



(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2012 00684**

(22) Data de depozit: **26/09/2012**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30/03/2018** BOPI nr. 3/2018

(41) Data publicării cererii:
30/04/2014 BOPI nr. 4/2014

(73) Titular:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU
TEHNOLOGII CRIOGENICE ȘI IZOTOPICE**
- **ICSI RÂMNICU VÂLCEA, STR.UZINEI
NR.4, OP RÂURENI, CP.7, RÂMNICU
VÂLCEA, VL, RO**

(72) Inventatori:
• **PĂTULARU LAURENȚIU GABRIEL,**
BD. TINERETULUI NR. 10, BL. B5, SC. B,
AP. 18, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;

• **SCHITEA DORIN MARIUS,**
STR. LIBERTĂȚII NR. 1A,
RÂMNICU-VÂLCEA, VL, RO;
• **VARLAM MIHAI, STR. V.OLĂNESCU**
NR. 14, BL.C10, SC.B, ET.1, AP.13,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;
• **ȘTEFĂNESCU IOAN,**
BD.NICOLAE BĂLCESCU NR.4,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;
• **MARINOIU TEODORA- ADRIANA,**
STR. TUDOR VLADIMIRESCU NR. 93,
BL. K, SC. A, AP. 5, RÂMNICU-VÂLCEA, VL,
RO

(56) Documente din stadiul tehnicii:
US 6495278 B1; US 5230966;
RO 123422 B1

(54) **PROCEDEU DE REALIZARE A PLĂCILOR BIPOLARE
CU SISTEM DE RĂCIRE DE TIP LICHID INCLUS
PENTRU ANSAMBLURILE DE PILE DE COMBUSTIBIL PEM**



Invenția se referă la un procedeu de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire de tip lichid pentru ansamblurile de pile de combustibil tip PEM de medie și mare putere, ce lucrează la densități mari de curent. Pilele de combustibil de tip PEM au plăci bipolare din materiale grafitice, care au integrat un sistem de răcire maximizat din punct de vedere electric, termic și spațial.

Se cunosc soluții de realizare a plăcilor bipolare care conțin și circuit de răcire tip lichid. În brevetul de invenție **US 5230966**, sistemul de răcire este compus dintr-un ansamblu de 2 plăci etanșate între ele prin intermediul unei garnituri profilate, situate într-un canal ce cuprinde zona de circulație a lichidului de răcire. Același principiu se evidențiază și în cererea de brevet a **2010 00289**.

De asemenea, din **US 6495278 B1** se cunosc celule combustibile și ansambluri de celule combustibile suprapuse, unite prin straturi de adeziv.

Un dezavantaj al acestor soluții îl reprezintă utilizarea suplimentară a elementelor de etanșare, pentru a căror deformare este necesară o forță de compresiune suplimentară, ce se adaugă la aceea de deformare a elementelor de etanșare de la nivelul membranelor polimerice. În plus, realizarea profilelor pentru canalele de etanșare scade rigiditatea plăcilor formate (în special cele grafitice), duce la creșterea prețurilor de producție și la creșterea probabilității de apariție a neetanșeităților. Un alt dezavantaj îl reprezintă numărul mai mare de subansambluri, ce mărește timpul necesar asamblării.

O altă soluție de realizare a plăcii bipolare este prezentată în brevetul **RO 123422 B1**, în care realizarea comunicației între canalul general de hidrogen, respectiv oxigen, și canalele zonei anodice, respectiv catodice, se face prin găuri executate în grosimea plăcii bipolare. Această soluție, deși este aplicabilă, se poate utiliza doar pentru ansambluri de mică putere, unde sunt implicate debite mici ale gazelor ce trec prin găurile din grosimea plăcii.

Acest neajuns poate fi înlăturat doar prin mărirea grosimii plăcilor de grafit, ceea ce duce la următoarele dezavantaje:

- rezistențe electrice crescute și volume mai mari ale produsului finit;
- costuri materiale suplimentare.

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția prezintă următoarele aspecte:

- crearea unui ansamblu electro-termo conductor compact, cu sau fără un profil pneumatic al gazelor de reacție, stabilit pe suprafețele plăcilor și prin interiorul acestora;
- o răcire eficientă și uniformă a pilelor din componența ansamblului;
- permite managementul energiei termice în exces și posibilitatea de utilizare a acesteia în sisteme integrate de cogenerare, crescând eficiența sistemului;
- oferă un număr minimal de componente ce intră în construcția ansamblului de pile.

Invenția se referă la o un procedeu de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire pentru pilele de combustibil de tip PEM, în care placa bipolară se obține prin lipirea definitivă, cu un ciment grafitic electroconductor, a două semiplăci care conțin zona anodică și zona catodică, și canale specifice pentru agentul de răcire, urmată de un tratament termic pentru întărirea cimentului grafitic.

Soluția tehnică se realizează prin lipirea a două semiplăci cu un ciment grafitic de compoziție proprie, cu rol de adeziv și etanșant, având proprietăți electrice și termice superioare semiplăcilor, depus în strat controlat, situat la interfața superioară a semiplăcilor de lipit.

Procedeu de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire de tip lichid, inclus pentru ansamblurile de pile de combustibil PEM, oferă posibilitatea obținerii următoarelor avantaje:

- maximizează eficiența energetică la nivelul fiecărui ansamblu de pile construit, prin:
 - a) micșorarea numărului de pile din componența unui ansamblu de pile la aceeași putere dată prin mărirea suprafeței active electrocatalitice; b) valoare minimală a rezistenței ohmice dată de contactul dintre cele 2 semiplăci, datorită contactului electric intim, realizat de lipirea cu un adeziv cu o conductivitate electrică superioară plăcii în sine;

- versatilitate crescută în stabilirea soluției tehnice pentru dimensionarea sistemului de răcire pentru un domeniu stabilit de putere termică și electrică;	1
- oferă posibilitatea reutilizării plăcii bipolare, datorită duratei de viață net superioară a cimentului grafitic utilizat la realizarea acestora, în comparație cu durata de viață a membranelor polimerice și a garniturilor de etanșare, utilizate actual;	3
- soluție ieftină de obținere a plăcilor bipolare, prin utilizarea unui singur component pentru lipire și etanșare: ciment grafitic cu preț redus, depus în strat de grosime controlată prin metode clasice;	5
- versatilitate crescută în stabilirea soluției tehnice pentru alegerea sistemului de etanșare de la nivelul membranelor polimerice fie cu garnituri plane, cu inele tip O, sau prin injecția în profile a unor materiale etanșante;	7
- elimină utilizarea unor elemente de etanșare suplimentare pentru traseul de răcire, micșorând astfel forța axială totală, necesară străngerii întregului ansamblu;	9
- reduce la minimum suprafețele de contact necesare etanșării agentului de răcire, prin utilizarea cimentului grafit cu densitate mare și grad scăzut de permeabilitate, și, implicit, crește raportul densității de energie, raportat la volum și masă;	11
- crește rigiditatea plăcilor bipolare prin utilizarea cimentului grafitic de înaltă duritate ca element adeziv/etanșant, permițând și creșterea forțelor de compresie de-a lungul ansamblului;	13
În continuare, sunt prezentate fig. 1 și 2, care prezintă:	15
- fig. 1, secțiune transversală prin placa bipolară formată, cu ilustrarea stratului de ciment grafitic, a canalizației interne aferente sistemului de răcire și de distribuție a gazelor reactante;	17
- fig. 2 reprezintă imaginea desfășurată a celor 2 semiplăci ce formează placa bipolară, precum și poziția de îmbinare.	19
În continuare, este prezentat în mod detaliat obiectul invenției.	21
O pilă de combustibil reprezintă un dispozitiv ce transformă energia chimică a unui combustibil (de regulă hidrogenul) și a unui oxidant (de regulă oxigenul pur sau concentrat în aer) în energie electrică de mare densitate, energie termică și apă. Elementul esențial al unei pile de combustibil îl reprezintă membrana schimbătoare de protoni, ce reprezintă un polimer cu proprietăți protonice selective și 2 electrozi suprapuși pozițional de-o parte și de alta a polimerului.	23
În contact cu stratul de catalizator al anodului, hidrogenul alimentat se disociază în protoni și electroni; protonii traversează grosimea polimerului în timp ce electronii parcurg circuitul electric exterior, circuit care se închide electric în zona catodului. Aici, moleculele de oxigen reacționează cu protonii și electronii din circuitul exterior, formând apă și energie termică.	25
Gazele reactante "spală" separat electrozii corespunzători unei pile, prin intermediul unor canalizații de diferite configurații, realizate pe suprafețele laterale ale plăcilor de grafit.	27
Dat fiind faptul ca puterea generată de o pilă singulară nu poate fi utilizată pentru acționările electrice uzuale, se impune constructiv legarea în serie (cea mai utilizată schemă) sau paralel a mai multor pile formând ansamblul de pile de combustibil. În cazul legării în serie a pilelor de combustibil se utilizează termenul de placă bipolară, ce reprezintă un ansamblul electro-termo-conductor din diferite materiale metalice sau grafitice, ce acționează ca distribuitor de gaz în zonele anodice și catodice alăturate, colectează și conduce curentul electric de la anod spre catodul alăturat.	29
În cazul în care ansamblurile de pile lucrează la densități mari de curent, se generează temperaturi ce devin periculoase ireversibil pentru membrana polimerică. De regulă, acestea rezistă până la 75...80°C, și de aceea este necesară o răcire bine controlată în acest domeniu și o distribuție uniformă, la nivelul fiecărei suprafețe electrocatalitice a membranei polimerice.	31

Pentru a putea fi integrate în sisteme energetice eficiente, ansamblurile de pile de combustibil trebuie să prezinte caracteristici energetice și constructive optimizate (densități de energie raportate la volumul și masa ansamblului de pile), și de aceea plăcile bipolare prezintă o importanță deosebită: ocupă 90% din volumul unui ansamblu de pile și aproximativ 80% din masa acestuia, mai ales când sunt fabricate din materiale grafitice.

Se știe că grafitul prezintă proprietăți anisotropice în structura sa, adică este caracterizat de valori diferite ale conductivității electrice și termice în structura cristalină, "în plan" și "prin plan", cu valori mai mari fiind pentru conducția "în plan". Ținând cont de aceste proprietăți specifice, se evidențiază necesitatea utilizării unor plăci bipolare cât mai subțiri, ale căror căi de curent să fie cât mai scurte, utilizând conducția electro-termică cea mai favorabilă. Pentru obținerea acestor deziderate, sunt preferate sistemele de răcire de tip lichid, datorită proprietăților termice ale acestora, care sunt cu câteva ordine mai mari față de cele ale gazelor (căldură specifică, conductivitate termică);

Se prezintă, în continuare, un exemplu de realizarea procedurii de obținere a plăcilor bipolare cu sistem de răcire de tip lichid inclus pentru ansamblurile de pile de combustibil PEM, care cuprinde următoarele etape:

1) pregătirea suprafețelor plane superioare de lipit **12** și **13**, corespunzătoare semiplăcilor de lipire **1** și **2** prin îndepărtarea substanțelor în exces prin procedee de finisare mecanică în sine cunoscute;

2) amestecarea într-un raport masic de 1:1 până la 1:5, la temperatura camerei a celor două materii prime utilizate:

a) pulbere grafitică cu granulație cuprinsă între 0,2 μm și 58 μm ;

b) liant din gama compușilor heterociclici din clasa rășinilor epoxidice de tipul oxiranilor.

3) adezivul obținut, cu o vâscozitate cuprinsă între 1200 cP și 70000 cP, se depune prin raclare de precizie pe suprafețele plane superioare de lipit **12** și **13**, de grosime 15...70 μm , în funcție de rugozitatea suprafețelor;

4) suprapunerea semiplăcilor **1** și **2**, utilizând ghidajele montate în cele 4 găuri de centrare **14**;

5) aplicarea unei forțe de compresiune de 10...50 kN, distribuită uniform pe suprafețele exterioare **15** și **16**;

6) îndepărtarea cimentului grafitic depus în exces pe exteriorul plăcii;

7) aplicarea unui tratament termic la temperaturi cuprinse între 100 și 150°C, pe o perioadă de timp cuprinsă între 1 și 7 h, a întregului ansamblu, pentru realizarea lipirii definitive și etanșării suprafețelor plane superioare de lipit;

8) după lipirea definitivă, se formează canalele de răcire **8**, canalele de distribuție **17** ale sistemului de răcire, precum și canalele interne de gaze **4** și **5**, ce fac parte din sistemul de alimentare **9** și **10**.

- | | |
|---|----------------|
| | 1 |
| 1. Procedeul de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire inclus, pentru pilele de combustibil tip PEM, caracterizat prin aceea că placa bipolară se obține prin lipirea definitivă, cu ciment grafitic electroconductor (3), a două semiplăci (1 și 2) ce conțin zona anodică (6) și zona catodică (7), și canale specifice (8) pentru agentul de răcire, urmată de un tratament termic pentru întărirea cimentului grafitic. | 3
5
7 |
| 2. Procedeul de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire inclus, pentru pilele de combustibil tip PEM conform revendicării 1, caracterizat prin aceea că tratamentul termic necesar întăririi cimentului grafitic (3) cu rol de adeziv și de etanșare, localizat pe suprafețele plane superioare (12 și 13) de contact ale semiplăcilor (1 și 2), are loc într-un interval de temperatură cuprins între 100 și 150°C. | 9
11 |
| 3. Procedeul de realizare a plăcilor bipolare cu sistem de răcire inclus, pentru pilele de combustibil tip PEM conform revendicării 1, caracterizat prin aceea că , înainte de a fi întărit în domeniul de temperatură 100...150°C, cimentul grafitic (3) este sub forma unei emulsii cu o vâkozitate cuprinsă între 1200 cP și 70000 cP, care conține un compus heterociclic de tipul oxiranilor și o pulbere grafitică cu puritate ridicată și granulație între 0,2 μm și 58 μm, și este depus pe semiplăci cu o grosime cuprinsă între 15 și 70 μm. | 13
15
17 |

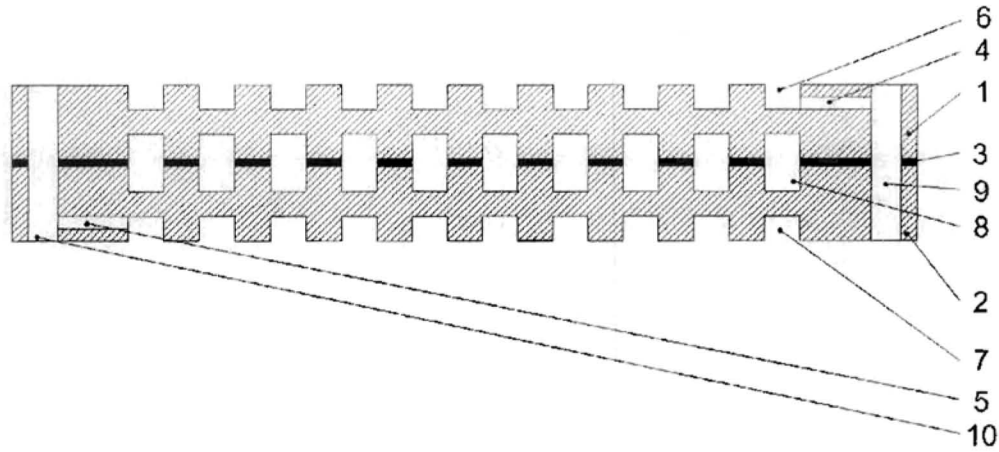


Fig. 1

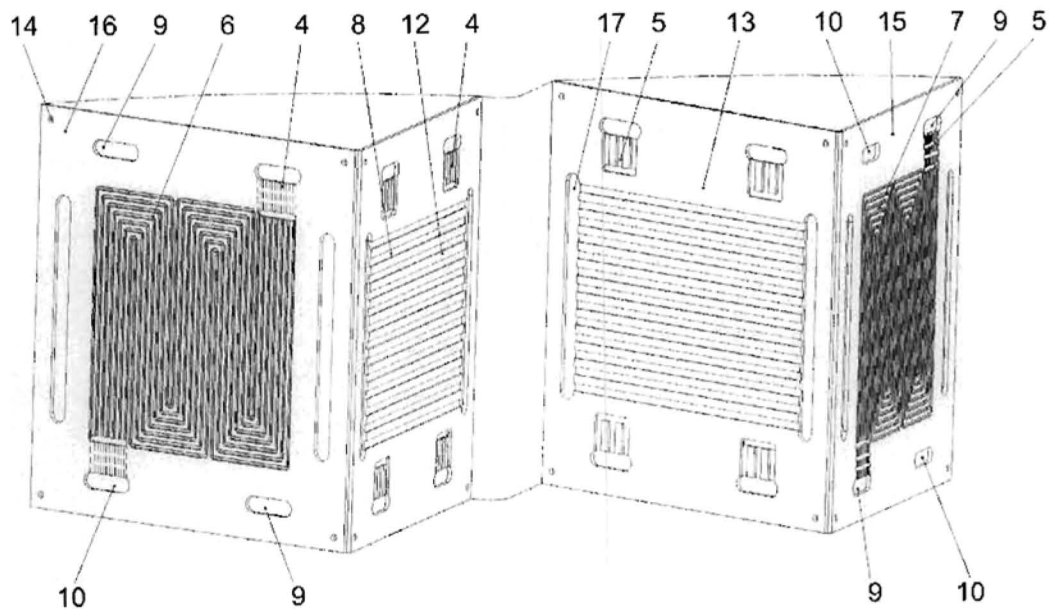


Fig. 2

