文章编号:1674-2974(2018)10-0030-08

PEMFC 密封胶接触压力的均匀性研究 及改善方法^{*}

张智明^{1,2†},胡淞^{1,2},李昆朋^{1,2},张云瀚^{1,2},杨代军^{1,2}

(1. 同济大学 汽车学院,上海 201804;2. 同济大学 新能源汽车工程中心,上海 201804)

摘 要:针对质子交换膜燃料电池密封胶接触压力分布均匀性的问题,采用 Fujifilm 公司的压力膜测试了 4 个单电池片数不同的电堆的密封胶接触压力分布,利用 MATLAB 中搭建的平台对测试结果可视化;并基于 Mooney-Rivilin 超弹性材料本构模型建立了密封胶平面和电堆截面的有限元模型;利用有限元模型,设计了带圆弧和圆环的密封胶平面结构参数;并给出了沿集成力方向利于接触压力均匀分布的不同层密封胶初始厚度修正值的计算方法.结果表明:单电池平面内密封胶接触压力的最大差值为 1.2 MPa;沿集成力方向,靠近端板处的密封胶接触压力较中间层数的大,且层数越多的电堆,处于同一层数的双极板与密封胶的接触压力越小;在接触面积一样时,加圆弧结构的密封胶在平面内的接触压力标准差 比原来结构的标准差小 41%,加圆环的比原来结构小 30%;对于不同层数电堆,密封胶初始厚度修正后的接触压力值均在最佳值附近.

关键词:燃料电池;密封胶;均匀性;超弹性模型;结构设计 中图分类号:TK91 **文献标志码**:A

Study on Uniformity of Contact Pressure of PEMFCs Sealant and Its Improvement Method

ZHANG Zhiming^{1,2†}, HU Song^{1,2}, LI Kunpeng^{1,2}, ZHANG Yunhan^{1,2}, YANG Daijun^{1,2}

(1. College of Automotive Studies , Tongji University, Shanghai 201804, China;

2. Clean Energy Engeneering Center of Automotive , Tongji University, Shanghai 201804, China)

Abstract: Aiming at improving the uniformity of sealant's contact pressure distribution for the proton exchange membrane fuel cells, the contact pressure distribution in the four stacks with different layers was tested using a Fujifilm pressure membrane. The test results were visualized by using the platform built in Matlab. Based on the Mooney-Rivilin super-elastic material constitutive model, finite element models of the sealant plane and the stack cross section were established, which were used to design the sealant structure with arcs and rings. Equations for correcting the initial sealant thickness were given in which the uniformity of contact pressure along the integrated force was improved. The results show that the maximum difference in the contact pressure of the sealant in the plane is 1.2 MPa. Along the integrated force, the contact pressure near the end plate is greater than that in the intermediate layers and the more layer results in the lower contact pressure at the same layer. When the contact area is the same, the standard deviation

* 收稿日期:2017-12-12

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51405334), National Natural Science Foundation of China(51405334);国家重点研发计划项目 (2016YFB0101320), National Key Research and Development Program of China(2016YFB0101320)

作者简介:张智明(1979-),男,辽宁辽阳人,同济大学讲师,博士

[†]通讯联系人, E-mail: zhangzm@tongji.edu.cn

of sealant pressure in plane with the arc structure is 41% less than that of the original structure, and the ring is 30% less than the original structure. For different layers of the stack, the contact pressure after correcting the initial thickness of the sealant maintains around the best. This study can provide a kind of sealing structure that maintains the consistent performance in the fuel cell stack.

Key words: fuel cell; sealants; uniformity; super-elastic model; structural design

目前,质子交换膜燃料电池(PEMFC)技术已经 取得重大进步,但是质子交换膜电池的性能、成本、 耐久性仍是制约其商业化的关键因素.在燃料电池 性能方面,集成力对燃料电池各部件的影响仍是制 约整堆性能提高的重要方面.作为集成力在电堆内 部最主要的承力和传力部件,密封胶的接触压力分 布主要影响燃料电池的气密性,并进一步影响燃料 电池的电化学性能^[1-2].

目前,国内外专门针对质子交换膜燃料电池密 封胶的接触压力研究还很少,但在普通密封胶圈的 有限元仿真及电堆内部接触压力分布两方面有一定 的进展.张智明等^[3]通过有限元方法分析了影响密 封胶密封性能的影响因素.陈占清等人^[4]利用有限 元分析软件 ANSYS 对 O 形橡胶密封圈在不同压 缩率下的接触压力分布进行分析;韩传军等^[5]则利 用 Abaqus 分析初始压缩率对矩形橡胶密封圈变 形、接触应力和等效应力的影响,并对密封圈形状做 了圆角优化.夏卫明等^[6]从高阶低阶单元的应用、网 格密度、接触刚度及接触算法、载荷步与载荷子步几 个方面对密封胶非线性计算收敛性问题进行了讨 论.

Banerjee 等人^[7]用实验的方式研究螺栓力矩及 扩散层材质对燃料电池性能的影响时,提到了密封 胶垫对接触压力的分布有影响,但没通过专门的试 验来验证. Ismail 等人^[8]研究了在集成力下,密封胶 压缩率对气体扩散层(GDL)力学行为的影响. Bates 等人^[9]对一个含 16 个单电池的电堆仿真时,得到靠 近端板的单电池及最中间的单电池各部件的最大压 力,结果表明密封胶垫是除端板外承受压力最大的 部件. Millichamp 等人^[10]指出密封胶厚度和压缩率 对 GDL 区域压力的分布有重要影响. 杨全勇等 人^[11]研究了一个单电池在不同密封胶厚度下,双极 板和 GDL 的接触情况以及极化曲线.

为研究质子交换膜燃料电池密封胶接触压力的 均匀性,本文通过实验和有限元仿真的方法分别得 到包含 50 片、70 片、90 片、110 片单电池的 4 个电 堆在集成力下内部的压力分布状态,发现了密封胶 在单电池平面以及沿集成力方向存在压力分布不一 致的现象,并对密封胶的平面结构和厚度进行改善 设计;改善密封胶压力分布的均匀性,从而提高膜电 极和双极板之间接触压力均匀性.

1 密封胶接触压力试验

1.1 试验准备

通过压力膜试验可对燃料电池电堆在集成力下 各部件压力分布展开研究.为了研究密封胶在集成 力下的接触压力分布规律,本节对不同层数(50 层、 70 层、90 层、110 层)电堆进行了压力膜试验.

由于每个电堆包含的单电池比较多,且有研究 表明^[12]:靠近端板的单电池接触压力大,中间位置 的单电池接触压力小,故本试验的压力膜在4个电 堆中的放置位置分布如下:50层电堆在电堆第1、2、 4、9、16、25层布置压力膜,70层电堆在此基础上增 加第35层布置压力膜,以此类推,每隔10层布置压 力膜.

1.2 压力膜接触压力量化处理方法

根据 Fujifilm 公司提供的压力膜温湿度特性以 及颜色密度与压强值对应曲线,可知 LLW 压力膜 的测量范围为 0.5~2.5 MPa,温度允许区间为 0~ 40 ℃.在得到密封胶的试验图片后,需将图片中红 色密度的高低转换成压强值,从而可以得出量化的 试验结果,本文中颜色密度与压力转换的过程如图 1 所示.

在 MATLAB 中可编程实现颜色密度与压力的 转换,并编写程序设计出可视化平台,如图 2 所示. 根据该可视平台可快速得到密封胶平面的压力分 布值.

1.3 试验结果及分析

图 3 中显示的是 4 个电堆第 2 层密封胶平面受 压后的压力膜结果,其他层结果类似.图 3(a)(c) (e)(g)是由试验直接得到的密封胶受压后压力膜的 图像,图 3(b)(d)(f)(h)是经可视化平台转换过的 密封胶压力分布图.





Fig. 1 Color density and pressure conversion flow chart of pressure sensitive paper



图 2 压力膜试验可视化界面 Fig. 2 Pressure sensitive paper experiment visualization interface



图 3 压力膜受压后第 2 层密封胶部分压力分布图 Fig. 3 The second layer sealants pressure distribution image after being pressed

由图 3(b)(d)(f)(h)可知,在装配力作用下,密

封胶平面内接触压力平均值和最大值相差较大,最

大差值为 1.2 MPa;说明密封胶接触压力存在不一 致分布,在螺栓紧固的位置以及密封胶拐角处均存 在应力集中现象.

图 3 只是针对不同电堆第 2 层密封胶接触压力 在单电池平面上的分布.根据压力膜量化处理方法, 可统计不同电堆不同层数的密封胶的平均接触压 力,从而得到不同节电池电堆内密封胶的接触压力 分布规律,如图 4 所示.

由图 4 可以看出密封胶的接触压力在集成力方向上存在不一致现象.对于同一电堆来说,随着节电池层数的增加,双极板与密封胶间接触压力略有下降,靠近端板处的密封胶接触压力比较大.这是由于螺栓装配力造成端板变形,从而增大电堆靠近端板处的密封胶接触压力.



图 4 不同层数电堆密封胶平均接触压力分布(试验结果) Fig. 4 The average contact pressure value of stack gaskets in different layers(experiment results)

从图 4 还可看出,对于包含不同层数的电堆,层 数越多的电堆,处于同一层数的双极板与密封胶的接 触压力越小;这是由于单电池片数越多,整堆的等效 刚度越大,密封胶与双极板总的接触面积也增加,在 同样的外部载荷下密封胶的变形和应力都会变小.

2 密封胶接触压力有限元仿真

实验中电堆层数较多,若采用三维有限元模型,则网格数量巨大,计算耗时长,不利于后续的优化设计.因此对电堆结构进行合理简化,建立二维电堆模型,将得到的仿真结果和试验结果比较,从而验证简化有限元模型的有效性,便于后续的优化.

2.1 密封胶模型及材料特性

由于采用的密封胶是硅橡胶,材料属性是超弹性的,密封胶的拉伸曲线如图 5 所示. Mooney-Rivlin 模型几乎可以模拟所有橡胶材料的力学行为,适 合于中小变形,一般适用于应变约 100% (拉伸)和 30%(压缩)的情况;常用的 Mooney-Rivlin 模型有 2、3、5及9参数模型,且较多参数的模型对于较大 应变的求解,可得到较好的近似^[13].文中密封胶的 压缩率为20%,所以考虑用2或3参数的 Mooney-Rivlin 模型,对应的应变能函数如下.

1)2 参数 Mooney-Rivlin 模型的应变能函数为:

$$W = c_{10}(\bar{I}_1 - 3) + c_{01}(\bar{I}_2 - 3) + \frac{1}{d}(J - 1)^2$$
(1)

式中: c_{10} 、 c_{01} 、d为常系数; \overline{I}_1 、 \overline{I}_2 为应变不变量; J为体积比.

2)3 参数 Mooney-Rivlin 模型的应变能函数为:

$$W = c_{10}(\bar{I}_1 - 3) + c_{01}(\bar{I}_2 - 3) + c_{20}(\bar{I}_1 - 3)^2 + \frac{1}{d}(J - 1)^2$$
(2)

式中: c_{20} 为常系数; \overline{I}_2 为应变不变量.

将密封胶的拉伸实验数据导入 ANSYS 中的 curve fitting 选项,求解出 Mooney-Rivlin 模型的常系 数并画出对应的拟合曲线.密封胶材料通过 Mooney-Rivlin 模型得到的拉伸拟合曲线如图 5 所示.



图 5 密封胶拉伸试验曲线及 Mooney-Rivlin 模型拟合曲线 Fig. 5 Sealants tensile test curve and Mooney-Rivlin model fitting curve

根据图 5 发现 3 参数 Mooney-Rivlin 模型与试 验曲线更加一致,所以密封胶仿真的材料属性采用 3 参数的 Mooney-Rivlin 模型. 常系数 $c_{10} = 0.366$ 、 $c_{01} = 0.011$ 、 $c_{20} = 0.284$, d = 0. 仿真中其他部件的材料属性参数见表 1.

	表1 电堆主要结构部件材料属性参数
Tab. 1	Material properties of the main structural components in the stack

	石墨双极板	膜电极	密封胶	端板(铝合金)
弹性模量/MPa	13 000	6 080	超弹性材料,由3参数的 Mooney-Rivilin 模型获得.其线性近似值为5	70 000
泊松比	0.21	0.33	0.49	0.3
摩擦因数(与密封胶接触)	0.68	_	-	_

2.2 单电池全尺寸密封胶接触压力分布

建立密封胶在单电池平面内的全尺寸密封胶有 限元模型来分析燃料电池双极板和密封胶之间的接 触压力分布情况.由于研究针对密封胶受力分析,可 忽略双极板脊背对密封胶接触压力分布的影响,故 双极板模型简化为平板,密封胶尺寸为137 mm× 245 mm×0.65mm,建立双极板-密封胶几何模型和 网格化后的有限元模型如图6所示.



图 6 密封胶有限元模型 Fig. 6 Finite element model of sealants

与压力膜试验结果(图 7(a))对比,数值仿真结 果(图 7(b))中应力集中的地方是一致的,且应力的 均值均在 1.6 MPa 左右,说明了该平面全尺寸密封 胶模型可以用来分析密封胶接触压力在平面的分布 情况.试验结果测得的最大压力比仿真结果小是因 为试验采用的压力膜量程为 0.5~2.5 MPa,但从图 7(b)看出测试区域有很小部分超出量程.从图 7(b) 中可看出在螺栓紧固式电堆的密封胶平面上,离布 置螺栓位置较近的区域应力相对其他地方更大,产 生应力集中,其中拐角处应力集中尤为显著.





2.3 电堆密封胶接触压力分布

建立二维电堆模型来分析密封胶接触压力在集成力方向上的分布情况.为简化模型离散化过程,端板为矩形,双极板为梯形直流道,密封胶采用半圆形截面.建立电堆的 1/4 有限元模型如图 8 所示,含有15 片单电池;由于本文的模型是通过 APDL 参数化建立的,对于 50 层、70 层、90 层、110 层电堆通过修改参数即可实现.



图 8 电堆二维模型(1/4 模型) Fig. 8 2D finite element model of stack (quarter model)

最终统计出电堆每一层双极板和密封胶的平均 接触压力,得到如图9所示的结果.对比图9和图4 可发现,由电堆二维模型得到的沿螺杆集成力方向 的密封胶接触压力分布情况同试验是一致的;所不 同的是在图4中,处于第1层和最中间层之间的单 电池接触压力有些波动,而图9中的仿真结果则比 较平稳;这是由于仿真能保证每层都是用同一属性 的材质和同一厚度的密封胶,而实际电堆则可能出 现微小差异,从而造成压力分布的波动.所以用图8 所示的双极板-密封胶模型来研究密封胶接触压力 在集成力方向上的接触压力是可行的.



图 9 不同层数电堆密封胶接触 压力分布(仿真结果) Fig. 9 The sealants contact pressure values of stacks with different layers under the same load(simulation results)

3 密封胶接触压力均匀性改善方法

3.1 密封胶平面结构改善

为提高密封胶接触压力在平面内的均匀性,降 低试验和数值仿真中出现的应力集中,增大密封胶 受力接触面积,在燃料电池密封胶结构设计上,对密 封胶应力集中处分别加圆弧和圆环进行处理.通过 设计圆弧和圆环的半径,使得 2 种方案的接触面积 大小一致.密封胶平面结构改善部分的尺寸如图 10 所示,未标注尺寸的部分与改善前的保持一致.



图 10 改善后的密封版平面结构及尺寸(单位:mm) Fig. 10 Improved sealant 2D structure and size

为了更直观地对比结构改善前后压力分布的优 劣,将密封胶根据结构划分为12个区域来评估密封 胶的接触压力均匀性.根据数值仿真模型分别求出 各个区域压力的标准差,如图11所示.



图 11 改善前后密封胶各区域接触压力标准差直方图 Fig. 11 Sealants contact pressure variance across the region before/after improved

由图 11 可知,加圆弧和圆环的密封胶结构都可 以改善应力集中,使密封胶受力更加均匀.在两种结 构接触面积一样时,加圆弧的密封胶结构接触压力标准差比原来结构的标准差小41%,加圆环的密封胶结构接触压力标准差比原来结构的标准差小30%,所以加圆弧的效果优于加圆环.

3.2 密封胶初始厚度修正

由于密封胶结构可以改变其在电堆内的接触压 力分布,为使电堆接触压力在集成力方向上趋于一 致,可以通过改变每层密封胶初始厚度进行匹配.

对于同一型号的单电池,封装后的密封胶厚度 相同.为了使不同层数的电堆都得到最优接触压力, 对密封胶的初始高度进行修正.修正量可根据下列 公式计算:

$$\Delta \sigma_n = \frac{\int P_{ni} \,\mathrm{d}s - \int P_0 \,\mathrm{d}s}{S_n} \tag{3}$$

$$\Delta \sigma_n = \frac{\bar{P}_n S_n - P_0 S_n}{S_n} = \bar{P}_n - P_0 \tag{4}$$

式中: \bar{P}_n 为第n层密封胶的平均接触压力.

设 $\sigma_0 < \Delta \sigma_n < \sigma_1$,对应的应变为 $\varepsilon_0 \ \Delta \varepsilon_n \ \varepsilon_1$,利用 图 5 的密封胶拉伸实验曲线进行线性插值,得到第 n 层密封胶厚度修正量为:

$$\Delta \varepsilon_n = \frac{\Delta \sigma_n - \sigma_1}{\sigma_0 - \sigma_1} \varepsilon_0 + \frac{\Delta \sigma_n - \sigma_0}{\sigma_1 - \sigma_0} \varepsilon_1$$
(5)

则修正后的密封胶初始厚度为:

 $\bar{h}_0 = h_0 \pm \Delta \varepsilon_n \tag{6}$

式中:h₀为修正前的密封胶初始厚度;h₀为修正后的 密封胶初始厚度.

根据式(4)~式(6)和图 9的仿真结果可得到不同层数电堆修正后的密封胶初始厚度,如图 12 所示.考虑密封胶加工工艺,可将整个电堆分为两部分进行密封胶厚度修正.前四层修正后的密封胶初始厚度为:

$$\bar{h}_{0(n\leqslant 4)} = \frac{\bar{h}_{01} + \bar{h}_{04}}{2} \tag{7}$$

式中: \bar{h}_{01} 为第1层密封胶修正后的初始高度; \bar{h}_{04} 为第4层密封胶修正后的初始高度.

对于大于 4 层的密封胶,从图 12 可看出修正量 比较一致,所以当 *n*>4 时,密封胶初始厚度取图 12 曲线上第 *n*/2 处的值.根据上述方法,可得到 50、 70、90、110 层电堆密封胶修正后的初始厚度,见表







表 2 修正后的电堆密封胶初始厚度值 Tab. 2 Stack sealant initial thickness after correction

t. 10 Mz ml		\overline{h}_0 ,	/mm
电堆类别	h_0 /mm	$n \leqslant 4$	$n \ge 4$
50 层电堆		0.612	0.614
70 层电堆	0.640	0.638	0.640
90 层电堆	0.640	0.658	0.660
110 层电堆		0.668	0.669

按上述方法修正密封胶厚度后,对有限元模型 重新进行仿真,并统计不同层数电堆在各个接触面 上的平均接触压力,得到结果如图 13 所示.从图 13 可发现经过分模块修正后的密封胶厚度设计更有利 于接触压力的均匀性分布,且所有层密封胶的接触 压力值都在 1.165 MPa 附近.针对密封胶厚度修正 的方法可提高电堆内接触压力分布均匀性.



4 结 论

1)PEMFC 密封胶受到的接触压力在单电池平 面存在分布不一致现象,最大差值达1.2 MPa,并且 应力集中主要发生在紧固螺栓区域附近.

2)在密封胶平面加圆弧或圆环增大密封胶受力 面积的方法,能降低密封胶平面内接触压力的应力 集中现象,且圆弧效果优于圆环.

3)沿电堆集成力方向分层设计密封胶初始高度,有利于提高整个电堆密封胶接触压力分布的均匀性.

参考文献

- YE D H, ZHAN Z G. A review on the sealing structures of membrane electrode assembly of proton exchange membrane fuel cells[J]. Journal of Power Sources, 2013, 231(13): 285-292.
- [2] 叶东浩,詹志刚,汪广进,等. 低温燃料电池用质子交换膜的气体渗透性研究[J]. 湖南大学学报(自然科学版),2013,40(3): 71-75.

YE D H,ZHAN Z G,WANG G J,*et al.* Effect on the gas permeation of proten exchange membranee in low-temperature PEMFCs[J]. Journal of Hunan University(Natural Sciences), 2013,40(3):71-75. (In Chinese)

- 【3】张智明,张娟楠. PEMFC 金属双极板密封设计的有限元仿真
 [J].中国科技论文,2017,12(16):1895-1901.
 ZHANG Z M,ZHANG J N. Finite element method modeling on sealant design of PEMFC metal bipolar plate[J]. China Sciencepaper,2017,12(16):1895-1901. (In Chinese)
- [4] 陈占清,詹永麒,朱昌明. 压缩率对 O 形橡胶密封圈密封性能的影响[J]. 流体传动与控制,2007(2):46-48.
 CHEN Z Q, ZHAN Y Q, ZHU C M. Effects of compressive rate on sealing characteristic of O-ring[J]. Fluid Power Transmission and Control,2007(2):46-48. (In Chinese)
- [5] 韩传军,张杰.矩形橡胶密封圈的有限元分析及优化[J].橡胶 工业,2013,60(2):98-103.

HAN C J,ZHANG J. Finite element analysis and optimization of rectangle rubber seal[J]. Rubber Industry, 2013, 60(2):98 -103. (In Chinese)

- [6] 夏卫明,骆桂林,嵇宽斌. 橡胶结构有限元分析收敛问题的对策
 [J]. 机械设计与制造,2013,85(7):265-268.
 XIA W M,LUO G L,JI K B. Countermeasures of the convergence problems in rubber structure's FEA[J]. Machinery Design & Manufacture,2013,85(7):265-268. (In Chinese)
- BANERJEE R, HINEBAUGH J, LIU H, et al. Heterogeneous porosity distributions of polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layer materials with rib-channel compression[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2016, 41 (33): 14885-14896.
- [8] ISMAIL M S, HASSANPOUR A, INGHAM D B, et al. On the compressibility of gas diffusion layers in proton exchange membrane fuel cells[J]. Fuel Cells, 2012, 12(3); 391-397.
- [9] BATES A, MUKHERJEE S, HWANG S, et al. Simulation and experimental analysis of the clamping pressure distribution in a PEM fuel cell stack[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2013, 38(15):6481-6493.
- [10] MILLICHAMP J, MASON T J, NEVILLE T P, et al. Mechanisms and effects of mechanical compression and dimensional change in polymer electrolyte fuel cells: A review[J]. Journal of Power Sources, 2015, 284(15): 305-320.
- [11] 杨全勇,余意,詹志刚.密封层厚度对国产材料燃料电池性能影响[J].电池工业,2011(3):172-175. YANG Q Y,YU Y,ZHAN Z G. Effects of gasket thickness on the performance of PEMFC with domestic materials[J]. Chinese Battery Industry,2011(3):172-175. (In Chinese)
- [12] ALIZADEH E, BARZEGARI M M, MOMENIFAR M, et al. Investigation of contact pressure distribution over the active area of PEM fuel cell stack[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2016, 41(4); 3062-3071.
- [13] 张庆余,张洪伟,高相胜. ANSYS 非线性有限元分析方法及范 例应用[M].北京:中国水利水电出版社,2013:105-111.
 ZHANG Q Y,ZHANG H W,GAO X S. Nonlinear finite element analysis method and application by ANSYS[M]. Beijing: China Water Conservancy and Hydropower Press,2013:105-111. (In Chinese)