



(10) **DE 11 2005 001 131 B4** 2018.05.17

(12)

## Patentschrift

(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2005 001 131.3**  
 (86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US2005/014071**  
 (87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2005/117173**  
 (86) PCT-Anmeldetag: **25.04.2005**  
 (87) PCT-Veröffentlichungstag: **08.12.2005**  
 (43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung  
 in deutscher Übersetzung: **07.08.2008**  
 (45) Veröffentlichungstag  
 der Patenterteilung: **17.05.2018**

(51) Int Cl.: **H01M 8/0202 (2016.01)**  
**H01M 8/023 (2016.01)**  
**H01M 8/0232 (2016.01)**  
**H01M 8/0234 (2016.01)**  
**H01M 8/0241 (2016.01)**  
**H01M 8/0243 (2016.01)**  
**H01M 8/0245 (2016.01)**

Innerhalb von neun Monaten nach Veröffentlichung der Patenterteilung kann nach § 59 Patentgesetz gegen das Patent Einspruch erhoben werden. Der Einspruch ist schriftlich zu erklären und zu begründen. Innerhalb der Einspruchsfrist ist eine Einspruchsgebühr in Höhe von 200 Euro zu entrichten (§ 6 Patentkostengesetz in Verbindung mit der Anlage zu § 2 Abs. 1 Patentkostengesetz).

(30) Unionspriorität:  
**10/850,550**                      **20.05.2004**      **US**

(73) Patentinhaber:  
**General Motors Corp., Detroit, Mich., US**

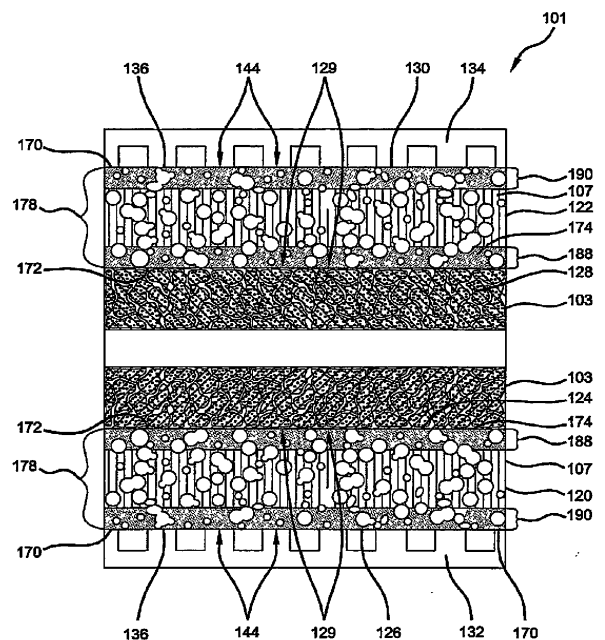
(74) Vertreter:  
**Manitz Finsterwald Patentanwälte PartmbB, 80336 München, DE**

(72) Erfinder:  
**Mikhail, Youssef M., Sterling Heights, Mich., US;**  
**Vyas, Gayatri, Rochester Hills, Mich., US**

(56) Ermittelter Stand der Technik:  
**EP**                                      **1 096 587**      **A1**  
**WO**                                      **2003/ 105 254**      **A1**

(54) Bezeichnung: **Brennstoffzellenanordnung**

(57) Zusammenfassung: Ein elektrisch leitendes Fluidverteilungselement zur Verwendung in einer Brennstoffzelle weist ein leitendes nichtmetallisches poröses Medium auf, das eine Fläche besitzt, wobei ein elektrisch leitendes Metall entlang einem oder mehrerer metallisierter Gebiete abgeschieden ist. Die metallisierten Gebiete sind so angeordnet, dass sie mit einer Membranelektrodenanordnung (MEA) in einer Brennstoffzellenanordnung in Kontakt stehen, und verbessern somit eine elektrische Leitung an Kontaktgebieten zwischen der MEA und den Fluidverteilungsmedien.



**Beschreibung**

## GEBIET DER ERFINDUNG

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft eine Brennstoffzellenanordnung.

## HINTERGRUND DER ERFINDUNG

**[0002]** Brennstoffzellen sind als eine Energiequelle für Elektrofahrzeuge und andere Anwendungen vorgeschlagen worden. Eine bekannte Brennstoffzelle ist die PEM-(d.h. Protonenaustauschmembran-) Brennstoffzelle, die eine so genannte MEA („Membranelektrodenanordnung“) mit einem dünnen Festpolymermembranelektrolyt aufweist, der eine Anode auf einer Seitenfläche und eine Kathode auf der entgegengesetzten Seitenfläche besitzt. Die Anode und Kathode umfassen typischerweise fein geteilte Kohlenstoffpartikel, sehr fein geteilte katalytische Partikel, die an den Innen- und Außenflächen der Kohlenstoffpartikel getragen sind, und protonenleitendes Material, das mit den katalytischen Partikeln und Kohlenstoffpartikeln vermischt ist. Die MEA ist schichtartig zwischen Gasdiffusionsmediumschichten und einem Paar elektrisch leitender Kontaktelemente angeordnet, die als Stromkollektoren für die Anode und Kathode dienen, die geeignete Kanäle und Öffnungen darin zur Verteilung der gasförmigen Reaktanden (d.h.  $H_2$  und  $O_2$ /Luft) der Brennstoffzelle über die Flächen der jeweiligen Anode und Kathode enthalten.

**[0003]** Bipolare PEM-Brennstoffzellenstapel umfassen eine Vielzahl der MEAs, die in elektrischer Reihe aneinander gestapelt sind, während sie voneinander durch derartige Stromkollektorkontaktelemente getrennt sind, die ferner impermeable Separatorelemente sind, die als Bipolarplatten bekannt sind. Die Bipolarplatte besitzt zwei Arbeitsflächen, wobei eine der Anode einer Zelle gegenüberliegt und die andere der Kathode an der nächsten benachbarten Zelle in dem Stapel gegenüberliegt, und leitet elektrisch Strom zwischen den benachbarten Zellen. Kontaktelemente an den Enden des Stapels stehen nur mit den Endzellen in Kontakt und werden als Endplatten bezeichnet.

**[0004]** Elektrische Kontaktelemente werden oftmals aus elektrisch leitenden Metallmaterialien hergestellt. In einer  $H_2$ - und  $O_2$ /Luft-PEM-Brennstoffzellenumgebung stehen die Bipolarplatten und anderen Kontaktelemente (beispielsweise Endplatten) in ständigem Kontakt mit stark sauren Lösungen (pH 3-5) und arbeiten in einer stark oxidierenden Umgebung, die auf ein Maximum von etwa +1V (gegenüber der Normalwasserstoffelektrode) polarisiert ist. An der Kathodenseite sind die Kontaktelemente Druckluft ausgesetzt und an der Anodenseite überatmosphärischem Wasserstoff ausgesetzt. Unglücklicherweise sind viele Metalle anfällig gegenüber Korrosion in der rau-

en PEM-Brennstoffzellenumgebung, und Kontaktelemente, die daraus hergestellt sind, lösen sich entweder (beispielsweise in dem Fall von Aluminium) oder bilden passivierende Oxidfilme mit hohem elektrischem Widerstand an ihrer Fläche (beispielsweise in dem Fall von Titan oder rostfreiem Stahl), die den Innenwiderstand der Brennstoffzelle erhöhen und deren Leistungsfähigkeit reduzieren. Ferner ist die Beibehaltung der elektrischen Leitfähigkeit durch das Gasdiffusionsmedium zu den Kontaktelementen von großer Wichtigkeit bei der Beibehaltung des Flusses von elektrischem Strom von jeder Brennstoffzelle.

**[0005]** Aus der WO 03/105254 A1 ist eine Brennstoffzellenanordnung bekannt, bei der auf einer Membranelektrodenanordnung ein Kohlenstoff-Diffusionspapier angeordnet ist, auf dem eine Dichtung und schließlich eine Bipolarplatte angeordnet ist. Dabei kann die Bipolarplatte beispielsweise aus einem beidseitig mit Edelmetall beschichteten Titanblech bestehen, wobei auf den beiden Edelmetallschichten jeweils ein Schaum aus Metall oder aus Kohlenstoff angeordnet ist.

**[0006]** In der EP 1 096 587 A1 wird eine Brennstoffzellenanordnung beschrieben, welche eine Polymerelektrolytmembran, eine darauf angeordnete katalytische Reaktionsschicht und eine Gasdiffusionsschicht umfasst, wobei zwischen der katalytischen Reaktionsschicht und der Gasdiffusionsschicht in die Gasdiffusionsschicht penetrierende elektrisch leitende Partikel vorgesehen sind. Bei den elektrisch leitenden Partikeln kann es sich um Kohlenstoffpartikel, Metallpartikel oder dergleichen handeln.

**[0007]** Es besteht ein Bedarf, elektrisch leitende Elemente vorzusehen, die eine elektrische Leitfähigkeit beibehalten, die raue Umgebung der Brennstoffzelle aushalten und den Gesamtbetriebswirkungsgrad einer Brennstoffzelle verbessern.

## ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

**[0008]** Ein Aspekt der vorliegenden Erfindung betrifft eine Brennstoffzellenanordnung mit:

- einer Membranelektrodenanordnung (MEA), die eine elektrisch leitende Elektrode umfasst,
- einem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement und
- einem Fluidverteilungselement, wobei das Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, welche ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht

des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind.

**[0009]** Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine Brennstoffzellenanordnung mit:

- einer Membranelektrodenanordnung (MEA), die eine erste elektrisch leitende Elektrode und eine zweite und entgegengesetzt elektrisch leitende Elektrode umfasst,
- einem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement,
- einem ersten Fluidverteilungselement, wobei das erste Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind, und
- einem zweiten Fluidverteilungselement, wobei das zweite Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die der mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden

de Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind.

**[0010]** Weitere Anwendungsgebiete der vorliegenden Erfindung werden aus der nachfolgenden detaillierten Beschreibung offensichtlich.

#### Figurenliste

**[0011]** Die vorliegende Erfindung wird aus der detaillierten Beschreibung und den begleitenden Zeichnungen besser verständlich, in welchen:

**Fig. 1** eine schematische Explosionsdarstellung eines PEM-Brennstoffzellenstapels (es sind nur zwei Zellen gezeigt) ist;

**Fig. 2** eine Explosionsansicht eines beispielhaften elektrisch leitenden Fluidverteilungselements ist, das mit PEM-Brennstoffzellenstapeln verwendbar ist;

**Fig. 3** eine teilweise Schnittansicht in der Richtung von 3-3 von **Fig. 2** ist;

**Fig. 4** eine nicht maßstabsgetreue Seitenschnittansicht einer bevorzugten Ausführungsform einer Brennstoffzellenanordnung der vorliegenden Erfindung ist, bei der die metallisierten Gebiete der gesamten Fläche der Schicht des porösen Mediums, die zu einer Membranelektrodenanordnung (MEA) weist, entsprechen;

**Fig. 5** eine vergrößerte Ansicht eines Schnitts von **Fig. 4** ist;

**Fig. 6** eine nicht maßstabsgetreue Seitenschnittzeichnung ist, die eine alternative Ausführungsform gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt, die metallisierte Gebiete entlang der gesamten Fläche der Schicht des porösen Mediums, die zu einer MEA weist, und metallisierte Gebiete entlang einer gesamten Fläche des porösen Mediums, die zu Separatorplatten weist, umfasst;

**Fig. 7** eine nicht maßstabsgetreue detaillierte teilweise Seitenschnittansicht einer einzelnen Schicht aus porösem Medium benachbart einer MEA gemäß einer alternativen bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist, die metallisierte Gebiete entlang der gesamten

Fläche der Schicht des porösen Mediums, die zu einer MEA weist, und entlang einer Fläche des porösen Mediums, die zu Separatorplatten weist, aufweist, wobei die metallisierten Gebiete einzeln sind;

**Fig. 8** eine Darstellung einer Physical-Vapor-Deposition-Vorrichtung ist, die dazu verwendet wird, eine Fläche eines porösen Fluidverteilungsmediums mit einem elektrisch leitenden Metall zu metallisieren;

**Fig. 9** ein Diagramm ist, das eine Messung des Kontaktwiderstandes und der Spannung vergleicht, die durch eine Brennstoffzellenanordnung gemäß der vorliegenden Erfindung, die metallisierte Gebiete auf zwei entgegengesetzten Flächen einer Schicht aus porösem Medium (wobei eine Fläche zu einer MEA weist und eine gegenüberliegende Fläche zu Separatorplatten weist) aufweist, im Vergleich zu einer nicht beschichteten Platte aus 317L rostfreiem Stahl nach dem Stand der Technik erreicht wurden, die mit einem porösen Fluidverteilungsmedium nach dem Stand der Technik in Kontakt steht; und

**Fig. 10** ein Diagramm der Kontaktwiderstands- und Spannungswerte ist, die durch ein elektrisch leitendes Fluidverteilungselement gemäß der vorliegenden Erfindung erreicht wurden, wobei die relative Feuchte des Kathodeneinlasses variiert ist, um die Gesamtzellenleistungsfähigkeit zu demonstrieren.

#### DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORMEN

**[0012]** Die vorliegende Erfindung betrifft ein stromleitendes Brennstoffzellenelement und insbesondere ein verbessertes Fluidverteilungsmediumselement zur Verwendung in einer Brennstoffzelle. Zum besseren Verständnis der vorliegenden Erfindung ist hier ein kurzer Hintergrund vorgesehen. **Fig. 1** zeigt einen herkömmlichen zwei Zellen umfassenden bipolaren Brennstoffzellenstapel **2** mit einem Paar Membranelektrodenanordnungen (MEAs) **4** und **6**, die voneinander durch ein elektrisch leitendes Fluidverteilungselement **8** getrennt sind, nachfolgend der Bipolarplatte **8**. Die MEAs **4** und **6** und die Bipolarplatte **8** sind zwischen aus rostfreiem Stahl bestehenden Klemmplatten oder Endplatten **10** und **12** und Endkontaktelementen **14** und **16** aneinander gestapelt. Die Endkontaktelemente **14** und **16** wie auch beide Arbeitsseiten der Bipolarplatte **8** enthalten eine Vielzahl von Nuten oder Kanälen **18**, **20**, **22** bzw. **24** zur Verteilung von Brennstoff- und Oxidationsmittelgasen (d.h.  $H_2$  und  $O_2$ ) an die MEAs **4** und **6**. Nicht leitende Dichtungselemente **26**, **28**, **30** und **32** sehen Dichtungen wie auch eine elektrische Isolierung zwischen den verschiedenen Komponenten des Brennstoffzellenstapels vor. Gaspermeable leitende Mate-

rialien sind typischerweise Kohlenstoff/Graphitdiffusionspapiere **34**, **36**, **38** und **40**, die gegen die Elektrodenflächen der MEAs **4** und **6** gepresst werden. Die Endkontaktelemente **14** und **16** werden gegen die Kohlenstoff/Graphitpapiere **34** bzw. **40** gepresst, während die Bipolarplatte **8** gegen das Kohlenstoff/Graphitpapier **36** auf der Anodenseite der MEA **4** und gegen das Kohlenstoff/Graphitpapier **38** auf der Kathodenseite der MEA **6** gepresst wird. Sauerstoff wird an die Kathodenseite des Brennstoffzellenstapels von einem Speichertank **46** über eine geeignete Versorgungsverrohrung **42** geliefert, während Wasserstoff an die Anodenseite der Brennstoffzelle von einem Speichertank **48** über eine geeignete Versorgungsverrohrung **44** geliefert wird. Alternativ dazu kann Umgebungsluft unter Verwendung eines Kompressors oder Gebläses an die Kathodenseite als eine Sauerstoffquelle und Wasserstoff an die Anode von einem Methanol- oder Benzinreformer oder dergleichen geliefert werden. Es ist auch eine Austragsverrohrung (nicht gezeigt) für sowohl die  $H_2$ - als auch  $O_2$ -Seiten der MEAs **4** und **6** vorgesehen. Eine zusätzliche Verrohrung **50**, **52** und **54** ist zur Lieferung von flüssigem Kühlmittel an die Bipolarplatte **8** und die Endplatten **14** und **16** vorgesehen. Es ist auch eine geeignete Verrohrung zum Austrag von Kühlmittel von der Bipolarplatte **8** und den Endplatten **14** und **16** vorgesehen, jedoch nicht gezeigt.

**[0013]** **Fig. 2** ist eine Explosionsdarstellung einer beispielhaften Bipolarplatte **56**, die gemäß einer ersten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung verwendet werden kann. Die Bipolarplatte **56** umfasst eine erste Außenmetalltafel **58**, eine zweite Außenmetalltafel **60** und eine Innenabstandshaltermetalltafel **62**, die zwischen der ersten Metalltafel **58** und der zweiten Metalltafel **60** angeordnet ist. Die Außenmetalltafeln **58** und **60** sind so dünn wie möglich ausgebildet und können durch Prägen oder durch einen beliebigen anderen herkömmlichen Prozess zum Formen von Blech geformt werden. Die Außentafel **58** besitzt eine erste Arbeitsseitenfläche **59** an ihrer Außenseite, die einer Membranelektrodenanordnung (nicht gezeigt) gegenüberliegt und so ausgebildet ist, dass sie ein Strömungsfeld **57** vorsieht. Das Strömungsfeld **57** ist durch eine Vielzahl von Stegen **64** definiert, die dazwischen eine Vielzahl von Nuten **66** definieren, die das „Strömungsfeld“ bilden, durch das die Reaktandengase (d.h.  $H_2$  oder  $O_2$ ) der Brennstoffzelle in einem gewundenen Pfad von einer Seite **68** der Bipolarplatte zu ihrer anderen Seite **70** strömen. Wenn die Brennstoffzelle vollständig zusammengebaut ist, werden die Stege **64** gegen die aus porösem Material bestehenden Kohlenstoff/Graphitpapiere **36** oder **38** gepresst, die ihrerseits gegen die MEAs **4** und **6** gepresst werden. Der Einfachheit halber zeigt **Fig. 2** nur zwei Gruppierungen aus Stegen und Nuten. In der Realität bedecken die Stege und Nuten die gesamten Außenseitenflächen der Metalltafeln **58** und **60**, die mit den Kohlenstoff/Graphitpapieren **36**

und **38** in Eingriff stehen. Das Reaktandengas wird an Nuten **66** von einem Verteiler **72** geliefert, der entlang einer Seite **68** der Brennstoffzelle liegt, und verlässt die Nuten **66** über einen anderen Verteiler **74**, der benachbart der gegenüberliegenden Seite **70** der Brennstoffzelle liegt.

**[0014]** Wie am besten in **Fig. 3** gezeigt ist, umfasst die Unterseite der Tafel **58** eine Vielzahl von Rippen **76**, die dazwischen eine Vielzahl von Kanälen **78** definieren, durch die ein Kühlmittel während des Betriebs der Brennstoffzelle strömt. Wie in **Fig. 3** gezeigt ist, liegt der Kühlmittelkanal **78** unter jedem Steg **64**, während eine Reaktandengasnut **66** unter jeder Rippe **76** liegt. Alternativ dazu kann die Tafel **58** flach sein und das Strömungsfeld in einer separaten Materialtafel ausgebildet sein. Die Metalltafel **60** ist ähnlich der Tafel **58**. Die Innenfläche **61** der Tafel **60** ist in **Fig. 2** gezeigt. Diesbezüglich ist eine Vielzahl von Rippen **80** gezeigt, die dazwischen eine Vielzahl von Kanälen **82** definieren, durch die Kühlmittel von einer Seite **69** der Bipolarplatte zu der anderen **71** strömt. Ähnlich der Tafel **58**, und wie am besten in **Fig. 3** zu sehen ist, besitzt die Außenseite der Tafel **60** eine Arbeitsseitenfläche **63**. Die Tafel **60** ist so ausgebildet, dass ein zweites Strömungsfeld **65** vorgesehen wird. Das zweite Strömungsfeld **65** ist durch eine Vielzahl von Stegen **84** darauf definiert, die eine Vielzahl von Nuten **86** definieren, die das zweite Strömungsfeld **65** bilden, durch das die Reaktandengase strömen.

**[0015]** Eine Innenmetallabstandshaltertafel **62** ist zwischen den Außentafeln **58** und **60** positioniert und weist eine Vielzahl von Öffnungen **88** darin auf, um zuzulassen, dass Kühlmittel zwischen den Kanälen **82** in der Tafel **60** und den Kanälen **78** in der Tafel **58** strömen kann, wodurch laminare Grenzschichten aufgebrochen werden und eine Turbulenz bewirkt wird, die einen Wärmeaustausch mit den Innenseitenflächen **90** und **92** der Außentafeln **58** bzw. **60** steigert. Somit bilden die Kanäle **78** und **82** jeweilige Kühlmittelströmungsfelder an dem Innenvolumen, das durch die Tafeln **58** und **60** definiert ist. Alternative Ausführungsformen (nicht gezeigt) umfassen zwei geprägte Platten, die durch einen Fügeprozess miteinander verbunden sind, um innere Kühlmittelströmungsfelder zu bilden.

**[0016]** In **Fig. 4** umfasst eine Brennstoffzelle **99** eine Membranelektrodenanordnung (MEA) **100** ähnlich zu **6** von **Fig. 1**. Die MEA **100** umfasst eine Membran **102**, die schichtartig zwischen zwei Elektroden **103** angeordnet ist. Eine Elektrode **103** ist eine Anode **104**, und die entgegengesetzte Elektrode ist eine Kathode **106**, die jeweils durch elektrisch leitendes Material eingegrenzt sind, das als „Diffusionsmedium“ oder poröses Fluidverteilungsmedium **107** bekannt ist, dessen Funktion analog zu **38** und **40** von **Fig. 1** ist. Die Membran **102** sorgt für einen Ionentransport, um eine Reaktion in der Brennstoffzelle **99**

zu erleichtern, und ist in der Technik gut als ein ionenleitendes Material bekannt. Die Elektroden **103** sehen einen Protonentransfer durch engen Kontakt zwischen jeder Elektrode **104**, **106** und der Ionemembran **102** vor, um einen im Wesentlichen kontinuierlichen Polymerkontakt für einen derartigen Protonentransfer vorzusehen. Die Elektroden **103** sind bevorzugt gut an die Membran **102** angehaftet.

**[0017]** Bei der vorliegenden Ausführungsform, die gezeigt ist, sind zwei Fluidverteilungsmediumsschichten **107** an jeder Seite der MEA **100** vorgesehen. Eine erste Fluidverteilungsmediumsschicht **120** liegt der Anode **104** gegenüber, und eine zweite Fluidverteilungsmediumsschicht **122** liegt der Kathode **106** gegenüber. Die erste Fluidverteilungsmediumsschicht **120** umfasst eine erste Fläche **124** und eine zweite Fläche **126**, die der ersten Fläche **124** gegenüberliegt. Die zweite Fluidverteilungsmediumsschicht **122** umfasst ähnlicherweise eine dritte Fläche **128** und eine entgegengesetzte vierte Fläche **130**. Die erste Fluidverteilungsschicht **120** befindet sich benachbart der MEA **100**, wobei die erste Fläche **124** der ersten Mediumsschicht **120** der Anodenelektrode **104** gegenüberliegt und mit dieser in Kontakt steht. Die zweite Verteilungsschicht **122** befindet sich auch benachbart der MEA **100** entlang der entgegengesetzten Seite der Kathode **106**, wobei die dritte Fläche **128** der zweiten Mediumsschicht **122** der Kathode **106** gegenüberliegt und mit dieser in Kontakt steht. Die Fluidverteilungsschichten **107** stehen mit den jeweiligen Elektroden **103** in Kontakt, um ein oder mehrere elektrische Kontaktgebiete **129** zu bilden.

**[0018]** Jede Schicht **120**, **122** des porösen Mediums ist zwischen der MEA **100** und einem Stromkollektorseparatorplattensubstrat (**132** oder **134** funktionell analog zu **8** und **16** von **Fig. 1**) eingegrenzt oder schichtartig angeordnet. Die Schichten **107** des porösen Mediums dienen dazu, um (1) gasförmigen Reaktand über die gesamte Seitenfläche der MEA **100** zwischen und unter den Stegen **136** des Stromkollektors **132**, **134** zu verteilen, und (2) Strom von der MEA **100** zu sammeln. Eine erste Fläche oder ein erstes Substrat (beispielsweise Bipolarplatte, wie **8** in **Fig. 1** und **Fig. 56** in **Fig. 2**) **138** der Separatorplatte **132** befindet sich benachbart zu einer zweiten Fläche **126** der ersten Fluidverteilungsmediumsschicht **120** und steht mit dieser in Kontakt, und eine zweite Fläche **140** der Separatorplatte **134** befindet sich benachbart zu der vierten Fläche **130** der zweiten Fluidverteilungsmediumsschicht **122** und steht mit dieser in Kontakt. Gemäß der vorliegenden Erfindung ist es bevorzugt, dass das Fluidverteilungsmedium **107** und das erste und zweite Substrat **132**, **134** aus elektrisch leitenden Materialien aufgebaut sind, und ein elektrischer Kontakt dazwischen an einem oder mehreren elektrischen Kontaktgebieten **144** hergestellt wird, wobei ein elektrisch leitender Pfad zwischen einer Substrat-tafel (**132** oder **134**) und dem entsprechenden porö-

sen Medium **107** (**120** oder **122**) gebildet wird. Ferner ist es vorgesehen, dass der elektrische Kontakt ähnlicherweise durch das Volumen des porösen Mediums **107** und durch die elektrischen Kontaktgebiete **129** zu den Elektroden **103** hergestellt wird.

**[0019]** Bei elektrochemischen Brennstoffzellen **99** gemäß der vorliegenden Erfindung umfasst die elektrochemische Gesamtreaktion die Oxidation von Wasserstoff, um Wasser zu bilden. Die jeweiligen Reaktionen an der Anode (Reaktion **1**) und Kathode (Reaktion **2**) laufen wie folgt ab:



wobei der Reaktandenbrennstoff Wasserstoff ist und das Oxidationsmittel Sauerstoff umfasst (wie beispielsweise Luft). Die von der Reaktion an der Anode **104** freigesetzten Protonen wandern durch die MEA **100** an die Kathode **106** durch die Protonenaustauschmembran **102**. In einer vereinfachten einzelnen Brennstoffzelle werden die an der Anode **104** freigesetzten Elektroden bevorzugt durch eine externe Schaltung (nicht gezeigt) geleitet, die mit der Kathode **106** verbunden ist und einen Strom erzeugt, wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist.

**[0020]** Die Protonenaustauschmembran (PEM) **102** ist eine kationenpermeable protonenleitende Festpolymermembran oder -tafel aus umgegossenem Ionomer mit  $\text{H}^+$ -Ionen als dem mobilen Ion, wie es in der Technik bekannt ist. Eine breite Klasse von protonenleitenden Kationentauscherharzen ist das so genannte Sulfonsäurekationentauscherharz. Diese Ionentauschermembrane oder -tafeln sind in der Technik gut bekannt. Die bevorzugten Membrane **102** sind Polymerelektrolytmembrane aus perfluorierter Sulfonsäure, die kommerziell mit der Handelsbezeichnung NAFION® erhältlich sind, das von E.I. DuPont de Nemours & Co. vertrieben wird. Andere ähnliche Membrane werden von Asahi Glass and Asahi Chemical Company vertrieben.

**[0021]** Wie am besten in **Fig. 5**, einer detaillierten Ansicht eines Abschnitts von **Fig. 4**, zu sehen ist, ist jede der Elektroden **103** aus einer entsprechenden Gruppe fein geteilter Kohlenstoffpartikel **150** ausgebildet, die sehr fein geteilte katalytische Partikel **152** tragen, wobei ein protonenleitendes Material **154** mit den Partikeln **150** vermischt ist, die die Katalysatorpartikel **152** tragen. Es sei angemerkt, dass die Kohlenstoffpartikel **150**, die die Anode **104** bilden, sich von den Kohlenstoffpartikeln **150** unterscheiden können, die die Kathode **106** bilden. Zusätzlich kann sich die Zusammensetzung und/oder Beladung des Katalysators **152** an der Anode **104** von der Beladung des Katalysators **152** an der Kathode **106** unterscheiden. Obwohl sich die Eigenschaften und die Beladung der

Kohlenstoffpartikel **150** und des Katalysators **152** für die Anode **104** und die Kathode **106** unterscheiden können, ist der Grundaufbau der beiden Elektroden **103** ansonsten allgemein ähnlich. Um einen kontinuierlichen Pfad vorzusehen und damit  $\text{H}^+$  Ionen an den Katalysator **152** zur Reaktion zu leiten, wird das protonen-(kationen-)leitende Material **154** über jede der Elektroden **103** verteilt und ist mit den Kohlenstoff- und Katalysatorpartikeln **150**, **152** vermischt und ist bevorzugt in einer Vielzahl der von den Kohlenstoffpartikeln **150** definierten Poren angeordnet. Demgemäß kann in **Fig. 5** gesehen werden, dass das protonenleitende Material **154** Kohlenstoff- und Katalysatorpartikel **150**, **152** einschließt. Zusätzlich sind der leitende Träger **150** und die Katalysatorpartikel **152** elektrisch leitend.

**[0022]** Mit allgemeinem Bezug auf die **Fig. 4** und **Fig. 5** arbeitet eine vereinfachte Brennstoffzelle **99** durch Übertragung von Elektronen aus der Wasserstoffaufspaltreaktion (Reaktion **1** oben) an der Anode **104** über eine externe Schaltung (nicht gezeigt) an die Kathode **106**, wo die Rekombinierung von Elektronen mit  $\text{H}^+$  und  $\text{O}_2$  über Reaktion **2** erfolgt, wie für Fachleute offensichtlich ist. Jedoch erfolgt in einem Stapel von Brennstoffzellen der Elektronentransfer durch jede Bipolarplatte (beispielsweise **132**, **134**), wo die Brennstoffzellen elektrisch miteinander gekoppelt und bevorzugt seriell verbunden sind, um eine große Potentialdifferenz über den Stapel zu erzeugen. Leitungen, die mit den Anschlüssen des Stapels der Brennstoffzellen verbunden sind, erzeugen eine externe Schaltung. Somit ist ein Faktor bei der Katalysatoraktivität der Elektrode **103** der effiziente Transfer von Elektronen an den Katalysator **152** (zusätzlich zu dem Sauerstoff- und Protonentransport). Daher sieht die vorliegende Erfindung einen reduzierten Kontaktwiderstand zwischen der Fluidverteilungsschicht **107** und den leitenden Partikeln **150** der Elektrode **103** vor, was somit in eine verbesserte Katalysatoraktivität durch einen verbesserten Elektronentransfer an die Katalysatorpartikel **152** umgesetzt wird.

**[0023]** Ferner betrifft ein anderer Vorteil der vorliegenden Erfindung ein Wassermanagement der Brennstoffzelle. Typischerweise wird Produktwasser in der Brennstoffzellenreaktion erzeugt und an der Kathode **106** abgewiesen, an der das Wasser typischerweise durch einfache Strömung oder durch Verdunstung entweicht. Jedoch können gegebenenfalls Mittel vorgesehen sein, um das Wasser zu sammeln, wenn es gebildet wird, um dieses von der Brennstoffzelle **99** wegzuführen. Ein gutes Wassermanagement in der Zelle erlaubt einen erfolgreichen Langzeitbetrieb der elektrochemischen Brennstoffzelle **99**. Räumliche Variationen des Wassergehalts in der Membran **102** einer stromführenden Brennstoffzelle resultieren aus dem elektroosmotischen Mitreißen von Wasser mit dem Protonen-( $\text{H}^+$ )-Transport von

der Anode **104** zu der Kathode **106**, der Erzeugung von Wasser durch die Sauerstoffreduzierungsreaktion an der Kathode **104**, Befeuchtungsbedingungen in dem Einlassgasstrom wie auch einer „Rückdiffusion“ von Wasser von der Kathode **106** an die Anode **104**. Es sei angemerkt, dass für derzeit verwendete PEM-Membrane **102** bevorzugte Betriebsbedingungen, um einen optimalen Wirkungsgrad zu erreichen, eine relative Feuchte des Auslasses der Kathode **106** von 100 % oder größer besitzen. Bisher wurden, um diese Feuchte zu erreichen, die Reaktandenströme sowohl der Anode **104** als auch der Kathode **106** extern vor Eintritt in die Brennstoffzelle **99** befeuchtet, was eine Befeuchtungsausstattung erforderte. Wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist, ist ein Vorteil der vorliegenden Erfindung eine Reduzierung und/oder Beseitigung des Bedarfs nach externer Befeuchtung des Einlassstroms der Kathode **106** und/oder der Anode **104**.

**[0024]** Gemäß der vorliegenden Erfindung umfasst das poröse Fluidverteilungsmedium **107** eine elektrisch leitende nichtmetallische Zusammensetzung. Erste Außenflächen **170** des Fluidverteilungsmediums **107** betreffen diejenigen Flächen (d.h. Flächen **126**, **130**) der ersten und zweiten Fluidverteilungsmediumschicht **120**, **122**, die mit den Substratelementtafeln **132**, **134** in Kontakt stehen. Zweite Außenflächen **172** (d.h. **124**, **128**) des Fluidverteilungsmediums **120**, **122** sind zu Hauptflächen **174** der MEA **100** ausgesetzt. Der hier verwendete Begriff „Hauptfläche“ betrifft eine Fläche eines Elements, die eine größere Abmessung oder Oberfläche besitzt, als andere Flächen des Elements, beispielsweise ein Element, das ein Aspektverhältnis einer größeren Breite zur Höhe besitzt, wobei die Oberfläche der Seite, die der Höhe (beispielsweise Dicke) des Elements entspricht, erheblich kleiner als die Oberfläche der Breite desselben Elements ist.

**[0025]** Das Fluidverteilungsmedium **107** ist bevorzugt hochporös (d.h. etwa 60 % - 80 %) und weist eine Vielzahl von Poren **176** auf, die in einem Körper **178** des Fluidverteilungsmediums **107** ausgebildet sind. „Etwa“ gibt, wenn es auf Werte angewendet ist, an, dass die Berechnung oder die Messung eine gewisse geringfügige Ungenauigkeit des Wertes zulässt (beispielsweise mit einer gewissen Annäherung an eine Exaktheit des Wertes; ungefähr oder vernünftig nahe an dem Wert; nahezu). Wenn aus irgendeinem Grund die Ungenauigkeit, die durch „etwa“ vorgesehen wird, in der Technik mit dieser gewöhnlichen Bedeutung nicht anderweitig verständlich ist, dann gibt „etwa“, wie hier verwendet ist, eine mögliche Variation von bis zu 5 % des Wertes an. Die Vielzahl von Poren **176** umfasst eine Vielzahl von Innenporen **180** und Außenporen **182**, die zueinander offen sind und kontinuierliche Strömungspfade oder -kanäle **184** durch den Körper **178** hindurch bilden, die von einer ersten Außenfläche **170** zu der

zweiten Außenfläche **172** des Fluidverteilungsmediums **107** verlaufen. Innenporen **180** sind in dem Volumen oder Körper **178** des Fluidverteilungsmediums **107** angeordnet, und Außenporen **182** enden an der Fläche, beispielsweise **170** oder **172** der Verteilungsmediumschicht **107**. Die hier verwendeten Begriffe „Pore“ und „Poren“ betreffen Poren mit verschiedenen Größen, die so genannte „Makroporen“ (Poren mit einem Durchmesser von größer als 50 nm), „Mesoporen“ (Poren mit einem Durchmesser zwischen 2 nm und 50 nm) und „Mikroporen“ (Poren mit einem Durchmesser von 2 nm) enthalten, sofern es nicht anders angegeben ist, und der Begriff „Porengröße“ betrifft einen durchschnittlichen oder mittleren Wert, der die Durchmessergrößen sowohl der Innen- als auch Außenporen umfasst. Es ist bevorzugt, dass die durchschnittliche Porengröße äquivalent zu einem Radius von größer als etwa 2 µm und kleiner als etwa 30 µm ist. Da diese Öffnungen innen in dem Körper **178** der Fluidverteilungsmediumschichten **107** (beispielsweise **120**, **122**) angeordnet sind, werden die Flächen der Öffnungen als innere Flächen **186** oder das Mediuminnere bezeichnet.

**[0026]** Gemäß der vorliegenden Erfindung ist das nichtmetallische leitende Fluidverteilungsmedium **107** Kohlenstoff. Ein derartiges Fluidverteilungsmedium **107** ist in der Technik gut bekannt und umfasst bevorzugt Kohlefaser oder Graphit. Das poröse Fluidverteilungsmedium **107** kann als Papier, Gewebe, Vlies, Faser oder Schaum hergestellt sein. Ein derartiges bekanntes poröses Fluidverteilungsmedium **107** umfasst ein Graphitpapier mit einer Porosität von etwa 70 Vol.-% und eine nicht komprimierte Dicke von etwa 0,17 mm, das von der Toray Company mit der Handelsbezeichnung Toray TGPH-**060** kommerziell erhältlich ist. Bei bevorzugten Brennstoffzellenanordnungen wird Toray TGPH-**060** auf der Anodenseite **104** verwendet. Ein anderes bevorzugtes poröses Fluidverteilungsmedium **107** besitzt eine Porosität von etwa 70 Vol.-% und ist 0,26 mm dick und kommerziell mit der Handelsbezeichnung TGPH-**090** von der Toray Company erhältlich. Es ist bevorzugt, dass ein derartiges Fluidverteilungsmedium **107** dadurch vorbehandelt wird, dass die zu der MEA **100** weisende Seite auf eine Enddicke von 0,17 mm geschliffen wird, wo sie an der Kathodenseite **106** angeordnet wird. Reaktandenfluide werden an die MEA **100** über die Fluidströmungskanäle **184** in der ersten und zweiten Schicht **120**, **122** des porösen Mediums geliefert, wo die elektrochemischen Reaktionen auftreten und elektrischen Strom erzeugen.

**[0027]** Bevorzugte Aufbaumaterialien für die Separatorplattensubstrate **132**, **134** umfassen leitende Metalle, wie beispielsweise rostfreien Stahl, Aluminium und Titan. Bei bevorzugten Ausführungsformen ist das Material des Separatorelements **132**, **134** elektrisch leitend und kann Metalloxide bilden, wenn es Sauerstoff ausgesetzt ist. Die bevorzugtes-

ten Aufbaumaterialien für die Separatorplattensubstrate **132**, **134** sind rostfreier Stahl mit höherer Güte, der eine hohe Beständigkeit gegenüber Korrosion in der Brennstoffzelle aufweist, wie beispielsweise 316L, 317L, 256 SMO, Carpenter **20**, Inconel **601**, Alloy **276** und Alloy **904L**.

**[0028]** Ein elektrischer Kontakt durch einen elektrisch leitenden Pfad an den Kontaktgebieten **129** ist von dem relativen elektrischen Kontaktwiderstand an einer Schnittstelle der Flächen (beispielsweise 172 bis 174) der in Kontakt stehenden Elemente (**107** und **103**) abhängig. Obwohl ein nichtmetallisches Fluidverteilungsmedium **107** aufgrund seiner Korrosionsbeständigkeit, Festigkeit, physikalischen Haltbarkeit in einer Brennstoffzellenumgebung und seines niedrigen elektrischen Volumenwiderstands bevorzugt ist, hat sich herausgestellt, dass die Schnittstelle zwischen dem nichtmetallischen Fluidverteilungsmedium **107** mit entweder den Elektroden **103** oder den Metallsubstraten **132**, **134** zu einem erhöhten elektrischen Kontaktwiderstand an der Schnittstelle aufgrund der Verschiedenheit der jeweiligen Materialien beitragen kann. Beispielsweise wird angenommen, dass die molekulare Wechselwirkung zwischen einem Metall (beispielsweise Substratfläche **138**, **140** oder Katalysatorpartikel **152** in der Elektrode) und Nichtmetallmaterialien an derartigen Schnittstellen den Kontaktwiderstand aufgrund von Unterschieden der jeweiligen Oberflächenenergien und anderen molekularen und physikalischen Wechselwirkungen erhöhen kann. Insbesondere sieht die vorliegende Erfindung einen reduzierten elektrischen Widerstand (d.h. eine erhöhte elektrische Leitfähigkeit und daher gesteigerten Elektronentransfer) von der Schnittstelle der Elektrodenfläche **174** zu der Fläche **172** der Fluidverteilungsmediumschicht **107** im Vergleich zu einem elektrischen Widerstand eines vergleichbaren porösen Mediums vor, das aus demselben Material aufgebaut ist, jedoch nicht metallisierte elektrische Kontaktgebiete mit einer ähnlichen MEA aufweist. Bei alternativen bevorzugten Ausführungsformen sieht die vorliegende Erfindung ferner eine Gesamtreduzierung des elektrischen Widerstands der Brennstoffzellenanordnung durch Reduzierung des elektrischen Gesamtwiderstandes der verschiedenen zusammengebauten Komponenten der Brennstoffzelle **99** über einen reduzierten Widerstand an Schnittstellen mit beiden Flächen **170**, **172** der Fluidverteilungsmediumschichten **107**, die der MEA **100** bzw. den Separatorelementsubstraten **132**, **134** gegenüberliegen, vor.

**[0029]** Somit sieht die vorliegende Erfindung ein leitendes Metall vor, das an den Außenflächen **181** der Poren **176** des porösen nichtmetallischen Fluidverteilungsmediums **107** beschichtet ist, um metallisierte Gebiete **188** zu bilden. Die metallisierten Gebiete **188** werden entlang der zweiten Außenflächen **172** der Schicht **107** des porösen Mediums ausgebildet, die den Hauptflächen **174** der MEA-Elektroden **103**

gegenüberliegt. Die metallisierten Gebiete **188**, die in der Fluidverteilungsmediumschicht **107** an der zweiten Außenfläche **172** integriert sind, haben gezeigt, dass der Kontaktwiderstand im Vergleich zu Fluidverteilungsmediumschichten dauerhaft verringert ist, die keine Metallbeschichtung oder metallisierte Gebiete aufweisen. Es ist bevorzugt, dass der Kontaktwiderstand an der Schnittstelle der Elektroden **103** mit den metallisierten Gebieten **188** des elektrisch leitenden Fluidverteilungselements **107** der vorliegenden Erfindung kleiner als  $30 \text{ m}\Omega\text{-cm}^2$  und bevorzugter kleiner als  $15 \text{ m}\Omega\text{-cm}^2$  ist. Obwohl die Art und Weise, in der die vorliegende Erfindung arbeitet, nicht beschränkt werden soll, wird angenommen, dass die leitenden metallisierten Gebiete **188** an der Kontaktfläche **172** des Fluidverteilungsmediums **107** eine verbesserte elektrische Schnittstelle an den Kontaktgebieten **129** vorsehen, indem eine elektrisch besser leitende Schnittstelle (über die metallisierten Gebiete **188**) vorgesehen wird, und dies ferner durch Kontakt ähnlicherer Materialien (d.h. Katalysatormetalle **152**) mit entsprechend ähnlichen molekularen und physikalischen Eigenschaften (beispielsweise Oberflächenenergien) beeinflusst werden kann. Somit sieht die vorliegende Erfindung eine gesteigerte elektrische Leitfähigkeit vor, und kann folglich erlauben, die Beladung des Katalysators **152** in den Elektroden **103** durch eine derartige verbesserte elektrische Leitfähigkeit zu verringern und daher Herstellkosten für die Brennstoffzellenanordnung **99** zu reduzieren.

**[0030]** Bei einer bevorzugten Ausführungsform gemäß der vorliegenden Erfindung sind die metallisierten Gebiete **188** ultradünn und entlang der zweiten Außenfläche **172** des Fluidverteilungsmediums **107** aufgebracht. „Ultradünne“ Schichten aus leitendem Metall, die in den metallisierten Gebieten **188** aufgetragen sind, betreffen allgemein Dicken von weniger als etwa 40 nm und am bevorzugtesten weniger als 15 nm. Die Dicke der metallisierten Gebiete **188** beträgt bevorzugt weniger als etwa 10 nm, bevorzugter zwischen etwa 2 bis etwa 10 nm und am bevorzugtesten zwischen etwa 5 und etwa 10 nm entlang der Fläche **172** benachbart der Elektroden **103** der MEA **100**. Es ist experimentell herausgefunden worden, dass ein optimales Wassermanagement (bei dem ausreichend Wasser gehalten wird, um eine Befeuchtung der Membran **102** zuzulassen, während die Elektroden **103** nicht geflutet werden) bei bestimmten Ausführungsformen dem entspricht, bei dem die Dicke des metallisierten Gebietes **188** an Schichten **107** des porösen Mediums entlang der Kathodenseite **106** der MEA **100** zwischen etwa 5 und etwa 10 nm liegt.

**[0031]** Es ist bevorzugt, dass die metallisierten Gebiete **188** elektrisch leitend, oxidationsbeständig und säurebeständig sind, und bei bestimmten bevorzugten Ausführungsformen umfasst das elektrisch leitende Metall, das das metallisierte Gebiet bildet, eine



Verbindung, die ein Edelmetall enthält, das aus der Gruppe gewählt ist, die aus: Ruthenium (Ru), Rhodium (Rh), Palladium (Pd), Silber (Ag), Iridium (Ir), Platin (Pt), Osmium (Os) und Mischungen daraus besteht. Derartige Verbindungen können elementare Formen des leitenden Metalls umfassen oder können leitende Verbindungen aus Metallnitriden, Metalloxiden und Metallcarbiden umfassen. Andere bevorzugte Metalle für die metallisierten Gebiete **188** weisen diejenigen auf, die Chrom (Cr), Titan (Ti) oder Zinn (Sn) umfassen. Elektrisch leitende Verbindungen, die derartige Metalle umfassen, enthalten beispielsweise Chromnitrid (CrN), dotiertes Zinnoxid (SnO) und dotiertes Titanoxid (TiO). Ein am stärksten bevorzugtes leitendes Metall für die metallisierten Gebiete **188** umfasst Gold (Au). Wie für Fachleute offensichtlich ist, kann die leitende Metallzusammensetzung Mischungen der oben bezeichneten Metalle umfassen.

**[0032]** Bei der in **Fig. 4** gezeigten Ausführungsform umfasst sowohl die erste als auch die zweite Fluidverteilungsschicht **120, 122**, metallisierte Gebiete **188** an den zu der MEA **100** weisenden Flächen. Jedoch finden, während es nicht gezeigt ist, jedoch für Fachleute offensichtlich ist, alternative bevorzugte Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung Anwendung auf eine Brennstoffzellenanordnung **99**, die metallisierte Gebiete **188** auf nur einer der ersten oder zweiten Fluidverteilungsschichtfläche **124, 128**, die zu der MEA **100** weist, besitzt, anstatt auf sowohl die erste als auch die zweite Fluidverteilungsschicht **120, 122** aufgebracht zu sein.

**[0033]** **Fig. 6** zeigt eine alternative bevorzugte Ausführungsform der vorliegenden Erfindung. Viele Aspekte der Brennstoffzellenanordnung **101** sind die gleichen, wie bei der vorhergehenden Ausführungsform, wie der, die in den **Fig. 5** und **Fig. 6** gezeigt ist. Die zweiten Flächen **172** der Fluidverteilungsschicht **107** aus porösem Medium umfassen bevorzugt dieselben metallisierten Gebiete **188**, wie oben beschrieben ist, um den elektrischen Widerstand an den Kontaktgebieten **129** zwischen der Schicht **107** des porösen Mediums und den Elektroden **103** zu reduzieren. Jedoch ist bei der vorliegenden Ausführungsform die erste Außenfläche **170**, die die Seite darstellt, die der zweiten Fläche **172** der Schicht **107** des porösen Mediums gegenüberliegt, zusätzlich mit einem leitenden Metall beschichtet, um ein oder mehrere metallisierte Gebiete **190** zu bilden. Die metallisierten Gebiete **190** der Flächen **126, 130** der jeweiligen Schichten **120, 122** aus porösem Medium stehen bevorzugt mit den Metallsubstraten **132, 134** in Kontakt, um die elektrischen Kontaktgebiete **144** zu bilden. Es wird angenommen, dass die metallisierten Gebiete **188, 190** und am bevorzugtesten **190** an dem porösen Fluidverteilungsmedium **107** eine noch gleichmäßigere Verteilung von elektrischem Strom durch den Körper **178** des Mediums **107** vorsehen, wenn sich der Strom den diskreten und nicht kontinu-

ierlichen Kontaktgebieten **144** annähert, die mit den Stegen **136** der Strömungsfeldausgestaltung an den Separatorplattensubstraten **132, 134** in Verbindung stehen.

**[0034]** Bei einer alternativen bevorzugten Ausführungsform, bei der die erste Außenfläche **170** metallisierte Gebiete **190** umfasst, ist es bevorzugt, dass die Dicke der metallisierten Gebiete kleiner als **80 nm**, bevorzugt kleiner als **50 nm** ist und am bevorzugtesten zwischen etwa **2 bis etwa 10 nm** liegt. Bei bestimmten bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung ist die Dicke der metallisierten Gebiete **190** kleiner als die oder gleich der Tiefe von zwei Atommonoschichten des Metalls, das für die Beschichtung **190** gewählt ist. Wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist, können sich die bevorzugten Dicken der jeweiligen metallisierten Gebiete **188, 190** abhängig von der Anwendung unterscheiden, und die gewünschten Dicken stehen sowohl mit elektrischer Leitfähigkeit als auch gewünschten Brennstoffzellenbetriebsbedingungen, einschließlich eines Wassermanagements, in Verbindung. Jedoch ist das elektrisch leitende Metall der metallisierten Gebiete **190** bevorzugt aus denselben Zusammensetzungen gewählt, die oben für die metallisierten Gebiete **188** beschrieben sind. Ähnlicherweise können die leitenden Metalle der metallisierten Gebiete **188** und **190** unabhängig voneinander gewählt sein oder können dieselbe Zusammensetzung umfassen, die das bzw. dieselben elektrisch leitende(n) Metall(e) enthält.

**[0035]** Es ist bevorzugt, dass die leitenden metallisierten Gebiete **188, 190** die Außenflächen **181** der Außenporen **182** und die Flächen **186** der Innenporen **180** bedecken und sich in den Körper **178** des Fluidverteilungsmediums **107** bis zu einer Tiefe von zumindest etwa **2 bis etwa 10 nm** von jeweiligen Flächen **170** oder **172** erstrecken.

**[0036]** **Fig. 7** zeigt eine andere bevorzugte Ausführungsform der vorliegenden Erfindung, die die MEA **100** und eine Hälfte der Brennstoffzellenanordnung **111** zeigt. Wie für Fachleute angemerkt sei, kann die vorliegende Ausführungsform auch entlang beider Seiten der MEA **100** verwendet werden, um die Brennstoffzellenanordnung **111** zu bilden. Die MEA **100** umfasst dieselben Elemente, wie bei den vorherigen Ausführungsformen beschrieben ist, die zwei Elektroden **103** und eine Membran **102** enthalten. Das Fluidverteilungsmedium **107a** umfasst eine erste Fläche **170a** und eine zweite Fläche **172**. Die zweite Fläche **172**, die zu der Hauptfläche **174** der MEA **100** weist, besitzt metallisierte Gebiete **188** bevorzugt an elektrischen Kontaktgebieten **129**, die auf dieselbe Weise wie vorherige Ausführungsformen ausgebildet sind.

**[0037]** Die zweite Fläche **170a** des Fluidverteilungsmediums **107a** umfasst diskrete metallisierte Gebiete

te **190a** des porösen Mediums **107**, die elektrisch leitenden Kontaktgebieten **144** der Außenfläche **170a** entsprechen, und die nicht metallisierten Gebiete **194** entsprechen den elektrisch nicht leitenden Gebieten. Die elektrisch leitenden Gebiete **190a** weisen diejenigen Bereiche auf, die mit Stegen **136** in Kontakt stehen und den elektrisch leitenden Pfad an den Kontaktgebieten **144** herstellen. Bei vorher beschriebenen Ausführungsformen, wie der in **Fig. 6**, bedecken die metallisierten Gebiete **190** vollständig die kontinuierliche Außenfläche **170**, was eine gleichmäßigere Stromverteilung in den Körper **178** des porösen Mediums **107** unterstützt. Bei der Ausführungsform von **Fig. 7** mit diskreten metallisierten Gebieten **190a**, die elektrisch aktiven Kontaktgebieten **144** entsprechen, sind die elektrisch nicht leitenden und nichtmetallisierten Gebiete **194** der Außenflächen **170** bedeckt oder maskiert, während das leitende Metall der metallisierten Gebiete **190a** aufgebracht wird. Eine Maskierung ist ein beliebiges Material, das auf ein Substrat aufgebracht wird und während der Beschichtungsaufbringung stabil bleibt. Oftmals werden Maskierungsmaterialien gewählt, um eine Rückgewinnung oder Rückführung der Metalle, die über der Maskierung während des Abscheidungsprozesses abgeschieden werden, zu ermöglichen, und sind in der Technik gut bekannt. Bevorzugte Maskierungsmaterialien, die mit der vorliegenden Erfindung kompatibel sind, umfassen beispielsweise Metalle, wie rostfreien Stahl und Titan oder silizium- und aluminiumoxidbasierte Keramiken.

**[0038]** Eine Vielzahl von Abscheidungsverfahren kann verwendet werden, um die leitenden Metallzusammensetzungen aufzubringen, die die metallisierten Gebiete (beispielsweise **188**, **190**, **190a**) des Fluidverteilungsmediums **107** bilden. Ein bevorzugtes Verfahren zum Abscheiden des leitenden Metalls der metallisierten Gebiete **188**, **190** auf das poröse Fluidverteilungsmedium **107** wird nun unter Bezugnahme auf **Fig. 8** beschrieben. Um das leitende Metall auf dem Substrat abzuscheiden, wird ein ionenunterstütztes Physical-Vapor-Deposition-(PVD)-Verfahren verwendet.

**[0039]** In **Fig. 8** wird eine ionenunterstützte PVD-Vorrichtung **236** verwendet, um die leitende Metallzusammensetzung der metallisierten Gebiete **188**, **190** aufzubringen. Die Vorrichtung **236** weist eine Abscheidungskammer **238** und zwei Elektronenkanonen **A** und **B** zur Abscheidung der Metallbeschichtung auf. Die Vorrichtung **236** weist auch eine Turbopumpe auf, die erlaubt, dass die Vorrichtung in einem ultrahohen Vakuum betrieben werden kann. Das mit dem leitenden Metall zu beschichtende Substrat wird zunächst in einer „Load-Lock“-Kammer **237** angeordnet, in der der Druck zwischen etwa  $1,3 \times 10^{-3}$  Pa bis  $1,3 \times 10^{-4}$  Pa liegt. Das Substrat wird dann an die Abscheidungskammer **138** übertragen. Sobald das Substrat in der Kammer **238** angeord-

net ist, wird der Druck auf etwa  $1,3 \times 10^{-7}$  Pa auf etwa abgesenkt. Ein erster Schmelztiegel **240** in der Kammer hält das abzuscheidende Metall. Wenn eine Kombination aus Metallen oder Edelmetallen abgeschieden werden soll, wird ein zweites Metall von einem zweiten Schmelztiegel **242** gehalten. Beispielsweise enthält der erste Schmelztiegel **240** ein erstes Metall (beispielsweise Titan), das als eine erste Schicht abgeschieden wird, und der Schmelztiegel **242** enthält ein zweites Metall (beispielsweise Gold), das über der ersten Schicht abgeschieden wird und eine zweite Schicht bildet. Eine andere Option, die verfügbar ist, kann darin bestehen, eine Kombination von Metallen gleichzeitig abzuscheiden. Edelmetalle werden auf dem Substrat mit einer Geschwindigkeit von  $0,10$  nm/s bis zu einer Dicke von weniger als  $80$  nm abgeschieden, was durch Dickenüberwachungseinrichtungen beobachtet wird, die in der Technik bekannt sind. Die metallisierten Gebiete **188**, **190**, **190a** können leitendes Metall aufweisen, das auf dem Substrat bei ultraniedrigen Dicken von weniger als  $80$  nm, bevorzugt weniger als  $40$  nm und am bevorzugtesten zwischen etwa  $2$  bis etwa  $10$  nm abgeschieden ist. Wenn das metallisierte Gebiet **188**, **190** eine Dicke von zumindest etwa  $2$  nm besitzt, ist es bevorzugt, dass die Beladung  $0,02$  mg/cm<sup>2</sup> beträgt. Es ist mit dem vorliegenden Prozess möglich, eine nur sehr dünne Schicht (d.h. eine ultradünne Schicht in der Größenordnung von  $2$ - $20$  nm) zu beschichten, wodurch eine relativ gleichförmige und gute Oberflächenbedeckung und gute Anhaftung erreicht wird. Somit erlaubt die Verwendung der ionenunterstützten PVD-Vorrichtung **236**, dass das elektrisch leitende Metall auf dem Substrat sehr glatt, gleichmäßig und in einer dünnen Schicht abgeschieden werden kann.

**[0040]** Ein anderes bevorzugtes PVD-Verfahren, das ebenfalls für die vorliegende Erfindung geeignet ist, während es nicht gezeigt ist, ist das Magnetron-sputtern, bei dem ein Metalltarget (das leitende Metall für die metallisierten Gebiete **188**, **190**, **190a**) mit einer Sputterkanone in einer Argonionenatmosphäre beschossen wird, während das Substrat geladen ist. Die Sputterkanone bildet ein Plasma von Metallpartikeln und Argonionen, die durch Impuls übertragen werden, um das Substrat zu beschichten. Andere bevorzugte Verfahren zum Aufbringen einer Metallbeschichtung **188**, **190**, **190a** gemäß der vorliegenden Erfindung umfassen eine Elektronenstrahlverdampfung, bei der das Substrat in einer Vakuumkammer (zwischen etwa  $1,3 \times 10^{-1}$  Pa bis  $1,3 \times 10^{-2}$  Pa) enthalten ist und ein Metallverdunstungsmittel durch einen geladenen Elektronenstrahl erhitzt wird, wobei es verdunstet und dann an dem Targetsubstrat kondensiert. Das leitende Metall der metallisierten Gebiete **188**, **190**, **190a** kann auch durch Elektroplattieren bzw. Galvanisieren (beispielsweise elektrolytische Abscheidung), elektroloses Plattieren, Chemi-

cal Vapor Deposition oder Impulslaserabscheidung aufgebracht werden.

**[0041]** Bevorzugte Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung sehen einen niedrigen Kontaktwiderstand über die Separatorplattensubstrate **132, 134** durch das poröse Medium **107**, das die metallisierten Gebiete **188, 190, 190a** aufweist, zu der MEA **100** vor. Es ist bevorzugt, dass der Kontaktwiderstand über eine gesamte Brennstoffzelle (von Separatorplatte zu Separatorplatte) kleiner als  $100 \text{ m}\Omega/\text{cm}^2$  ( $\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ ) und bevorzugter kleiner als  $80 \text{ m}\Omega/\text{cm}^2$  ist, wobei sich die Brennstoffzelle unter Kompressionskraft befindet. Ferner erfordern die elektrisch leitenden Substratelemente **132, 134** gemäß bestimmter bevorzugter Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung keine Entfernung einer Passivierungsschicht (d.h. Metalloxidschicht) von den metallischen Separatorplattensubstraten **132, 134** entlang von Kontaktflächen **138, 140** vor ihrem Einbau in die Brennstoffzellenanordnungen (beispielsweise **99, 101, 111**) der vorliegenden Erfindung. Allgemein erzeugt ein Metallsubstrat **132, 134**, das eine Oxidschicht aufweist, die mit einer nichtmetallischen Fluidverteilungsschicht (ohne metallisierte Gebiete **190**) in Kontakt steht, einen unzulässig hohen elektrischen Kontaktwiderstand. Somit weisen Verfahren nach dem Stand der Technik zur Entfernung der Oxidschicht eine Vielzahl von Verfahren auf, wie eine kathodische elektrolytische Reinigung, mechanisches Schleifen, Reinigen des Substrats mit alkalischen Reinigern und Ätzen mit sauren Lösemitteln oder Beizlösungen. Die Beseitigung der Notwendigkeit zum Entfernen der Metalloxide von den Kontaktflächen **138, 140** der metallischen Separatorplatte **132, 134** ist somit gemäß der bestimmten bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung optional.

**[0042]** Somit enthält ein bevorzugter Aspekt der vorliegenden Erfindung die Verwendung des Separatorelementsubstrats **132, 134**, das rostfreien Stahl umfasst, wobei die Substratfläche **132, 134** nicht die intensive Entfernung einer Passivierungsschicht von der Kontaktfläche **138, 140** erfordert, wie in der Schrift US 2005-0100774 A1 offenbart ist. Die verbesserte elektrische Leitfähigkeit an der Schnittstelle an den Kontaktgebieten **144**, die durch die Beschichtung **190** der metallisierten Gebiete an dem porösen Medium **107** vorgesehen wird, erlaubt die Verwendung von Metallen in den Separatorelementsubstraten **132, 134**, die eine natürlich auftretende Oxidschicht an der Kontaktfläche **138, 140** besitzen. Daher beseitigt die vorliegende Erfindung den teuren und zeitaufwendigen Vorbearbeitungsschritt zur Entfernung von einem Teil oder im Wesentlichen den gesamten Metalloxiden von der Kontaktfläche **138, 140** der Metallsubstrate **132, 134** oder vereinfacht diesen erheblich. Ferner besitzen rostfreie Stähle mit höheren Güten, die vorher beschrieben wurden, eine hohe Korrosionsbeständigkeit und können somit ohne jeg-

liche weitere Schutzbehandlung aufgrund ihrer Fähigkeit, die korrosive Umgebung in der Brennstoffzelle auszuhalten, verwendet werden.

**[0043]** Die vorliegende Erfindung ist auch zur Verwendung mit Separatorplattenelementsubstraten **132, 134** geeignet, die mit elektrisch leitenden Schutzbeschichtungen beschichtet sind, die eine Korrosionsbeständigkeit für das darunter liegende Metallsubstrat **132, 134** vorsehen. Derartige Beschichtungen können Schichten einer oxidations- und korrosionsbeständigen Metallbeschichtung **190** (beispielsweise Au, Ag, Pt, Pd, Ru, Rh, Ir, Os und Mischungen daraus) oder korrosionsbeständige elektrisch leitende Polymermatrixen umfassen, die allgemein oxidationsbeständige Polymere umfassen, die in einer Matrix elektrisch leitender korrosionsbeständiger Partikel dispergiert sind, wie in der Technik bekannt ist. Die Schutzbeschichtungen besitzen bevorzugt einen spezifischen elektrischen Widerstand von kleiner als etwa  $50 \text{ }\Omega\text{-cm}$  ( $\Omega\text{-cm}$ ) und umfassen eine Vielzahl oxidationsbeständiger säureunlöslicher leitender Partikel (d.h. weniger als etwa  $50 \text{ }\mu\text{m}$ ), die über eine säurebeständige oxidationsmittelbeständige Polymermatrix verteilt sind, wobei das Polymer die Partikel aneinander bindet und diese an der Fläche **138, 140** des Metallsubstrats **132, 134** hält. Die Beschichtung enthält ausreichend leitende Füllstoffpartikel, um einen spezifischen elektrischen Widerstand von nicht größer als etwa  $50 \text{ }\mu\Omega\text{-cm}$  zu erzeugen, und besitzt eine Dicke zwischen etwa  $5 \text{ }\mu\text{m}$  und etwa  $75 \text{ }\mu\text{m}$  abhängig von der Zusammensetzung, dem spezifischen elektrischen Widerstand und der Integrität der Beschichtung. Vernetzte Polymere sind zur Erzeugung impermeabler Beschichtungen bevorzugt, die die darunter liegende Metallsubstratfläche vor einer Permeation korrosiver Mittel schützen.

**[0044]** Bevorzugt sind die leitenden Füllstoffpartikel aus der Gruppe gewählt, die umfasst: Gold, Platin, Graphit, Kohlenstoff, Nickel, leitende Metallboride, -nitride und -carbide (beispielsweise Titanitrid, Titan-carbid, Titandiborid), Titan in Legierung mit Chrom und/oder Nickel, Palladium, Niob, Rhodium, Selten-erdmetalle und andere Edelmetalle. Am bevorzugtesten umfassen die Partikel Kohlenstoff oder Graphit (d.h. hexagonal kristallisierten Kohlenstoff). Die Partikel umfassen variierende Gewichtsprozentanteile der Beschichtung abhängig von der Dichte und der Leitfähigkeit der Partikel (d.h. Partikel mit einer hohen Leitfähigkeit und geringer Dichte können in geringeren Gewichtsprozentanteilen verwendet werden). Kohlenstoff/graphithaltige Beschichtungen enthalten typischerweise  $25 \text{ Gewichtsprozent Kohlenstoff/Graphitpartikel}$ . Die Polymermatrix umfasst ein beliebiges wasserunlösliches Polymer, das in einen dünnen anhaftenden Film geformt werden kann und das die raue oxidative und saure Umgebung der Brennstoffzelle aushalten kann. Daher werden derartige Poly-

mere, wie Epoxide, Polyamidimide, Polyetherimide, Polyphenole, Fluorelastomere (beispielsweise Polyvinylidenfluorid), Polyester, Phenoxyphenole, Epoxidphenole, Acryle und Urethane unter anderem als nützlich mit der vorliegenden Erfindung betrachtet. Bei einer derartigen Ausführungsform, bei der die Flächen **138**, **140** mit einer Schutzbeschichtung bedeckt sind, umfassen die Metallsubstrate **132**, **134** ein korrosionsanfälliges Metall, wie Aluminium, Titan oder rostfreien Stahl mit geringerer Güte, der mit einer korrosionsbeständigen Schutzbeschichtung beschichtet ist.

**[0045]** Bei bestimmten Ausführungsformen ist bevorzugt, dass die Kontaktflächen **138**, **140** der Separatorelementmetallsubstrate **132**, **134** im Wesentlichen rein sind, wobei lose anhaftende Schmutzstoffe vor Einbau in das elektrisch leitende Element entfernt werden. Eine derartige Reinigung dient typischerweise dazu, jegliche lose anhaftenden Schmutzstoffe zu entfernen, wie Öle, Fett, wachsiges Feststoffe, Partikel (einschließlich Metallpartikel, Kohlenstoffpartikel, Staub und Schmutz), Siliziumdioxid, Zunder und Mischungen daraus. Viele Schmutzstoffe werden während der Herstellung des Metallmaterials hinzugefügt und können sich auch während des Transports oder der Lagerung an der Kontaktfläche **138**, **140** ansammeln. Somit ist eine Reinigung der Kontaktfläche **138**, **140** des Metallsubstrats **132**, **134** insbesondere bei Umständen bevorzugt, wenn das Metallsubstrat **132**, **134** mit Schmutzstoffen verunreinigt ist. Ein Reinigen des Metallsubstrats **132**, **134** kann einen mechanischen Abrieb; Reinigen mit herkömmlichen alkalischen Reinigern, flächenaktiven Stoffen, leicht sauren Waschungen; oder Ultraschallreinigung erfordern. Die Auswahl des geeigneten Reinigungsprozesses oder der Abfolge von Reinigungsprozessen wird auf Grundlage sowohl der Beschaffenheit des Schmutzstoffs als auch des Metalls gewählt.

**[0046]** Nun werden experimentelle Einzelheiten bezüglich einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung detailliert beschrieben. Bei bestimmten bevorzugten Ausführungsformen unterscheidet sich das Fluidverteilungsmedium für die Seiten der Anode **104** und der Kathode **106**. Wie zuvor beschrieben wurde, wird Toray TGPH **060** bevorzugt für die Anodenseite **104** verwendet, das 0,17 mm dick ist, während das Verteilungsmedium der Kathodenseite **106** Toray TGPH **090** ist, das 0,26 mm dick ist. Es ist bevorzugt, dass das Toray TGPH **090** durch Beschichtung der Außenfläche mit Polytetrafluorethylen (PTFE) und dann Schleifen auf einer Seite bis zu einer Enddicke von 0,17 mm vorbehandelt wird. Gold wurde durch ionenunterstützte PVD auf beiden Typen von Toray-Fluidverteilungsmediumgraphitpapier abgeschieden. Bei dem ersten Experiment wurde Gold durch PVD auf dem Toraypapier durch ein Teer-Magnetronsputtersystem abgeschieden. Das Toraypapier wurde in die Vakuum-

kammer eingeführt, und als der Druck in der Vakuumkammer 6,7 mPa erreicht hat, wurde die Abscheidung von Au durchgeführt. Die Magnetrontargets waren 99,99 % reines Au. Die Au-Abscheidung wurde bei einem Vorspannpotential von -50 V unter Verwendung eines Stroms von 0,25 A für eine Minute durchgeführt, um eine Dicke einer Goldbeschichtung **130** von 10 nm zu erreichen. Au wurde mit einer Rate von 0,16 nm/s unter Verwendung eines Magnetronsputtersystems abgeschieden. Die Dicke der Proben wurde unter Verwendung einer Elektronenstrahlmikroanalyse (EPMA) kalibriert. Die Abscheidungstemperatur betrug etwa 25°C bis etwa 30°C.

**[0047]** Wie in **Fig. 9** gezeigt ist, wurden zwei Brennstoffzellenanordnungen für einen Leistungsvergleich hergestellt und analysiert. Probe **1** wurde gemäß der vorliegenden Erfindung durch Abscheidung metallisierter Gebiete auf zwei Seiten von zwei ähnlichen Schichten aus Toray-Diffusionsmedium hergestellt, wie bei dem oben beschriebenen Experiment. Das kathodenseitige Toray-Papier TGPH **090** wurde vor einer Metallabscheidung vorbehandelt, um diesem eine Hydrophobie zu verleihen, indem das Papier in Polytetrafluorethylen (PTFE) eingetaucht wurde und dann physikalisch eine Seite heruntergeschliffen wurde, um eine Enddicke von etwa 0,17 mm zu erreichen. Die mit PTFE beschichtete Seite steht mit dem Separatorelement (wie **134** von **Fig. 6**) in Kontakt, und die geschliffene Seite weist zu der MEA (wie **100** von **Fig. 6**). Ein ähnliches Toray-Diffusionsmedium TGPH **060** wurde mit metallisierten Gebieten auf zwei Seiten hergestellt. Die Fluiddiffusionsmedien wurden jeweils benachbart zu einer GORE MEA **5510** angeordnet und haben die GORE MEA **5510** schichtartig angeordnet, die 25 µm dick war und eine Katalysatorbeladung von 0,4 mg/cm<sup>2</sup> besaß, so dass die metallisierten Gebiete mit den MEA-Flächen in Kontakt standen. Jede Toraypapierschicht wurde durch impermeable Metallseparatorplatten (wie **132**, **134** von **Fig. 6**) begrenzt, die aus nicht beschichtetem und nicht behandeltem 317L rostfreiem Stahl hergestellt waren. Die metallisierten Gebiete der Außenflächen jeder Toray-Diffusionsmediumschicht waren so angeordnet, dass sie mit der nicht behandelten Separatorplatte aus rostfreiem Stahl in Kontakt standen.

**[0048]** Die Kontrolle umfasst eine impermeable Separatorplatte nach dem Stand der Technik, die aus 317L rostfreiem Stahl ohne jegliche Beschichtungen oder Vorbehandlung aufgebaut ist. Die Brennstoffzelle wurde mit demselben Toray-Diffusionsmedium für die Anoden- und Kathodenseite, wie unmittelbar oben beschrieben wurde, zusammengebaut, jedoch besaß das Toraymedium keine metallisierten Gebiete. Jedes Toray-Diffusionsmedium war so angeordnet, dass es entgegengesetzte Seiten einer MEA schichtartig anordnete. Die Toray-Diffusionsmedien waren jeweils durch die nicht beschichteten und nicht

behandelten Platten aus rostfreiem Stahl umgeben und standen mit diesen in Kontakt.

**[0049]** Der Kontaktwiderstand wurde in der Brennstoffzelle unter Verwendung eines Stromunterbrechungsverfahrens mit einer Scribner Associate Software gemessen. Die Kontaktwiderstandsmessungen wurden als Milliohm Quadratcentimeter ( $m\Omega \cdot cm^2$ ) über einen Zyklus einer angelegten Stromdichte über einen Bereich von 100, 300, 600, 800, 1000 und 1500  $mA/cm^2$  gemessen. Die Brennstoffzelle wurde mit einer Stöchiometrie von Wasserstoff zu Luft von 2/2 und einer Druckbeaufschlagung auf etwa 175 kPa betrieben und der Anodeneinlass besaß eine relative Feuchte von 100 % und der Kathodeneinlass wurde trocken betrieben (etwa 0 % relative Feuchte). Die Auslassfeuchte wurde als etwa (114 %) gemessen.

**[0050]** Wie aus den Daten beobachtet werden kann, ist der Gesamtzellenwiderstand von Probe 1 über den gesamten Zyklus des angelegten Stroms erheblich geringer als der der Kontrolle. Ferner war die Zellenspannung für Probe 1 über das Experiment hinweg größer und bei höherem angelegtem Strom (600-1000  $mA/cm^2$ ) entsprechend typischen Brennstoffzellenbetriebsbedingungen wesentlich größer. Somit demonstrierte Probe 1 der vorliegenden Erfindung eine erhebliche Verbesserung hinsichtlich der Leistungsfähigkeit, indem sie ein höheres Spannungspotential und einen verringerten Widerstand über alle Bereiche eines angelegten Stroms aufwies, im Vergleich zu der Kontrolle nach dem Stand der Technik.

**[0051]** Somit sieht die vorliegende Erfindung ein Verfahren zum Herstellen einer Anordnung für eine Brennstoffzelle vor, das umfasst, dass ein elektrisch leitendes Metall auf einer Fläche eines elektrisch leitenden porösen Mediums abgeschieden wird, um ein oder mehrere metallisierte Gebiete zu bilden, die eine ultradünne Dicke besitzen. Die Fläche, die die metallisierten Gebiete aufweist, wird benachbart zu einer Elektrode der MEA positioniert. Die Elektrode steht mit der Fläche, die die metallisierten Gebiete aufweist, in Kontakt, um einen elektrisch leitenden Pfad zwischen dem Substrat und dem porösen Medium zu bilden.

**[0052]** Ein Vorteil der vorliegenden Erfindung betrifft ein verbessertes Wassermanagement. Wie vorher beschrieben wurde, tritt die optimale Effizienz der Brennstoffzelle auf, wenn die Auslassfeuchte von der Kathode eine relative Feuchte von 100 % oder mehr besitzt. Die Beibehaltung eines ausreichenden Wassergehalts in der Brennstoffzelle, um ein Austrocknen der Membran zu verhindern, ist bei Betriebsabläufen typischerweise ein erhebliches Problem geworden, wodurch die Einlassströme sowohl der Anode als auch der Kathode befeuchtet werden, gewöhnlich bis zu einem Ziel von zumindest 100 %. Es wurde bei Tests entdeckt, dass, wenn die Pro-

be mit metallisierten Gebieten entlang beider Seiten des Toray-Fluidverteilungsmediums (wie in Probe 1) hergestellt wurde und die Brennstoffzelle betrieben wurde, so dass sie eine typische Einlassfeuchte zu der Kathode von 100 % relativer Feuchte (was ein Standardziel für die Kathodeneinlassfeuchte ist) aufweist, die Brennstoffzelle mit überschüssigem Wasser überschwemmt und in einigen Fällen geflutet wurde. Somit reduziert entgegen dem bekannten Stand der Technik die vorliegende Erfindung den Bedarf nach einer externen Befeuchtung der Einlassreaktandenströme zu der MEA.

**[0053]** In Fig. 10 wurde Probe 1 bei verschiedenen Niveaus der relativen Feuchte des Kathodeneinlasses getestet, um die verbesserten Wassermanagementaspekte der vorliegenden Erfindung zu demonstrieren. Wie vorher beschrieben wurde, war die Brennstoffzellenanordnung, die verwendet wurde, so angeordnet, dass sie eine Gore MEA 5510 mit 0,4  $mg/cm^2$  Beladung von Pt-Katalysator aufwies, die durch Toraypapier schichtartig angeordnet wurde, das gemäß der vorliegenden Erfindung behandelt war, so dass es metallisierte Gebiete besaß, die an sowohl einer Innen- als auch einer Außenfläche angeordnet waren, die durch unbehandelte impermeable Substrate aus 317L rostfreiem Stahl begrenzt waren und sich in Kontakt mit diesen befanden. Die Brennstoffzelle wurde mit den folgenden Bedingungen betrieben: etwa 175 kPa, ein Stöchiometrieverhältnis von Wasserstoff zu Luft von 2/2. Bei allen Betriebsszenarien wurde der Anodeneinlass mit einer relativen Feuchte von 100 % betrieben. Die relative Feuchte des Kathodeneinlasses wurde in den folgenden Menge variiert: etwa 0 % (trockene Umgebungsbedingungen), 25 % und 50 %. Frühere Experimente bei einer relativen Feuchte des Kathodeneinlasses von 100 % demonstrierten unzulässige Flutungsbedingungen und wurden somit hier nicht getestet.

**[0054]** Ein trockener Kathodeneinlass von etwa 0 % relativer Feuchte zeigte die beste Leistungsfähigkeit mit einer Zellenspannung von 0,61 V bei einer Stromdichte von 1,5  $mA/cm^2$  im Vergleich zu lediglich 0,5 V bei einer relativen Feuchte des Kathodeneinlasses von 50 %. Somit wurde ein Abfall der Zellenleistungsfähigkeit von 200 mV durch Erhöhung der relativen Feuchte der Kathode von trocken auf 50 % beobachtet. Der Zellenwiderstand war ähnlicherweise gering und blieb unter 80  $m\Omega/cm^2$  bei einer Stromdichte von 1,5  $mA/cm^2$  für alle Feuchtigkeitswerte. Über alle Werte der Feuchte des Kathodeneinlasses wurde die Kathodenaustrittsfeuchte gleichermaßen überwacht. Wie vorher erwähnt wurde, ist die Protonenleitfähigkeit durch die Membran am größten, wenn die Kathodenauslassfeuchte 100 % oder größer ist. Wie in Fig. 10 zu sehen ist, überschreitet die relative Feuchte an dem Kathodenaustritt gut 100 % für alle Betriebsszenarien, und ihr geringster Wert war 114 %, wobei der Kathodeneinlass bei 0 % lag. Somit wird

gemäß der vorliegenden Erfindung die Membran unter günstigen Sättigungsbedingungen auf der Kathodenseite betrieben, während keine zusätzliche externe Befeuchtung notwendig ist.

**[0055]** Bei einigen Ausführungsformen nach dem Stand der Technik hat die Beschichtung des Metallsubstrats der Bipolarplatten, insbesondere der Substrate aus rostfreiem Stahl mit einer Schutzmetallbeschichtung eine hohe MEA-Kontamination erzeugt, was zu einer Vergiftung des Katalysators (und daher einer Katalysatorinaktivierung) oder einer Gesamtdesaktivierung des protonenleitenden Materials in der Membran und der Elektroden über die Lebensdauer der Brennstoffzelle führen kann. Jedoch trat bei Ausführungsformen, bei denen der rostfreie Stahl eine Passivierungsschicht aus Metalloxiden bildet, eine derartige Kontamination generell nicht auf. Somit ist ein zusätzlicher Vorteil der vorliegenden Erfindung die optionale Verwendung einer nicht behandelten Separatorplatte aus rostfreiem Stahl, die eine MEA-Kontamination reduziert und somit das Potential einer Katalysatorvergiftung und Gesamtinaktivierung der Membran und der Elektroden reduziert.

**[0056]** Die vorliegende Beschreibung sieht ein Verfahren zum Betrieb einer Brennstoffzelle vor, das umfasst, dass ein elektrisch leitendes poröses Medium zwischen einer Membranelektrodenanordnung (MEA) und einem elektrisch leitenden Substrat positioniert wird. Das poröse Medium besitzt eine erste Fläche, die ultradünne metallisierte Gebiete aufweist, wobei die erste Fläche zu der MEA weist. Eine zweite Fläche weist zu dem leitenden Substrat. Die erste Fläche, die die metallisierten Gebiete aufweist, steht mit der MEA in Kontakt, und die zweite Fläche, die zu dem Substrat weist, bildet einen elektrisch leitenden Pfad von dem Substrat durch das poröse Medium zu der MEA. Der Kontakt wird allgemein dadurch erreicht, dass eine Kompressionskraft auf die Brennstoffzelle in einem zusammengebauten Brennstoffzellenstapel ausgeübt wird. In der MEA wird eine elektrochemische Reaktion ausgeführt, die Elektronen erzeugt. Somit umfasst das vorliegende Verfahren, das Elektronen zu oder von der MEA über den elektrisch leitenden Pfad geleitet werden, während die Brennstoffzelle in Betrieb ist.

**[0057]** Ein Reaktandenstrom wird in eine Kathodenseite der MEA eingeführt, während die Reaktion durchgeführt wird. Der Reaktandenstrom wird durch das leitende poröse Medium geliefert und erfordert bei bestimmten Ausführungsformen keine externe Befeuchtung. Bei bestimmten bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung besteht der Reaktandenstrom, der an eine Kathodenseite der MEA geliefert wird, im Wesentlichen aus Umgebungsluft, und die Umgebungsluft ist absichtlich nicht befeuchtet, oder bei der Alternative besitzt die Um-

gebungsluft eine relative Feuchte, die geringer ist als Umgebungsbedingungen.

**[0058]** Bei alternativen bevorzugten Ausführungsformen wird der Reaktandenstrom, der in die Kathodenseite der MEA für die Reaktion eingeführt wird, vor Eintritt in die MEA bei Bedingungen unterhalb der Sättigung extern befeuchtet. Bei bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung besitzt der Reaktandenstrom, der an eine Kathodenseite der MEA eingeführt wird, einen Wassergehalt, der ein Niveau besitzt, das unterhalb der Sättigung liegt. Bei alternativen bevorzugten Ausführungsformen umfasst die zweite Fläche des porösen Mediums ferner ein oder mehrere metallisierte Gebiete, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, um den spezifischen elektrischen Widerstand zwischen dem Substrat und dem porösen Medium zu reduzieren. Wie für Fachleute angemerkt sei, kann das poröse Medium gemäß der vorliegenden Erfindung auf beiden Seiten der MEA angeordnet werden.

**[0059]** Leitende Elemente, die gemäß der vorliegenden Erfindung hergestellt werden, sehen Brennstoffzellen mit einem hocheffizienten und optimierten Brennstoffzellenbetrieb vor. Die vorliegende Erfindung sieht eine verbesserte elektrische Schnittstelle zwischen dem nichtmetallischen porösen Fluidverteilungsmedium und den Elektroden der MEA vor, die den elektrischen Widerstand reduziert und die Katalysatoraktivität erhöht. Eine derartige erhöhte Katalysatoraktivität kann die Katalysatorbeladungsanforderungen in den Elektroden der MEA reduzieren und somit die Herstellkosten reduzieren. Zusätzlich verbessert das leitende poröse Fluidverteilungsmedium gemäß der vorliegenden Erfindung ein Brennstoffzellenwassermanagement durch Beseitigung des Bedarfs nach externer Befeuchtung des Kathodeneinlassstromes, während eine angemessene Hydratation der Membran in der MEA beibehalten wird.

**[0060]** Ferner reduzieren alternative bevorzugte Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung ähnlicherweise den elektrischen Widerstand zwischen dem nichtmetallischen porösen Fluidverteilungsmedium und dem Metallsubstrat des Separatorelements, um einen niedrigeren elektrischen Gesamtwiderstand über die Brennstoffzelle vorzusehen. Die metallisierten Gebiete der vorliegenden Erfindung sehen eine ultradünne leitende Metallbeschichtung vor, die die Fläche des porösen Fluidverteilungselements ausreichend bedeckt, um einen niedrigen Kontaktwiderstand für ein elektrisch leitendes Fluidverteilungselement vorzusehen, das die Gesamtleistungsfähigkeit einer Brennstoffzelle verbessert. Ferner ist die Dicke der Metallbeschichtung so, dass die Herstellkosten zum Fertigen eines elektrisch leitenden Fluidverteilungselements minimiert sind. Die Bearbeitungskosten werden weiter dadurch reduziert, dass der Schritt zum Entfernen von Metalloxiden von Metall-

substraten beseitigt wird, die eine elektrische Schnittstelle mit dem Fluidverteilungselement bilden. Die verbesserte elektrische Schnittstelle reduziert einen Kontaktwiderstand und unterstützt eine breitere und gleichmäßigere Stromverteilung, was den Betriebswirkungsgrad und die Gesamtlebensdauer der Membran und des Brennstoffzellenstapels erhöht.

### Patentansprüche

1. Brennstoffzellenanordnung mit:
  - einer Membranelektrodenanordnung (MEA), die eine elektrisch leitende Elektrode umfasst,
  - einem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement und
  - einem Fluidverteilungselement, wobei das Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, welche ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind.
2. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei jedes der metallisierten Gebiete eine Dicke von kleiner als 10 nm aufweist.
3. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei jedes der metallisierten Gebiete eine Dicke von 5 nm bis 10 nm aufweist.
4. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das elektrisch leitende Metall auf Flächen von Poren des porösen Mediums in den metallisierten Gebieten abgeschieden ist.
5. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das poröse Medium aus der Gruppe ausgewählt ist, welche aus Papier, Gewebe, Vlies, Faser und Schaum besteht.
6. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das elektrisch leitende Metall der metallisierten Gebiete ein Edelmetall umfasst.
7. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei die metallisierten Gebiete eine Verbindung des elektrisch leitenden Metalls umfassen.
8. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei die metallisierten Gebiete ein Metall umfassen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Ru, Rh, Pd, Ag, Ir, Pt, Os, Ti, Cr, Sn, Au und Mischungen daraus besteht.
9. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das elektrisch leitende Metall Au umfasst.
10. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das eine oder die mehreren metallisierten Gebiete die Fläche der Schicht bedecken.
11. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei die zu der Schicht weisende Fläche des Separatorelements mit einer Vielzahl von Nuten und Stegen gemustert ist, wobei die Stege in Kontakt mit dem einen oder den mehreren metallisierten Gebieten der Schicht stehen.
12. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei das Separatorelement Gebiete aus Metalloxiden aufweist, die entlang von Kontaktgebieten einer Separatorelementfläche ausgebildet sind, wobei die Kontaktgebiete dem einen oder den mehreren elektrisch leitenden Pfaden entsprechen.
13. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei jedes metallisierte Gebiet an der der mit der Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden Fläche eine Dicke von kleiner als oder gleich 15 nm aufweist.
14. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, wobei die Elektrode ein protonenleitendes Material, eine Vielzahl von Katalysatorpartikeln und eine Vielzahl elektrisch leitender Partikel umfasst.
15. Brennstoffzellenanordnung mit:
  - einer Membranelektrodenanordnung (MEA), die eine erste elektrisch leitende Elektrode und eine zweite und entgegengesetzt elektrisch leitende Elektrode umfasst,
  - einem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement,
  - einem ersten Fluidverteilungselement, wobei das erste Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in

Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der ersten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind, und - einem zweiten Fluidverteilungselement, wobei das zweite Fluidverteilungselement eine Schicht aus elektrisch leitendem porösem Medium, das Kohlenstoff umfasst, umfasst, wobei auf einer Fläche der Schicht ein oder mehrere metallisierte Gebiete vorgesehen sind, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, die mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehen, und die mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegende Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements mit dem impermeablen elektrisch leitenden Separatorelement in Kontakt steht und ein oder mehrere metallisierte Gebiete aufweist, die ein elektrisch leitendes Metall umfassen, wobei zwischen dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche und dem einen oder mehreren metallisierten Gebieten der mit der zweiten Elektrode der MEA in Kontakt stehenden Fläche gegenüberliegenden Fläche der Schicht des Fluidverteilungselements jeweils von der MEA durch das poröse Medium zu dem Separatorelement führende elektrisch leitende Pfade ausgebildet sind.

Es folgen 10 Seiten Zeichnungen



Anhängende Zeichnungen

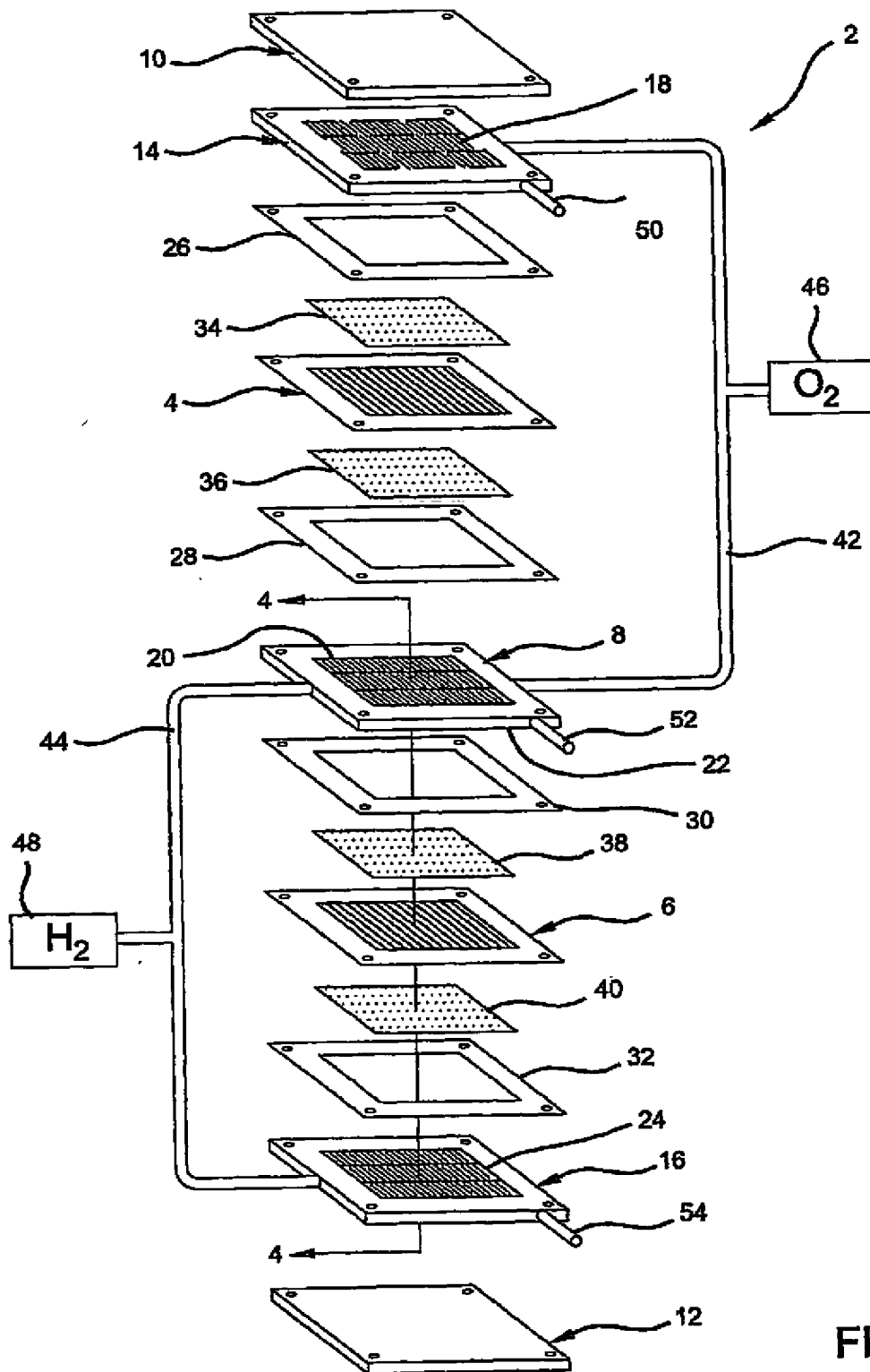


FIG 1

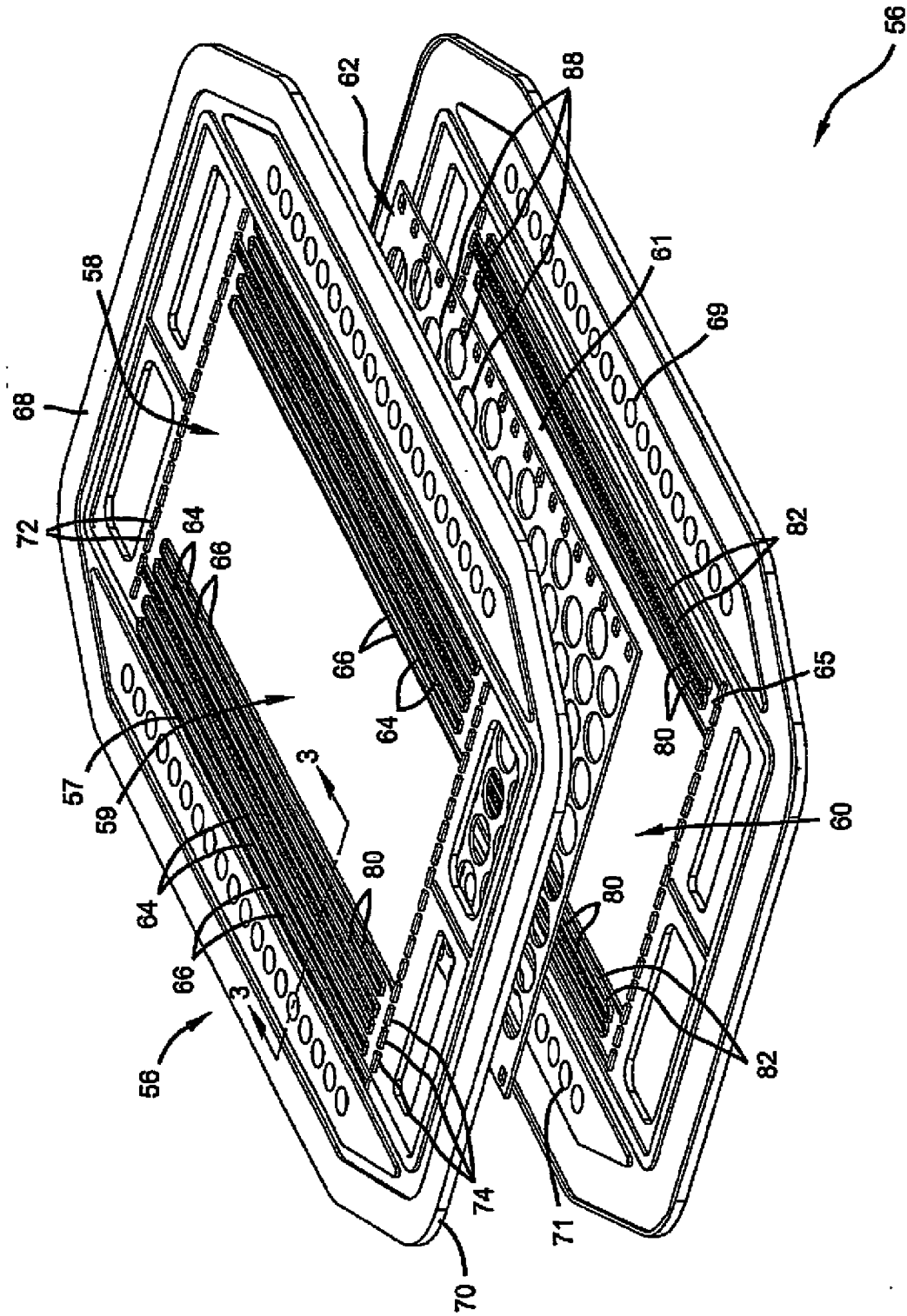


FIG 2

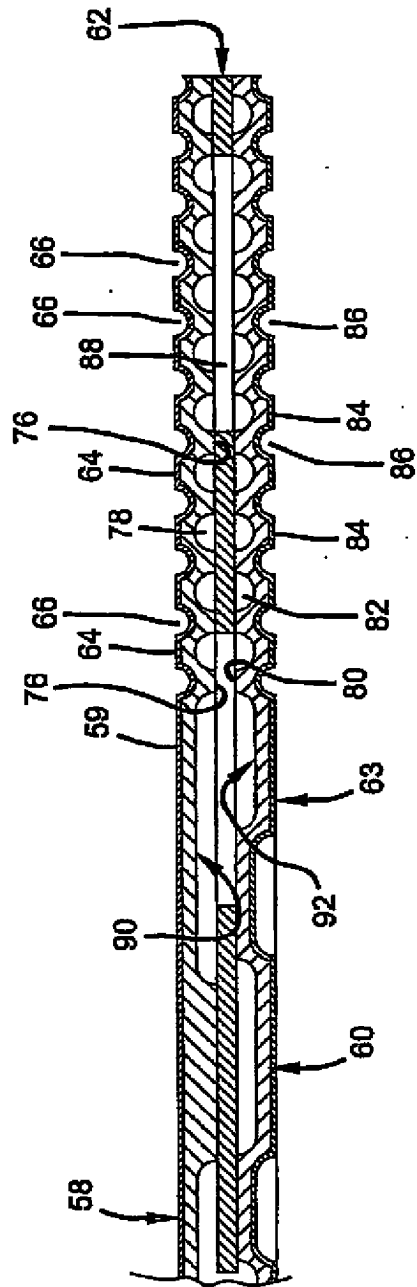


FIG 3

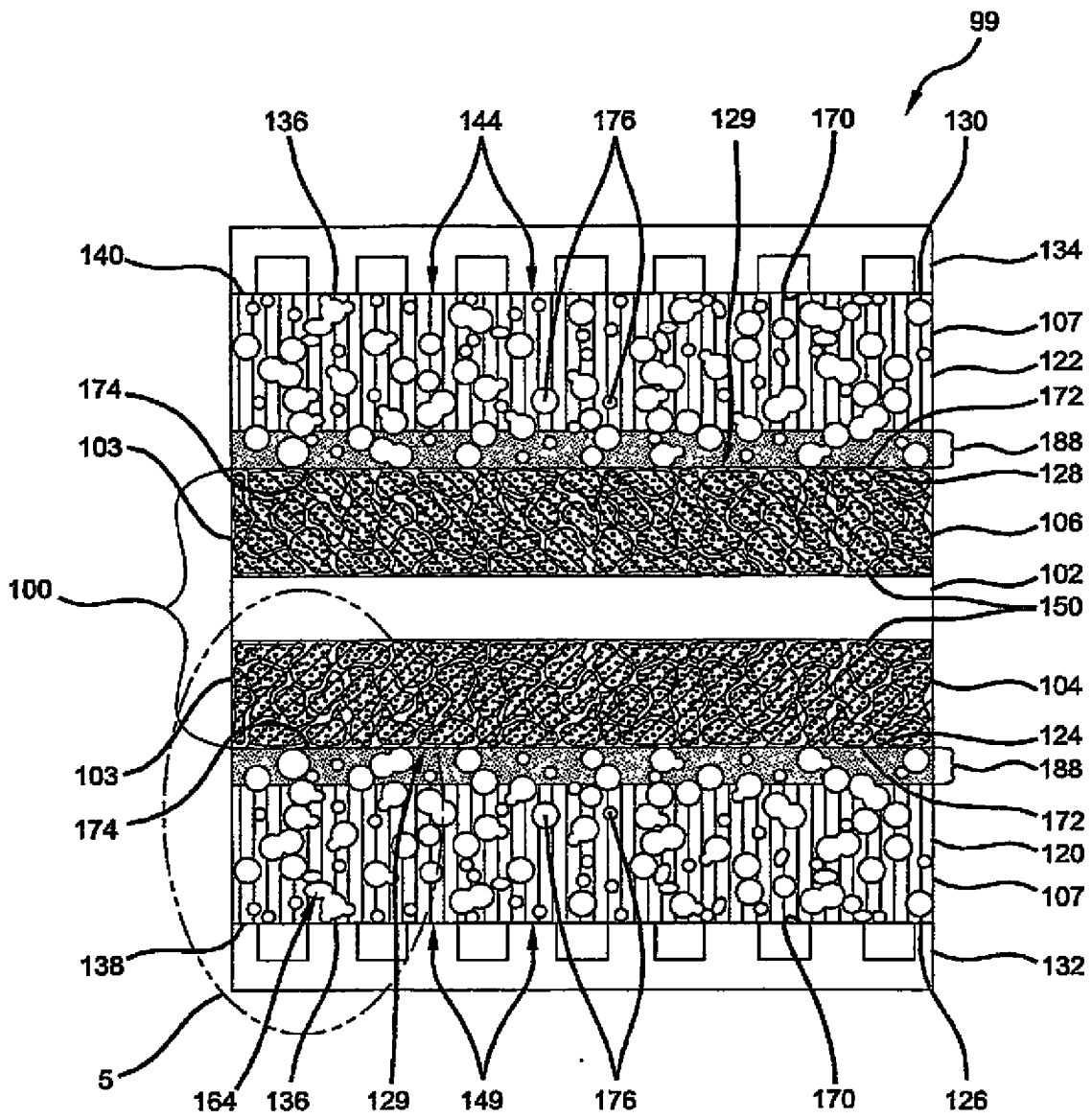


FIG 4

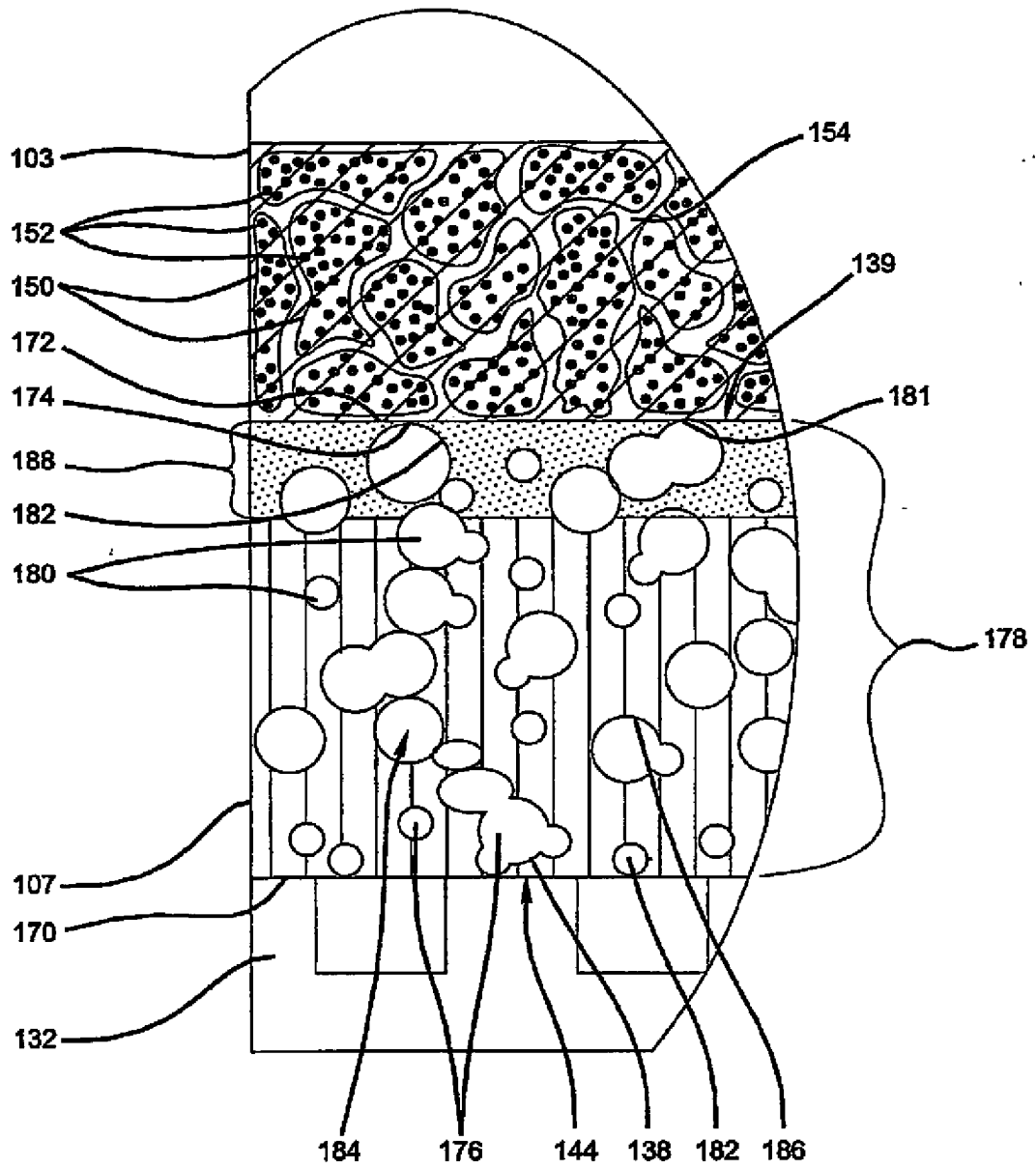


FIG 5

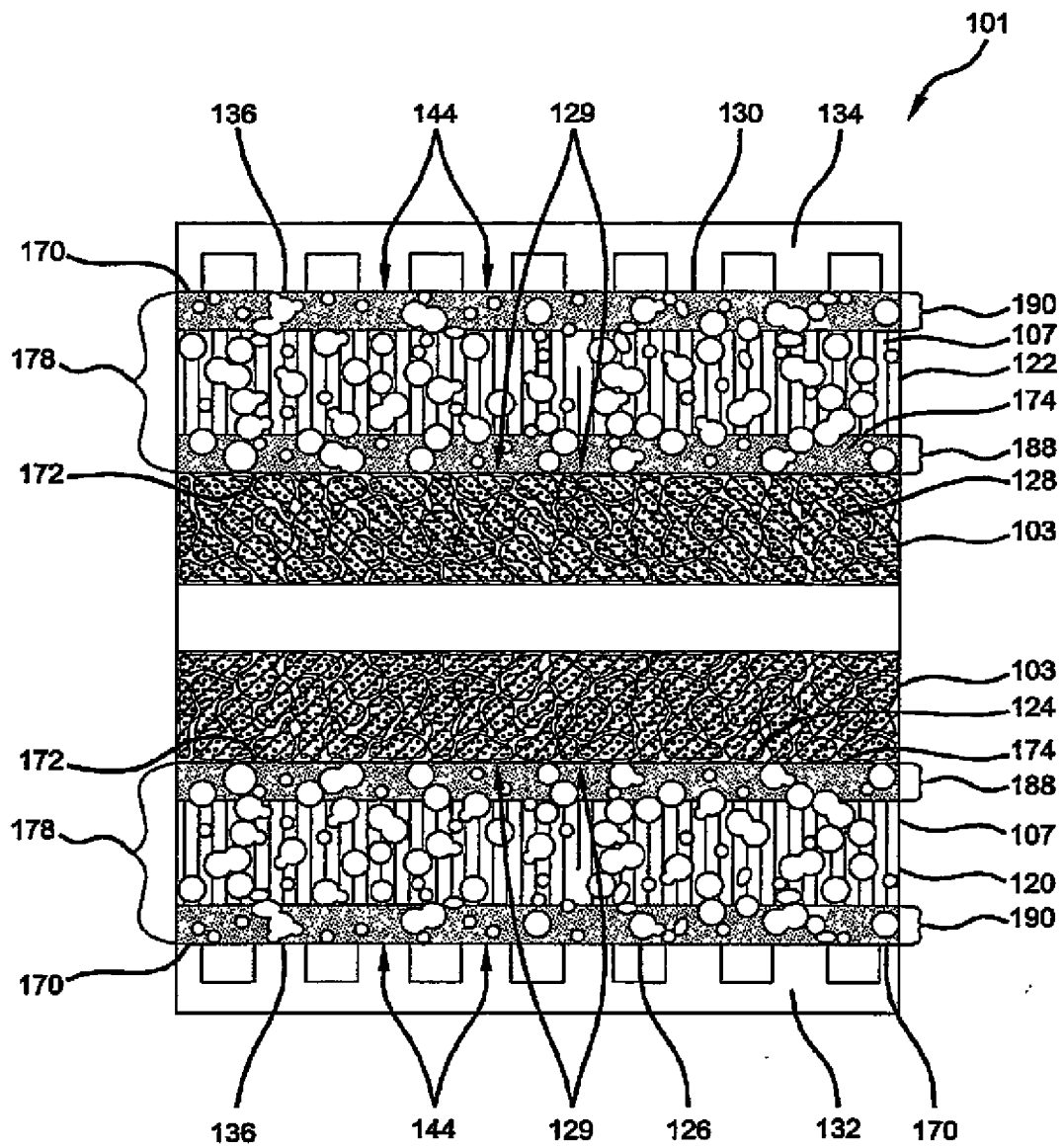


FIG 6

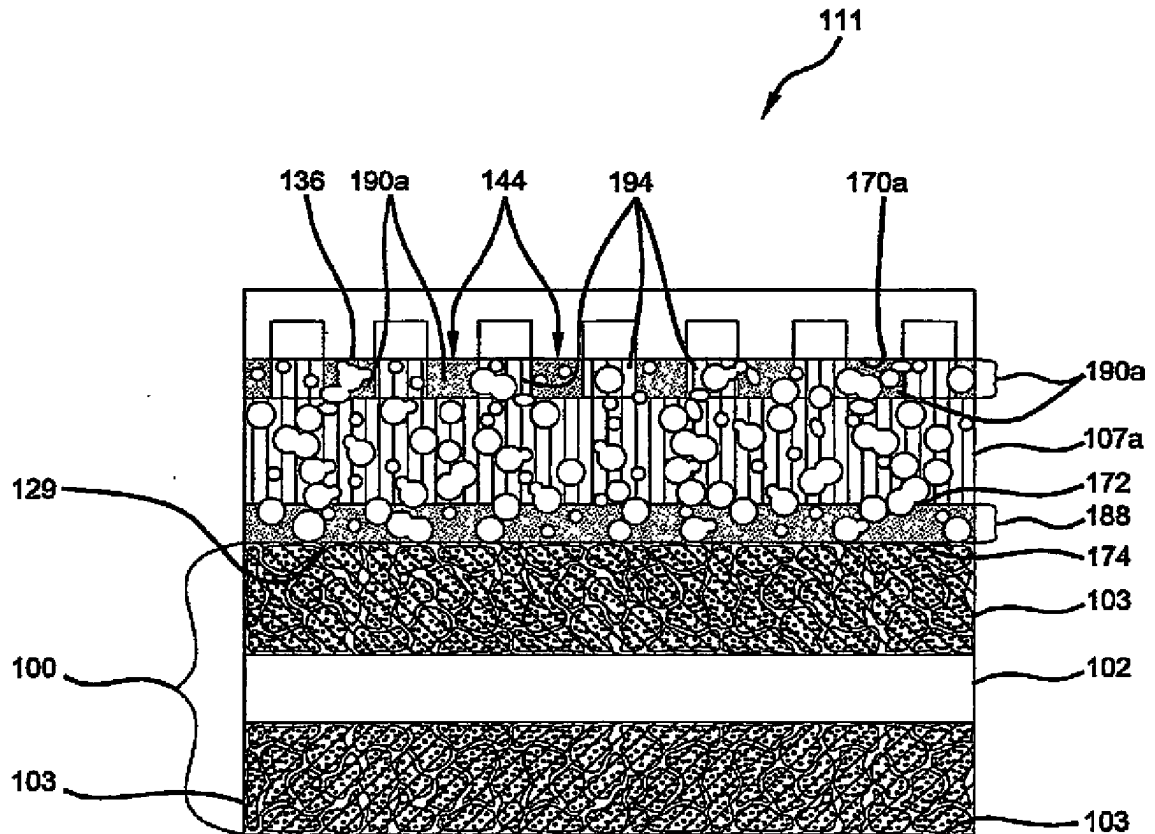


FIG 7

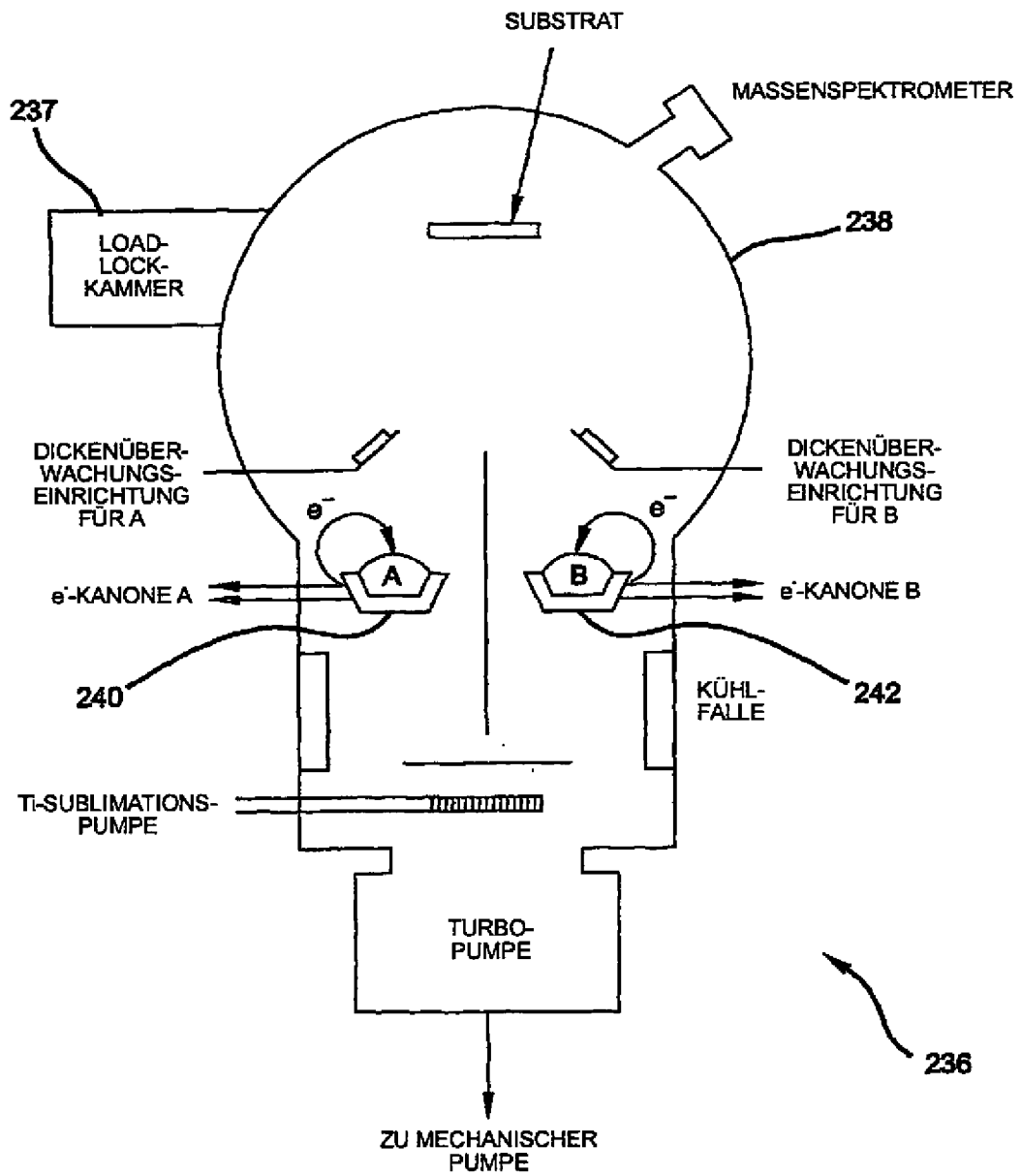


FIG 8



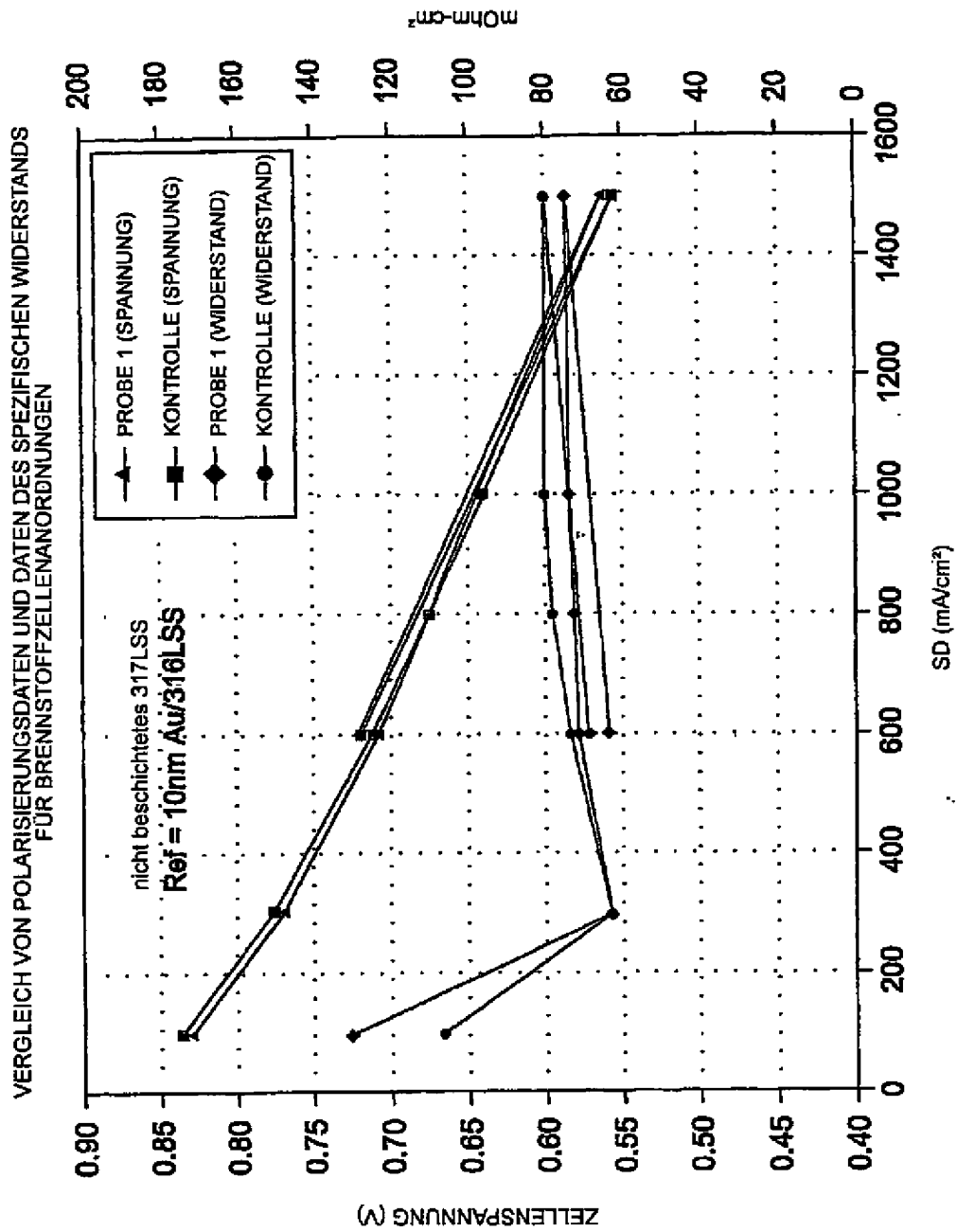


FIG 9

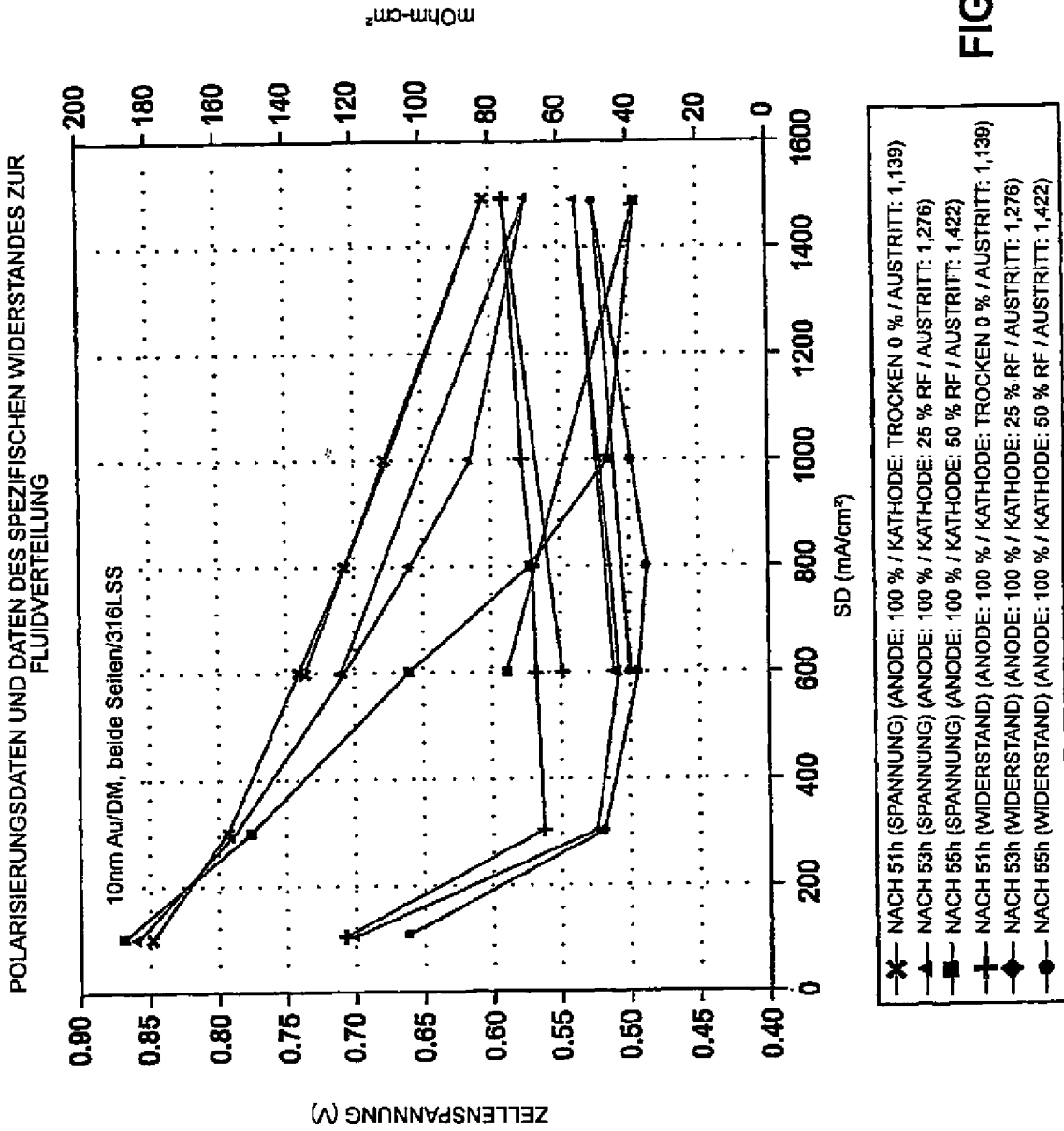


FIG 10