal (DE).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
101 60 706.7 11. Dezember 2001 (11.12.2001) DE

(74) Anwalt: **STOFFREGEN, Hans-Herbert**; Friedrich-Ebert-Anlage 11b, 63450 Hanau (DE).

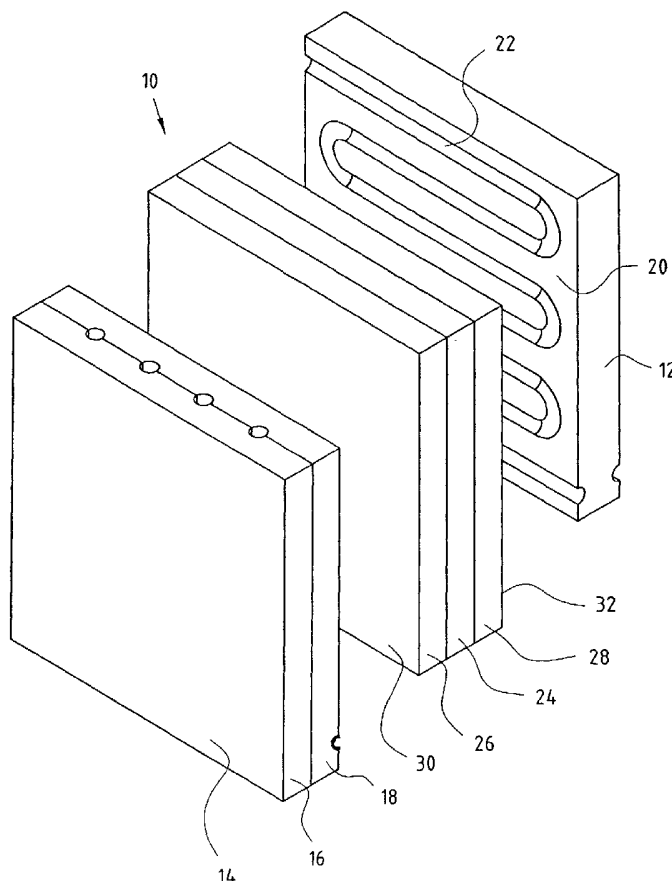
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **SCHUNK KOHLENSTOFFTECHNIK**

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR THE PRODUCTION OF A PLATE AND PLATE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINER PLATTE SOWIE PLATTE



(57) Abstract: The invention relates to a method for the production of a plate, comprising a thermally-hardening and/or thermoplastic plastic with carbon filler, with a filler proportion of preferably 70 wt. % to 95 wt. %, whereby a starting mixture containing the plastic and the carbon filler is filled in a press mould and moulded to give the plate by means of a pressing tool. According to the invention, the plate may have the desired properties, whereby the starting mixture is fed to the press mould in portions in layers or regions and the supplied portions are serially subjected to the desired pressing parameters.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zum Herstellen einer Platte bestehend aus einem wärmeaushärtbaren und/oder thermoplastischen Kunststoff mit Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von vorzugsweise 70 Gew.% bis 95 Gew.%, wobei eine den Kunststoff und den Kohlenstoff-Füllstoff enthaltende Ausgangsmischung in eine Pressform eingefüllt und sodann mit einem Presswerkzeug zu der Platte geformt wird. Um zu erreichen, dass die Platte gezielt gewünschte Eigenschaften aufweist, wird vorgeschlagen, dass in die Pressform schicht- und/oder bereichsweise Ausgangsmischungen portionsweise der Pressform zugeführt werden und die zugeführten Portionen nacheinander gewünschten Pressparametern ausgesetzt werden.



WO 03/050902 A2



GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT,

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Beschreibung

Verfahren zur Herstellung einer Platte sowie Platte

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zum Herstellen einer Platte, bestehend aus zumindest zwei Schichten unterschiedlicher Zusammensetzung und/oder unterschiedlicher chemischer und/oder physikalischer Eigenschaften, insbesondere bestimmt für eine Brennstoffzelle, wobei als zumindest eine Ausgangsmischung zur Ausbildung einer Schicht ein wärmeaushärtbarer und/oder thermoplastischer Kunststoff mit Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von vorzugsweise 70 Gew.% bis 95 Gew.% verwendet wird, und wobei die Ausgangsmischungen in eine Pressform eingebracht und unter Druck zumindest teilweise, vorzugsweise vollständig wärmegehärtet werden. Ferner nimmt die Erfindung Bezug auf eine Platte, insbesondere Bipolarplatte bestimmt für eine Brennstoffzelle oder Separatorplatte oder Elektrodenplatte, bestehend aus mehreren Schichten unterschiedlicher chemischer und/oder physikalischer Eigenschaften, wobei die Schichten aus gleichen oder unterschiedlichen Ausgangsmischungen bestehen, wobei zumindest eine Schicht aus einem wärmeaushärtbaren und/oder thermoplastischen Kunststoff und einem Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von vorzugsweise 70 Gew.% bis 95 Gew.% ist.

In Brennstoffzellen kann chemische Energie mit hohem Wirkungsgrad direkt in elektrischen Strom umgewandelt werden. Das Grundprinzip wird durch eine räumliche Trennung von Reaktionspartnern wie Wasserstoff oder Methanol einerseits und Sauerstoff bzw. Luft andererseits durch einen ionenleitfähigen Elektrolyten wie Polymerelektrolytmembran

verwirklicht, die auf beiden Seiten mit porösen Elektroden - der Anode und der Kathode - in Kontakt steht. Auf diese Weise kann eine chemische Reaktion zwischen Wasserstoff und Sauerstoff nicht explosionsartig als Knallgasreaktion ablaufen, sondern so kontrolliert durchgeführt werden, dass ein Elektronenaustausch zwischen den Reaktionspartnern über einen äußeren Stromkreis erfolgt und somit die elektrische Energie liefert.

Die Elektroden bestehen häufig aus einer mit einem Katalysator versehenen Rußschicht, die auf der Membran aufgebracht ist, wobei als Katalysatoren vorzugsweise Platin, aber auch andere geeignete Edelmetalle wie Palladium verwendet werden.

Die Zufuhr der Reaktionspartner zu den Elektroden kann über Bipolarplatten erfolgen, die aus einem wärmeaushärtbaren Kunststoff mit Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von insbesondere 70 Gew% bis 95 Gew% bestehen. In die den Elektroden zugewandten Flächen der Bipolarplatten sind Kanäle eingelassen, entlang der die Reaktionspartner strömen. Wird als Reaktionsgas Wasserstoff der Anode der Brennstoffzelle zugeführt, so werden in der Katalysatorschicht der Anode Kationen gebildet und gleichzeitig Elektronen an die elektronenleitende Anode abgegeben. Als Oxidationsmittel wird Sauerstoff oder Luft der Kathodenseite der Zelle zugeführt. Durch Aufnahme der durch die ionenleitfähige Membran diffundierten Wasserstoffionen (Protonen) und der durch den Außenstromkreis von der Anode zur Kathode fließenden Elektronen wird das Reaktionsgas Sauerstoff reduziert. Diese Reaktion läuft in der Katalysatorschicht der Kathode ab, die mit der Membran kontaktiert ist. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktionsenthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Wärme frei.

Damit die Reaktionspartner im hinreichenden Umfang mit der jeweiligen Elektrode bzw. dem in dieser vorhandenen Katalysator in Kontakt gelangen, wird zwischen der jeweiligen Elektrode und der Bipolarplatte eine Diffusionsschicht angeordnet. Somit wird die Elektrode durch die zwischen den Kanälen der Bipolarplatte vorhandenen Stege oder Wandungen nicht abgedeckt, wodurch andernfalls der Wirkungsgrad beeinträchtigt werden könnte.

Entscheidende Parameter für das Erreichen eines hohen Wirkungsgrades sind eine schnelle und möglichst vollständige Zu- und Abfuhr von Reaktionspartnern und -produkten an den aktiven Zentren der Elektroden und ein optimaler Wasserhaushalt der Membran.

Ein Austrocknen der Membran läßt deren Protonenleitfähigkeit drastisch absinken; Wasserüberschuss führt dagegen zum Blockieren der Poren in der Gasdiffusionsschicht und schließlich zum Verstopfen der Gasführungs Kanäle.

Üblicherweise versucht man das Problem eines optimalen Wassergehalts über die gesamte aktive Fläche über das Design und die Anordnung der Gasführungs Kanäle auf der Bipolarplatte zu lösen. Gleichzeitig werden entweder externe oder interne Befeuchtungssysteme eingesetzt.

Aus der DE 195 42 721 A1 ist es bekannt, Kunststoff-Füllstoff-Mischungen durch Extrudieren zu Platten zu formen, die für elektrische und elektrochemische Zwecke bestimmt sein können. Durch das Extrudieren bedingt müssen die dem Extruder zugeführten Mischungen bestimmte Temperaturen einhalten, um eine Massförderung sicherzustellen.

In der DE 26 35 636 C2 wird eine Brennstoffzelle und ein Verfahren zum Herstellen einer solchen beschrieben. Dabei werden Bahnen von Elektrodenmaterial und Bahnen von Faserservliesmaterial verbunden, wobei zur Erzielung einer gewünschten Geometrie der Platten aus diesen Öffnungen ausgestanzt werden, um bei einer fertigen Brennstoffzelle gewünschte Kammern, Kanäle und Durchgänge zur Verfügung zu stellen.

Aus der WO 96/33520 ist ein graphitisierter Verbundwerkstoff bekannt, der zur Herstellung von Platten von Brennstoffzellen benutzt wird.

Die DE 198 29 142 A1 bezieht sich auf einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran-Elektroden-Einheit von Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen.

Auch sind Bipolarplatten mit Kühlkanälen bekannt, die aus zwei plattenförmigen aufeinander liegenden Abschnitten bestehen, wobei die aufeinander liegenden Flächen zueinander fluchtende rinnenförmige Vertiefungen aufweisen, die die Kühlkanäle bilden. Die plattenförmigen Abschnitte selbst werden durch Kleber verbunden, wodurch Einbußen in Bezug auf die Leitfähigkeit der Bipolarplatte im Bereich der Verbindungsstellen in Kauf genommen werden müssen.

Ein Elektrodenmaterial für Brennstoffzellen nach der DE 35 12 326 A1 weist eine integrierte pressgeformte Fünfschichtstruktur auf. Dabei werden die Ausgangsmaterialien für das Elektrodenmaterial in eine Pressform nacheinander eingegeben, um sodann zusammen mittels Druckformen, Nachhärten und Calcinieren eine fertige Struktur zu erhalten. Dabei können gegebenenfalls entsprechende als Einheit hergestellte Strukturen erneut in eine Druckform eingegeben werden, um diese durch Zwischenlegen eines Graphitbogens miteinander zu verbinden.

Der vorliegenden Erfindung liegt das Problem zugrunde, ein Verfahren zum Herstellen einer Platte und eine solche selbst derart weiterzubilden, dass mit einfachen Maßnahmen Schichten gewünschter Eigenschaften erzielbar sind, wobei eine individuelle Auslegung der Platte möglich sein soll. Gleichzeitig soll bei der Verwendung der Platte für eine Brennstoffzelle ein guter Wasserhaushalt für eine Membran gewährleistet sein. Ein Befuchtungssystem soll nicht oder nur in vereinfachter Form notwendig sein.

Erfindungsgemäß wird das Problem durch ein Verfahren der eingangs genannten Art im Wesentlichen durch folgende Verfahrensschritte gelöst

- Einbringen einer ersten Ausgangsmischung in die Druckform und zumindest teilweise Wärmehärtung der Ausgangsmischung unter Druck zur Bildung einer ersten Schicht,
- Einbringen einer zweiten Ausgangsmischung auf die erste Schicht in die Druckform und zumindest teilweise Wärmehärtung der zweiten Ausgangsmischung unter Druck zur Bildung der zweiten Schicht und

- entsprechend auszubildender weiterer Schichten jeweils Einbringen einer Ausgangsmischung auf zuvor in der Druckform zumindest teilweise wärmegehärteter Schicht und zumindest teilweises Aushärten der jeweils eingebrachten Ausgangsmischung unter Druckeinwirkung.

Erfindungsgemäß wird eine einheitliche Platte hergestellt, die durch gezieltes Zuführen von Ausgangsmischungen und dem nacheinander folgenden Ausbilden der einzelnen Schichten gewünschte chemische bzw. physikalische Eigenschaften in ihren Endeseigenschaften erlangen. Dabei können aufgrund der individuellen Ausbildung der einzelnen Schichten diese aus gleichen Ausgangsmischungen bestehen, jedoch aufgrund voneinander abweichenden Druckeinwirkungen bzw. Temperaturen in ihren physikalischen Eigenschaften, insbesondere Porosität unterschiedlich eingestellt werden. So kann zum Beispiel eine Flachseite einer Platte porös und die andere Flachseite flüssigkeitsdicht ausgebildet sein, ohne dass unterschiedliche Ausgangsmischungen notwendig sind. Vielmehr kann die Porosität allein durch unterschiedliche Druckeinwirkungen eingestellt werden.

Mit anderen Worten können die unterschiedlichen Materialeigenschaften dadurch erreicht werden, dass der Pressform portionsweise eine Ausgangsmischung gleicher Zusammensetzung zugeführt wird und sodann nach dem Zuführen jeweiliger Portion der Pressvorgang durchgeführt wird, wobei unterschiedliche Portionen unterschiedlichen Pressparametern ausgesetzt werden können.

Insbesondere ist vorgesehen, dass zumindest eine Deckschicht der Platte durch zum Beispiel oxidierbare Nachbehandlung wie nasschemisch oder durch Corona- oder Plasmabehandlung hydrophil eingestellt wird.

Eine Platte der eingangs genannten Art zeichnet sich dadurch aus, dass diese aus aufeinander folgenden bei Druckeinwirkung zumindest teilweise wärmegehärteten Schichten besteht, die ihrerseits untereinander durch Wärme- und Druckeinwirkung bei Ausbilden jeweiliger Schicht verbunden sind.

Dabei kann die Platte in zumindest einer ihrer Flachseiten durch z.B. eingeformte Kanäle strukturiert sein, wobei die Flachseiten unterschiedlich porös ausgebildet sind. Selbstverständlich kann auch jede Flachseite der Platte strukturiert sein, wobei bei der Verwendung als Bipolarplatte eine Flachseite, und zwar die poröse Flachseite der Kathode und die dichtere Flachseite der Anode einer Membran-Elektroden-Anordnung (MEA) zugewandt sein können.

Nach einer Weiterbildung der Erfindung wird die poröse Kathodenseite mit üblichen Additiven bzw. Verfahren hydrophil eingestellt bzw. nachbehandelt. Wenn die Gasführungskanäle so angeordnet sind, dass Einlass und Auslass eng benachbart sind, kann Wasser von der wasserreichen Auslassseite durch das Porensystem zur trockenen Einlassseite penetrieren und die eintretende Luft befeuchten. Überschüssiges Wasser wird die Plattenoberfläche gut benetzen und als Film ausgetragen; ein Verschließen von Poren und Kanälen durch tropfenförmiges Wasser wird damit vermieden.

Je nach Membrandicke und den Betriebsbedingungen reicht die kathodenseitige Befeuchtung der Membran aus, um den optimalen Wassergehalt sicherzustellen; ggf. muss aber das anodenseitige Brenngas vor dem Eintritt in die Brennstoffzelle noch leicht befeuchtet werden.

Die Kombination einer porösen Oberflächenschicht mit fein strukturierten Kanälen kann insbesondere auf der Anodenseite den Einsatz einer Gasdiffusionsschicht erübrigen. Das Brenngas kann über die poröse Struktur der Stege zwischen den Kanälen die Katalysatorschicht auf der Membran vollflächig erreichen. Durch den Verzicht auf eine Gasdiffusionsschicht sind geringere Übergangswiderstände, d. h. geringere ohmsche Verluste und damit ein besserer Wirkungsgrad erreichbar.

Ferner besteht die Möglichkeit, dass die Deckschicht der Platte zumindest ein hydrophiles Additiv wie Kieselgel enthält.

Weitere Einzelheiten, Vorteile und Merkmale der Erfindung ergeben sich nicht nur aus den Ansprüchen, den diesen zu entnehmenden Merkmalen - für sich und/oder in Kombination -, sondern auch aus der nachfolgenden Beschreibung von Ausführungsbeispielen.

Beispiel 1

Zur Herstellung einer Kunststoff-Füll-Mischung bestimmt für eine Bipolarplatte wurden als Mischungsbestandteile 850 g Graphit einer Fraktion 0 bis 200 µm und 150g Phenolharz in einen Mischer bei einer Temperatur von 80° über einen Zeitraum von 10 min vermischt. Nach dem Austragen der Mischung aus dem Mischer und Erstarren dieser wurde die Masse einer Mühle zugeführt, um Mahlgut einer Fraktion kleiner 1 mm zu gewinnen. Eine vorher abgewogene und volumetrisch dosierte Masse der Mischung wird sodann in eine Pressform (Gesenk) eines Heißpresswerkzeuges gefüllt, um sodann durch axiales, also vertikales Bewegen des Oberstempels die Presse zu schließen. Nach Aufsetzen des Oberstempels auf die Masse beginnt deren Erweichen, Verdichten und Aushärten in Folge der Berührung der Pressmasse mit den heißen Stempelwandungen. Dabei wird eine erste abgewogene und volumetrisch dosierte Masse einem Druck von 50 MPa ausgesetzt. Hierdurch wird die Masse nahezu porenfrei verdichtet. Nach dem Aushärten der Masse wird der Pressstempel zurückgezogen, um eine zweite abgewogene und volumetrisch dosierte Masse in das Gesenk einzufüllen. Sodann wird erneut ein Pressvorgang durchgeführt, wobei jedoch der Druck geändert wurde auf 5 MPa. Hierdurch bedingt weist die durch die zweite abgewogene volumetrisch dosierte Masse gebildete Schicht ein Porenvolumen von 25 % auf. Durch den hydrophilen Charakter von Phenolharz wird die Platte durch Wasser gut benetzt.

Beispiel 2

Zur Herstellung einer Kunststoff-Füll-Mischung bestimmt für eine Bipolarplatte wurden als Mischungsbestandteile 950 g Graphit einer Fraktion 5 bis 100 µm und 50g Phenolharz in einen Mischer bei einer Temperatur von 80° über einen Zeitraum von 10 min vermischt. Nach dem Austragen der Mischung aus dem Mischer und Erstarren dieser wurde die Mas-

se einer Mühle zugeführt, um Mahlgut einer Fraktion kleiner 1 mm zu gewinnen. Eine vorher abgewogene und volumetrisch dosierte Masse der Mischung wird sodann in eine Pressform (Gesenk) eines Heißpresswerkzeuges gefüllt, um sodann durch axiales, also vertikales Bewegen des Oberstempels die Presse zu schließen. Nach Aufsetzen des Oberstempels auf die Masse beginnt deren Erweichen, Verdichten und Aushärten in Folge der Berührung der Pressmasse mit den heißen Stempelwandungen. Dabei wird eine erste abgewogene und volumetrisch dosierte Masse einem Druck von 50 MPa ausgesetzt. Hierdurch wird die Masse nahezu porenfrei verdichtet. Nach dem Aushärten der Masse wird der Pressstempel zurückgezogen, um eine zweite abgewogene und volumetrisch dosierte Masse in das Gesenk einzufüllen. Sodann wird erneut ein Pressvorgang durchgeführt, wobei jedoch der Druck geändert wurde auf 25 MPa. Hierdurch bedingt weist die durch die zweite abgewogene volumetrisch dosierte Masse gebildete Deckschicht ein Porenvolumen von 15 - 20 % auf.

Durch den geringen Bindemittelgehalt bleibt auch bei dem höheren Pressdruck ein relativ hohes Porenvolumen enthalten. Die bessere Kontaktierung der Graphitpartikel in der porösen Schicht führt zu einem geringeren elektrischen Widerstand der Mehrschichtplatte.

Beispiel 3

Zur Herstellung einer Kunststoff-Füll-Mischung bestimmt für eine Bipolarplatte wurden als Mischungsbestandteile 850 g Graphit einer Fraktion 0 bis 200 µm und 150g Epoxidharz in einen Mischer bei einer Temperatur von 80° über einen Zeitraum von 10 min vermischt. Nach dem Austragen der Mischung aus dem Mischer und Erstarren dieser wurde die Masse einer Mühle zugeführt, um Mahlgut einer Fraktion kleiner 1 mm zu gewinnen. Eine vorher abgewogene und volumetrisch dosierte Masse der Mischung wird sodann in eine Pressform (Gesenk) eines Heißpresswerkzeuges gefüllt, um durch axiales, also vertikales Bewegen des Oberstempels die Presse zu schließen. Nach Aufsetzen des Oberstempels auf die Masse beginnt deren Erweichen, Verdichten und Aushärten in Folge der Berührung der Pressmasse mit den heißen Stempelwandungen. Dabei wird eine erste abgewogene und volumetrisch dosierte Masse einem Druck von 50 MPa ausgesetzt. Hierdurch

wird die Masse nahezu porenfrei verdichtet. Nach dem Aushärten der Masse wird der Pressstempel zurückgezogen, um eine zweite abgewogene und volumetrisch dosierte Masse in das Gesenk einzufüllen. Sodann wird erneut ein Pressvorgang durchgeführt, wobei jedoch der Druck geändert wurde auf 5 MPa. Hierdurch bedingt weist die durch die zweite abgewogene volumetrisch dosierte Masse gebildete Schicht ein Porenvolumen von 25 % auf.

Beispiel 4

Zur Herstellung einer Kunststoff-Füll-Mischung bestimmt für eine Bipolarplatte wurden als Mischungsbestandteile 850 g Graphit einer Fraktion 0 bis 200 µm und 150g Epoxidharz in einen Mischer bei einer Temperatur von 80° über einen Zeitraum von 10 min vermischt. Nach dem Austragen der Mischung aus dem Mischer und Erstarren dieser wurde die Masse einer Mühle zugeführt, um Mahlgut einer Fraktion kleiner 1 mm zu gewinnen. Eine vorher abgewogene und volumetrisch dosierte Masse der Mischung wird in eine Pressform (Gesenk) eines Heißpresswerkzeuges gefüllt, um sodann durch axiales, also vertikales Bewegen des Oberstempels die Presse zu schließen. Nach Aufsetzen des Oberstempels auf die Masse beginnt deren Erweichen, Verdichten und Aushärten in Folge der Berührung der Pressmasse mit den heißen Stempelwandungen. Dabei wird eine erste abgewogene und volumetrisch dosierte Masse einem Druck von 50 MPa ausgesetzt. Hierdurch wird die Masse nahezu porenfrei verdichtet. Nach dem Aushärten der Masse wird der Pressstempel zurückgezogen, um eine zweite abgewogene und volumetrisch dosierte Masse in das Gesenk einzufüllen. Sodann wird erneut ein Pressvorgang durchgeführt, wobei jedoch der Druck geändert wurde auf 25 MPa. Hierdurch bedingt weist die durch die zweite abgewogene volumetrisch dosierte Masse gebildete Schicht ein Porenvolumen von 15 - 20 % auf.

Durch den geringen Bindemittelgehalt bleibt auch bei dem höheren Pressdruck ein relativ hohes Porenvolumen enthalten. Die bessere Kontaktierung der Graphitpartikel in der porösen Schicht führt zu einem geringeren elektrischen Widerstand der Mehrschichtplatte.

Durch die Verwendung von Epoxidharz bei den Beispielen 3 und 4 sind die Platten nach der Formgebung hydrophob. Eine hydrophile Einstellung ist durch oxidierende Nachbehandlung (nasschemische oder durch Corona- oder Plasmabehandlung) möglich.

Die Erfindung wird auch nachstehend von an Hand von der Zeichnung zu entnehmenden Ausführungsbeispielen erläutert, aus denen sich weitere die Erfindung prägende Merkmale ergeben.

Es zeigen:

Fig. 1 eine auseinandergezogene perspektivische Ansicht eines Abschnitts einer Brennstoffzelle,

Fig. 2 eine Prinzipdarstellung eines Presswerkzeugs und

Fig. 3 eine Prinzipdarstellung einer Ausführungsform einer Bipolarplatte.

In Fig. 1 ist rein prinzipiell und in auseinandergezogener Darstellung ein Ausschnitt einer Brennstoffzelle dargestellt, wobei eine Membran-Elektroden-Anordnung (MEA) 10 zwischen zwei Bipolarplatten 12, 14 angeordnet ist. Dabei weist im Ausführungsbeispiel die Bipolarplatte 12 einen homogenen Aufbau mit in jedem Bereich gleichen Eigenschaften auf, wohingegen die Bipolarplatte 14 aus Bereichen 16, 18 besteht, die unterschiedliche Eigenschaften aufweisen. So kann der Bereich 16 poröser als der Bereich 18 sein.

Unabhängig hiervon bestehen die Bipolarplatten 12, 14 aus einem wärmeaushärtbaren und/oder thermoplastischen Kunststoff mit Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von insbesondere 70 Gew % bis 95 Gew%. Insoweit wird jedoch auf hinlänglich bekannte Techniken verwiesen. Auch sollten die Bipolarplatten 12, 14 zumindest auf der der Membran-Elektroden-Anordnung 10 zugewandten Fläche 20 vorzugsweise mäanderförmig verlaufende Kanäle 92, die gegebenenfalls in Sektionen unterteilt sind, aufweisen, durch die ein Reaktand - anodenseitig Wasserstoff oder Methan und kathodenseitig Luft oder Sauerstoff - strömen kann.

Die Membran-Elektroden-Anordnung 10 umfasst eine für Kationen permeable Membran 24, entlang deren Flächen eine Rußschicht mit einem Edelmetallkatalysator wie Platin oder Palladium als Anode 26 bzw. Kathode 28 angeordnet sind. Anode 26 und Kathode 28 sind ihrerseits von jeweils einer Gasdiffusionsschicht 30, 32 abgedeckt, die bei zusammengesetzter Einheit bestehend aus den Bipolarplatten 12, 14 und der Membran-Elektroden-Anordnung 10 die Kanäle 22 der Bipolarplatten 12, 14 vollständig abdecken, gleichzeitig jedoch die Möglichkeit bieten, dass in den Kanälen 22 strömende Reaktanden sich über die gesamten Elektrodenflächen 26, 28 verteilen können, damit die gewünschte chemische Reaktion mit hohem Wirkungsgrad ablaufen kann.

Entsprechend der erfindungsgemäßen Lehre können die Bipolarplatten aus Abschnitten unterschiedlicher Materialzusammensetzungen bzw. voneinander abweichenden chemischen oder physikalischen Eigenschaften bestehen.

In Fig. 3 ist beispielhaft eine Bipolarplatte 34 dargestellt, die aus einem quaderförmigen Trägerkörper 36 und auf diesem vorhandene eine durch Kanäle 38, 40, 42, 44, 46 gebildete Struktur aufweisende Schicht 48 besteht, wobei die Schicht 48 eine größere Porösität als die Basisplatte 36 aufweist. Die Basisplatte 36 und die Schicht 48 sind jedoch nicht getrennt hergestellte Abschnitte der Bipolarplatte 34, sondern sind sukzessiv in einem Presswerkzeug 50 (Fig. 2) hergestellt, bei dem es sich um ein Heißpresswerkzeug handeln kann.

Das Presswerkzeug 50 umfasst eine Pressform oder ein Gesenk 52 mit einem eine Geometrie einer herzustellenden Platte vorgebenden Innenraum 54 sowie einen in diesem axial verstellbaren Pressstempel 56.

Zur Ausbildung von Schichten entsprechend denen der Fig. 3 mit unterschiedlichen Materialeigenschaften und/oder physikalischen bzw. chemischen Eigenschaften werden in das Gesenk, d.h. dessen Innenraum 54 Schichten 58, 60, 62 nacheinander eingefüllt, wobei nach Einbringen einer jeden Schicht auf diese der Pressstempel 56 zum Ausformen einwirkt. Dabei können die Pressparameter des Pressstempels 56 unterschiedlich eingestellt

werden, um so z. B. die Porösität der einzelnen Schichten 58, 60, 62 unterschiedlich einzustellen. Somit kann bei gleicher Ausgangsmischung eine Platte hergestellt werden, die schichtweise unterschiedliche Materialeigenschaften wie Porösität aufweist. Selbstverständlich können die einzelnen Schichten auch unterschiedliche Materialzusammensetzungen zeigen.

Beispielhaft weist die Schicht 58 eine Zusammensetzung 95 % Graphit einer Fraktion von 50 bis 100 μm und 5 % Phenolharz, die Schicht 60 und 62 eine Zusammensetzung 85 % Graphit einer Fraktion von 0 bis 200 μm und 15 % Phenolharz auf. Nach Einbringen einer jeweiligen Schicht wirkt der Presszylinder 56 mit einem Druck von 25 MPa bzw. 50 MPa bzw. 5 MPa ein. Die Schichten 58, 60, 62 einer so hergestellten Bipolarplatte weisen folgende physikalische Eigenschaften auf:

	<u>Rohdichte</u>	<u>Porösität</u>	<u>mittlere Porengröße</u>
62	1,55 g/cm ³	21,5 %	2,0 μm
60	1,95 g/cm ³	0,0 %	./.
58	1,75 g/cm ³	15,0 %	1,5 μm .

Die poröse Struktur ermöglicht z. B. bei einer Bipolarplatte einen problemlosen Wassertransport, so dass nicht die Gefahr besteht, dass Kanäle durch Wassertropfen versperrt werden.

Patentansprüche

Verfahren zur Herstellung einer Platte sowie Platte

1. Verfahren zum Herstellen einer Platte (12, 14, 34), bestehend aus zumindest zwei Schichten (36, 48, 58, 60, 62) unterschiedlicher Zusammensetzung und/oder unterschiedlicher chemischer und/oder physikalischer Eigenschaften, insbesondere bestimmt für eine Brennstoffzelle, wobei als zumindest eine Ausgangsmischung zur Ausbildung einer Schicht ein wärmeaushärtbarer und/oder thermoplastischer Kunststoff mit Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von vorzugsweise 70 Gew.% bis 95 Gew.% verwendet wird, und wobei die Ausgangsmischungen in eine Pressform eingebracht und unter Druck zumindest teilweise, vorzugsweise vollständig wärmegehärtet werden,
gekennzeichnet durch die Verfahrensschritte
 - Einbringen einer ersten Ausgangsmischung in die Druckform und zumindest teilweise Wärmehärtung der Ausgangsmischung unter Druck zur Bildung einer ersten Schicht,
 - Einbringen einer zweiten Ausgangsmischung auf die erste Schicht in die Druckform und zumindest teilweise Wärmehärtung der zweiten Ausgangsmischung unter Druck zur Bildung der zweiten Schicht und
 - entsprechend auszubildender weiterer Schichten jeweils Einbringen einer Ausgangsmischung auf zuvor in der Druckform zumindest teilweise wärmegehärteter Schicht und zumindest teilweises Aushärten der jeweils eingebrachten Ausgangsmischung unter Druckeinwirkung.

2. Verfahren nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
dass für unterschiedliche Schichten gleiche Ausgangsmischungen verwendet werden.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet,
dass gleiche und/oder unterschiedliche Ausgangsmischungen unterschiedlichen Druckparametern und/oder unterschiedlichen Temperaturen ausgesetzt werden.
4. Verfahren nach zumindest einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass zumindest eine Deckschicht (48) der Platte durch zum Beispiel oxidierbare Nachbehandlung wie nasschemisch oder durch Corona- oder Plasmabehandlung hydrophil eingestellt wird.
5. Verfahren nach zumindest einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass Porosität einer Schicht durch auf die entsprechende Ausgangsmischung einwirkende Druck bzw. Temperatur eingestellt wird.
6. Verfahren nach zumindest einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass zur Erzielung von voneinander abweichender Porosität von Schichten gleicher Ausgangsmischung diese unterschiedlichen Drucken und/oder Temperaturen ausgesetzt werden.
7. Platte (12, 14, 34), insbesondere Bipolarplatte bestimmt für eine Brennstoffzelle oder Separatorplatte oder Elektrodenplatte, bestehend aus mehreren Schichten unterschiedlicher chemischer und/oder physikalischer Eigenschaften, wobei die Schichten aus gleichen oder unterschiedlichen Ausgangsmischungen bestehen, wobei zumindest eine Schicht aus wärmeaushärtbarem und/oder thermoplastischem Kunststoff und einem Kohlenstoff-Füllstoff mit einem Füllstoffanteil von vorzugsweise 70 Gew% bis 95 Gew% besteht,

dadurch gekennzeichnet,
dass die Platte (12, 14, 34) aus aufeinanderfolgenden bei Druckeinwirkung zumindest teilweise wärmegehärteten Schichten (12, 14, 34) besteht, die ihrerseits untereinander durch Wärme- und Druckeinwirkung bei Ausbilden jeweiliger Schicht verbunden sind.

8. Platte nach Anspruch 7,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Platte (14, 34) in zumindest einer ihrer Flachseiten durch zum Beispiel eingeförmte Kanäle (38, 40, 42, 44, 46) strukturiert ist und dass die Flachseiten unterschiedlich porös sind.
9. Platte nach Anspruch 7 oder 8,
dadurch gekennzeichnet,
dass die jeweilige Flachseite der Platte (34) strukturiert ist.
10. Platte nach zumindest einem der Ansprüche 7 bis 9,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Deckschicht (48) der Platte (34) zumindest ein hydrophiles Additiv wie Kieselgel enthält.
11. Platte nach zumindest einem der Ansprüche 7 bis 10,
dadurch gekennzeichnet,
dass zumindest eine Deckschicht (48), vorzugsweise sämtliche Deckschichten der Platte (34) hydrophil eingestellt sind.

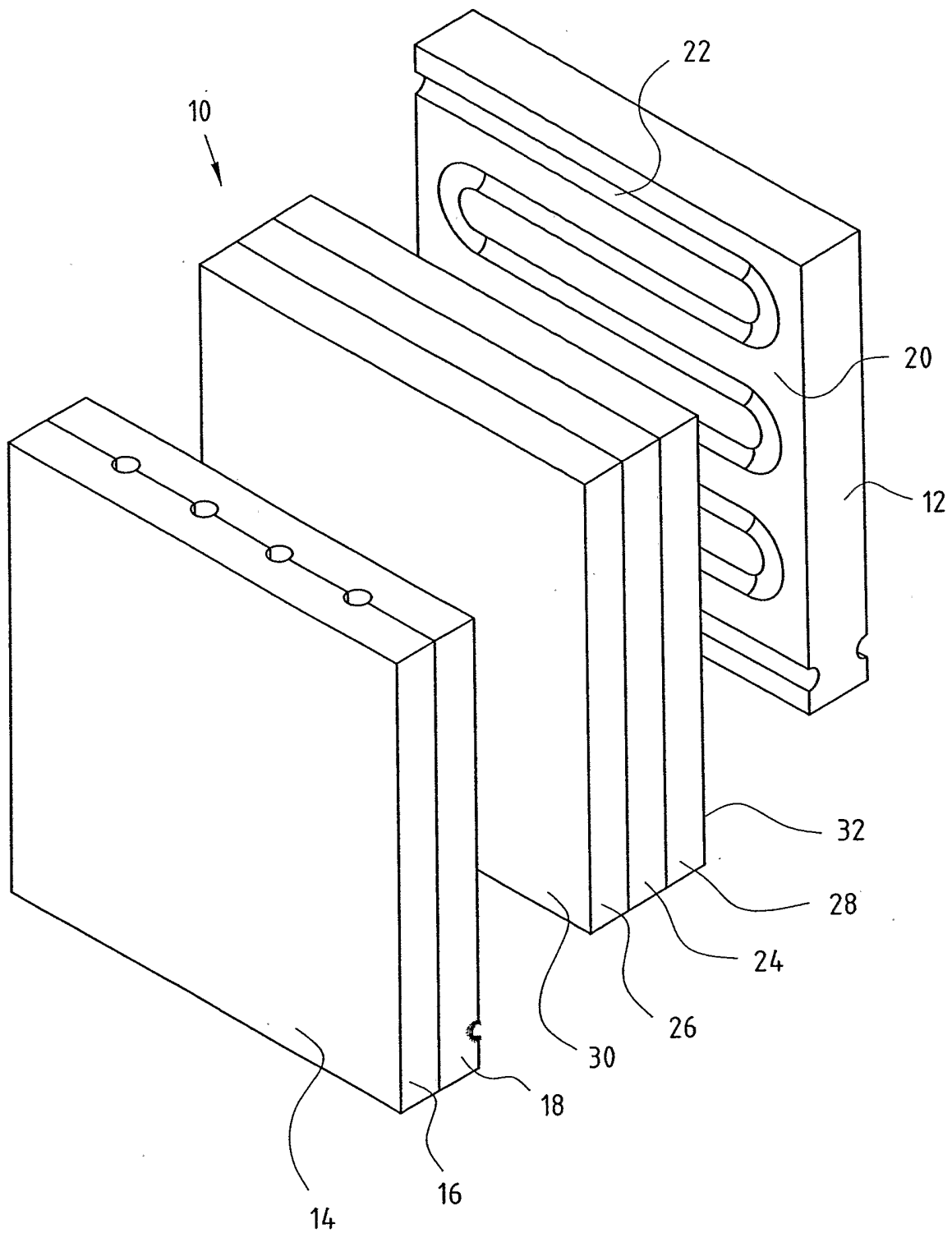


Fig.1

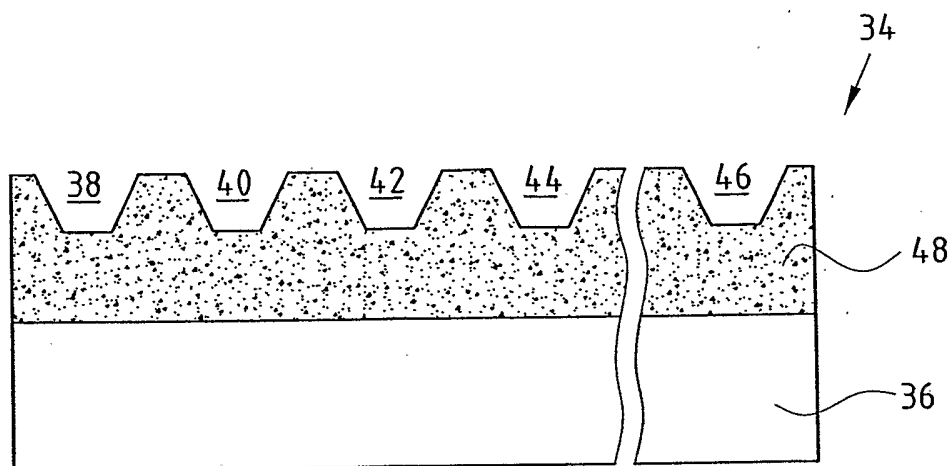


Fig. 3

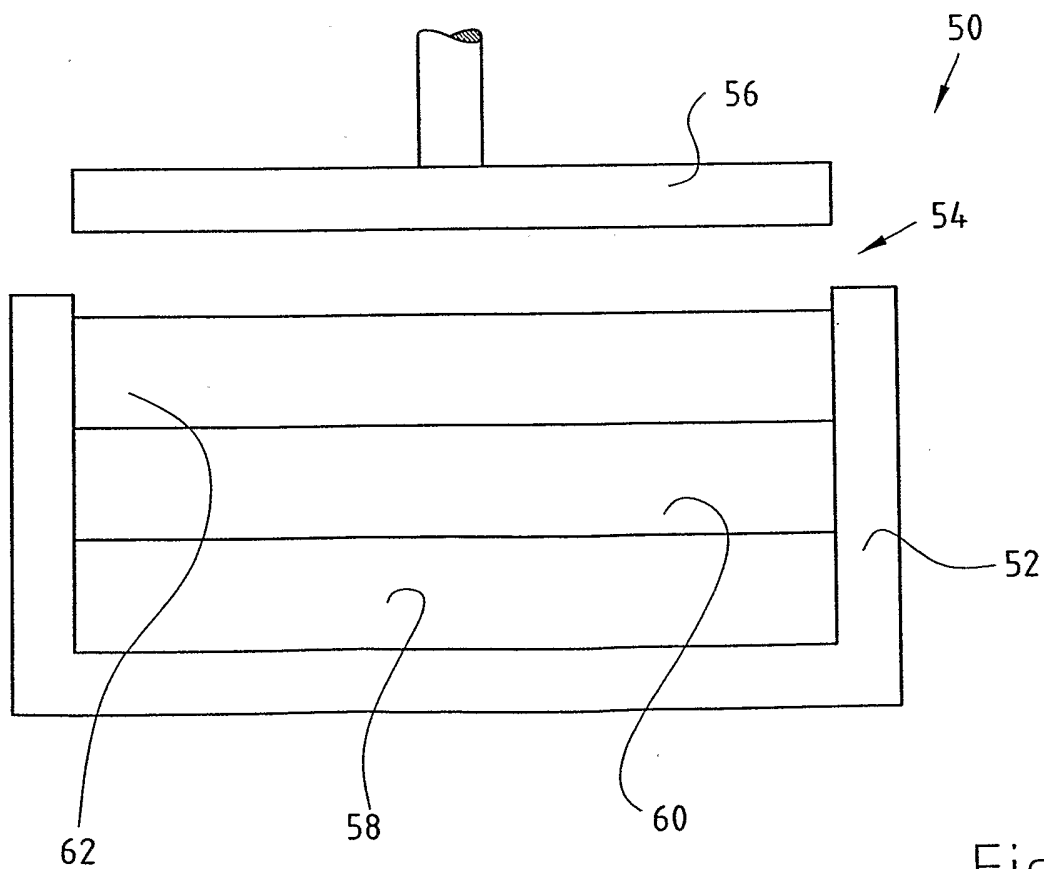


Fig.2