



Optimization of Characteristics and Construction of Composite Bipolar Plates of Polymer Fuel Cells

M. Mohammadzadeh Rad¹, M. Ghadimi^{2*}, M. Momenifar²

¹ Department of Mechanical Engineering, Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran

² Northern Research Center for Science and Technology, Malek Ashtar University of Technology, Fereidounkenar, Iran

ABSTRACT: This study investigates the construction of polymer/graphic composite bipolar plates via hot compression molding for use in polymer fuel cells and the optimization of characteristics by experimental test design. For this purpose, the Minitab software is used. Besides, this study examined the physical, mechanical, and electrical characteristics of the constructed bipolar plates by performing the tests of water absorption, calculation of density, the test bending strength, interfacial contact resistance, and electrical conductance. The pressure and the curing time were considered as the input parameters of the optimization, and the goal is to optimize the flexural strength and interfacial contact resistance to achieve the United States Department of Energy's 2020 target for the bipolar plates of polymer fuel cells. The results show that with a pressure of 79.499 MPa and the curing time under pressure was 70s, the parameters of flexural strength and optimum interfacial contact resistance are 53.91 MPa and 10.57 mΩ.cm², respectively. The properties also include water absorption and electrical conductivity in the through-plane direction of 0.36 percent and 27.22 (S/m) respectively, which is in line with the goals of the United States Department of Energy.

Review History:

Received: Nov. 24, 2021

Revised: Apr. 26, 2022

Accepted: Apr. 27, 2022

Available Online: May, 10, 2022

Keywords:

Compression molding

Polymer fuel cell

Composite bipolar plates

Optimization

1- Introduction

A fuel cell is an electrochemical device that converts the chemical energy of a fuel into electrical energy without combustion. Bipolar plates are the main components of polymer membrane fuel cells that have several functions. Poor mechanical properties of graphite, corrosion problems in metal plates, and the high cost of coating have attracted the attention of many manufacturers and researchers to composite bipolar plates.

In this study, composite bipolar plates were investigated and used Bulk Molding Compound/Composite for the construction of bipolar plates, called BMC. The samples were fabricated based on the experimental design by Minitab software. Then the experimental results of the physical, mechanical, and electrical properties of the bipolar plates made of polymer/graphite composite were discussed. Finally, by optimizing the results of flexural strength and Interfacial Contact Resistance (ICR) and aiming to reach the standards of the US Department Of Energy (DOE) in 2020, the ideal parameters for the construction of composite bipolar plates were obtained.

2- Materials and Composite Preparation

At this stage, according to the range proposed by the powder company for molding bipolar plates [1], the range

of main parameters was determined. Then, the conditions for making composite bipolar plates were investigated by designing a central composite experiment in the face center at 5 levels in the period between 5.68-70 seconds and a pressure of 48.7-91.2 MPa, and 13 composite bipolar plates were molded. Finally, the tests required to evaluate the properties of the plates were determined in accordance with the optimal target of the US Department of Energy 2020 (DOE) [2]. Water absorption percentage was obtained by means of Eq. (1) according to the ASTM D570 standard [3].

$$\text{Water absorption \%} = \left(\frac{W - D}{D} \right) \times 100 \quad (1)$$

Flexural strength in accordance with the standard ASTM D790 by Eq. (2) done [4].

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bd^2} \quad (2)$$

In this study, electrical conductivity was measured only in the Through-plane according to Eqs. (3) and (4).

*Corresponding author's email: mghadimi@mut.ac.ir



$$\rho = \frac{R}{L}A \tag{3}$$

$$\sigma = 1 / \rho \tag{4}$$

Interfacial contact resistance test between two layers of the gas diffusion layer and two copper plates with gold coating and the contact resistance between the levels will be calculated by the following Eqs. (5) to (8) [5].

$$R_1 = 2R_{GDL} + 2R_{cu} + R_{BP} + 2R_{GDL/BP} + 2R_{GDL/cu} \tag{5}$$

$$R_{GDL/BP} = \frac{1}{2}(R_1 - 2R_{GDL} - 2R_{cu} - R_{BP} - 2R_{GDL/cu}) \tag{6}$$

$$R_2 = 2R_{cu} + R_{GDL} + 2R_{GDL/cu} \tag{7}$$

$$R_{GDL/BP} = \frac{1}{2}(R_1 - R_2) \tag{8}$$

3- Results and Discussion

The densities obtained in some samples were slightly lower than the densities provided by the material manufacturer. Part of this difference was due to the difference in the density of the uncured powder and the curing material. The water absorption amount in sample number 12 was 0.36%, which compared to other samples indicates better curing conditions and quality of this sample in terms of this physical property. The optimal amount of water absorption in the energy department for composite bipolar plates is reported to be less than 0.1%.

Table 1. Test results for fabricated samples

Samples	ICR (mΩ.cm2)	Flexural strength (MPa)	Density (gr/cm ³)	Water absorption (%)
1	11.85	52.05	1.91	0.68
2	9.87	53.42	1.88	0.72
3	15.17	43.20	1.67	0.63
4	11.96	42.27	1.74	0.63
5	15.84	38.32	1.59	0.57
6	10.36	50.82	1.92	0.78
7	11.34	47.55	1.66	0.61
8	14.37	44.82	1.89	0.49
9	11.37	48.82	1.90	0.59
10	11.87	48.47	1.80	0.41
11	11.80	47.92	1.69	0.53
12	10.57	53.91	1.86	0.36
13	12.96	43.55	1.63	0.59

The value of flexural strength according to DOE 2020 should be more than 25 MPa. The results were obtained for the samples prepared in the same range and the flexural strength of sample 12 was 53.91. The electrical conductivity was obtained in the direction of the through-plane of sample 12, 27.22 (S/m), which is in the acceptable range. ICR between the surfaces of bipolar plates and the gas diffusion layer is one of the most important features of bipolar plates and even more important than the electrical conductivity of plates. For this purpose, the interfacial contact resistance behavior of the plates was investigated. Most specimens correspond to DOE 2020 optimal targeting that the ICR of the specimens should be at a pressure of 1.38 less than 10 mΩ.cm² and the ICR of the specimens is approximately close to this range. Even sample 2 was less than this value. The ICR of sample 12 at pressures of 1.38 MPa was 10.57 (mΩ.cm²), respectively, indicating a favorable bond between conductive particles. The electrical conductivity in the direction of the through-plane in sample 12 was 27.27 (S/m).

In this part of the article, the results were optimized in Minitab software. As mentioned in the design of the experiment, in order to extract a better model and find the maximum effect, the response level method was used. One of the main conditions to prove the good quality of the model or the accuracy of the model is that the Probability value (P-Value) is less than 0.05 [6], which is less than 0.05 in this design as the first output of the design Experiment is obtained. As in the Versus-Fits diagram, the residual changes do not follow a specific trend, which proves that the variances are constant, and this is the first assumption for the adequacy of the model. In the histogram, the residual changes are Gaussian distribution, indicating that the data came from a normal population, which is the second assumption for model adequacy. The third assumption for model adequacy is the assumption of data independence and time independence, which is evident in the Versus Order diagram. The fourth assumption for the adequacy of the model is to check the quadratic power of the answers, which all tend to 1 or 100%. Finally, by examining the results of ICR and flexural strength in Minitab software, according to the range of pressure and time changes, the best state, and the most optimal state were obtained at a pressure of 79.499 MPa in a time of 70 seconds.

4- Conclusion

In this research, the design and fabrication of polymer/graphite composite bipolar plates by hot compression molding for use in polymer membrane fuel cells and optimization of results or Minitab software were investigated. The physical, mechanical and electrical properties of the composite bipolar plates were investigated by performing tests of water absorption, density calculation, flexural strength test, ICR, and electrical conductivity. Examining the properties of the fabricated samples, sample No. 12 showed the best properties. In this sample, a density of 1.86 g/c³ was obtained, which was very close to the density presented, the percentage of Water adsorption was 0.36, which was acceptable. In the flexural strength test, the flexural strength of the existing

specimens was in the appropriate range and all specimens were more than 25 MPa. Flexural strength was obtained in sample 12, 53.91 MPa. The electrical conductivity test was measured using silver glue and copper wires in the direction of the through-plane. The electrical conductivity obtained in sample 12 was 27.27 Siemens per meter and ICR at a pressure of 1.38 MPa equal to $10.57 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ was measured, which is closer to the DOE 2020 for polymer/graphite composite bipolar plates than other models made. Finally, by optimizing the results and manufacturing conditions, the ideal state for making composite bipolar plates, under the pressure of 79.499 MPa, curing time of 70 seconds, the working temperature of 200°C , and weighing 37.5 gr of raw material was obtained. According to the results obtained in this paper, the samples made were in an acceptable range and by making a suitable mold, the construction of plates with the following channels can be used. Validation of the results was performed using various experiments to achieve the desired and optimal state. After reaching the desired sample using the test design and Minitab software, the optimized sample (sample 12) was rebuilt using the obtained conditions, and tests of its mechanical, electrical, and physical properties were performed. No changes in properties such as ICR, flexural strength, and water absorption indicate the validity of the results.

References

- [1] S. Simaafrookhteh, M. Khorshidian, M. Momenifar, Fabrication of multi-filler thermoset-based composite bipolar plates for PEMFCs applications: Molding defects and properties characterizations, *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(27) (2020) 14119-14132.
- [2] E.L. Miller, S.T. Thompson, K. Randolph, Z. Hulvey, N. Rustagi, S. Satyapal, US Department of Energy hydrogen and fuel cell technologies perspectives, *MRS Bulletin*, 45(1) (2020) 57-64.
- [3] R.B. Mathur, S.R. Dhakate, D.K. Gupta, T.L. Dhimi, R.K. Aggarwal, Effect of different carbon fillers on the properties of graphite composite bipolar plate, *Journal of Materials Processing Technology*, 203(1-3) (2008) 184-192.
- [4] S. Astm, Standard test methods for flexural properties of unreinforced and reinforced plastics and electrical insulating materials. ASTM D790, *Annual book of ASTM Standards*, (1997).
- [5] B. Avasarala, P. Haldar, Effect of surface roughness of composite bipolar plates on the contact resistance of a proton exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 188(1) (2009) 225-229.
- [6] G.B. Celli, A. Ghanem, M.S.-L. Brooks, Optimization of ultrasound-assisted extraction of anthocyanins from haskap berries (*Lonicera caerulea* L.) using Response Surface Methodology, *Ultrasonics Sonochemistry*, 27 (2015) 449-455.

HOW TO CITE THIS ARTICLE

M. Mohammadzadeh Rad, M. Ghadimi, M. Momenifar, *Optimization of Characteristics and Construction of Composite Bipolar Plates of Polymer Fuel Cells*, *Amirkabir J. Mech. Eng.*, 54(6) (2022) 279-282.

DOI: [10.22060/mej.2022.20762.7319](https://doi.org/10.22060/mej.2022.20762.7319)





بهینه‌سازی خواص و ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی پیل‌های سوختی پلیمری

متین محمدزاده^۱، مجتبی قدیمی^{۲*}، محمد مومنی فر^۲

۱- دانشکده مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران
۲- پژوهشکده علوم و فناوری شمال، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، فریدونکنار، ایران

تاریخچه داوری:

دریافت: ۱۴۰۰/۰۹/۰۳
بازنگری: ۱۴۰۱/۰۲/۰۶
پذیرش: ۱۴۰۱/۰۲/۰۷
ارائه آنلاین: ۱۴۰۱/۰۲/۲۰

کلمات کلیدی:

قالب‌گیری فشاری
پیل سوختی پلیمری
صفحات دوقطبی کامپوزیتی
بهینه‌سازی

خلاصه: در این پژوهش، ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی به روش قالب‌گیری داغ فشاری، به منظور استفاده در پیل‌های سوختی غشاپلیمری و بهینه‌سازی خواص به کمک طراحی آزمایش با استفاده از نرم‌افزار مینی‌تب مورد بررسی قرار گرفت. خواص فیزیکی، مکانیکی و الکتریکی صفحات دوقطبی کامپوزیتی ساخته‌شده با انجام آزمون‌های جذب‌آب، محاسبه چگالی، آزمون استحکام خمشی، مقاومت تماسی و رسانایی الکتریکی مورد بررسی قرار گرفت. فعالیت‌های انجام گرفته در طول این پژوهش حاکی از آن است که در صورت طراحی مناسب قالب، تأمین دستگاه پرس گرم مناسب و رسیدن به دمای یکنواخت در سطوح قالب، تولید و ساخت صفحات دوقطبی با ضخامت کم و با کیفیت سطوح بسیار بالا توسط ترکیب کامپوزیتی پودری امکان‌پذیر است. پارامترهای فشار و زمان پخت به عنوان پارامترهای ورودی بهینه‌سازی در نظر گرفته شد و هدف بهینه‌سازی استحکام خمشی و مقاومت تماسی برای دستیابی به هدف‌گذاری سال ۲۰۲۰ دپارتمان انرژی آمریکا برای صفحات دوقطبی پیل‌های سوختی پلیمری است. نتایج بهینه‌سازی فشار ۷۹/۴۹۹ مگاپاسکال و زمان پخت ۷۰ ثانیه را نشان می‌دهد که نمونه ۱۲ به این حالت بهینه نزدیک بوده و پارامترهای استحکام خمشی و مقاومت تماسی آن به ترتیب ۵۳/۹۱ مگاپاسکال و ۱۰/۵۷ میلی‌اهم در سانتی‌متر مربع می‌باشد. همچنین میزان جذب آب و رسانایی الکتریکی در راستای ضخامت به ترتیب ۰/۳۶ درصد و ۲۷/۲۲ زیمنس بر متر می‌باشد که مطابق با هدف‌گذاری دپارتمان انرژی آمریکا می‌باشد.

۱- مقدمه

می‌باشند. پژوهشگران ابتدا صفحات دوقطبی گرافیتی را مورد مطالعه قرار دادند اما به دلیل خواص مکانیکی ضعیف که ناشی از تخلخل بالا و ترد بودن گرافیت بود از ساخت این نوع صفحات منصرف شدند سپس به تولید صفحات دوقطبی فلزی روی آوردند که با وجود پیوندهای فلزی و استحکام مکانیکی بالا اما بدلیل هزینه‌ی تولید بسیار بالا، این روش مقرون به صرفه نبود و از ساخت به این روش نیز منصرف شدند. ونگ و همکاران از استیل زنگ نزن برای ساخت صفحات دوقطبی استفاده کرده‌اند و عملکرد آن را در محیط شبیه‌سازی شده‌ی پیل‌سوختی مورد مطالعه قرار دادند. [۲] اما دریافته‌اند که صفحات دوقطبی فلزی در محیط پیل‌های سوختی به شدت در معرض خوردگی قرار دارند که منجر به کاهش دوام آنها می‌شود. از این رو پژوهشگران پوشش‌دهی این صفحات توسط لایه‌های محافظ را در دستور کار خود قرار دادند. هونگ و همکاران عملکرد صفحات دوقطبی آلومینیومی پوشش‌دهی شده با لایه‌ی محافظ به خوردگی از جنس آلیاژهای پایه کاربید را مورد مطالعه قرار دادند. [۳]

پیل سوختی یک دستگاه الکتروشیمیایی است که انرژی شیمیایی سوخت را بدون احتراق به انرژی الکتریکی تبدیل می‌کند [۱]. پیل‌های سوختی غشاپلیمری^۱ به دلیل قیمت پایین‌تر، بازده متوسط، چگالی بالا و همچنین دمای کاری پایین نسبت به سایر پیل‌های سوختی می‌توانند هدف استفاده در بسیاری از کاربردهای مهندسی باشند. صفحات دوقطبی از اجزای اصلی پیل‌های سوختی غشاپلیمری می‌باشند که عملکرد متعددی را برعهده دارند. پخش یکنواخت جریان گاز، کمک به بهبود مدیریت آب تولیدی، برقراری جریان الکتریکی بین پیل‌های مجاور، ایجاد مانع مقابل نفوذ هیدروژن و اکسیژن، برقراری استحکام مکانیکی پیل و انتقال حرارت از جمله وظایف صفحات دوقطبی می‌باشد.

صفحات دوقطبی برای پیل‌های سوختی پلیمری دارای انواع گوناگونی

1 Proton-Exchange Membrane Fuel Cells (PEMFC)

* نویسنده عهده‌دار مکاتبات: mghadimi@mut.ac.ir



با هدف رسیدن به استانداردهای دپارتمان انرژی آمریکا در سال ۲۰۲۰، پارامترهای ایده‌آل برای ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی بدست آمد.

۲- مواد و روش تحقیق

در این قسمت شرایط ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی با استفاده از مواد کامپوزیتی آماده مورد بررسی قرار گرفت. سپس با بررسی و انتخاب دستگاه پرس، طراحی و ساخت قالب و طراحی مناسب آزمایش، قالب‌گیری صفحات دوقطبی کامپوزیتی انجام گرفت. در نهایت آزمایش‌های مورد نیاز جهت بررسی خواص فیزیکی و مکانیکی صفحات مطابق هدف‌گذاری مطلوب دپارتمان انرژی آمریکا^۶ ۲۰۲۰ تعیین شد.

۲-۱- طراحی آزمایش

در این مرحله با توجه به محدوده پیشنهادی توسط شرکت تولیدکننده پودر برای قالب‌گیری صفحات دوقطبی (جدول ۱)، محدوده پارامترهای اصلی تعیین شد. وزن پودر کامپوزیتی برای هر صفحه از چگالی ماده اولیه با توجه به جدول ۱، ۱/۸۹ گرم بر سانتی‌متر مکعب و ابعاد صفحه دو قطبی (۱۰ سانتی‌متر در ۱۰ سانتی‌متر) با ضخامت ۱/۹۰ میلی‌متر، ۳۷/۵ بدست آمد. همچنین به دلیل اینکه محدوده دمای قالب دارای بازه گسترده‌ای نمی‌باشد، تقریباً میانگین دما برای قالب‌گیری انتخاب شد. البته این مقدار قبل از طراحی آزمایش برای دماهای ۱۹۳ و ۲۰۴ درجه سانتیگراد نیز تست شد و به دلیل مشاهده نشدن تغییرات فیزیکی خاصی پارامتر دما به عنوان پارامتر طراحی در نظر گرفته نشد و تمام نمونه‌ها در دمای ۲۰۰ درجه سانتی‌گراد ساخته شد. اما با توجه به محدوده تغییرات زیاد فشار و زمان پخت، این دو عامل متغیر در نظر گرفته شدند. محدوده تغییرات فشار براساس تناژ پیشنهادی جدول ۱، قطر رم دستگاه و اندازه نمونه در محدوده ۴۰-۷۰ مگاپاسکال بدست آمد. زمان پخت نیز با توجه به جدول ۱ در محدوده ۱۵-۶۰ ثانیه در نظر گرفته شد. در این پژوهش به منظور استخراج مدل بهتر و یافتن بیشترین تأثیر از روش سطح پاسخ استفاده شد. در این روش از طرح مرکب مرکزی^۷ در حالت مرکز وجهی^۸ استفاده شد. در حالت مرکز وجهی حدود بیشینه و کمینه با کد سطح‌های (+۱) و (-۱) مشخص می‌شوند که در واقع تنها اطلاعاتی است که با توجه به مطالعات و ایده پژوهش، برای سطوح هر متغیر باید در اختیار نرم‌افزار آماری قرار گیرد. به این ترتیب سطح سوم به عنوان سطح صفر یا

خواص مکانیکی ضعیف در گرافیت، مشکل خوردگی در صفحات فلزی و هزینه‌ی بالای پوشش‌دهی، توجه بسیاری از تولیدکنندگان و محققان را به صفحات دوقطبی کامپوزیتی جلب کرده است. سپهر سیماافروخته و همکاران [۴] در پژوهش خود از مواد کامپوزیتی پلیمری استفاده کردند و خواص مکانیکی، الکتریکی و فیزیکی صفحات را بررسی کردند که نتایج نمونه‌های تولیدشده نیز مورد قبول بود. بردشواران و همکاران، تجزیه و تحلیل میزان سایش کامپوزیت‌های ترکیبی به روش میکروسکوپ الکترونی روبشی^۱ و طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس^۲ مورد مطالعه قرار دادند. همچنین جهت بهینه‌سازی از روش پاسخ سطحی^۳ با نرم‌افزار مینی‌تب^۴ استفاده کردند. موهین جین و پرادان [۵] اثر پارامترهای فرآیند مانند اصلاح سطح الیاف و درصد وزن فیبر سبزال در مقاومت کششی کامپوزیت را بررسی کردند. آن‌ها با استفاده از مدل سازی پاسخ سطحی در نرم افزار مینی تب بهینه‌سازی را انجام دادند و به یک مدل ریاضی از نتایج آزمون کششی بهینه‌شده، دست یافتند. رستمیان و همکاران [۶] تأثیر درصد وزنی نانو سیلیس و نانو رس و همچنین جهت الیاف بر خمش مقاومت اپوکسی/الیاف شیشه / نانو سیلیسیموم در اکسید/ کامپوزیت ورقه ترکیبی نانو خاک رس بررسی کردند. همچنین از روش پاسخ سطح، برای پیش بینی رفتار خمشی استفاده کردند. در مجموع ۲۰ آزمایش با ۶ تکرار در نقاط مرکزی تولید و آزمون خمشی انجام دادند. نتایج بهینه سازی نشان داد که بهترین مقاومت خمشی ۱۷/۷۷ مگاپاسکال بود که در ۳/۵ درصد وزنی نانو سیلیس رخ داد.

در این پژوهش صفحات دوقطبی کامپوزیتی مورد بررسی قرار گرفت و از ماده کامپوزیتی آماده ترکیب/کامپوزیت قالب‌گیری بالک^۵ استفاده شد. مزیت این مواد رسانایی بالا و مقاومت به خوردگی عالی می‌باشد. به‌طور کلی از اهداف و دستاوردهای این پژوهش می‌توان به دستیابی دانش ساخت نمونه‌ی آزمایشگاهی صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی به روش قالب‌گیری فشاری، که دارای خواص عملکردی مناسب به منظور استفاده در پیل‌های سوختی غشاء پلیمری می‌باشد اشاره کرد. همچنین ساخت نمونه‌ها براساس طراحی آزمایش توسط نرم‌افزار مینی تب انجام گرفت. سپس نتایج آزمایشگاهی خواص فیزیکی، مکانیکی و الکتریکی صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی ساخته شده مورد بحث و بررسی قرار گرفت. در انتها با بهینه‌سازی نتایج استحکام خمشی و مقاومت تماسی و

- 1 Scanning Electron Microscopy (SEM)
- 2 Energy Dispersive X ray (EDX)
- 3 Response Surface Method (RSM)
- 4 Minitab
- 5 Bulk Molding Compound/Composite (BMC)

6 Department Of Energy (DOE)
7 Central Composite Design (CCD)
8 Face Centered

جدول ۱. محدوده پیشنهادی توسط شرکت تولیدکننده پودر برای قالب‌گیری صفحات دوقطبی [۴]

Table 1. Range suggested by the powder manufacturer company for molding bipolar plates [4]

دمای قالب	۱۹۳-۲۰۴ درجه سانتی‌گراد
زمان پخت	۱۵-۶۰ ثانیه
تناژ پرس پیشنهادی	۳-۴ تن بر اینچ مربع
زمان رسیدن به حداکثر تناژ پرس	کمتر از ۱ ثانیه
چگالی	۱/۹۰ گرم بر سانتی‌متر مکعب

جدول ۲. تعیین سطوح مختلف جهت قالب‌گیری

Table 2. Determining different levels for molding

سطوح مختلف	A (فشار (مگاپاسکال))	B (زمان (ثانیه))
سطح ۱	۴۵	۵/۶۸
سطح ۲	۵۵	۱۵
سطح ۳	۷۰	۳۷/۵
سطح ۴	۸۵	۶۰
سطح ۵	۹۱/۲	۷۰

۲-۲- فعالیت‌های تجربی

در این مرحله با توجه به طراحی آزمایش، اقدامات لازم جهت پخت نمونه‌ها انجام شد و با انجام آزمایش‌های مختلف خواص مکانیکی، فیزیکی و الکتریکی نمونه‌ها بررسی شد.

۲-۲-۱- قالب‌گیری و شرایط پخت

در ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی کسر بزرگی (۲۱-۳۱ درصد) از مواد را پرکننده‌های گرافیتی یا کربنی و کسر نسبتاً کمی را ماتریس پلیمری غیرگرافیتی تشکیل می‌دهد. این ماتریس پلیمری می‌تواند از نوع ترموپلاستیک و یا ترموست باشد. مزیت پلیمرهای ترموپلاستیک در این است که به راحتی تزریق می‌شود و به منظور کاهش هزینه‌ها و بازده

مرکزی (+)، مقداری بین کمینه و بیشینه است. البته اگر سطوحی خارج از سه سطح تعریف شده و در بین این سطوح قرار گیرند، به راحتی کدگذاری می‌شوند. این روش با معیار قراردادن تعداد متغیرها، حدود بیشینه و کمینه تعیین شده برای هر متغیر، آزمایش را طراحی می‌کند. سطوح مختلف جهت قالب‌گیری، براساس داده‌های نرم‌افزار بهینه‌سازی مینی تب مطابق جدول ۲ تعیین شد با این نکته که در این نوع طراحی، نرم‌افزار ۲ سطح را اضافه‌تر و محدوده بررسی را گسترده‌تر در نظر می‌گیرد بدین معنا که محدوده فشار را از ۴۵-۹۱/۲ مگاپاسکال و زمان پخت را ۷۰-۵/۶۸ ثانیه در ۵ سطح بررسی می‌کند. پس از تعیین سطوح جهت قالب‌گیری، نرم‌افزار آزمایش‌ها را مطابق جدول ۳ جهت قالب‌گیری پودر کامپوزیتی طراحی کرد و ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی براساس جدول ۳ انجام شد.

جدول ۳. آزمایش‌های طراحی شده برای قالبگیری پودر کامپوزیتی

Table 3. Experiments designed for molding composite powder

نمونه‌ها	زمان (ثانیه)	فشار (مگاپاسکال)
۱	۳۷/۵	۶۰
۲	۶۰	۸۵
۳	۱۵	۹۱
۴	۶۰	۵۵
۵	۵/۶۸	۷۰
۶	۳۷/۵	۹۱/۲
۷	۳۷/۵	۷۰
۸	۳۷/۵	۴۸/۷
۹	۳۷/۵	۷۰
۱۰	۳۷/۵	۶۰
۱۱	۳۷/۵	۷۰
۱۲	۷۰	۷۸
۱۳	۱۵	۸۵

انجام فرآیند قالبگیری داغ فشاری اهمیت بسیاری دارد. بر اساس استاندارد ASTM D5224 برای قالبگیری فشاری مواد ترموست، پرس باید توانایی اعمال فشار و نگهداری آن را با دقت مناسبی $\pm 1/5$ مگاپاسکال داشته باشد [۸]. علاوه بر آن، به منظور جلوگیری از پخت شدن مواد، پرس باید توانایی بسته شدن تا حداکثر ۱۵ ثانیه بعد از قرار دادن مواد روی قالب داغ را داشته باشد. در این استاندارد، برای قالبگیری فشاری پرس دو سرعته پیشنهاد شده است. که با سرعت بالا (۲۰۰-۴۰۰ میلی‌متر بر ثانیه) به مواد نزدیک شود و سپس با سرعت کمی (۵ میلی‌متر بر ثانیه) بسته شود تا از حبس شدن گازها جلوگیری شود. در این نوع قالبگیری، بدلیل آنکه ماده اولیه ترموست است، در ابتدا باید فک بالایی پرس با سرعت بیشتری حرکت کند تا طولانی شدن زمان رسیدن فک‌ها منجر به سوختگی ماده اولیه نشود. همچنین فک بالایی پرس در لحظه بسته شدن باید آهسته‌تر حرکت کند تا گازهای ناشی از پخت پودر گرافیتی در لحظات اولیه خارج شوند و منجر به ایجاد تخلخل در صفحات گرافیتی ساخته شده نشود.

بالتر، از تزریق پلاستیک برای تولید صفحات دوقطبی استفاده کرد. اما محدودیت‌هایی مانند دمای کاری پایین، مقاومت شیمیایی کم و مقاومت خزشی پایین پلاستیک‌ها، استفاده از آنها را در بسیاری از کاربردهای پیل‌های سوختی محدود می‌کند. [۷] با توجه به دلایل ذکر شده و همچنین قیمت بالاتر پلیمرهای ترموپلاستیک نسبت به ترموست‌ها، در این پژوهش از پلیمرهای ترموست ترکیب کامپوزیتی پودری آماده استفاده شد که مقاومت بیشتر، انعطاف‌پذیری بیشتر، پایداری ابعادی بالاتر و قیمت مناسب‌تر از ویژگی‌های آنها می‌باشد.

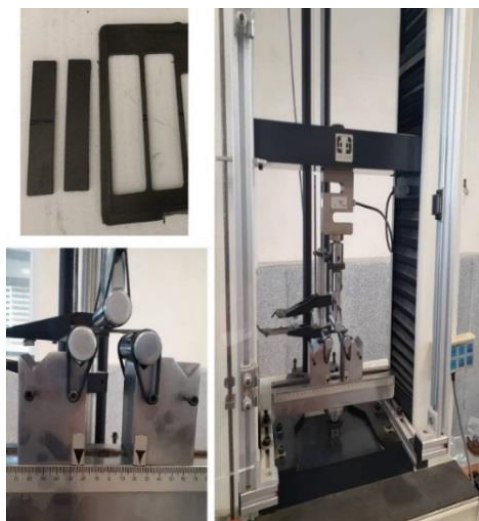
برای ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی، بسته به نوع پلیمر مورد استفاده از دو روش قالبگیری تزریقی و یا قالبگیری فشاری استفاده می‌شود. در قالبگیری به روش تزریقی، برخلاف قالبگیری فشاری، اعمال دمای بالا تحت فشار ثابت ممکن نمی‌باشد. از طرفی نیز در قالبگیری فشاری، امکان افزودن درصد بیشتری از تقویت‌کننده‌ها وجود دارد. همچنین هزینه‌ی تجهیزات نیز در این روش پایین‌تر است. به این خاطر در این پژوهش از روش قالبگیری فشاری استفاده شد. انتخاب دستگاه پرس مناسب برای



شکل ۱. نحوه قرارگیری صفحه متحرک در قسمت پایینی قالب با مکانیزم فنر

Fig. 1. Placement of the movable plate at the bottom of the mold with a spring mechanism

که D و W به ترتیب وزن نمونه قبل و بعد از دو ساعت غوطه‌وری می‌باشند. خاصیت مکانیکی که به صورت گسترده در صفحات دوقطبی مورد سنجش قرار می‌گیرد استحکام خمشی است. استحکام خمشی ضعیف منجر به تماس الکتریکی نامناسب و نشت گاز می‌شود. آزمون خمش سه نقطه‌ای با استفاده از دستگاه پرس ۲ تن شرکت سنتام مطابق با استاندارد ASTM D۷۹۰ با سرعت فک متغیر و با ابعاد ۶۴ در ۱۲/۷ میلی‌متر مطابق شکل ۲ انجام شد. [۱۰]



شکل ۲. نحوه آماده‌سازی آزمایش خمش سه نقطه‌ای

Fig. 2. Preparation of three-point bending test

در این پروژه قالب فشاری مطابق شکل ۱، از قسمت بالا، قسمت پایین و صفحه متحرک با مکانیزم فنر طراحی و ساخته شد تا مونتاژ و ديمونتاژ جهت توليد صفحات دوقطبی کامپوزیتی تخت به راحتی انجام شود.

۲-۲-۲- آزمون‌ها و استانداردهای مورد استفاده

از جمله خواص فیزیکی مهم که در مشخصه‌یابی و مطالعه‌ی خواص صفحات دوقطبی کامپوزیتی اهمیت دارد، چگالی نمونه ساخته شده است. چگالی مناسب در وزن قطعه‌ی نهایی و وزن کل پیل سوختی تأثیر بسزایی دارد. برای اندازه‌گیری چگالی به روش غوطه‌وری ارشمیدس، به یک ترازوی دقیق دیجیتال برای اندازه‌گیری وزن نمونه نیاز می‌باشد. به کمک اندازه‌گیری میزان جذب آب در صفحات می‌توان حجم حفره‌های باز ساختار را محاسبه نمود و مقدار کم جذب آب برای صفحات دوقطبی کامپوزیتی مطلوب است. مقادیر بالای جذب آب در صفحات دوقطبی می‌تواند منجر به مختل شدن حذف آب در حین عملکرد پیل سوختی، بدتر شدن خواص الکتریکی و مکانیکی و بازده پایین شود این تست طبق استاندارد ASTM D۵۷۰ انجام شد. [۹] درصد جذب آب به کمک رابطه‌ی (۱) بدست آمد. لازم به ذکر است که پس از غوطه‌وری خروج صفحات از آب، طبق استاندارد، قطرات آب موجود در سطوح آنها باید توسط پارچه‌ای خشک زده شوند.

$$\% \text{ جذب آب} = \left(\frac{W - D}{D} \right) \times 100 \quad (1)$$



شکل ۳. نمونه آماده شده توسط چسب نقره و سیم مسی به منظور اندازه‌گیری رسانایی الکتریکی

Fig. 3. Sample prepared by silver glue and copper wire to measure electrical conductivity

این پژوهش اندازه‌گیری رسانایی الکتریکی تنها در جهت عمود بر صفحه^۱ مطابق شکل ۳ انجام گرفت، زیرا رسانایی الکتریکی در جهت عمود بر صفحه در پیل‌های سوختی اهمیت بیشتری از رسانایی الکتریکی صفحه‌ای^۲ دارند. دلیل این اهمیت، تجمع الکترون‌ها توسط صفحات در سمت آند و انتقال آنها در راستای ضخامت صفحات به سمت کاتد پیل سوختی می‌باشد [۱۲]. به منظور محاسبه رسانایی الکتریکی که واحد آن^۳ است با توجه به مقدار مقاومت خوانده شده از دستگاه میلی‌اهم‌متر می‌توان از روابط زیر استفاده کرد [۱۳]:

$$\rho = \frac{R}{L} A \quad (۶)$$

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \quad (۷)$$

که در این رابطه ρ ، L و A به ترتیب مقاومت ویژه، طول برقراری جریان (ضخامت نمونه) و مساحت سطح رسانا می‌باشند. آزمایش مقاومت تماسی با استفاده از دستگاه پرس ۲ تن مطابق شکل ۴ انجام شد. در این روش، صفحه‌ی کامپوزیتی به اندازه ۴۰ در ۴۰ میلی‌متر بین

در این تست مدول الاستیک خمشی، تنش خمشی، کرنش خمشی و پاسخ تنش-کرنش ماده قابل محاسبه است. مقادیر تنش، کرنش و مدول خمشی به ترتیب توسط معادلات (۲) تا (۴) قابل محاسبه است. [۱۱]

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bd^2} \quad (۲)$$

$$\varepsilon_f = \frac{6Dd}{L^2} \quad (۳)$$

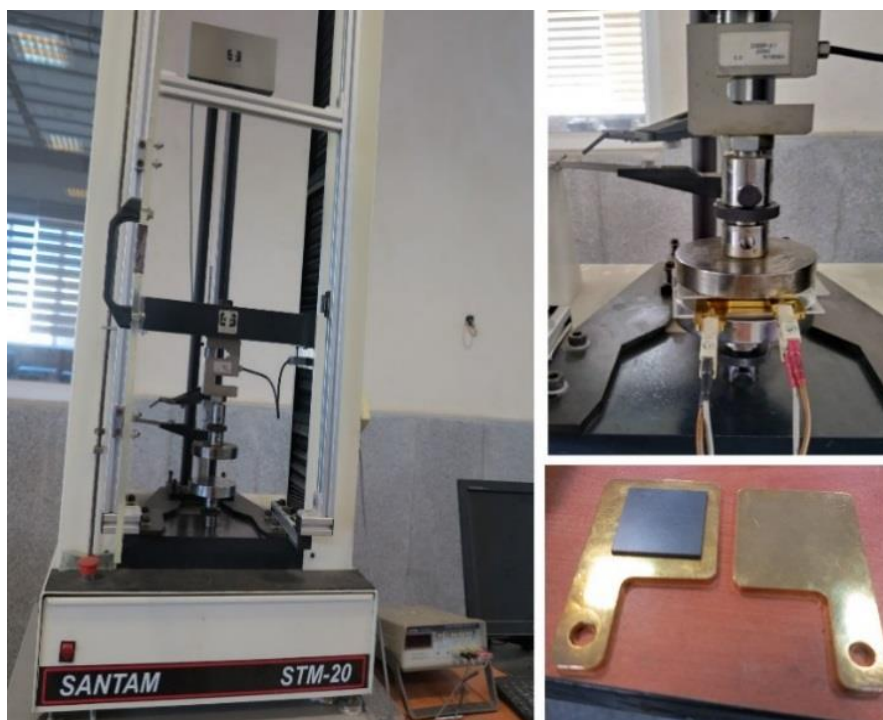
$$E_f = \frac{L^3 m}{4bd^3} \quad (۴)$$

که در این روابط $P(N)$ نیروی وارد در یک نقطه مشخص روی منحنی نیرو-جابجایی است $D(mm)$ حداکثر جابجایی در مرکز نمونه (تیر) و $L(mm)$ فاصله‌ی بین دو تکیه‌گاه می‌باشند $b(mm)$ و $d(mm)$ به ترتیب، عرض و ضخامت نمونه می‌باشند و $m(N/mm)$ گرادیان شیب (قسمت اولیه) خط راست (منحنی نیرو-جابجایی و برابر با P/D می‌باشد. مقدار L طبق محاسبات انجام گرفته برابر ۴۸ میلی‌متر در نظر گرفته شد. بر اساس استاندارد، سرعت صفحه متحرک دستگاه $R (mm/min)$ در این تست بر اساس ضخامت متوسط هر قطعه و رابطه‌ی زیر محاسبه می‌شود. [۱۱]

$$R = \frac{ZL^2}{6d} \quad (۵)$$

که در آن Z نرخ کرنش بیرونی‌ترین لایه‌ی نمونه است که عدد ثابتی برابر ۰/۰۱ برای آن در نظر گرفته شد و $d(mm)$ ضخامت نمونه است. رسانایی الکتریکی نمونه‌های کامپوزیتی ساخته شده به کمک چسب رسانای نقره و سیم مسی محاسبه می‌شود. رسانایی الکتریکی را در جهات مختلف (صفحه‌ای یا در جهت ضخامت نمونه) می‌توان بدست آورد. استفاده از چسب رسانای نقره به دلیل رسانایی بسیار بالا و مقاومت ناچیز است. در

1 Through-plane (TP)
2 In-Plane (IP)
3 Siemens/meter (S/m)



شکل ۴. ستاپ آزمایش مقاومت تماسی

Fig. 4. Contact resistance test setup

در حالت بعدی، نمونه‌ی لایه نفوذ گاز بین صفحات مسی قرار داده می‌شود. در این حالت، مقاومت کلی سیستم R_p از رابطه‌ی زیر به دست می‌آید:

$$R_2 = 2R_{cu} + R_{GDL} + 2R_{GDL/cu} \quad (10)$$

با جای‌گذاری مقدار $R_{GDL/Cu}$ در معادله (۹) و (۱۰) و صرف نظر کردن از مقادیر بالک R_{BP} ، R_{GDL} در مقابل مقاومت‌های تماسی که مقادیر بسیار بزرگتری دارند، مقدار مقاومت تماسی $R_{GDL/BP}$ ، مطابق رابطه‌ی زیر به دست خواهد آمد:

$$R_{GDL/BP} = \frac{1}{2}(R_1 - R_2) \quad (11)$$

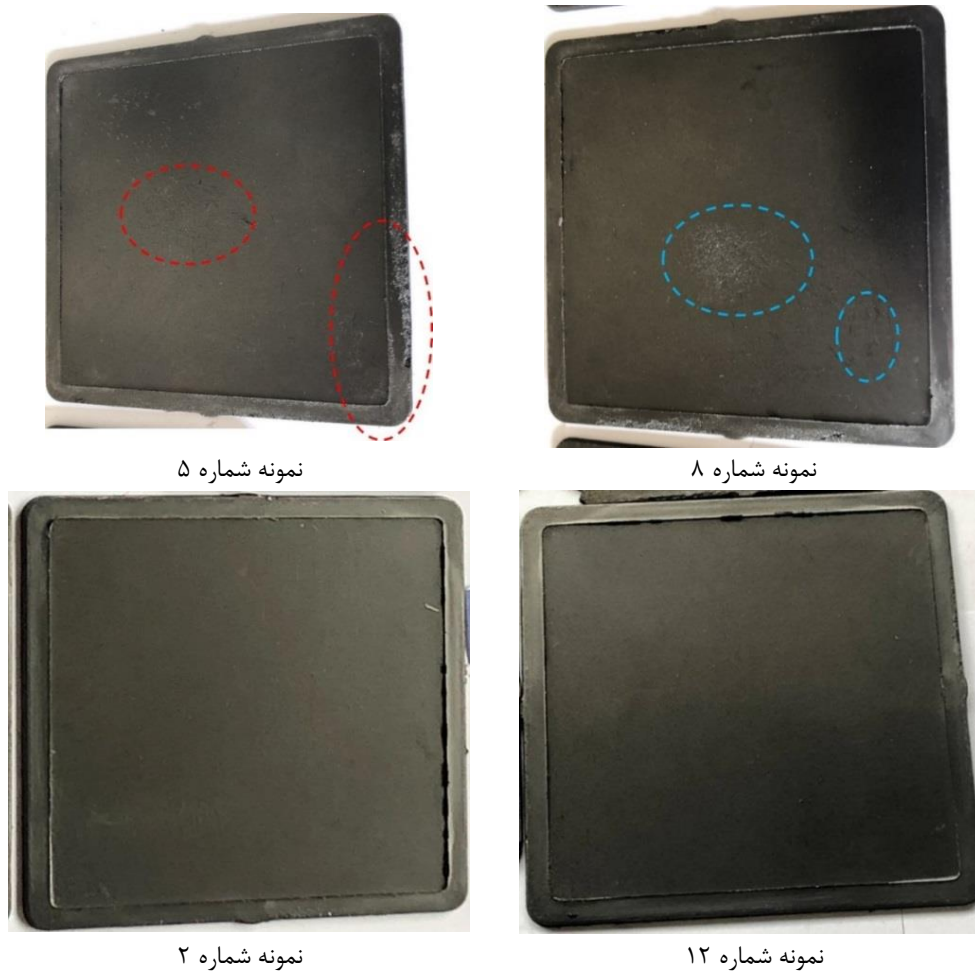
دو لایه نفوذ گاز^۱ و دو صفحه‌ی مسی دارای پوشش طلا قرار داده می‌شود و فشار به صورت تدریجی به صفحات اعمال می‌شود. [۱۴] مقاومت در هر فشار ثبت می‌شود و توسط معادلات زیر مقاومت تماسی بین سطوح محاسبه خواهد شد.

$$R_1 = 2R_{GDL} + 2R_{cu} + R_{BP} + 2R_{GDL/BP} + 2R_{GDL/cu} \quad (8)$$

در روابط موجود از مقاومت داخلی سیم‌ها و دستگاه اندازه‌گیری صرف نظر شده است. $R_{GDL/Cu}$ ، مقاومت تماسی بین صفحه‌ی مسی و لایه نفوذ گاز می‌باشد و $R_{GDL/BP}$ مقاومت تماسی بین لایه نفوذ گاز و صفحات دوقطبی می‌باشد. با حل معادله‌ی (۹) بدست می‌آید:

$$R_{GDL/BP} = \frac{1}{2}(R_1 - 2R_{GDL} - 2R_{cu} - R_{BP} - 2R_{GDL/cu}) \quad (9)$$

1 Gas Diffusion Layer (GDL)



شکل ۵. چند نمونه از صفحات قالب‌گیری شده براساس جدول ۳

Fig. 5. A few examples of molded plates based on Table 3

۳- نتایج و بحث

در این مرحله نمونه‌های مختلف براساس جدول ۳ ساخته شدند و خواص فیزیکی، مکانیکی و الکتریکی نمونه‌های ساخته‌شده بررسی شدند.

در شکل ۵ تصاویری از نمونه‌های قالب‌گیری شده مطابق جدول ۳ نشان داده شده است. قبل از ریختن مواد به درون قالب، اسپری جداکننده به سطوح داغ‌شده‌ی قالب اضافه شد و سپس فرآیند قالب‌گیری برای هر نمونه آغاز شد. با توجه به پولیش کاری و پوشش‌دهی کروم سخت قالب، قالب‌گیری این مرحله به راحتی انجام گرفت، از این منظر که هیچ‌گونه چسبندگی بین مواد و سطوح قالب رخ نداد و پس از باز شدن قالب، صفحه به راحتی جدا شد. [۱۵] همانطور که در شکل ۵ مشاهده می‌شود کیفیت سطح نمونه‌های ۲ و ۱۲ مطلوب است و از لحاظ ظاهری ساختاری یکپارچه با توزیع یکنواخت ماده اولیه ولی کیفیت سطح نمونه‌های ۵ و ۸ رضی‌کننده نبود. کیفیت

نامطلوب نمونه ۵ می‌تواند به دلیل کم بودن زمان پخت باشد. کیفیت نامطلوب نمونه ۸ می‌تواند به دلیل فشار اعمالی کم بر نمونه باشد که منجر به پیوند سست و ضعیف در نمونه شد و کیفیت سطح را کاهش داد. شکل ۵، کیفیت ظاهری نمونه‌ها که تأثیر فشار و زمان پخت را بصورت بازرسی چشمی نشان می‌دهد. اگر زمان و فشار پخت خیلی کم باشد موجب شکل‌گیری نامناسب برخی از نواحی نمونه قالب‌گیری می‌شود. زمان طولانی نیز موجب سوختگی نمونه می‌شود. البته به کمک شکل ظاهری نمونه‌ها ابتدا بررسی کیفی انجام می‌شود و بررسی کمی توسط اندازه‌گیری خواص صورت می‌پذیرد. به دلیل عملکرد چندگانه‌ی صفحات دوقطبی در پیل‌های سوختی و داشتن عملکرد مناسب لازم است تا خواص متعددی مشخصه‌یابی شود. این صفحات دوقطبی باید در محدوده هدف‌گذاری مطلوب دپارتمان انرژی آمریکا ۲۰۲۰، مطابق جدول ۴ قرار داشته باشند.

جدول ۴. هدف گذاری مطلوب دپارتمان انرژی آمریکا ۲۰۲۰ برای صفحات دوقطبی [۱۶]

Table 4. Desirable targeting of the US department of energy 2020 for bipolar plates [16]

مقدار مطلوب	واحد	خواص
>۲۵	MPa	استحکام خمشی
>۱۰۰	S/cm	رسانایی الکتریکی درون - صفحه
>۲۰	S/cm	رسانایی الکتریکی در راستای ضخامت
<۱۰	mohm.cm ^۲	مقاومت تماسی در فشار ۱/۳۸ مگاپاسکال
<٪۱	-	جذب آب

جدول ۵. چگالی و درصد جذب آب اندازه گیری شده در نمونه های مختلف

Table 5. Density and water absorption percentage measured in different samples

نمونه	چگالی (gr/cm ^۳)	درصد جذب آب (%)
۱	۱/۹۱	۰/۶۸
۲	۱/۸۸	۰/۷۲
۳	۱/۶۷	۰/۶۳
۴	۱/۷۴	۰/۳۷
۵	۱/۵۹	۰/۵۷
۶	۱/۹۲	۰/۷۸
۷	۱/۶۶	۰/۶۱
۸	۱/۸۹	۰/۴۹
۹	۱/۹۰	۰/۵۹
۱۰	۱/۸۰	۰/۴۱
۱۱	۱/۶۹	۰/۵۳
۱۲	۱/۸۶	۰/۳۶
۱۳	۱/۶۳	۰/۵۹

شده، این پارامتر بیانگر حجم حفره های باز در ساختار خواهد بود و کمتر بودن آن، بیانگر تخلخل های کمتر می باشد. مقادیر بالای تخلخل های ساختاری منجر به جذب آب در ساختار صفحه ی دوقطبی و کاهش رسانایی الکتریکی و استحکام مکانیکی و در نتیجه عملکرد ضعیف پیل سوختی می شود. نتایج اندازه گیری شده برای چگالی و میزان جذب آب در ترکیب های مختلف تهیه شده در جدول ۵ نشان داده شده است.

همانطور که در جدول ۴ نشان داده شد، به منظور عملکرد بهتر صفحات دوقطبی برای پیل های سوختی این خواص باید در محدوده ی عملکردی تعیین شده قرار گیرند. در این پژوهش نیز به منظور مشخصه یابی خواص و صحت سنجی مواد و مراحل ساخت انجام گرفته، ضروری است تا خواص عملکردی صفحات دوقطبی کامپوزیتی مشخصه یابی شوند.

چگالی نمونه های تولید شده در جدول ۵ به روش جابجایی حجم سیال (ارشمیدس) محاسبه شدند. در ارتباط با میزان جذب آب همانطور که اشاره

جدول ۶. نتایج استحکام خمشی برای نمونه‌های تولیدشده

Table 6. Flexural strength for the produced samples

نمونه	ضخامت نمونه (mm)	سرعت فک (mm/min)	مدول خمشی (گیگاپاسکال)	گرش خمشی	استحکام خمشی (مگاپاسکال)
۱	۱/۸۸	۲/۰۲	۳۰/۱۶	۰/۰۰۳۲	۵۲/۰۵
۲	۱/۹۸	۱/۹۴	۲۸/۶۲	۰/۰۰۳۱	۵۳/۴۲
۳	۱/۹۰	۲/۰۲	۱۸/۳۵	۰/۰۰۲۹	۴۳/۲۰
۴	۱/۹۱	۲/۰۱	۳۳/۸۴	۰/۰۰۲۸	۴۲/۲۷
۵	۱/۹۷	۱/۹۵	۳۳/۹۳	۰/۰۰۲۹	۳۸/۳۲
۶	۱/۹۳	۱/۹۸	۳۲/۵۶	۰/۰۰۳۱	۵۰/۸۲
۷	۱/۸۸	۲/۰۵	۲۸/۰۲	۰/۰۰۳۶	۴۷/۵۵
۸	۱/۹۵	۱/۹۶	۳۱/۰۴	۰/۰۰۳۱	۴۴/۸۲
۹	۱/۸۹	۲/۰	۳۱/۱۳	۰/۰۰۳۰	۴۸/۳۶
۱۰	۱/۹۸	۱/۹۳	۳۲/۷۴	۰/۰۰۲۶	۴۸/۴۷
۱۱	۱/۹۲	۲/۰۰	۳۱/۲۶	۰/۰۰۳۱	۴۷/۹۲
۱۲	۱/۸۸	۲/۰۴	۳۰/۴۲	۰/۰۰۳۳	۵۳/۹۱
۱۳	۱/۹۲	۲/۰۰	۲۲/۷۴	۰/۰۰۳۸	۴۳/۵۵

استحکام خمشی ویژگی مهم دیگری است که به عنوان خواص مکانیکی در صفحات دوقطبی اهمیت بسیاری دارد. این خاصیت مطابق روابط (۲) تا (۴) و مطابق شکل ۲ اندازه‌گیری و محاسبه شد. مقدار مطلوب این پارامتر طبق جدول ۴ بزرگ‌تر از ۲۵ مگاپاسکال می‌باشد که نتایج برای نمونه‌های تهیه شده مطابق جدول ۶ در همین محدوده بدست‌آمد.

مقادیر استحکام خمشی در جدول ۶ میانگین نتایج تست برای دو نمونه از هر ترکیب می‌باشد که در محدوده‌ی مناسبی قرار دارند. [۱۸] لازم به ذکر است که عیوب داخلی از جمله ترک و حفرات حبس شده درون نمونه‌ها نیز می‌تواند منجر به کاهش شدید مقادیر استحکام و مدول خمشی نمونه‌ها شود [۱۹]. رسانایی الکتریکی نمونه ۱۲، مطابق شکل ۳ به کمک چسب نقره و سیم‌های مسی در راستای ضخامت نمونه اندازه‌گیری شد.

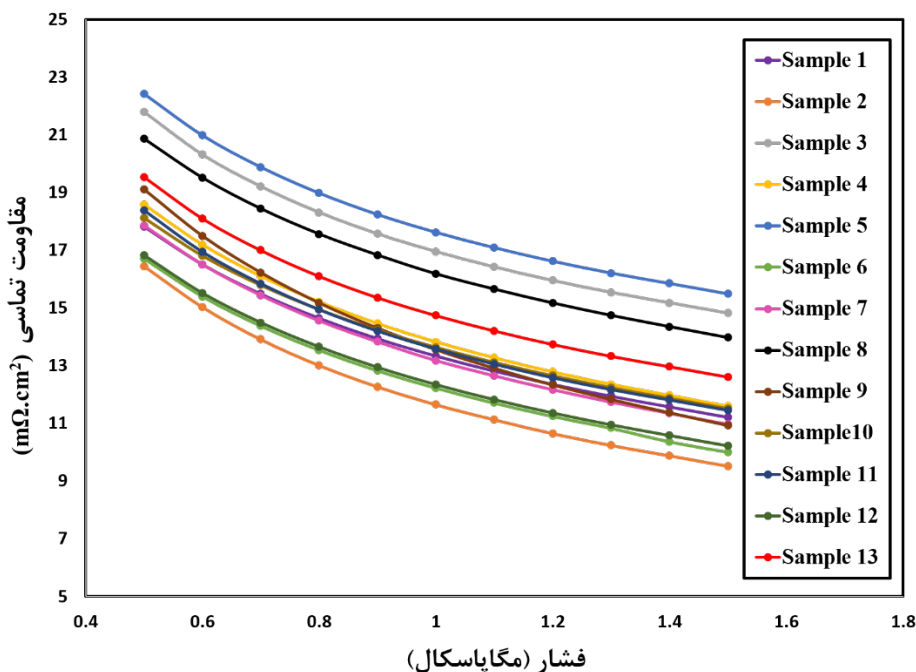
رسانایی الکتریکی در راستای ضخامت نمونه‌ی ۱۲ و مقداری که تولیدکننده ماده اولیه برای رسانایی الکتریکی در راستای ضخامت عنوان کرد، در جدول ۷ مقایسه شد. در اندازه‌گیری رسانایی الکتریکی نمونه‌ی قالب‌گیری شده مشاهده شد که تغییر طول سیم مسی باعث ایجاد مقاومت و تغییر مقدار اندازه‌گیری شده می‌شود. در واقع این روش اندازه‌گیری با

چگالی‌های به دست آمده در بعضی از نمونه‌ها، کمی کمتر از چگالی ارائه شده توسط تولید کننده مواد (جدول ۱) بود. بخشی از این اختلاف به دلیل تفاوت چگالی مواد پخت نشده و ماده‌ی پخت بود [۱۷]، لذا می‌توان با در نظر گرفتن درصدی خطا در محاسبه‌ی جرم ماده‌ی اولیه، جرم بیشتری را به عنوان ماده‌ی اولیه قالب‌گیری کرد. همچنین اعمال صحیح و دقیق فشار پرس بر روی ماده‌ی در حال قالب‌گیری نقش مستقیمی بر روی فشرده شدن بیشتر مواد (کاهش حجم) و افزایش چگالی ایفا می‌کند. از طرفی مقادیر محاسبه شده‌ی درصد جذب آب موجود در جدول ۵ بیانگر میزان حفرات موجود در سطوح نمونه‌های ساخته شده می‌باشد. وجود این حفرات می‌تواند به دلیل خروج نامناسب گازها و بخارهای تولیدی، فشار نامناسب و غیریکنواخت، نوع مایع/اسپری و یا واکس جداکننده و یا غیریکنواختی دما و پخت ناقص باشد. کمتر بودن میزان جذب آب در نمونه شماره ۱۲ نسبت به سایر نمونه‌ها بیانگر بهتر بودن شرایط پخت و کیفیت این نمونه از منظر این خاصیت فیزیکی می‌باشد. مقدار مطلوب جذب آب در جدول ۴، کمتر از ۱/۰ درصد گزارش شده است. که مقدار اندازه‌گیری شده برای سایر نمونه‌ها در این محدوده قرار دارد.

جدول ۷. مقایسه‌ی نتیجه‌ی رسانای الکتریکی در راستای ضخامت بین مقادیر اندازه‌گیری شده و ارائه شده توسط شرکت سازنده پودر.

Table 7. Comparison of the through-plane electrical conductivity result between the measured value and the value provided by the powder manufacturer.

صفحه کامپوزیتی	رسانای الکتریکی اندازه‌گیری شده	مقدار ارائه شده توسط سازنده
نمونه ۱۲	۲۷/۲۲ (S/m)	۲۵ (S/m)



شکل ۶. بررسی رفتار مقاومت تماسی نمونه‌های ساخته شده

Fig. 6. Investigation of interfacial contact resistance behavior of fabricated samples

مهمترین ویژگی‌های صفحات دوقطبی و حتی مهمتر از رسانایی الکتریکی صفحات می‌باشد. بدین منظور بررسی رفتار مقاومت تماسی صفحات مورد بررسی قرار گرفت. با توجه شکل ۶ رفتار مقاومت تماسی صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی در فشارهای مختلف بررسی شد. در این آزمایش برای هر صفحه، ۳ نمونه مورد بررسی و آزمون قرار گرفت و میانگین این نتایج به عنوان نتیجه نهایی در جدول ۸ قرار گرفت. با توجه به شکل ۶ اکثر نمونه‌ها با هدف‌گذاری مطلوب دپارتمان انرژی آمریکا در سال ۲۰۲۰ مطابق جدول ۴ که مقاومت تماسی نمونه‌ها باید در فشار ۱/۳۸ مگاپاسکال کمتر از $10 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ باشد، مطابقت دارد و مقاومت تماسی نمونه‌ها تقریباً نزدیک این محدوده قرار دارد و در نمونه ۲ از این مقدار نیز کمتر شد [۲۳].

خطاهایی همراه است که به دلیل صرف نظر کردن از چند مقاومت در مدار ایجاد می‌شوند. از جمله این مقاومت‌ها، می‌توان به مقاومت درونی میلی‌اهم‌متر مورد استفاده اشاره کرد. همچنین مقاومت تماسی سطوح چسب نقره با دو سطح نمونه، مقاومت محل اتصال سیم مسی و چسب نقره و مقاومت محل اتصال گیره‌های دستگاه اندازه‌گیری و سیم مسی از جمله مقاومت‌هایی هستند که ممکن است منجر به خطا در اندازه‌گیری شوند [۲۰-۲۲] به همین دلیل این آزمون فقط برای نمونه ۱۲ انجام شد که مقدار آن با مقدار مطلوب برای صفحات دوقطبی گرافیتی در جدول ۴ مطابقت دارد و همچنین به مقدار ارائه شده توسط شرکت سازنده پودر نیز نزدیک بود. مقاومت تماسی بین سطوح صفحات دوقطبی و لایه نفوذ گاز یکی از

جدول ۸. مقایسه رفتار مقاومت تماسی نمونه‌ها در فشار ۰/۶ و ۱/۳۸ مگاپاسکال

Table 8. Comparison of interfacial contact resistance behavior of samples at pressures of 0.6 and 1.38MPa

فشار ۱/۳۸ مگاپاسکال ($m\Omega.cm^2$)	فشار ۰/۶ مگاپاسکال ($m\Omega.cm^2$)	نمونه
۱۱/۸۵	۱۶/۵۰	۱
۹/۸۷	۱۵/۰۲	۲
۱۵/۱۷	۲۰/۳۰	۳
۱۱/۹۶	۱۷/۱۸	۴
۱۵/۸۴	۲۰/۹۷	۵
۱۰/۳۶	۱۵/۳۹	۶
۱۱/۳۴	۱۶/۵۰	۷
۱۴/۳۷	۱۹/۵۴	۸
۱۱/۳۷	۱۷/۴۹	۹
۱۱/۸۷	۱۶/۸۰	۱۰
۱۱/۸۰	۱۶/۹۳	۱۱
۱۰/۵۷	۱۵/۵۰	۱۲
۱۲/۹۶	۱۸/۰۹	۱۳

شروط اصلی جهت اثبات کیفیت خوب مدل یا صحت مدل، کمتر بودن مقدار احتمال^۱ از ۰/۰۵ است [۲۶ و ۲۷]، که این مقدار در این طراحی کمتر از ۰/۰۵ بدست آمد که به عنوان اولین خروجی از طراحی آزمایش بدست می‌آید. با توجه به شکل ۷، می‌توان میزان اثرگذاری پارامترها را بر نتایج بهینه‌سازی نرم‌افزار مینی تب مشاهده کرد. این نتایج حاکی از آن است که $AA > AB > BB > A > B$ بدین معنا که تغییرات فشار بیشترین تأثیر را در نتایج از خود نشان داد.

ضرایب تأثیر هر کدام از پارامترهای تأثیرگذار در معادله‌ی درجه دوم مقاومت تماسی در جدول ۹ نشان داده شد. و همانطور که مشاهده می‌شود فشار، بیشترین تأثیر را بین ضرایب موجود دارد. همچنین منفی بودن آن ضریب به این معنا است که هرچه فشار بیشتر باشد مقاومت تماسی کمتر می‌شود به این معنا که نتیجه‌ی مطلوب‌تری حاصل می‌شود.

$$= 31.99 - 0.4716A - 0.0948B + 0.0032A^2 - 0.00091B^2 - 0.000652AB \quad (12)$$

معادله درجه دوم مقاومت تماسی

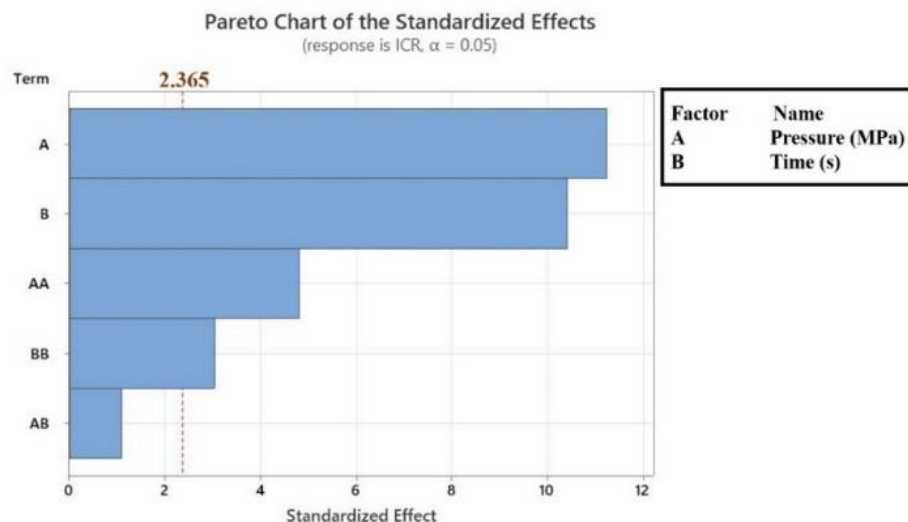
با مقایسه نتایج نمونه‌های ۳ و ۶ پیداست که زمان پخت نمونه‌ها بسیار مسئله مهمی می‌باشد. در نمونه ۳ پخت به شکل کامل انجام نشده و کیفیت بد سطح ناشی از این مسئله بوده است.

با مقایسه‌ی رفتار مقاومت تماسی بین نمونه‌های ۲ و ۶ مشاهده می‌شود که افزایش فشار قالب‌گیری منجر به کاهش مقاومت تماسی شده است. این رفتار مطابق انتظار بوده است، زیرا فشارهای بیشتر منجر به فشرده شدن بیشتر ترکیب مواد و برقراری بهتر اتصال بین ذرات رسانا (گرافیت/فیبرهای کربنی و ...) می‌شود [۲۴]. چنین رفتاری در پژوهش هوی و همکاران نیز مشاهده شده بود. آن‌ها با ساخت کامپوزیت رزین فنولیک/گرافیت/اکرین سیاه و بررسی تأثیر فشار قالب‌گیری روی رسانایی الکتریکی و استحکام خمشی، مشاهده کردند که افزایش فشار، منجر به افزایش استحکام خمشی و رسانایی الکتریکی کامپوزیت شد [۲۵].

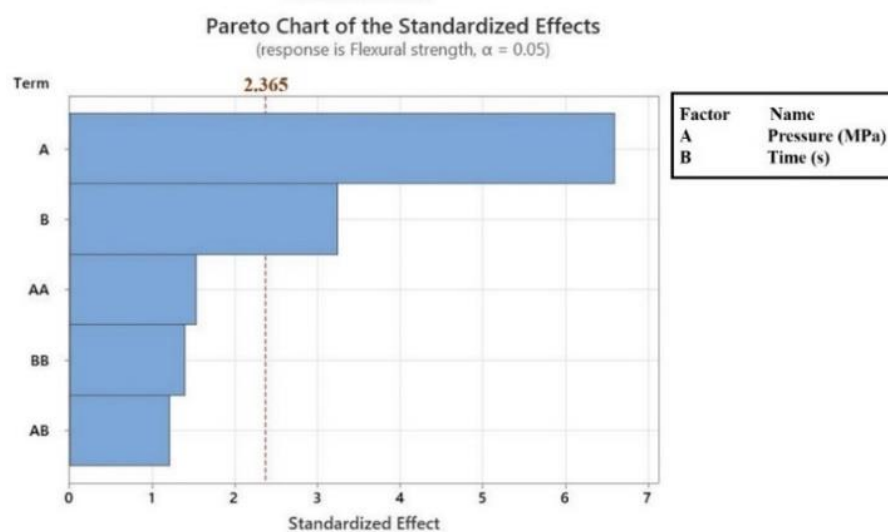
در این قسمت از مقاله، بهینه‌سازی نتایج در نرم افزار مینی تب انجام شد. همانطور که در قسمت طراحی آزمایش اشاره شد، به منظور استخراج مدل بهتر و یافتن بیشترین تأثیر، از روش سطح پاسخ استفاده شد. یکی از

1 Probability value (P-Value)

الف



ب



شکل ۷. نمودار اثرگذاری پارامترها در الف- مقاومت تماسی ب- استحکام خمشی

Fig. 7. Effect of the parameters on a) interfacial contact resistance b) Flexural strength

جدول ۹. تأثیر اصلی هر متغیر ورودی بر نتایج مقاومت تماسی

Table 9. The main effect of each input variable on the results of interfacial contact resistance

متغیر ورودی	ضریب تأثیر
ثابت	۱۱/۶۴۶
فشار (مگاپاسکال)	-۱/۵۹۴
زمان (ثانیه)	-۱/۴۷۷
فشار × فشار	۰/۷۳۱
زمان × زمان	۰/۴۶۱
فشار × زمان	۰/۲۲۰

جدول ۱۰. تأثیر اصلی هر متغیر ورودی بر نتایج استحکام خمشی

Table 10. The main effect of each input variable on the results of flexural strength

متغیر ورودی	ضریب تأثیر
ثابت	۴۸/۸۷۰
فشار (مگاپاسکال)	۴/۶۲۳
زمان (ثانیه)	۲/۲۷۸
فشار × فشار	-۱/۱۵۴
زمان × زمان	-۱/۰۵۲
فشار × زمان	۱/۲۰۰

جدول ۱۱. نتایج توان دو باقیمانده برای مقاومت تماسی و استحکام خمشی

Table 11. The r-squared results for contact strength and flexural strength

توان دوم باقیمانده	آزمایش‌های صورت گرفته
۹۷/۴۳	آزمایش مقاومت تماسی
۸۹/۴۲	آزمایش استحکام خمشی

دارند که نشان می‌دهد داده‌ها از جمعیت نرمالی آمده‌اند که این دومین فرض برای کفایت مدل است. سومین فرض برای کفایت مدل، فرض استقلال داده‌ها و مستقل بودن از زمان است که در نمودار تغییرات متغیر^۴ مشهود می‌باشد.

چهارمین فرض برای کفایت مدل بررسی توان دوم جواب‌ها می‌باشد که با توجه به جدول ۱۱، همگی به سمت ۱ یا ۱۰۰٪ میل پیدا می‌کند. با توجه به شکل ۹- الف نمودار مقاومت تماسی، حاکی از آن است که هرچه فشار بیشتر و زمان کمتر باشد نتیجه بهتری بدست آمد و مقاومت تماسی مطلوب در این محدوده قرار داشت. در شکل ۹- ب هر چه فشار بیشتر و زمان پخت هم بیشتر باشد استحکام خمشی شرایط بهتری از خود نشان داد.

در نهایت با بررسی نتایج مقاومت تماسی و استحکام خمشی در نرم‌افزار مینی تب، با توجه به محدوده تغییرات فشار و زمان، بهترین حالت و بهینه‌ترین حالت، در فشار ۷۹/۴۹۹ مگاپاسکال و در زمان ۷۰ ثانیه بدست آمد. اعتبارسنجی نتایج با استفاده از آزمایش‌های مختلف برای رسیدن به

ضرایب تأثیر هر کدام از پارامترهای تأثیر گذار در معادله‌ی درجه دوم استحکام خمشی در جدول ۱۰ نشان داده شد. و همانطور که مشاهده می‌شود در این آزمایش نیز فشار، بیشترین تأثیر را بین ضرایب موجود دارد و همچنین علامت آن مثبت است و به این معنی است که هرچه فشار بیشتر باشد استحکام خمشی افزایش پیدا می‌کند.

$$= 13.20 + 0.791A + 0.044B - 0.00513A^2 - 0.00208B^2 + 0.00355AB \quad (13)$$

معادله درجه دوم استحکام خمشی

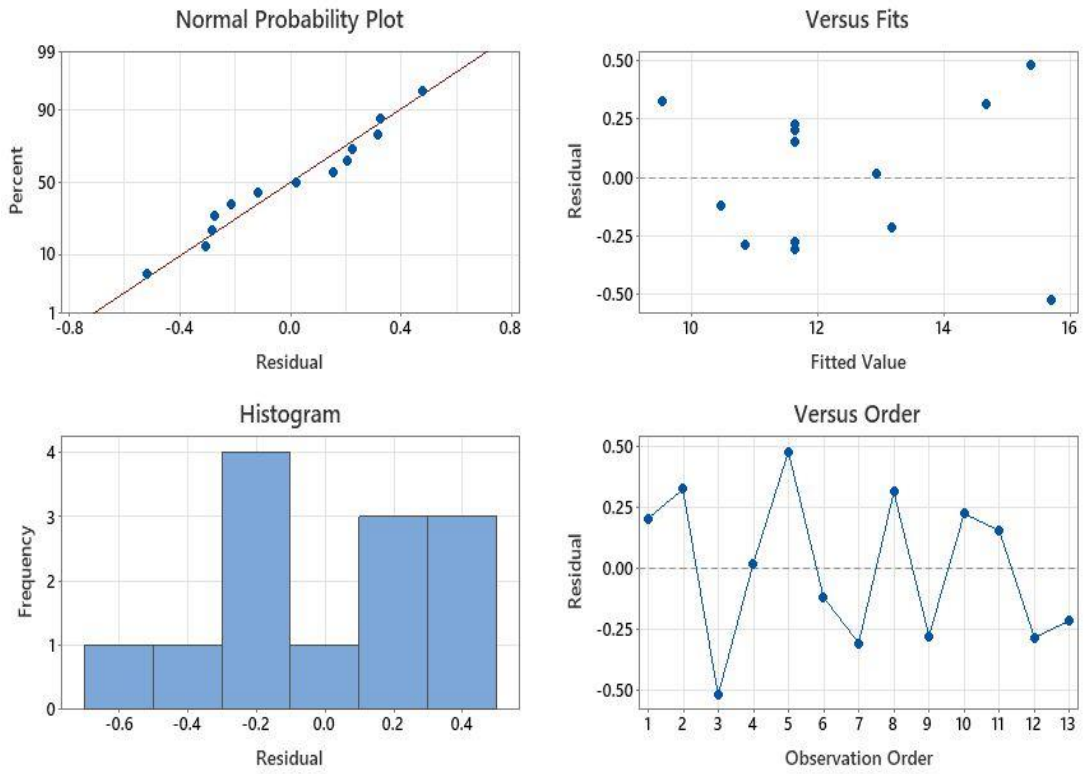
همانطور که در شکل ۸ پیداست نمودارها برای آزمایش‌های مقاومت تماسی و استحکام خمشی کیفیت خوب مدل را نشان می‌دهند. بطوریکه در نمودار تغییرات تصادفی^۱، تغییرات باقیمانده‌ها از روند خاصی پیروی نمی‌کنند که این شرط ثابت بودن واریانس‌ها را ثابت می‌کند و این اولین فرض برای کفایت مدل است. در نمودار هیستوگرام^۲، تغییرات باقیمانده‌ها شکل گوسی^۳

- 1 Versus-Fits
- 2 Histogram
- 3 Gaussian distribution

4 Versus order

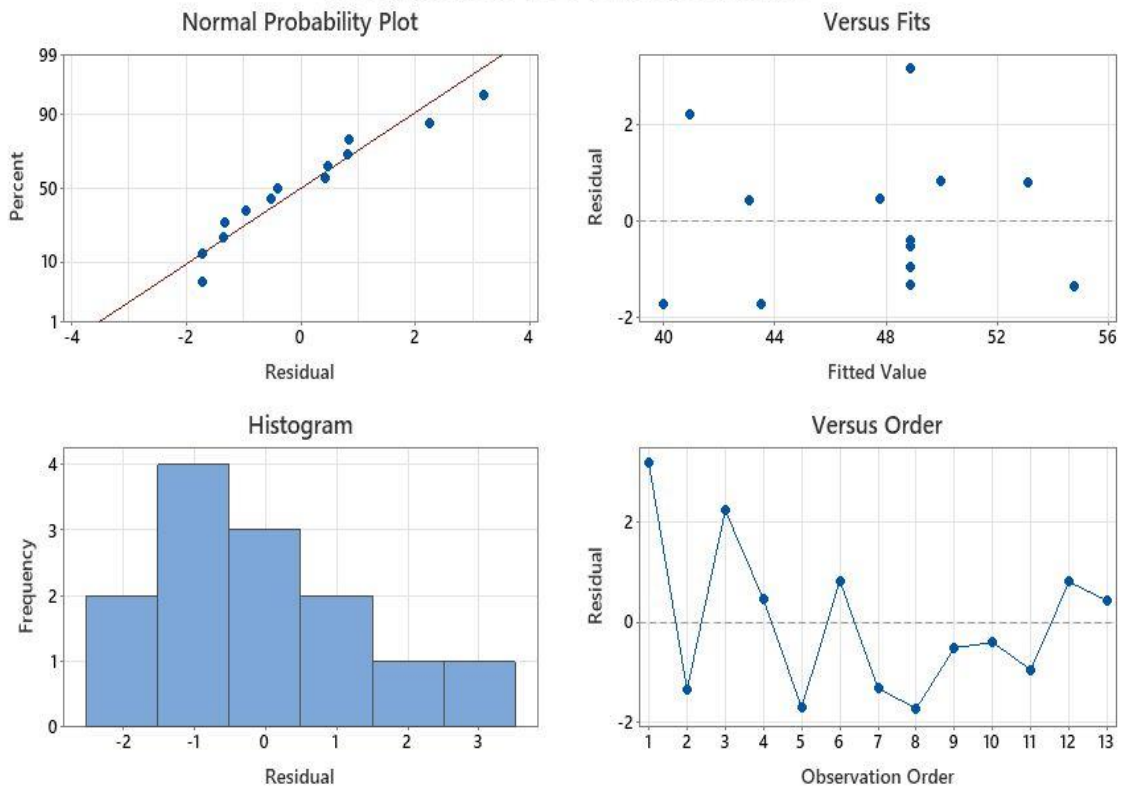
الف

Residual Plots for ICR



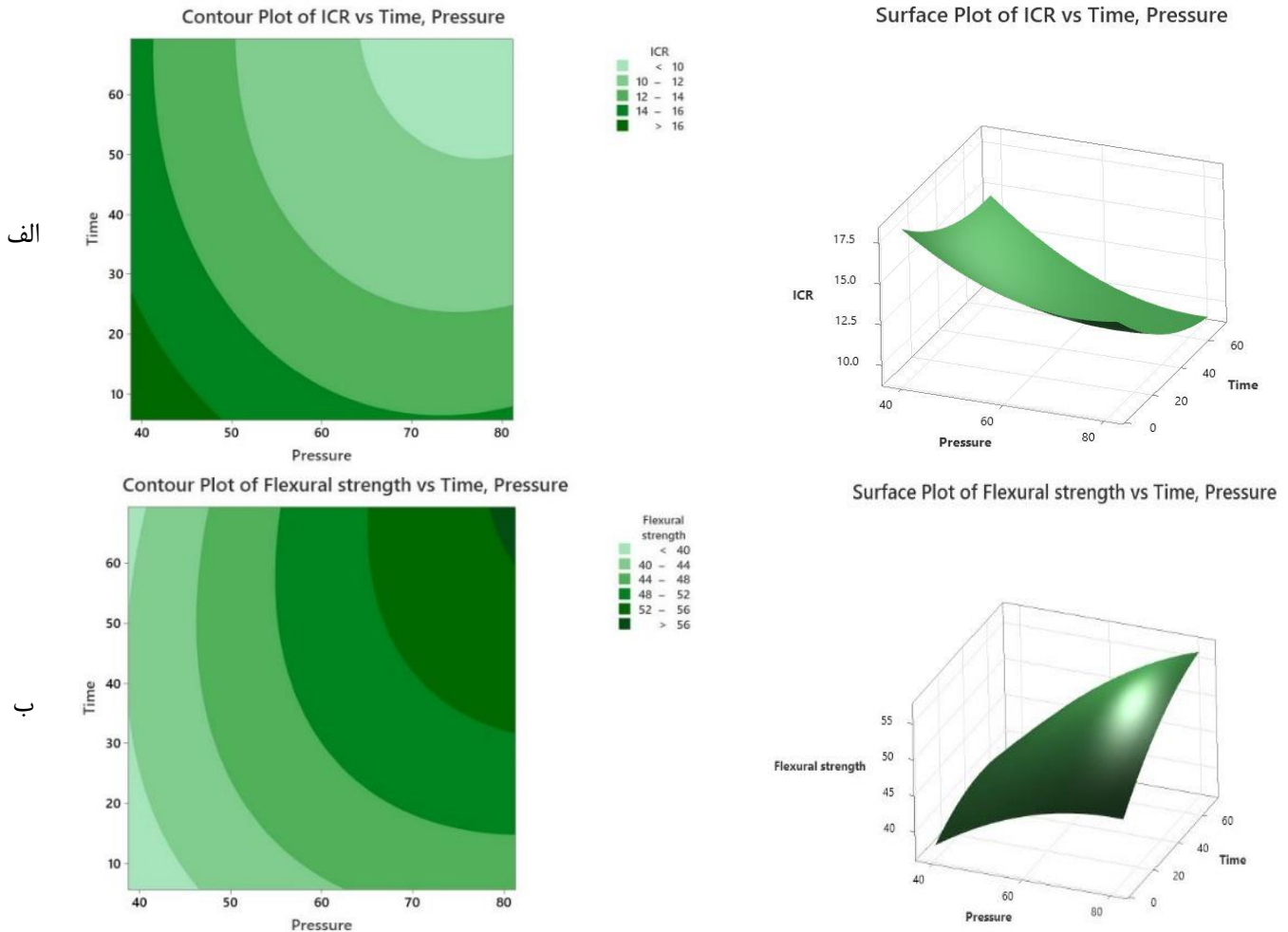
ب

Residual Plots for Flexural strength



شکل ۸. نتایج بهینه‌سازی الف- مقاومت تماسی ب- استحکام خمشی

Fig.8. Optimization results a) Interfacial contact resistance b) Flexural strength



شکل ۹. نمودار سطح و کانتور الف- استحکام خمشی ب- مقاومت تماسی

Fig. 9. Surface and contour diagrams a) Flexural strength b) Interfacial contact resistance

جمله این عوامل می‌توان به کیفیت ماده اولیه، تأثیر پولیشکاری التراسونیک، تأثیر پوشش کروم سخت و اسپری جداکننده اشاره کرد. خواص فیزیکی، مکانیکی و الکتریکی صفحات دوقطبی کامپوزیتی ساخته شده با انجام آزمون‌های جذب آب، محاسبه چگالی، آزمون استحکام خمشی، مقاومت تماسی و رسانای الکتریکی بررسی شد. با بررسی خواص نمونه‌های ساخته شده، نمونه‌ی شماره ۱۲ بهترین خواص را از خود نشان داد در این نمونه چگالی ۱/۸۶ گرم بر سانتی‌متر مکعب بدست آمد که به چگالی ارائه شده در جدول ۱ بسیار نزدیک بوده، درصد جذب آب ۰/۳۶ درصد بدست آمد که این مقدار با توجه به جدول ۴، کمتر از ۱ درصد بدست آمد که مورد قبول بود. در آزمون استحکام خمشی، استحکام خمشی نمونه‌های موجود در محدوده‌ی مناسبی قرار داشتند و همه‌ی نمونه‌ها بیشتر از ۲۵ مگاپاسکال بودند. لازم به

حالت مطلوب و بهینه انجام شد. بعد از رسیدن به نمونه مطلوب با استفاده از طراحی آزمایش و نرم‌افزار مینی تب، نمونه بهینه شده (نمونه ۱۲) دوباره با استفاده از شرایط بدست آمده ساخته شد و تست‌های خواص مکانیکی، الکتریکی و فیزیکی آن انجام شد. عدم تغییرات در خواصی مثل مقاومت تماسی، استحکام خمشی، جذب آب نشان دهنده اعتبار نتایج می‌باشد.

۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش طراحی آزمایش و ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی به روش قالب‌گیری داغ فشاری، به منظور استفاده در پیل‌های سوختی غشاء پلیمری و بهینه‌سازی نتایج یا نرم‌افزار مینی تب مورد بررسی قرار گرفت. عوامل بسیاری در کیفیت ساخت این صفحات نقش دارند از

- [4] S. Simaafrookhteh, M. Khorshidian, M. Momenifar, Fabrication of multi-filler thermoset-based composite bipolar plates for PEMFCs applications: Molding defects and properties characterizations, *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(27) (2020) 14119-14132.
- [5] M. Jain, M.K. Pradhan, Morphology and mechanical properties of sisal fiber and nano cellulose green rubber composite: A comparative study, *International Journal of Plastics Technology*, 20(2) (2016) 378-400.
- [6] Y. Rostamiyan, A. Fereidoon, M. Rezaeiashtiyani, A.H. Mashhadzadeh, A. Salmankhani, Experimental and optimizing flexural strength of epoxy-based nanocomposite: effect of using nano silica and nano clay by using response surface design methodology, *Materials & Design*, 69 (2015) 96-104.
- [7] J. Hu, 3-D fibrous assemblies: Properties, applications and modelling of three-dimensional textile structures, Elsevier, 2008.
- [8] N. Shaari, D. Kuppusamy, N.S. Shaari, N. Sapiai, M. Adnan, Effects of Silane Treatment on the Impact and Tensile Properties of Textile Waste Fiber Polymer Composite, *Manufacturing and Materials Towards Industry 4.0*, (2021) 687-698.
- [9] I. Astm, Standard test method for water absorption of plastics, ASTM D570-98, (2010).
- [10] I. Astm, Standard test methods for flexural properties of unreinforced and reinforced plastics and electrical insulating materials, ASTM D790-07, (2007).
- [11] S. Astm, Standard test methods for flexural properties of unreinforced and reinforced plastics and electrical insulating materials. ASTM D790, Annual book of ASTM Standards, (1997).
- [12] B.E. Allen, Characterization of reclaimed carbon fibers and their integration into new thermoset polymer matrices via existing composite fabrication techniques, North Carolina State University, 2008.
- [13] N.A.M. Radzuan, A.B. Sulong, M.R. Somalu, A.T. Abdullah, T. Husaini, R.E. Rosli, E.H. Majlan, M.I. Rosli, Fibre orientation effect on polypropylene/milled carbon

ذکر است که عیوب داخلی از جمله ترک و حفرات حبس شده درون نمونه‌ها نیز می‌تواند منجر به کاهش شدید مقادیر استحکام و مدول خمشی نمونه‌ها شود. استحکام خمشی در نمونه ۱۲، ۵۳/۹۱ مگاپاسکال بدست آمد. آزمایش رسانای الکتریکی به کمک چسب نقره و سیم‌های مسی در راستای ضخامت نمونه اندازه‌گیری شد. در واقع این روش اندازه‌گیری با خطاهایی همراه است که به دلیل صرف نظر کردن از چند مقاومت در مدار ایجاد می‌شوند. از جمله این مقاومت‌ها، می‌توان به مقاومت درونی میلی‌اهم‌متر، مقاومت تماسی سطوح چسب نقره با دو سطح نمونه، مقاومت محل اتصال سیم مسی و چسب نقره و مقاومت محل اتصال گیره‌های دستگاه اندازه‌گیری و سیم مسی از جمله مقاومت‌هایی هستند که ممکن است منجر به خطا در اندازه‌گیری شوند رسانایی الکتریکی در نمونه دوازده ۲۷/۲۲ زیمنس بر متر بدست آمد. و مقاومت تماسی در فشار ۱/۳۸ مگاپاسکال برابر ۱۰/۵۷ میلی‌اهم بر سانتی‌متر مربع اندازه‌گیری شد که نسبت به سایر نمونه‌های ساخته‌شده به استاندارد دپارتمان انرژی آمریکا ۲۰۲۰ برای صفحات دوقطبی کامپوزیتی پلیمر/گرافیتی نزدیک‌تر بود. در انتها با بهینه‌سازی نتایج و شرایط ساخت، حالت ایده‌آل برای ساخت صفحات دوقطبی کامپوزیتی، تحت فشار ۷۹/۴۹۹ مگاپاسکال، مدت پخت ۷۰ ثانیه، دمای کاری ۲۰۰ درجه‌سانتی‌گراد و با وزن گرم ۳۷/۵ ماده اولیه بدست آمد. با توجه به نتایج بدست‌آمده در این مقاله نمونه‌های ساخته شده در محدوده‌ی قابل قبولی قرار گرفتند و می‌توان با ساخت قالب مناسب، ساخت صفحات دارای میدان شارش دوقطبی کامپوزیتی را در دستور کار قرار داد.

منابع

- [1] S.J. Peighambaroust, S. Rowshanzamir, M. Amjadi, Review of the proton exchange membranes for fuel cell applications, *International journal of hydrogen energy*, 35(17) (2010) 9349-9384.
- [2] H. Wang, M.A. Sweikart, J.A. Turner, Stainless steel as bipolar plate material for polymer electrolyte membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, 115(2) (2003) 243-251.
- [3] Y. Hung, H. Tawfik, D. Mahajan, Durability and characterization studies of polymer electrolyte membrane fuel cell's coated aluminum bipolar plates and membrane electrode assembly, *Journal of Power Sources*, 186(1) (2009) 123-127.

- Manufacture of a polymer-based carbon nanocomposite as bipolar plate of proton exchange membrane fuel cells, *Materials & Design*, 49 (2013) 242-251.
- [22] P. Liang, D. Qiu, L. Peng, P. Yi, X. Lai, J. Ni, Contact resistance prediction of proton exchange membrane fuel cell considering fabrication characteristics of metallic bipolar plates, *Energy Conversion and Management*, 169 (2018) 334-344.
- [23] S. Lædre, O.E. Kongstein, A. Oedegaard, F. Seland, H. Karoliussen, Measuring in situ interfacial contact resistance in a proton exchange membrane fuel cell, *Journal of The Electrochemical Society*, 166(13) (2019) F853.
- [24] A. Vikram, P.R. Chowdhury, R.K. Phillips, M. Hoorfar, Measurement of effective bulk and contact resistance of gas diffusion layer under inhomogeneous compression–Part I: Electrical conductivity, *Journal of Power Sources*, 320 (2016) 274-285.
- [25] M. Mohammadzadeh Rad, S. Saber-Samandari, M. Sadighi, L. Tayebi, M. Mohammadi Aghdam, A. Khandan, Macro-and micromechanical modelling of HA-Elastin scaffold fabricated using freeze drying technique, *Journal of Nanoanalysis*, 8(1) (2021) 17-31.
- [26] M.K. Mohammed, A.I. Al-Hadithi, M.H. Mohammed, Production and optimization of eco-efficient self compacting concrete SCC with limestone and PET, *Construction and Building Materials*, 197 (2019) 734-746.
- [27] N. Li, H.B. Liu, H.T. Wu, The deformation analysis and optimization of the injection molded parts based on the moldflow and minitab software, *Advanced Materials Research*, 753 (2013) 1180-1183.
- fiber composites in the presence of carbon nanotubes or graphene as a secondary filler: Application on PEM fuel cell bipolar plate, *international journal of hydrogen energy*, 44(58) (2019) 30618-30626.
- [14] B. Avasarala, P. Haldar, Effect of surface roughness of composite bipolar plates on the contact resistance of a proton exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 188(1) (2009) 225-229.
- [15] P.J. Hamilton, B.G. Pollet, Polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) flow field plate: design, materials and characterisation, *Fuel cells*, 10(4) (2010) 489-509.
- [16] E.L. Miller, S.T. Thompson, K. Randolph, Z. Hulvey, N. Rustagi, S. Satyapal, US Department of Energy hydrogen and fuel cell technologies perspectives, *MRS Bulletin*, 45(1) (2020) 57-64.
- [17] R.B. Mathur, S.R. Dhakate, D.K. Gupta, T.L. Dhami, R.K. Aggarwal, Effect of different carbon fillers on the properties of graphite composite bipolar plate, *Journal of Materials Processing Technology*, 203(1-3) (2008) 184-192.
- [18] P.H. Maheshwari, R.B. Mathur, T.L. Dhami, Fabrication of high strength and a low weight composite bipolar plate for fuel cell applications, *Journal of Power Sources*, 173(1) (2007) 394-403.
- [19] J. Norley, Graphite-Based Bipolar Plates for PEM Motive Fuel Cell Applications, in.
- [20] W. Chen, Y. Liu, Q. Xin, Evaluation of a compression molded composite bipolar plate for direct methanol fuel cell, *International journal of hydrogen energy*, 35(8) (2010) 3783-3788.
- [21] R. Taherian, M.J. Hadianfard, A.N. Golikand,

چگونه به این مقاله ارجاع دهیم

S. Alimirzaei, M. Ahmadi Najafabadi, A. Bani Mohammad Ali, Investigation of Failure Mechanism of the Composite Tubes Made by Filament Winding Process by Acoustic Emission Method, *Amirkabir J. Mech Eng.*, 54(6) (2022) 1373-1390.

DOI: 10.22060/mej.2022.20762.7319

