



**PEM YEKİT PİLLERİNDE GEOMETRİK VE ÇALIŞMA
PARAMETRELERİNİN PERFORMANSINA ETKİLERİ
VE YENİ BİR AKIŞ ALANI TASARIMI**

Seda KÜPELİ



T.C.
BURSA ULUDAĞ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**PEM YAKIT PİLLERİNDE GEOMETRİK VE ÇALIŞMA
PARAMETRELERİNİN PERFORMANSINA ETKİLERİ VE YENİ BİR AKIŞ
ALANI TASARIMI**

Seda KÜPELİ
0000-0001-9094-5400

Prof. Dr. İrfan KARAGÖZ
(Danışman)

YÜKSEK LİSANS TEZİ
MAKİNE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

BURSA – 2020

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

PEM YAKIT PİLLERİNDE GEOMETRİK VE ÇALIŞMA PARAMETRELERİNİN
PERFORMANSINA ETKİLERİ VE YENİ BİR AKIŞ ALANI TASARIMI

Seda KÜPELİ

Bursa Uludağ Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Makine Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. İrfan KARAGÖZ

Bu çalışmada, yakıt hücresindeki kimyasal reaksiyonların yanı sıra ısı ve akışkan akışı için matematiksel bir model oluşturulmuş ve bu model doğrulama amacıyla bilinen bir serpantin tipi yakıt hücresine uygulanmıştır. Üç boyutlu, serpantin kanallı PEM yakıt hücresi, Hesaplamalı Akışkanlar Dinamiği (HAD) yöntemi kullanılarak tek fazlı analiz edilmiştir. Çalışma geçici rejimde ve kararlı halde ayrı ayrı yapılmıştır. Membran, katalizör tabakaları, gaz difüzyon tabakaları, gaz akış kanalları, anot ve katot akım toplayıcı plakalar dahil olmak üzere tam bir PEMFC göz önüne alınmıştır.

Geçici rejim çalışmasında yakıt hücresinin kütle akış oranlarındaki bir adım değişikliğine yanıtı aranmıştır. Giriş akış koşullarına kütle akış oranlarında %20'lik adım değişiklikleri uygulanmış ve yakıt hücresinin zamana bağlı güç ve akım yoğunluğu tepkileri çeşitli hücre voltajı değerleri için analiz edilmiştir. Yakıt hücresi performansının değerlendirilmesi için polarizasyon eğrileri oluşturulmuş ve zaman içindeki değişimleri sunulmuştur.

Kararlı hal çalışmasında ise çalışma basıncı, dönüşüm katsayısı ve stokiyometrik akış oranının yakıt hücresi performansına etkileri incelenmiştir. Yakıt hücresindeki performans etkileyen parametrelerin belirlenmesi ve yüksek performans için optimize edilmesi birincil öneme sahiptir. Elde edilen sonuçlar yakıt hücresi karakteristik eğrisi açısından sunulmuştur.

Ayrıca yeni bir akış alanı tasarımı yapılmış, manifold ve ara rezervuarların bulunduğu üç boyutlu yeni nesil serpantin akış alanı oluşturulmuştur. Tasarımla ilgili çalışmalar TÜBİTAK projesi kapsamında sürdürülmektedir.

Anahtar Kelimeler: PEM yakıt pili, Yakıt pili modellemesi, Adım yanıtı, Yakıt pili performansı, HAD

2020, ix + 70 sayfa.

ABSTRACT

MSc Thesis

INFLUENCES OF GEOMETRICAL AND OPERATIONAL FACTORS ON PROTON EXCHANGE MEMBRANE (PEM) FUEL CELL PERFORMANCE AND DESIGN OF A NEW FLOW FIELD

Seda KÜPELİ

Bursa Uludağ University
Graduate School of Natural and Applied Sciences
Department of Mechanical Engineering

Supervisor: Prof. Dr. İrfan KARAGÖZ

In this study, a mathematical model was created for chemical reactions in the fuel cell as well as heat and fluid flow and this model was applied to a known serpentine type fuel cell for verification purposes. Three-dimensional, serpentine channel PEM fuel cell was analyzed in single phase using the Computational Fluid Dynamics (CFD) method. The study was carried out separately in transient regime and steady state. The model PEMFC is considered including membrane, catalyst layers, gas diffusion layers, gas flow channels, anode and cathode current collector plates.

In the transient regime study, the response of the fuel cell to a step change in mass flow rates was sought. Step changes of 20% in mass flow rates were applied to the inlet boundary conditions and time dependent power and current density responses of the fuel cell were analyzed for various operating voltage values. Polarization curves were generated for the evaluation of the fuel cell performance, and their variations in time were presented.

In the steady state study, the effects operating pressure, exchange coefficient and stoichiometric flow ratio on the fuel cell performance were investigated. It is of primary importance to establish parameters that affect performance in the fuel cell and optimize them for high performance. The results obtained are presented in terms of fuel cell characteristic curve.

In addition, a new flow area has been designed and a new three-dimensional serpentine flow area with manifold and intermediate reservoirs has been created. Design-related works are carried out within the scope of TUBITAK project.

Key words: PEM fuel cell, Fuel cell modelling, Step response, Fuel cell performance, CFD

2020, ix + 70 pages.

TEŐEKKÜR

Tez alıőmamda konunun belirlenmesinden alıőmanın tamamlanmasına kadar her aőamada desteęini esirgemeyen, beni ynlendiren, yrtcs olduęu TBİTAK projesinde bana alıőma olanaęı sunan, karőılaőtıęım zorlukları bilgi ve tecrbesi ile aőmama yardım eden, mesleki bilgi ve kariyerimin oluőmasında zerimde byk emekleri olan, ęrencisi olmaktan her zaman gurur duyacaęım deęerli danıőman hocam Sayın Prof. Dr. İrfan KARAGÖZ'e teőekkrlerimi sunarım.

alıőmalarım sırasında bilgi ve tavsiyeleriyle beni destekleyen, bana yol gsteren Arő. Gör. Erman ELİK'e teőekkrlerimi sunarım.

Beni bugnlere getiren, her zaman her koőulda sonsuz sevgisiyle yanımda olan, tm zorlukları benimle gęsleyen, baőaracaęıma inanan ve beni yreklendiren, en byk destekim ve en iyi arkadaőım annem Sevil KARA'ya teőekkrlerimi sunarım.

Beni hibir zaman yalnız bırakmayan, desteęini her zaman hissettięim Hasan YİGEN'e teőekkrlerimi sunarım.

Bu alıőmayı 118M485 numaralı proje ile destekleyen TBİTAK'a teőekkrlerimi sunarım.

Seda KPELİ
01/07/2020

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET.....	i
ABSTRACT.....	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER	iv
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ	v
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ	ix
1. GİRİŞ	1
2. KURAMSAL TEMELLER ve KAYNAK ARAŞTIRMASI	3
2.1. Yakıt Pilleri	9
2.1.1. Yakıt pillerinin tarihçesi.....	9
2.1.2. Yakıt pillerinin avantajları ve dezavantajları	10
2.1.3. Yakıt pili çeşitleri.....	11
2.2. PEM Yakıt Pilleri.....	16
2.2.1. PEM yakıt pili çalışma prensibi	16
2.2.2. PEM yakıt pili parçaları	18
2.2.3. PEM yakıt pili uygulama alanları	21
3. MATERYAL ve YÖNTEM.....	23
3.1. Yakıt Pillerinde Temel Denklemler	23
3.1.1. Gerilim kayıpları	25
3.1.2. Yakıt hücresi potansiyeli-Polarizasyon eğrisi.....	25
3.1.3. Yakıt hücresi verimliliği	26
3.1.4. PEM yakıt pilleri korunum denklemleri	27
3.2. PEM Yakıt Hücresi Sayısal Analizi.....	35
3.2.1. Geometri oluşturma.....	36
3.2.2. Ağ yapısı ve sınır şartları oluşturma	38
3.2.3. Çözüm prosedürü	41
3.2.4. Model varsayımları	43
4. BULGULAR ve TARTIŞMA.....	44
4.1. Geçici Rejim Çalışması.....	45
4.2. Kararlı Hal Çalışması.....	53
4.2.1. Çalışma basıncının etkisi	53
4.2.2. Dönüşüm katsayısının etkisi	58
4.2.3. Stokiyometrik akış oranının etkisi	60
4.3. Yeni Bir Akış Alanı Tasarımı	61
5. SONUÇ	66
KAYNAKLAR	68
ÖZGEÇMİŞ	71

SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ

Simgeler	Açıklama
H	Entalpi
S	Entropi
G	Gibbs serbest enerjisi
n	Elektron sayısı
F	Faraday sabiti
V	Hücre potansiyeli
η	Verim
ρ	Akışkan yoğunluğu
\vec{u}	Akışkanın hız vektörü
S_m	Kaynak terimi
M	Molar kütle
i	Akım yoğunluğu
P	Statik basınç
\vec{g}	Yer çekimi ivmesi
\vec{F}	Dış kuvvetler
$\bar{\epsilon}$	Gerilme tensörü
μ	Dinamik viskozite
I	Birim tensörü
S_u	Kaynak terimi
K	Geçirgenlik
ϵ	Gözeneklilik
k_{eff}	Etkin ısı iletim katsayısı
k_t	Türbülans ısı iletkenliği
\vec{J}_j	Difüzyon akısı
S_h	Kaynak terimi
$R_{an,kat}$	Anot ve katot katalizör tabakalarının hacimsel transfer akımı
Y_j	Kütle kesri
T_{ref}	Referans sıcaklık
σ_{sol}	Katı faz iletkenliği
ϕ_{sol}	Katı faz potansiyeli
$S_{\phi,sol}$	Katı faz potansiyeli için kaynak terimi
σ_{mem}	Membran iletkenliği
ϕ_{mem}	Membran potansiyeli
$S_{\phi,mem}$	Membran potansiyeli için kaynak terimi
j^{ref}	Referans akım yoğunluğu
γ	Konsantrasyon üssü
α	Transfer katsayısı
V_{oc}	Pilde oluşan elektriksel potansiyel
C_j	Molar konsantrasyon
D_j^{eff}	Düzeltilmiş difüzyon sabiti
r	Katalizör yüzey alanının hacme oranı

$Y_{j,yüzey}$	Tepkime yüzeyindeki kütle oran
$Y_{j,merkez}$	Hücre merkezindeki kütle oran
D_j^0	Referans sıcaklık ve basınçtaki (P_0, T_0) kütle difüzyon katsayısı
P_0	Referans basınç
T_0	Referans sıcaklık
γ_P, γ_t	Denklemlerin sabitleri
r_s	Gözenek blokaj üssü
λ	Su içeriği
β, ω	Model sabitleri
M_{mem}	Membranın eşdeğer ağırlığı
D_1	Membrandaki su difüzyonu
a	Su aktivitesi
P_{wv}	Su buhar basıncı
P_{sat}	Doyma basıncı
t	Zaman

Kısaltmalar

Açıklama

PEMFC	Polimer elektrolit membran yakıt pilleri
PEM	Polimer elektrolit membran
HAD	Hesaplama akışkanlar dinamiği
CFD	Hesaplama akışkanlar dinamiği
GDL	Gaz difüzyon tabakaları
UDF	Kullanıcı tanımlı fonksiyonlar
PNM	Gözenek ağ yapısı
AYP	Alkali yakıt pilleri
DMYP	Direkt metanol yakıt pilleri
FAYP	Fosforik asit yakıt pilleri
EKYP	Erimiş karbonat yakıt pilleri
KOYP	Katı oksit yakıt pilleri
MEA	Membran elektrot birlikteliği
an	anot
kat	katot

ŞEKİLLER DİZİNİ

	Sayfa
Şekil 2.1. Alkali yakıt pili	12
Şekil 2.2. Fosforik asit yakıt pili	13
Şekil 2.3. Erimiş karbonat yakıt pili	15
Şekil 2.4. Katı oksit yakıt pili	16
Şekil 2.5. PEM yakıt pili	17
Şekil 3.1. Yakıt pillerinde gerilim kayıpları ve polarizasyon eğrisi	26
Şekil 3.2. Oluşturulan üç boyutlu PEM yakıt hücresi fiziksel modeli	36
Şekil 3.3. Model geometrisi önden kesit görünümü ve yakıt hücresi bileşenleri	37
Şekil 3.4. Yakıt hücresinde blok oluşturma	38
Şekil 3.5. PEM yakıt hücresine ait ağ yapısı	39
Şekil 3.6. Eleman kalitesi için histogram	40
Şekil 4.1. Polarizasyon eğrilerinin karşılaştırılması	44
Şekil 4.2. IV ve PI eğrileri	45
Şekil 4.3. IV ve PI eğrileri: $t_0 = 0$; $t_1 = 16$ ms; $t_2 = 19$ ms; $t_4 = 25$ ms; $t_6 = 33$ ms; $t_8 = 43$ ms; $t_{10} = 53$ ms	46
Şekil 4.4. Sıcaklık dağılımı	47
Şekil 4.5. Basınç dağılımı	47
Şekil 4.6. Hidrojen kütle kesri dağılımı	48
Şekil 4.7. Oksijen kütle kesri dağılımı	49
Şekil 4.8. Su buharı kütle kesri dağılımı	49
Şekil 4.9. Akım yoğunluğunun zamanla değişimi	50
Şekil 4.10. Güç yoğunluğunun zamanla değişimi	51
Şekil 4.11. Hücre çalışma voltajına göre zamanla akım yoğunluğu değişimi	52
Şekil 4.12. Çalışma basıncının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi	54
Şekil 4.13. 1 atm çalışma basıncında A) anot B) katot gaz akış kanallarında sıcaklık dağılımı	55
Şekil 4.14. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında sıcaklık dağılımı	55
Şekil 4.15. 1 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı	56
Şekil 4.16. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı	56
Şekil 4.17. Anot gaz akış kanalında A) 1 atm ve B) 3 atm çalışma basıncında hidrojen kütle kesri dağılımı	57
Şekil 4.18. Katot gaz akış kanalında A) 1 atm ve B) 3 atm çalışma basıncında oksijen kütle kesri dağılımı	57
Şekil 4.19. 1 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı	58
Şekil 4.20. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı	58
Şekil 4.21. Dönüşüm katsayısının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi	59
Şekil 4.22. Stokiyometrik akış oranının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi	60
Şekil 4.23. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi akış alanı fiziksel modeli	62
Şekil 4.24. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi görünüşleri	63

Şekil 4.25. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi ağ yapısı önden kesit görünümü.....	64
Şekil 4.26. A) Anot B) Katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı	64
Şekil 4.27. A) Anot B) Katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı.....	65



ÇİZELGELER DİZİNİ

Sayfa

Çizelge 2.1. Uygulamada en sık karşılaşılan yakıt pili çeşitleri	11
Çizelge 3.1. Hidrojen oksitlenme işlemlerinde entalpi, entropi ve Gibbs serbest enerjisi	24
Çizelge 3.2. PEM yakıt hücresinin geometrik boyutları	37
Çizelge 3.3. Çalışma koşulları	42
Çizelge 3.4. Elektrokimyasal parametreler	43
Çizelge 4.1. Anot ve katot çıkışında bazı parametrelerin zamanla değişimi.....	50
Çizelge 4.2. Dönüşüm katsayısı etkisi çalışmasında kullanılan değerler.....	59
Çizelge 4.3. PEM yakıt hücresinin geometrik boyutları.....	63



1. GİRİŞ

Dünya nüfusunun artması ve teknolojik gelişmelerle birlikte enerji ihtiyacı da artmaktadır. Barış ve küresel istikrar için düşük maliyetli, sürdürülebilir ve yenilenebilir yakıtlarla enerji üretim ve kullanımı önem kazanmaktadır. Bir ülkede enerji tüketimi arttıkça, ekonomik ve sosyal gelişim de momentum kazanır (Budak 2019). Son zamanlarda büyük rezervler keşfedilmesine rağmen, fosil yakıtlar hızla tükenmekte ve gelecekteki enerji taleplerini karşılamada yetersiz kalmaktadır, bu da yakın gelecekte enerji talebini karşılama açığı yaratmakta ve dünyanın enerji güvenliğini tehdit etmektedir. Bununla beraber, fosil yakıtların çevreyi kirlettiği ve asit yağmuruna, küresel ısınmaya, iklim değişikliğine de neden olduğu bilinmektedir (Daud ve ark. 2017).

Yakıt hücreleri geleceğin güç sistemi olarak düşünülmekte ve konuyla ilgili çalışmalar yapılmaktadır, sürdürülebilir, temiz ve çevre dostu olmaları nedeniyle gelecek için umut veren sistemler olarak görülmektedir (Sopian ve Daud 2006). Düşük emisyon ve yüksek verime sahip olan yakıt hücresi, karbon emisyonunu azaltmak için alternatif, umut verici bir çözümdür (Lim ve ark. 2019). Ticari güç kaynakları için proton değişim membranlı yakıt hücreleri (PEMFC'ler) yüksek güç yoğunluğu, hızlı başlangıç ve yüksek verimlilik özellikleriyle en uygun seçeneklerden biridir (Su ve ark. 2010). Yakıt hücreleri, bir kimyasal reaksiyonun kimyasal enerjisini doğrudan elektrik enerjisine ve ısıya dönüştüren elektrokimyasal cihazlardır. Prensipte olarak yakıt hücresi bir pil gibi çalışır, ancak tükenmez, yakıt ve oksidan temin edildiği sürece pil gibi şarj edilmeyi gerektirmez (Williams 2011).

Yakıt hücreleri ile ilgili literatür taramalarında deneysel, analitik yöntemler ve hesaplamalı akışkanlar mekaniği çözümleri ile karşılaşılmakta, yakıt hücresi sisteminin verimliliği, dayanıklılığı ve güvenilirliğini arttırmak için çalışmalar sürdürülmektedir.

Bu çalışmada üç boyutlu serpantin kanallı bir PEM yakıt hücresi modeli geliştirilmiş ve Hesaplamalı Akışkanlar Dinamiği (HAD) tekniği kullanılarak çözülmüştür. Çalışma üç aşamada gerçekleştirilmiştir. İlk olarak çalışmada geliştirilen modeli doğrulamak için, simülasyon sonuçları daha önce elde edilen hesaplamaların yanı sıra deneysel sonuçlarla karşılaştırılmıştır. İkinci olarak standart bir PEM yakıt hücresinin geçici rejim davranışını

incelemek amaçlanmıştır. Performans karakterizasyonu ve yakıt hücresinin tepki süreleri için polarizasyon eğrileri elde edilip bulgular sunulmuştur. Son olarak çalışma parametrelerinin yakıt hücresi performansı üzerindeki etkileri kararlı halde analiz edilmiştir. Çalışma basıncı, dönüşüm katsayısı ve stokiyometrik akış oranı parametrelerini içeren çalışma koşullarındaki değişikliklerin PEM yakıt hücresi performansı üzerindeki etkileri polarizasyon eğrileri ile değerlendirilmiştir. Ayrıca manifold ve ara rezervuarların bulunduğu üç boyutlu yeni nesil bir serpantin akış alanı tasarımı yapılmıştır.



2. KURAMSAL TEMELLER ve KAYNAK ARAŞTIRMASI

Literatür incelendiğinde PEM yakıt pilleri ile ilgili çok sayıda araştırma ile karşılaşmaktadır. Yapılan araştırmalar yakıt pili modeli tasarımı, akış alanı tasarımı, çalışma parametreleri etkileri, su yönetim sistemleri, performans modelleme konuları üzerine yoğunlaşmıştır. Çalışmalarda analitik yöntemlerin yanında hesaplamalı akışkanlar mekaniği çözümleri ve deneysel yöntemlere rastlanmaktadır. Deneyleerin uzun zaman alması ve pahalı olması nedeniyle aynı zamanda bilgisayar teknolojisinin gelişmesi ile sayısal analiz çalışmaları araştırmalar için uygun bir alternatif olarak kullanılmaktadır. Bu bölümde tez çalışmasına referans olabilecek yayınlar incelenmiş ve özetleri aşağıda sunulmuştur.

Mehta ve Cooper (2003) PEM yakıt pilleri için tasarım ve üretim alternatiflerini, otomotiv sektörü açısından incelemiştir. Yapılan çalışmada 16 polimer membran, 2 gaz difüzyon tabakası, 8 anot katalizörü, 4 katot katalizörü ve 100'den fazla bipolar plaka tasarımı incelenmiştir. PEM yakıt pilleri bileşenlerinin farklı kombinasyonları ve birbiriyle olan uyumları hakkında bilgi verilmiştir. Çalışmada esas amaç, geniş ölçekli üretim için sermaye yatırımından önce, farklı tipte bileşenler ve üretim yöntemleri arasından uygun olanların seçilebilmesi için gerekli temel bilgiyi vermektir.

Wang ve ark. (2003) farklı çalışma parametrelerinin PEM yakıt hücresi performansına etkilerini deneysel olarak incelemiştir. Anot tarafında saf hidrojen, katot tarafında hava kullanılmıştır. Performans üzerindeki etkilerin gösterildiği polarizasyon eğrileri ile sonuçlar sunulmuştur. Ek olarak bir üç boyutlu yakıt hücresi modeli sunulmuş ve sonuçlar deneysel sonuçlar ile karşılaştırılmıştır. PEM yakıt hücresi performansının yeterli nemlendirme sağlandığında çalışma sıcaklığının artmasıyla arttığı görülmüştür. Anot nemlendirme sıcaklığının performans için önemli bir etken olduğu ve düşük akım yoğunluğu bölgesinde nemlendirme derecesi ne kadar düşük olursa performansın o kadar düştüğü, yüksek akım yoğunluklarında etkisinin önemli olmadığı sonucuna ulaşılmıştır. Katot nemlendirme sıcaklığının da özellikle yüksek akım yoğunluklarında performans üzerinde önemli bir etkisi olmamıştır. Basınç artışıyla performansın arttığı görülmüştür. Modelleme sonuçları deneysel verilerle kıyaslandığında farklı yakıt hücresi

sıcaklıklarında uyumlu sonuçlar, farklı çalışma basınçlarında ise düşük ve orta akım yoğunluklarında uyumlu sonuçlar gözlenirken, yüksek akım yoğunluklarında ise sonuçlar arasında farkın arttığı gözlenmiştir.

Satija ve ark. (2004) su yönetim sistemlerinin değerlendirilmesi konusu üzerinde durmuşlardır. Çalışmada yakıt pili içindeki sıvı su üretiminin görüntülenmesi için testler yapılmıştır. Nötron görüntüleme tekniği ile suyun oluşumu ve taşınması incelenmiştir. Nötron ışınlarının su gibi içinde hidrojen atomları içeren maddelere olan duyarlılıklarından ötürü, yakıt pillerinin görüntülenmesi için ideal bir yöntem olduğu belirtilmiştir. Nötron görüntüleme tekniğinin gelecekteki araştırmalar için uygun bir konu olduğu ve PEM yakıt pili sisteminin etkinliğini, güvenilirliğini ve maliyet etkinliğini geliştirmede önemli ölçüde yardımcı olabileceği belirtilmiştir.

Li ve ark. (2007) su dengesi ve yönetiminin önemi, su yönetimini kolaylaştıracak akış kanalı tasarımları üzerinde durmuşlardır. Ana tasarım felsefesi, akış kanalı boyunca uygun bir basınç düşüşünün belirlenmesine dayanır, böylece hücre içindeki tüm sıvı su buharlaşır ve akış kanalındaki gaz akımıyla hücreden ayrılır veya çıkarılır. 50,100,200,300 ve 441 cm² reaksiyon yüzey alanlarına sahip beş farklı PEM yakıt pili boyutu için değiştirilen kanal tasarımları test edilmiştir. Sıvı su oluşumu ve performans parametreleri incelenmiştir. Gaz akış kanallarındaki sıvı su oluşumu nötron radyografisi testi ile incelenmiş, net ve belirleyici ölçümler alınmıştır. Yakıt pillerindeki serpantin tip kanal boyunca yeterli basınç düşümü sağlandığında sıvı halde su oluşumunun görülmediği, bu sayede su akıntısıyla elektrik üretiminin kesintiye uğramadığı görülmüştür.

Al-Baghdadi ve Al-Janabi (2007) tek fazlı, izotermal olmayan, üç boyutlu bir CFD modeli oluşturmuşlardır. Sıcaklık, basınç, stokiyometrik akış oranı, gaz kanallarının genişliği, GDL kalınlığı, membran kalınlığı, GDL porozitesi, GDL termal iletkenliği değişkenlerinin yakıt hücresi performansına etkileri araştırılmıştır. Modelde yerel akım yoğunluğu dağılımının tahmininin daha iyi olması için, bir akım-voltaj algoritması uygulanmıştır. Analiz deneysel olarak çalışılmayan karmaşık elektrokimyasal ve taşınım

olayının anlaşılmasına ve sınırlayıcı adımlar ile bileşenlerin tanımlanmasına olanak sağlamıştır.

Le ve Zhou (2008) akışkan akışını, ısı transferini, türlerin taşınımını, elektrokimyasal reaksiyonu ve akım yoğunluğunu simüle etmek için genel bir proton değişim membranı yakıt hücresi oluşturmuşlardır. VOF yönteminin kullanıldığı üç boyutlu modelde membran, gaz difüzyon tabakaları, katalizör tabakaları, gaz akış kanalları ve akım toplayıcıları dahil olmak üzere komple bir PEMFC göz önüne alınmıştır. Basitlik ve popülerlikten dolayı akış kanalları serpantin formda seçilmiştir. Ticari hesaplamalı akışkanlar dinamiği (HAD) yazılım paketi FLUENT v6.2 ve kendi kullanıcı tanımlı fonksiyonları (UDF) kullanılmıştır. Sıvı su etkilerine odaklanılan çalışmada sonuçlar bu genel modelin, PEM yakıt hücresinin pratik mühendislik tasarımlarının optimizasyonu için çok yararlı bir araç olabileceğini göstermiştir.

Kloess ve ark. (2009) biyolojik yapılardan esinlenen iki yeni akış kanalı modeli sunmuşlardır. Bunlar bir yaprak tasarımı ve bir akciğer tasarımıdır. Çalışmanın amacı bu yeni tasarımların performansını değerlendirmektir. PEM yakıt hücresi performansı, bipolar plakalarda akış kanalı tasarımı ile doğrudan ilişkilidir. Çalışmada yeni tasarlanan kanalların akışını ve GDL'ye difüzyonunu modellemek için CFD analizi kullanılmıştır. Sayısal benzetimin yanında deneysel testler de yapılmıştır. Bu çalışma, basınç kaybında, genel performansta ve en yüksek güç yoğunluğunda gözle görülür gelişmeler sağlayan, umut verici sonuçlar ortaya koymuştur. Hem yaprak hem de akciğer tasarımı, önceki tasarımlara göre en yüksek güç yoğunluğunda %30'a varan artışlar göstermiştir.

Roshandel ve ark. (2012) akış alanı tasarımı ve kanal konfigürasyonlarının optimizasyonu ile yakıt pili performansındaki gelişmeler üzerinde yoğunlaşmışlardır. Çalışmada kullanılan yaklaşım, çeşitli bipolar plaka modellerinin CFD analizine dayanmaktadır. Çalışmada tasarım ve optimizasyon amacıyla, sabit Navier-Stokes denklemleri kullanılarak sonlu hacim yöntemi ve SIMPLE algoritmasına dayanan üç boyutlu bir hesaplama modeli geliştirilmiştir. Sayısal simülasyon sonuçları daha önce yayınlanmış deney sonuçları ile iyi bir uyum göstermiştir. Böylelikle sayısal model geçerliliği teyit edilerek, plakaların fiilen imal edilmesine gerek kalmadan tasarım parametreleri

incelenmektedir. Bu çalışmadaki model doğada var olan taslaklara, milyonlarca yıllık evrim sırasında geliştirilmiş olan kalıplara dayanmaktadır. Bitkilerin damarlarından ve yapraklardan ve ayrıca vücuttaki kan dağıtım sistemlerinden esinlenen yeni bir bipolar plaka tasarımı sunulmuş ve analiz edilmiştir. Çalışmadaki ana tasarım kriterleri, akış kanalları boyunca daha düzgün hız dağılımı ve farklı akım yoğunluklarında daha yüksek voltaj ve güç yoğunluğu çıkışına dayanmaktadır. Simülasyon sonuçları yakıt pili performansındaki iyileşmeyi göstermektedir. Amaç yakıt pili performansını geliştirmenin yanında daha ucuz ve daha hafif yakıt pilleri üretebilmektir. Bu çalışma yakıt pili verimliliğini arttırmak ve yenilikçi modeller geliştirmek için sadece bir ilk adım olmuştur.

Arvey ve ark. (2013) kanal tasarımı konusu üzerinde durulması gereken parametreleri irdelenmişlerdir. PEM yakıt hücrelerinde biyolojik yapılardan esinlenmeli kanal tasarımı konusu teknoloji evriminde nispeten yeni bir gelişmedir. Akış alanı tasarımı çok önemlidir ve PEM yakıt hücrelerinin performansında kritik rol oynar. Çalışmada biyolojik yapı esinlenmeli kanal tasarımı sırasında hızlı sıvı tahliyesi, yeterli basınç düşümü, iletkenlik ve kolay imal edilebilirlik gibi özelliklere dikkat çekilmiştir. CFD modelleme, birçok tasarımın değerlendirilmesinde etkili bir araç olarak görülmüştür, ancak simülasyon sonuçları mümkün olduğunca deneysel çalışmalar ile takip edilmelidir. Simülasyon çalışmalarına her zaman standart bir referans tasarımı dahil edilmesi gerektiği belirtilmiştir.

Lorenzini-Gutierrez ve ark. (2013) üç boyutlu yakıt hücresi modellerini, CFD kullanarak analiz etmişlerdir. Doğal akış alanlarından esinlenen yeni akış dağılımı tasarımları, PEM yakıt hücreleri için gaz akış kanalları olarak modellenip simüle edilmiştir. Çalışma için seçilen doğal akış alanları, ağaç şekilli akış deseni tasarımlarıdır. Ağaç şeklindeki akış kanalları, geleneksel tasarımlardan daha düşük pompalama gücü gereksinimleri ve daha yüksek ısı ve kütle aktarımı yoğunlukları sunarlar. Farklı bifurkasyon seviyelerine sahip üç akış geometrisi araştırılmıştır. Yakıt hücrelerinin performansı polarizasyon ve güç eğrilerinde raporlanmış, serpantin ve paralel kanallar gibi geleneksel akış modelleri ile karşılaştırılmıştır. Akış analizinden elde edilen sonuçlar, ağaç şeklindeki akış düzenlerinin, düzgün bir akış dağılımının yanı sıra nispeten düşük bir basınç düşüşü sağlayabildiğini göstermiştir. Üç bifurkasyon seviyesine sahip akış modelinin en iyi ağaç

şekilli tasarım olduğu, çünkü nispeten düşük bir basınç düşüşü ile farklı tasarımların en yüksek güç çıkışını oluşturduğu görülmüştür.

Straubhaar ve ark. (2016) bir GDL birim hücreindeki yoğunlaşmayı, gözenek ağı modeli (PNM) kullanılarak simüle etmişlerdir. Bu çalışmada katalizör katmanından GDL'ye giren su buhar formunda girer. Amaç bir GDL'de yoğunlaşma yoluyla sıvı su oluşumunun PNM simülasyonlarının sunulması ve analiz edilmesidir. Yoğunlaşma PNM'si ile elde edilen eğilimler, akım yoğunluğu ve kanal bağıl neminin düzlem doyumluk profillerine etkisi gibi literatüre bildirilen birçok deneysel gözlem ile uyum içinde bulunmuştur. Önemli bir sonuç da su transferinin ısı transferine güçlü bir şekilde bağlanmasıdır, çünkü GDL içindeki sıcaklık değişimleri yoğunlaşma işleminin hesaplanması için çok önemli bir özelliktir. Önerilen model, PEM yakıt hücrelerindeki su transferini anlamak için yeni perspektifler açmaktadır.

Bednarek ve Tsotridis (2017) PEM tek kanallı yakıt hücresinde CFD modellemesinin sınırlamalarını tartışmışlardır. Tek kanallı bir yakıt hücresi modeli sayısal örnek olarak alınmıştır. Kararlı durum çözümlenmeleri için uygun bir yakınsama metodolojisinin uygulanması gerektiği gösterilmiştir. Çalışma koşullarına ve yakıt hücresi bileşenlerine bağlı gerilim kayıpları araştırılmıştır. Simülasyon sonuçları hız, basınç ve sıcaklık dağılımları, reaktant türlerinin konsantrasyonu ve GDL ve membran içindeki sıvı su birikimi sunulmuştur. Polarizasyon eğrisinin değerlendirilmesinde açık devre voltajının ve referans değişimi akım yoğunluğunun önemli bir rol oynadığı gösterilmiştir. Güvenilir ve sağlam girdi verileri eksikliğinin, doğru sonuçların elde edilmesinde karşılaşılan sorunlardan biri olduğu belirtilmiştir.

Kahveci ve Taymaz (2018) proton değişim membranı yakıt pili performansını incelemek amacıyla tek fazlı, üç boyutlu bir model oluşturmuşlardır. 333-353 K sıcaklık aralığında, 1-3 atm basınç aralığında, gaz difüzyon tabakası (GDL) gözenekliliği 0,3-0,6 aralığında, hem anot hem de katot bağıl nemi %10-100 aralığında çalıştırılan modelde, akım yoğunluğu ve güç yoğunluğu verilen değişken işlem parametrelerine göre ölçülmüştür. Sayısal simülasyon FLUENT hesaplamalı akışkanlar dinamiği yazılımına dayanan bir PEM yakıt hücresi modeli ile gerçekleştirilmiştir. Genel polarizasyon eğrileri artan

basınçla pozitif bir artış göstermektedir. İyileştirilmiş performansların diğer bir nedeni de, artan çalışma basıncına sahip reaktif gazların kısmi basınç artışıdır. PEM yakıt hücresi performansının, kısmi basınç ve reaktif gazların yayılmasından dolayı işletme basıncının artmasıyla arttığı ve kütle taşıma direncinin azalmasına neden olduğu sonucuna varılmıştır. Çalışma sıcaklığı, yakıt hücresi performansını arttırmak için faydalıdır ancak zarın aşırı ısınmasından dolayı çalışma sıcaklığı 363 K'den yüksek olmamalıdır. GDL gözenekliliği arttıkça hücre performansının da arttığı görülmüştür. Sonuçlar maksimum güç yoğunluğuna 0,6 GDL gözenekliliği, 3 atm basınç, %100 anot bağıl nemi ve %10 katot bağıl neminde ulaşıldığını göstermiştir. Ayrıca simülasyon sonuçları literatürdeki deneysel veriler ile kıyaslanmış ve model ile deneysel sonuçlar arasında iyi bir uyum sağlanmıştır.

Berning ve ark. (2002) üç boyutlu inceleme sağlayan bir matematiksel model hazırlamışlardır. Model gaz dağılım kanalları ve membranı içermektedir. Modelin çalıştırılması ticari bir akışkanlar mekaniği analizi programı ile sağlanmıştır. Reaktan gazların yakıt pili içindeki dağılımı, sıcaklık dağılımı, elektrik akımı yoğunlukları ve su akımları incelenmiştir. Yakıt pillerinin bilgisayar destekli analizlerinde yapılan kabuller ile ısı-kütle transferi çözüm algoritmaları sunulmuştur. Yakıt pili performansı polarizasyon eğrisiyle gösterilmiş, mevcut deneysel verilerle karşılaştırılmıştır. Sıcaklık dağılımlarındaki düzensizliklerin performansa baskın etkisi olduğu ve madde transferlerinin pil performansını etkileyen parametrelerden olduğu görülmüştür.

Spernjak ve ark. (2007) şeffaf katot art plakası yöntemini kullanarak deneysel bir çalışma sunmuşlardır. Değişken olarak farklı malzemelerden imal edilmiş gözenekli gaz difüzyon tabakaları kullanılmıştır. Sıvı su oluşum akımı çekildikten sonra şeffaf art plaka ile gözlemlenen su miktarı gaz difüzyon tabakasının su tahliye etme kapasitesinin bir ölçütü olarak referans alınmıştır. Yapılan çalışma ile katot tarafında mikro kanallara sahip gaz difüzyon tabakası kullanılarak katalizör tabakasında sıvı birikmesini önleyici bir bariyer oluştuğu anlaşılmıştır. Bu çalışma ile farklı gaz difüzyon tabakalarının yakıt pillerinde parametre olarak değerlendirilmesi gerektiği anlaşılmıştır.

Hakenjos ve ark. (2004) PEM yakıt pilleri için yapılması gerekli olan çok sayıda testi tek sistem üzerinde eş zamanlı yapacak deney numunesi oluşturmuşlardır. Her akış kanalının farklı uzunlukları boyunca akım değerlerini ölçecek geliştirilmiş segmentli anot akış alanı içeren numune katot tarafında ise şeffaf bir arka plana sahiptir. Yapılan tasarımla ışık geçirgenliği sayesinde kızıl ötesi kamera ile sıcaklık ölçümleri alınmış aynı zamanda su damlacığı oluşumları da yüksek hızlı kamera ile gözlemlenmiştir.

2.1. Yakıt Pilleri

Yakıt pilleri kimyasal bir reaksiyonla elektrik üreten cihazlardır, ancak yanma olmadan elektrik üretirler. Enerji üretimi yakıtı yakmak yerine oksijenle elektrokimyasal reaksiyona sokarak gerçekleşir. Bir pil gibi çalışır ancak yakıt ve oksijen sağlandığı sürece neredeyse sınırsız olarak güç üretebilirler.

2.1.1. Yakıt pillerinin tarihçesi

Christian F. Schoenbien, 1839 yılında elektroliz yönteminin tersini uygulayarak hidrojen ve oksijen gazlarının birleşmesiyle su ve elektrik akımının ortaya çıktığını bulmuştur. İngiliz hâkim ve bilim adamı Sir William Grove Schoenbien'in çalışmalarını uygulama aşamasına getirmiş ve 1845 yılında ilk gaz pilini yapmıştır. Yakıt pili tanımı 1889 yılında Ludwig Mond ve Charles Langer'in hava ile havagazı kullanarak çalışan cihaz uygulamalarından sonra yapılmıştır. 1932 yılında İngiltere Cambridge Üniversitesi'nde Dr. Francis T. Bacon, Mond ve Langer tarafından yapılan yakıt pili tasarımında değişiklikler yapmışlar ve bu tasarım Bacon Cell olarak anılan ilk alkali yakıt pili olarak tanımlanmıştır. 1955 yılında GE'de kimyager olarak çalışan Williard T. Grubb, proton değişim membranını geliştirmiştir. 1958'de GE'de çalışan kimyager Leonard Niedrach, bu membran üzerine platin uygulayarak Grubb-Niedrach yakıt pilini yapmıştır. Bu buluş Gemini uzay projelerinde kullanılmıştır. 1959 yılında Francis Bacon yakıt pilinin endüstriyel alanda ilk uygulamasını hidrojen-hava kullanarak çalışan 5 kW gücünde kaynak makinasını yaparak gerçekleştirmiştir. 1960'lı yıllarda uçak üreticisi Pratt&Whitney Bacon patentlerinin lisansını almış, orijinal tasarımı değiştirmiş, GE PEM tasarımından daha uzun ömürlü Bacon Cell tasarımı ile NASA Apollo projelerinde başarılı olmuştur. 1970'li ve 1980'li yıllar gelişmiş ülke üniversiteleri, araştırma

firmaları, devlet kuruluşları ve özel sektör firmalarının hidrojen ve yakıt pili konusunda yoğunlaşmasıyla geçmiştir. 1993 yılında Kanadalı Baliard firması ilk yakıt pili ile çalışan aracı tamamlamıştır. 2001 yılında Ballard Power Systems firması proton değişim membranlı yakıt pillerinin seri üretimine başlamıştır. Son yıllarda önemli otomotiv üreticileri yakıt pili ile çalışan otomobilleri geliştirmiş, bazı hastane ve okullarda yakıt pilleri kullanılmaya başlamıştır. 19. yüzyıldaki bilimsel meraklar 21. yüzyıl ve sonraki yılların güç ve enerji kaynağının yaratılmasını sağlamıştır. 21. yüzyıl doğal kaynakları tasarruflu kullanmaya ilginin daha da artacağı, fosil yakıtların çevreye verdiği zararların daha fazla anlaşılacağı, taşımacılıkta ve sabit enerji üretim tesislerinde hidrojen yakıt pillerinin daha yaygın kullanılacağı yıllar olacaktır (Mançuhan 2006).

2.1.2. Yakıt pillerinin avantajları ve dezavantajları

Yakıt pilleri, içten yanmalı motorlar veya bataryalar gibi geleneksel güç kaynaklarına kıyasla çeşitli avantajlara sahiptir. Her ne kadar yakıt hücrelerinin bazı özellikleri sadece bazı uygulamalar için geçerli olsa da çoğu avantaj daha geneldir. Yakıt pillerinin avantajları aşağıda verilmiştir (Anonim 2019a).

- Yakıt pilleri, dizel veya gaz motorlarından daha yüksek verime sahiptir.
- Çoğu yakıt pili, içten yanmalı motorlara kıyasla daha sessiz çalışır bu nedenle de hastane gibi binalarda kullanımı idealdir.
- Fosil yakıtların yakılmasından kaynaklanan kirlenmeyi ortadan kaldırabilir, hidrojen yakıtlı yakıt hücreleri için tek yan ürün sudur.
- Yakıt hücreleri petrol ve gaz gibi yakıtlara ihtiyaç duymaz bu da petrol üreten ülkelere ekonomik bağılılığı azaltır, kullanıcı ülke için enerji güvenliği sağlar.
- Hidrojen, suyun ve güç kaynağının olduğu her yerde üretilebildiği için, yakıt üretimi dağıtılabilir, şebekeye bağlı olması gerekmez.
- Düşük sıcaklık yakıt hücreleri, askeri uygulamalar için ideal olan düşük ısı iletimine sahiptir.
- Daha yüksek sıcaklıktaki yakıt hücreleri, elektrikle birlikte yüksek dereceli işlem ısısı üretir ve kojenerasyon uygulamalarına (örneğin konut kullanımı için kombine ısı ve güç gibi) uygundur.

- Çalışma süreleri akülerden çok daha uzundur.
- Sistemde az hareketli parça bulunduğundan yakıt hücrelerinin bakımı kolaydır.

Yakıt pillerinin dezavantajları ise yüksek maliyet, yakıt olarak kullanılan hidrojenin elde edilmesindeki güçlükler, hidrojen güvenliğinin sağlanması, yakıt depolama gereksinimi, teknoloji ve bilgi birikimi gerektiren bir sistem olması ve kullanım ömürlerinin tam olarak bilinmemesidir.

2.1.3. Yakıt pili çeşitleri

Yakıt pilleri kullanılan elektrolit malzemeye göre, çalışma sıcaklıklarına göre ve uygulama alanlarına göre sınıflandırılabilir. En yaygın sınıflandırma yakıt pili bünyesinde kullanılan elektrolitin cinsine göre sınıflandırmadır.

Uygulamada en sık karşılaşılan yakıt pili çeşitleri için elektrolit, çalışma sıcaklığı, elektriksel verim ve yakıt/oksitleyici Çizelge 2.1’de verilmiştir (Özdal 2018).

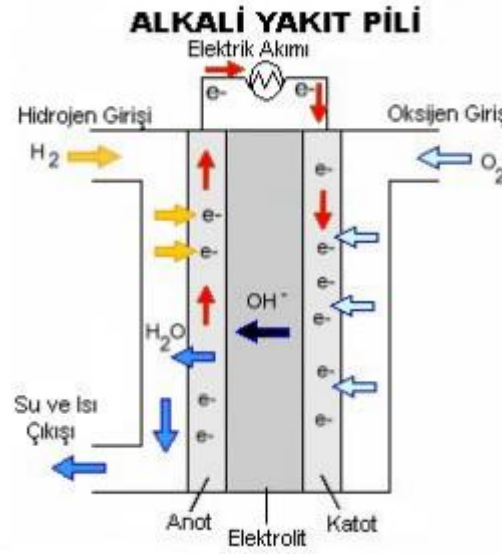
Çizelge 2.1. Uygulamada en sık karşılaşılan yakıt pili çeşitleri (Özdal 2018)

Yakıt Pili	Elektrolit	Çalışma Sıcaklığı	Elektriksel Verim	Yakıt/Oksitleyici
Alkali	Potasyum hidroksit çözeltisi	Oda sıcaklığı-250°C	%60-70	H ₂ /O ₂
PEM	Proton iletken elektrolit membran	Oda sıcaklığı-80°C	%40	60% H ₂ /O ₂ , hava
Direkt Metanol	Polimer iletken membran	Oda sıcaklığı-130°C	%20-30	CH ₃ OH/O ₂ , hava
Fosforik Asit	Sıvı fosforik asit	160-220°C	%55	Doğalgaz, biyogaz, H ₂ /O ₂ , hava
Erimiş Karbonat	Alkali karbonatlar	620-660°C	%65	Doğalgaz, biyogaz, kömür gazı, H ₂ /O ₂ , hava
Katı oksit	Erimiş alkali metal karışımı	800-1000°C	%60-65	Doğalgaz, biyogaz, kömür gazı, H ₂ /O ₂ , hava

Yakıt pili çeşitleri aşağıda verilmiş, tez konusu ile ilgili olarak PEM yakıt pilleri Bölüm 2.2’de ayrıntılı olarak anlatılmış, bu sebeple bu bölümde incelenmemiştir.

Alkali Yakıt Pilleri (AYP)

Alkali yakıt hücrelerinin elektrolitinin bir alkali çözelti olması gerekir. Sodyum hidroksit ve potasyum hidroksit çözeltisi düşük maliyetli ve yüksek çözünürlüğe sahip olmaları sebebiyle elektrolit olarak kullanılacak önemli adaylardır. 50°C ile 250°C sıcaklık aralığında çalışır. 1960’lı yılların başında, AYP ilk modern yakıt hücrelerinden biridir ancak çalışma verileri 1900’lere dayanmaktadır. Başarısı uzay aracı Apollo için elektrik gücü sağlamış olmasıdır. Yakıt olarak elektrolitin CO₂ hassasiyetinden dolayı yüksek oranda saf hidrojene ihtiyaç duyar. Ortam havası oksidan olarak kullanılıyorsa havadaki CO₂ giderilmelidir (Yakaryılmaz 2018). Alkali yakıt pili çalışma prensibi Şekil 2.1’de verilmiştir (Aydın 2007).



Şekil 2.1. Alkali yakıt pili (Aydın 2007)

Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



Direkt Metanol Yakıt Pilleri (DMYP)

Direkt metanol yakıt pilleri düşük güç aralığı nedeniyle çoğunlukla taşınabilir uygulamalar için kullanılır. 20°C ile 90°C sıcaklık aralığında çalışır. Temel avantajı sistemde doğrudan metanol kullanılmasıdır. Yakıt olarak metanol yerine diğer alkoller de kullanılabilir (Yakaryılmaz 2018).

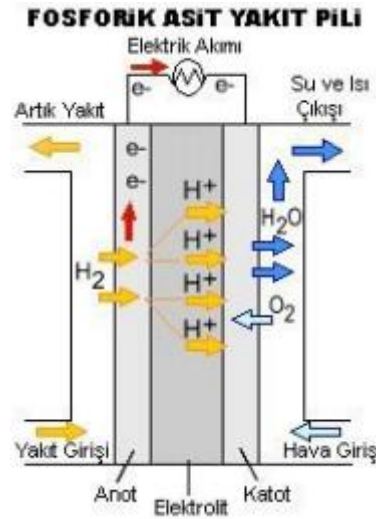
Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



Fosforik Asit Yakıt Pilleri (FAYP)

Fosforik asit yakıt pilleri tipik olarak yaklaşık 220°C'de çalışan, elektrolit olarak fosforik asit kullanan yakıt pilleridir. Fosforik asit, düşük sıcaklıkta zayıf bir iyonik iletkenidir. Çalışma sistemi PEM yakıt pilleri ile aynıdır. Güvenlidir ve bakım gerektirmeden uzun süre çalışır (Yakaryılmaz 2018).

Fosforik asit yakıt pili çalışma prensibi Şekil 2.2'de verilmiştir (Aydın 2007).



Şekil 2.2. Fosforik asit yakıt pili (Aydın 2007)

Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



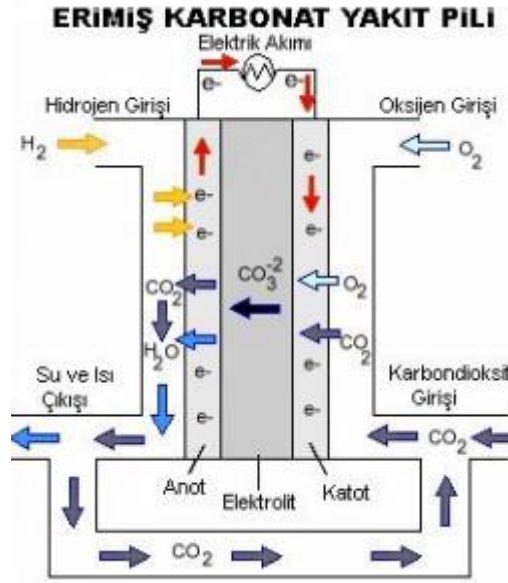
Erimiş Karbonat Yakıt Pilleri (EKYP)

Erimiş karbonat yakıt pillerinin elektroliti genellikle LiAlO_2 seramik kalıbında tutulan alkali karbonatların karışımıdır. Karbonat iyonları iyonik iletişimi sağlar, yakıt pili yaklaşık 650°C 'de çalışır. Sistem alkali yakıt pillerinden farklı olarak CO_2 gerektirir. Nispeten yüksek çalışma sıcaklığının avantajı katalizör olarak pahalı materyaller gerektirmemesidir. Dezavantajı ise mekanik kararlılığın etkilenmesi, istif ömrü ve malzeme sorunlarının oluşmasıdır (Yakaryılmaz 2018).

Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



Erimiş karbonat yakıt pili çalışma prensibi Şekil 2.3'te verilmiştir (Aydın 2007).

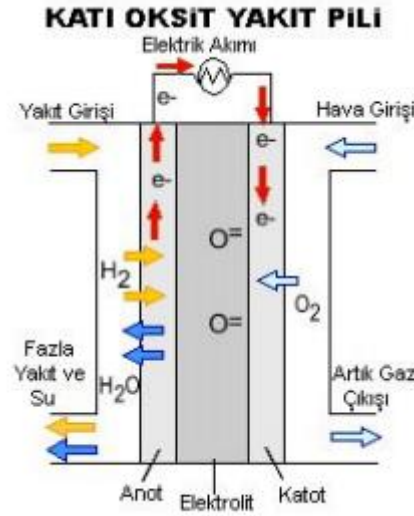


Şekil 2.3. Erimiş karbonat yakıt pili (Aydın 2007)

Katı Oksit Yakıt Pilleri (KOYP)

Katı oksit yakıt pillerinde elektrolit olarak Y_2O_3 içeren ZrO_2 (zirkonya) kullanılır. Yakıt pilinin maliyeti oldukça yüksektir. Yakıt olarak hem hidrojen hem de karbon monoksit kullanılır. Sağlam seramik konstrüksiyon yakıt pilinde korozyon sorunlarını ortadan kaldırır. 500°C üzerindeki yüksek çalışma sıcaklığında çalıştığından, sistem verimliliği %60-75 arasında değişmektedir. Yüksek çalışma sıcaklığı avantaj sağlamasının yanında malzeme seçiminde katı sınırlamalara da neden olur (Yakaryılmaz 2018).

Katı oksit yakıt pili çalışma prensibi Şekil 2.4'te verilmiştir (Aydın 2007).



Şekil 2.4. Katı oksit yakıt pili (Aydın 2007)

Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



2.2. PEM Yakıt Pilleri

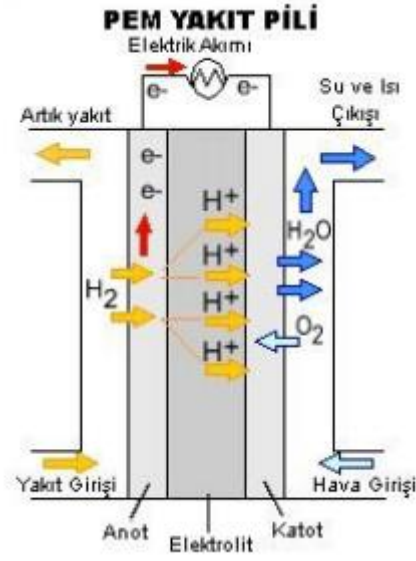
2.2.1. PEM yakıt pili çalışma prensibi

Polimer elektrolit membran (PEM) yakıt pilleri (proton değişim membranı yakıt pili olarak da bilinir) yüksek güç yoğunluğu sağlar ve diğer yakıt pilleriyle karşılaştırıldığında düşük ağırlık ve hacim avantajı sunarlar.

Proton değişim membranı yakıt hücresi, elektrolitinin, protonların bir yüzden diğerine iletilmesine izin veren bir katı polimer tabakasından oluşması nedeniyle olağandışıdır. Girdi olarak hidrojen ve oksijen gerektirir, oksidan ortam havası olabilir ve bu gazların nemlendirilmesi gerekir (Anonim 2019b).

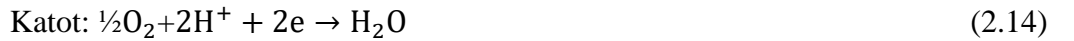
Hidrojen yakıtı, elektronların platin bazlı bir katalizörün yüzeyindeki protonlardan ayrıldığı anotta işlenir. Protonlar, membrandan hücrenin katot tarafına geçerken, elektronlar harici bir devrede ilerleyerek hücrenin elektriksel çıkışı oluşturur. Katot tarafında bir başka değerli metal elektrot protonları ve elektronları oksijenle birleştirerek tek atık ürün olarak su üretmektedir, oksijen saf bir şekilde sağlanabilir veya elektrotta doğrudan havadan sağlanabilir (Anonim 2019c).

Polimer elektrolit membran yakıt pili çalışma prensibi Şekil 2.5'te verilmiştir (Aydın 2007).



Şekil 2.5. PEM yakıt pili (Aydın 2007)

Gerçekleşen anot ve katot reaksiyonları aşağıdaki gibidir:



PEM yakıt pilleri nispeten düşük sıcaklıklarda çalışır (yaklaşık 80°C civarında). Düşük sıcaklıklarda çalışmasının ana avantajı ortam sıcaklığından başlayarak çalışma sıcaklığına hızlı bir şekilde ulaşmasıdır. Yakıt pili çalışabilmek için bir platin katalizör varlığına ihtiyaç duyar ve bu da maliyeti artırır. Ayrıca platin katalizör karbon monoksit zehirlenmesine karşı çok hassastır. Eğer hidrojen bir alkol veya hidrokarbon yakıttan

geliyorsa yakıt gazındaki karbon monoksiti azaltmak için ek bir reaktör kullanılması gerekir, bu reaktör aynı zamanda maliyeti de getirir (Anonim 2017).

2.2.2. PEM yakıt pili parçaları

PEM yakıt pilleri temel olarak iki elektrot (anot ve katot) ve polimer elektrolit membrandan oluşur. Anot ve katot elektrodu katalizör tabakası, gaz difüzyon tabakası, gaz kanalları ve akım toplayıcı plakaları içermektedir. PEM yakıt pillerini oluşturan bu parçalar belirli özelliklere ve rollere sahiptir.

Membran

PEM yakıt hücrelerinde proton transferini sağlayan elektrolit membrandır. Membran yüksek proton iletkenliği sağlamalı ve yüksek akımları en az direnç kayıplarıyla desteklemelidir. Anot ve katot bölmelerini elektriksel olarak izole etmelidir çünkü böylece elektronlar elektrik üretmek için harici bir devreyi takip ederler. Yeterli mekanik mukavemet ve kararlılıkta, çalışma şartlarında yakıt ve oksidan gazların karışmasına engel olmalıdır. Kurumayı önlemeli, düzgün nem sağlanarak kimyasal ve elektrokimyasal olarak stabil olmalıdır (Saygılı 2013).

Farklı membran tipleri arasında en sık kullanılan ve endüstri standardı haline gelen membran malzemesi Dupont tarafından üretilen Nafion'dur. Nafion yüksek proton iletkenliği ve kullanım ömründen dolayı tercih edildi ve yeni geliştirilen membranları karşılaştırmak için referans materyal olarak kullanılıyor (Saygılı 2013).

Nafion proton iletkenliği su alım oranına bağlıdır, yüksek su alım oranları yüksek iletkenliğine yol açtığı için membranda yüksek proton iletkenliği sağlamak için yeterince nemlendirme gerçekleşmelidir. Bunun yanında, sistemdeki fazla su miktarı önlenmelidir çünkü fazla su katalizör ve gaz difüzyon katmanı gözeneklerini doldurarak gazların reaksiyon bölgelerine ulaşmasına engel olabilir. Yakıt pili içerisindeki su yönetimi PEM yakıt pili operasyonu için çok önemlidir (Saygılı 2013).

Su yönetiminin yanında sıcaklıkta iyi yönetilmelidir çünkü 80°C üzerinde membranın proton iletkenliği dehidrasyon nedeniyle azalır, bunu önlemek için membran sıcaklığı 60-80°C civarında tutulmalıdır (Saygılı 2013).

Katalizör Tabakası

Katalizörler membranın iki tarafında hidrojen oksidasyon ve oksijen indirgeme reaksiyonları için, anotta ve katotta bulunurlar. Katalizörler reaksiyon için aktif bölge sağlarlar. Hem proton hem de elektron iletken olmalı ve su ile gaz transferine izin veren gözenekli yapıya sahip olmalıdırlar. Katalizörler yakıt ve oksidana dayanıklı olmalı ve kimyasal olarak stabil olmalıdırlar (Saygılı 2013).

Katalizörler PEM yakıt pilinin en önemli parçasıdır çünkü bütün elektrokimyasal reaksiyonları içerir. Yaklaşık 10-30 µm kalınlığındadırlar (Çetinbaş 2014).

Pt veya Pt destekli alaşımlar korozyona ve oksidasyona dirençleri ile yüksek elektrokatalitik aktiviteleri sebebiyle PEM yakıt hücrelerinde yaygın olarak kullanılır. Pt genel olarak karbon desteği üzerine dağılmış olup destek malzemesi yüksek bir yüzey alanına sahip olmalı, aşındırıcı ortamlarda dayanıklı olmalı, elektriksel iletken olup elektronlar için yollar oluşturmalıdır. Katalizörün maliyetini azaltmak için birçok çalışma bulunmaktadır (Saygılı 2013).

Membran elektrot birlikteliği (MEA) hazırlığı iki şekilde olabilir, katalizör direkt membran üzerine uygulanarak gaz difüzyon tabakalarıyla preslenebilir ya da katalizör gaz difüzyon tabakasına uygulanıp membran sonradan bu tabakalar arasına sıkıştırılarak preslenebilir. Katalizör ile membran arasındaki temas direncinin potansiyel kayıpları azaltmak için minimuma indirilmesi gerekir (Saygılı 2013).

Gaz Difüzyon Tabakası

Gaz difüzyon tabakası (GDL) bipolar plaka ve katalizör tabakası arasında yer alır, 100-300 µm kalınlığında olup gözenekli bir yapıya sahiptir. GDL genelde bir karbon bezi ya da gözenekli yapıda bir karbon kağıdıdır (Çetinbaş 2014).

Gözenekli yapıya sahip olmasının sebebi reaktif gazları homojen olarak yakıt hücresi aktif alanına dağıtmasıdır. GDL elektriksel ve termal olarak iletken olmalıdır çünkü elektron transferi için elektriksel iletkenlik, üretilen ısının katalizörden diğer yakıt pili parçalarına dağıtılması için termal iletkenlik gerekir. Gaz difüzyon tabakalarında su MEA içerisinde hidrofobik (PTFE Teflon) ve hidrofilik katkıların kullanılmasıyla yönetilir. Gaz difüzyon tabakası hidrofilik kanalları aracılığıyla katalizör yüzeyinde üretilen su çıkış gazı kanallarına aktarılır bu nedenle de reaktif gazlar hidrofobik kanalları izler, tür taşınımı bir müdahale olmadan dengelenir. Gaz taşımacılığını sürdürmek ve su basmasını önlemek için su yönetimi iyi bir şekilde yapılmalıdır (Saygılı 2013).

Gaz difüzyon tabakası elektrik akımını iyi iletmeli, reaktif gazların dağılımını düzgün sağlamalı ve suyun katottan boşaltılmasını sağlamalıdır (Çetinbaş 2014).

Bipolar Plaka (Akım Toplayıcı Plaka)

Bipolar plakalar PEM yakıt pilinin en dış katmanıdır. Gaz akış kanalları bipolar plakaların içine yerleşmiştir.

Bipolar plakalar elektriksel olarak iletkenler ve elektron transferine devrenin tamamlanması için izin verirler. Bir hücrenin anodunu yanındaki başka bir hücrenin katoduna bağlayarak seri halde bağlanmış yakıt hücresi yığını oluştururlar. Yapısal olarak membran elektrot birlikteliğini destekler bu yüzden dayanıklılığa ve mekanik dayanıma sahip olmalıdır. Akış alanıyla yakıt ve oksidan akışını sağlarlar. Gaz geçirmezler bu nedenle reaktifler gaz difüzyon tabakasına ulaşmak için gaz kanallarından geçmek zorunda kalırlar. Ayrıca soğutma kanalları ile yakıt hücresi yığınının soğumasını da sağladıkları için termal iletkenlikleri de yüksek olmalıdır. Bipolar plaka ağırlığı yığın ağırlığının en büyük kısmıdır bu nedenle de hafif malzemeler tercih edilir. Malzeme düşük maliyetli olmalı, kolayca işlenmeli ve üretilmeli, yakıt pili aşındırıcı ortamına dayanmalıdır (Saygılı 2013).

Bipolar plaka olarak kullanılan malzemeler grafit, polimer-grafit kompozit ve metallerdir. Grafitler yüksek elektronik iletkenlik ve kimyasal stabilite gösterirler ancak kırılğan

oldukları için mekanik dayanıklılıktan yoksundurlar. Grafit plakalarda akış alanlarının maliyeti de pahalıdır. Mekanik kuvveti arttırmak için grafitlerde bazı polimer katkı maddeleri kullanılabilir bunlar kimyasal stabiliteyi etkilemeden plakalara esneklik sağlarlar ama bununla beraber elektrik iletkenliğinde de bir azalma olur. Elektrik iletimi ve mekanik dayanım açısından metaller daha iyidir ancak yakıt hücresinin asidik ortamına dayanamayarak korozyona maruz kalabilirler. Grafitin elektrik iletkenliğini azaltmadan farklı kaplama malzemeleri kullanılarak sorun giderilebilir (Saygılı 2013).

2.2.3. PEM yakıt pili uygulama alanları

PEM yakıt pili teknolojisi düşük emisyon ve yüksek verimlilik nedenlerinden dolayı son yıllarda dünya çapında ilgi görmektedir.

PEM yakıt pilleri öncelikle nakliye uygulamaları ile bazı sabit uygulamalarda kullanılır. PEM yakıt pilleri hızlı başlangıç süreleri ve uygun güç/ağırlık oranı sebebiyle özellikle otomobil ve otobüsler gibi binek araçlarda kullanıma elverişlidir (Anonim 2019d).

PEM yakıt hücrelerinin birçok uygulama alanı olmasına rağmen bunlardan ulaşım en rekabetçi ve umut verici olandır. Ulaşım uygulamalarına örnekler; elektrikli otobüsler, elektrikli bisiklet, hafif araç ve elektrikli eğlence yatlarıdır. Diğer uygulama alanı sabit uygulamalar olan yakıt hücreleri sabit bir güç jeneratörü sisteminde kullanılmış ve cep telefonu baz istasyonunda UPS sistemine uygulanmıştır. Bir diğer örnek uygulama olarak da taşınabilir uygulamalar için taşınabilir bir bilgisayarda PEMFC güç sistemi değerlendirilmiştir (Wee 2007).

PEMFC'nin imalatında yer alan bir dizi şirket vardır. Ballard muhtemelen liderdir, ancak İtalya'daki DeNora ve Siemens gibi şirketler hızla ilerlemektedir. Güncel tasarımların ana odağı, güvenlik için katı bir elektrolit bulundurma avantajları olduğundan ve yakıt hücresi tarafından üretilen ısı, herhangi bir kojenerasyon formu için yeterli olmadığından, taşıma uygulamalarıdır. Daimler-Benz, Ballard yakıt pilleriyle çalışan otomobillerin geliştirilmesinde yüksek bir profile sahipken, Toyota yakın zamanda kendi tasarımlarına

sahip bir yakıt hücresi kullanan araç sunmuştur. General Motors ve Ford dahil diğer otomobil üreticileri de benzer gelişmelere aktif olarak katılmaktadır (Anonim 2019b).



3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Yakıt Pillerinde Temel Denklemler

Yakıt pillerinde elektrokimyasal reaksiyonlar anot ve katot katalizör tabakalarında gerçekleşir. Temel yakıt pili reaksiyonları;



Yakıt pili genel reaksiyonu (Eşitlik 3.3) hidrojenin yanma reaksiyonuyla aynıdır ve yanma ekzotermik bir süreç olduğundan süreç içinde enerji açığa çıkmaktadır (Barbir 2005).



Kimyasal bir tepkimenin ısısı (entalpi), ürünlerin ve reaktanların oluşum ısısı arasındaki farktır. Sıvı su oluşumu için reaksiyon entalpisi $\Delta H = -286 \text{ kJ mol}^{-1}$ 'dir (25°C'de).

Yakıt hücresinde elektriğe dönüştürülebilen reaksiyon entalpisi Gibbs serbest enerjisine karşılık gelir. Entalpinin tamamı elektrik enerjisine dönüşmez. Başka bir deyişle enerji dönüşümünde entropi (ΔS) oluşumu nedeniyle bazı geri dönüşümsüz kayıplar söz konusudur (Barbir 2005).

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (3.5)$$

25°C'de ΔH , ΔG , ΔS değerleri Çizelge 3.1'de verilmiştir.

Çizelge 3.1. Hidrojen oksitlenme işlemlerinde entalpi, entropi ve Gibbs serbest enerjisi

Oksitlenme reaksiyonu	ΔH (kJ mol ⁻¹)	ΔS (kJ mol ⁻¹ K ⁻¹)	ΔG (kJ mol ⁻¹)
H ₂ + 1/2O ₂ → H ₂ O (1)	-286,02	-0,1613	-237,34
H ₂ + 1/2O ₂ → H ₂ O (g)	-241,98	-0,0444	-228,74

Yakıt hücresi teorik potansiyeli;

$$E = \frac{-\Delta G}{nF} \quad (3.6)$$

$$E = \frac{-\Delta G}{nF} = \frac{237,340 \text{ J mol}^{-1}}{2 \cdot 96,485 \text{ Asmol}^{-1}} = 1,23 \text{ V} \quad (3.7)$$

Yakıt pili reaksiyonunda (Eşitlik 3.6) ΔG Gibbs serbest enerjisi, n elektron sayısı (her hidrojen molekülü için 2'dir) ve F Faraday sabitini göstermektedir. 25°C'de teorik yakıt hücresi potansiyeli 1,23 V'dur.

Herhangi bir enerji dönüşüm cihazının verimliliği faydalı enerji çıkışı ve enerji girişi arasındaki fark olarak tanımlanır. Yakıt hücresinde faydalı enerji çıkışı üretilen elektrik enerjisidir ve enerji girişi hidrojen üst ısıl değeridir (Barbir 2005).

Tüm Gibbs serbest enerjisinin elektrik enerjisine dönüştürülebileceğini varsayarsak yakıt hücresinin olası maksimum teorik verimi;

$$\eta = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{237,34}{286,02} = 83 \% \quad (3.8)$$

Yakıt pili verimliliği ifade etmek için hidrojen alt ısıl değeri kullanıldığında hücre teorik verimliliği;

$$\eta = \frac{\Delta G}{\Delta H_{LHV}} = \frac{228,74}{241,98} = 94,5 \% \quad (3.9)$$

Yakıt pili gerçek potansiyeli ve gerçek verimliliği çeşitli nedenlerden dolayı oluşan gerilim kayıpları nedeniyle teorik değerlerden daha düşüktür. Gerilim kayıpları aşağıda anlatılmıştır.

3.1.1. Gerilim kayıpları

Yakıt pili reaktan gazlar ile besleniyorsa, ancak elektrik devresi kapatılmamışsa, bir akım üretmeyecektir ve bu durumda hücre potansiyelinin teorik hücre potansiyeline eşit olması beklenir (verilen sıcaklık, basınç, reaktanların konsantrasyonu şartlarında). Pratikte açık devre potansiyeli olarak adlandırılan bu potansiyel teorik potansiyelden daha düşüktür, genellikle 1 V'dan azdır. Bu da demektir ki harici akım üretilmediğinde bile yakıt hücresinde bazı kayıplar olmaktadır (Barbir 2005).

Bir yakıt hücresinde elektrokimyasal reaksiyonların kinetiği, elektriksel ve iyonik direnç, reaktanların reaksiyon alanlarına ulaşmasındaki zorluklar, reaktanların çapraz geçişi gibi sebeplerden dolayı voltaj kayıpları meydana gelmektedir (Barbir 2005).

Bu kayıplardan en önemlileri aktivasyon kaybı, iç akımlar ve çapraz kayıplar, ohmik (direnç) kayıplar ve konsantrasyon kayıplarıdır.

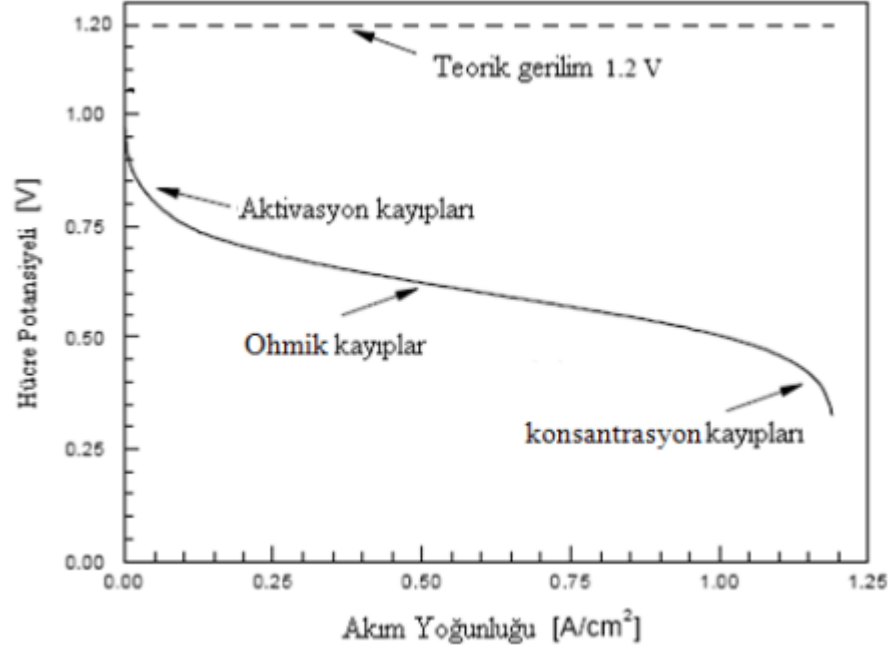
3.1.2. Yakıt hücresi potansiyeli-Polarizasyon eğrisi

Gerçek hücre potansiyeli (V_{cell}) teorik hücre potansiyelinden aktivasyon, ohmik ve konsantrasyon kayıplarının çıkarılmasıyla bulunur. Aktivasyon ve konsantrasyon kayıpları hem anot hem de katotta gerçekleşebilir (Barbir 2005).

$$V_{\text{cell}} = E_r - (\Delta V_{\text{act}} + \Delta V_{\text{conc}})_a - (\Delta V_{\text{act}} + \Delta V_{\text{conc}})_c - \Delta V_{\text{ohm}} \quad (3.10)$$

Yakıt pillerinde bu kayıpların etkisi dikkate alınarak akım ile gerilim arasındaki değişimi gösteren grafiğe polarizasyon eğrisi denir.

Teorik hücre geriliminden aktivasyon, ohmik ve konsantrasyon kayıplarının çıkarılmasıyla elde edilen yakıt hücresi polarizasyon eğrisi Şekil 3.1’de verilmiştir (Özdemir 2012).



Şekil 3.1. Yakıt pillerinde gerilim kayıpları ve polarizasyon eğrisi (Özdemir 2012)

3.1.3. Yakıt hücresi verimliliği

Yakıt hücresi verimliliği üretilen elektrik ile tüketilen hidrojen arasındaki oran olarak tanımlanır ve ikisi de aynı birimde olmalıdır (watt veya kilowatt gibi).

$$H = \frac{W_{el}}{W_{H_2}} \quad (3.11)$$

Üretilen elektrik akım (amper) ve gerilimin (volt) çarpımıdır.

$$W_{el} = I * V \quad (3.12)$$

Tüketilen hidrojen miktarı (mol/s^{-1}) Faraday kanununa göre üretilen akım ile doğrudan orantılıdır.

$$N_{H_2} = \frac{I}{nF} \quad (3.13)$$

Tüketilen hidrojenin enerji değeri (watt);

$$W_{H_2} = \Delta H \frac{I}{nF} \quad (3.14)$$

$\Delta H/nF$ volt boyutunda olup $\Delta H = 286$ kJ/mol için 1,482 V değerine eşittir. Eşitlik 3.11 ve 3.14 birleştirilerek yakıt hücresi verimliliğinin sadece hücre potansiyeli ile doğru orantılı olduğu görülür (Barbir 2005).

$$H = \frac{V}{1,482} \quad (3.15)$$

3.1.4. PEM yakıt pilleri korunum denklemleri

Kütlenin Korunumu Denklemi

Kütle korunum denkleminin (süreklilik denklemi) kartezyen koordinatındaki en genel hali Eşitlik 3.16'da verilmiştir.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho \vec{u}) = S_m \quad (3.16)$$

Eşitlikte ρ akışkan yoğunluğunu (kg/m^3), \vec{u} akışkanın hız vektörünü (m/s) ve S_m reaktant tüketimi ve ürün oluşumu için kaynak terimini göstermektedir.

Yakıt hücresinde reaktant tüketimi ve ürün oluşumu için kaynak terimi (S_m) anot tabakasında hidrojen tüketimi (elektron ve proton üretmek için) kaynak terimi olarak, katot tabakasında oksijen tüketimi ve su oluşumu bölgesel akım yoğunluğuna dayalı kaynak terimi olarak modellenir.

$$S_{H_2} = - \frac{M_{H_2}}{2F} i_a \quad (3.17)$$

$$S_{O_2} = - \frac{M_{O_2}}{4F} i_c \quad (3.18)$$

$$S_{H_2O} = - \frac{M_{H_2O}}{2F} i_c \quad (3.19)$$

Eşitliklerde M molar kütleleri (kg kmol^{-1}), F Faraday sabitini (C mol^{-1}) ve i akım yoğunluğunu (A m^{-3}) ifade etmektedir.

Momentumun Korunumu Denklemi

Momentum korunum denklemi yakıt pillerinde hız ve basınç dağılımlarının hesaplanmasında kullanılır, denklemin kartezyen koordinatlarındaki genel hali Eşitlik 3.20'de verilmiştir.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \vec{u}) + \nabla(\rho \vec{u} \vec{u}) = -\nabla P + \nabla(\vec{\tau}) + \rho \vec{g} + \vec{F} \quad (3.20)$$

Eşitlikte ρ yoğunluk (kg/m^3), \vec{u} akışkanın hız vektörü (m/s), P statik basınç (Pa), \vec{g} yer çekimi ivmesi (m/s^2), \vec{F} dış kuvvetler (N/m^3) ve $\vec{\tau}$ gerilme tensörüdür. \vec{F} ayrıca diğer modele bağlı kaynak terimlerini içerir.

Gerilme tensörünün hesaplanması;

$$\vec{\tau} = \mu \left[(\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^T) - \frac{2}{3} \nabla \vec{u} I \right] \quad (3.21)$$

Burada μ dinamik viskoziteyi, I birim tensörü temsil etmektedir. Eşitliğin sağındaki ikinci terim ise hacim genişlemesinin etkisidir.

Eşitlik 5.20'deki \vec{F} modele bağlı kaynak terimlerini içerir, akışkan gözenekli ortamdan geçerken kaynak terimi (S_u) hesaba katılır. Kaynak terimi gözenekli yapıda olan membran, katalizör tabakası ve gaz difüzyon tabakasında tanımlıdır, gaz kanalları ve akım toplayıcı plakalar için momentum kaynağı (S_u) sıfırdır. Kaynak terimi eşitlik Eşitlik 3.22 ile hesaplanır.

$$S_u = - \frac{\mu}{K} \varepsilon \vec{u} \quad (3.22)$$

Eşitlikte K gözenekli ortamın geçirgenliği ve ε gözenekliliği ifade etmektedir.

Enerjinin Korunumu Denklemi

Enerji korunum denkleminin çözülmesi ile yakıt pilinde oluşan sıcaklık ve akım yoğunluğu dağılımları bulunur. Enerji korunum denkleminin genel hali Eşitlik 3.23'te verilmiştir.

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho E) + \nabla (\vec{u} (\rho E + P)) = \nabla [k_{eff} \nabla T - \sum_j h_j \vec{J}_j + (\bar{\tau}_{eff} \vec{u})] + S_h \quad (3.23)$$

Eşitlikte k_{eff} etkin ısı iletim katsayısıdır ve $k_{eff} = k + k_t$ ile tanımlanır. Eşitlikteki k_t terimi ise kullanılan türbülans modelindeki türbülans ısı iletkenliğidir. Eşitlikteki \vec{J}_j terimi, j türünün difüzyon akısı olarak tanımlanır. Eşitliğin sağındaki terimlerden ilki iletimle olan enerji transferini, ikincisi tür difüzyonu ile olan enerji transferini ve üçüncüsü viskoz etkilerle olan enerji transferini göstermektedir. S_h enerji kaynak terimidir.

Eşitlikteki enerji kaynak terimi (S_h) yakıt pilinde katalizör tabakalarda Eşitlik 3.24'teki şekilde tanımlanmıştır.

$$S_h = I^2 R_{ohm} + h_{reaksiyon} - \eta R_{an,kat} \quad (3.24)$$

Eşitlikte sağdaki ilk terim ohmik ısınma ikinci terim reaksiyon entalpisi ve son terim elektriksel iş kaynak terimleridir. $R_{an,kat}$ anot ve katot katalizör tabakalarının hacimsel transfer akımı büyüklükleridir.

Eşitlikteki E terimi;

$$E = h - \frac{P}{\rho} + \frac{u^2}{2} \quad (3.25)$$

Eşitlikte h , entalpiyi sembolize etmektedir ve ideal gaz için;

$$h = \sum_j Y_j h_j \quad (3.26)$$

Sıkıştırılamaz akışkanlar için entalpi değerleri ise;

$$h = \sum_j Y_j h_j + \frac{P}{\rho} \quad (3.27)$$

Y_j terimi j türünün kütle kesrini göstermektedir. H_j terimi ise j türünün entalpisini göstermektedir ve sıcaklığa bağlı olarak tanımlanır;

$$h_j = \int_{T_{ref}}^T c_{p,j} dT \quad (3.28)$$

Burada T_{ref} , referans sıcaklığıdır.

Elektrokimyasal Denklemler

Elektrokimyasal modellemenin merkezinde hidrojen oksidasyon ve oksijen redüksiyon hızları yatar. Elektrokimyasal işlemler katalizör tabakalarında gerçekleşir.

PEM yakıt pili analizinde elektronun ve hidrojen iyonlarının transferinin matematiksel olarak tanımlanması gerekir. Elektron taşınımı Eşitlik 3.29'da matematiksel olarak tanımlanmıştır.

$$\nabla \left(\sigma_{sol} \nabla \phi_{sol} \right) + S_{\phi, sol} = 0 \quad (3.29)$$

Hidrojen iyonlarının transferi ise Eşitlik 3.30'da tanımlanmıştır.

$$\nabla \left(\sigma_{mem} \nabla \phi_{mem} \right) + S_{\phi, mem} = 0 \quad (3.30)$$

Eşitliklerde σ_{sol} katı faz iletkenliği (1/ohm-m), ϕ_{sol} katı faz potansiyeli (V), $S_{\phi, sol}$ katı faz potansiyeli için kaynak terimi (A/m^3), σ_{mem} membran iletkenliği (1/ohm-m), ϕ_{mem} membran potansiyeli (V) ve $S_{\phi, mem}$ membran potansiyeli için kaynak terimini (A/m^3)

ifade etmektedir. Eşitliklerdeki ϕ_{sol} ve ϕ_{mem} terimleri tanımlanan sınır şartları yardımıyla hesaplanır.

Eşitlik 3.29 ve Eşitlik 3.30'da geçen kaynak terimleri yalnızca katalizör tabakalarda tanımlıdır. Elektron transferi denklemi için kaynak terimi anot tarafında $S_{\phi,sol} = -R_{an}$ (< 0) ve katot tarafında $S_{\phi,sol} = +R_{kat}$ (> 0) olarak tanımlanır. İyon transferi kaynak terimi anot tarafında $S_{\phi,mem} = +R_{an}$ (> 0) ve katot tarafında $S_{\phi,mem} = -R_{kat}$ (< 0) olarak tanımlanır.

Kaynak terimleri hacimsel transfer akım yoğunluğu olarak da tanımlanırlar, akım yoğunluğunu veren Bulter-Volmer denkleminin genişletilmiş hali Eşitlik 3.31 ve Eşitlik 3.32'de verilmiştir.

$$R_{an} = j_{an}^{ref} \left(\frac{[H_2]}{[H_2]_{ref}} \right)^{\gamma_{an}} (e^{\alpha_{an}F\eta_{an}/RT} - e^{-\alpha_{kat}F\eta_{an}/RT}) \quad (3.31)$$

$$R_{kat} = j_{kat}^{ref} \left(\frac{[O_2]}{[O_2]_{ref}} \right)^{\gamma_{kat}} (-e^{\alpha_{an}F\eta_{kat}/RT} + e^{-\alpha_{kat}F\eta_{kat}/RT}) \quad (3.32)$$

Bulter-Volmer denkleminin basitleştirilmiş hali Tafel formülasyonu Eşitlik 3.33 ve Eşitlik 3.34'de verilmiştir.

$$R_{an} = j_{an}^{ref} \left(\frac{[H_2]}{[H_2]_{ref}} \right)^{\gamma_{an}} (e^{\alpha_{an}F\eta_{an}/RT}) \quad (3.33)$$

$$R_{kat} = j_{kat}^{ref} \left(\frac{[O_2]}{[O_2]_{ref}} \right)^{\gamma_{kat}} (e^{-\alpha_{kat}F\eta_{kat}/RT}) \quad (3.34)$$

Eşitliklerde j^{ref} referans akım yoğunluğu (A/m^2), $[]$ tür konsantrasyonu değeri ($kg \cdot mol/m^3$), $[]_{ref}$ tür konsantrasyonunun referans değeri ($kg \cdot mol/m^3$), γ konsantrasyon üssü, α transfer katsayısı, F Faraday sabiti ($96485 C/mol$) ve η aşırı gerilim olarak tanımlanır.

Aşırı gerilim miktarı katı ve membran potansiyelindeki farktan, Eşitlik 3.35 ve Eşitlik 3.36'dan hesaplanabilir.

$$\eta_{an} = \phi_{sol} - \phi_{mem} \quad (3.35)$$

$$\eta_{kat} = \phi_{sol} - \phi_{mem} - V_{oc} \quad (3.36)$$

Eşitlik 3.36'daki V_{oc} pilde oluşan elektriksel potansiyel (açık devre voltajı) olarak tanımlanır.

Türlerin Korunumu Denklemi

Yakıt pilinde tüm akışkanların gaz fazında olduğu kabul edilerek pildeki gazların dağılımı Eşitlik 3.37 ile bulunur.

$$\nabla(\vec{u}C_j) = \nabla(D_j^{eff} \nabla C_j) + S_j \quad (3.37)$$

Eşitlikte C_j j türüne ait molar konsantrasyon ve D_j^{eff} j türünün düzeltilmiş difüzyon sabitidir (m^2/s), D_j^{eff} Eşitlik 3.38 ile bulunur.

$$D_j^{eff} = D_j \varepsilon^{1,5} \quad (3.38)$$

Tür eşitlikleri için hacimsel kaynak terimleri Eşitlik 3.39, Eşitlik 3.40 ve Eşitlik 3.41'de tanımlanmıştır.

$$S_j = -\frac{M_{w,H_2}}{2F} R_{an}, \text{ Hidrojen için} \quad (3.39)$$

$$S_j = -\frac{M_{w,O_2}}{4F} R_{kat}, \text{ Oksijen için} \quad (3.40)$$

$$S_j = \frac{M_{w,H_2O}}{2F} R_{kat}, \text{ Su buharı için} \quad (3.41)$$

Katalizör tabakalarda oluşan elektrokimyasal tepkimeler katalizör yüzeylerde gerçekleşen heterojen tepkime olarak değerlendirilir. Bu duruma bağlı olarak Eşitlik 3.31-Eşitlik 3.34'de tanımlanan tür konsantrasyonları, yüzey değerleridir. Tepkimelerde reaksiyona giren herhangi bir türün difüzyon akısı Eşitlik 3.42'de verildiği gibi o türün oluşum hızı ile dengelenir.

$$\frac{\rho D_j}{\delta} (y_{j,yüzey} - y_{j,merkez}) r = - \frac{M_{w,j}}{nF} R_{an,kat} \quad (3.42)$$

Eşitlikte D_j j türünün difüzyon katsayısı (m^2/s), r katalizör yüzey alanının hacme oranı ($1/m$), $y_{j,yüzey}$ tepkime yüzeyindeki j türünün kütle oranı, $y_{j,merkez}$ hücre merkezindeki j türünün kütle oranı ve δ tepkime yüzeyleri ve yakıt hücresi merkezi arasındaki ortalama uzaklık (m) olarak tanımlanır.

Tepkime yüzeyleri ve yakıt hücresi merkezi arasındaki ortalama uzaklık (m) Eşitlik 3.43'te tanımlanmıştır.

$$\delta = \frac{1}{r} \quad (3.43)$$

Özellikler

Gazların Tür Difüzyonu;

Gaz fazı tür difüzyon katsayısı Eşitlik 3.44 yardımıyla elde edilir.

$$D_j = \varepsilon^{1.5} (1 - s)^{r_s} D_j^0 \left(\frac{P_0}{P} \right)^{\gamma_P} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{\gamma_t} \quad (3.44)$$

Eşitlikte D_j^0 j türünün referans sıcaklık ve basınçtaki (P_0, T_0) kütle difüzyon katsayısı, P_0 referans basıncı (101 325 kPa), T_0 referans sıcaklığı (300 K), γ_P, γ_t denklem sabitleri (sırasıyla 1 ve 1,5) ve r_s gözenek blokaj üssü (2,5) olarak tanımlanır.

Membranın Elektriksel Faz İletkenliği;

Membran elektriksel faz iletkenliği Eşitlik 3.45 kullanılarak hesaplanabilir.

$$\sigma_{mem} = \beta \varepsilon (0,514\lambda - 0,326) \omega e^{1268 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right)} \quad (3.45)$$

Eşitlikte λ su içeriği, ε gözeneklilik ve β , ω model sabitleri olarak tanımlanır.

Ozmotik Sürüklenme Katsayısı;

Ozmotik sürüklenme katsayısı Eşitlik 3.46 kullanılarak hesaplanabilir.

$$\alpha_d = 2,5 \frac{\lambda}{22} \quad (3.46)$$

Geri Difüzyon Akısı;

Geri difüzyon akısı Eşitlik 3.47’de verilmiştir.

$$J_{\omega}^{diff} = - \frac{\rho_{mem}}{M_{mem}} M_{H_2O} D_1 \nabla \lambda \quad (3.47)$$

Eşitlikte ρ_{mem} membranın yoğunluğu (kg/m^3), M_{mem} membranın eşdeğer ağırlığı ve D_1 membrandaki su difüzyonunu sembolize etmektedir.

Membran su difüzyonu Eşitlik 3.48 yardımıyla hesaplanır.

$$D_1 = f(\lambda) e^{2416 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right)} \quad (3.48)$$

Su içeriği (λ) Eşitlik 3.49 ya da Eşitlik 3.50’den yararlanılarak hesaplanır.

$$\lambda = 0,043 + 17,18a - 39,85a^2 + 36a^3 \quad a < 1 \quad (3.49)$$

$$\lambda = 14 + 1,4(a - 1) \quad a > 1 \quad (3.50)$$

Eşitliklerdeki a su aktivitesidir ve Eşitlik 3.51’deki şekilde tanımlanır.

$$A = \left(\frac{P_{wv}}{P_{sat}} \right) + 2s \quad (3.51)$$

Eşitlik 3.51'deki P_{wv} su buhar basıncıdır ve buhar molar kesri ile lokal basıncına bağlı olarak Eşitlik 3.52'den yararlanılarak hesaplanır.

$$P_{wv} = x_{H_2O}P \quad (3.52)$$

Eşitlik 3.51'deki P_{sat} doyma basıncıdır ve atmosfer basıncı cinsinden hesabı Eşitlik 3.53'te verilmiştir.

$$\begin{aligned} \text{Log}(P_{sat}) = & -2,1794 + 0,02953(T - 273,17) - 9,1837 \times 10^{-5}(T - \\ & 273,17)^2 + 1,4454 \times 10^{-7}(T - 273,17)^3 \end{aligned} \quad (3.53)$$

3.2. PEM Yakıt Hücresi Sayısal Analizi

Yapılan tez çalışmasında üç boyutlu, serpantin kanallı PEM yakıt hücresi, Hesaplamalı Akışkanlar Dinamiği (HAD) yöntemi kullanılarak tek fazlı analiz edilmiştir. Çalışma geçici rejimde ve kararlı halde ayrı ayrı yapılmıştır.

Geçici rejim çalışmasında yakıt hücresinin kütle akış oranlarındaki bir adım değişikliğine yanıtı aranmıştır. Giriş akış koşullarına kütle akış oranlarında %20'lik adım değişiklikleri uygulanmış ve yakıt hücresinin zamana bağlı güç ve akım yoğunluğu tepkileri çeşitli hücre voltajı değerleri için analiz edilmiştir. Yakıt hücresi performansının değerlendirilmesi için polarizasyon eğrileri oluşturulmuş ve zaman içindeki değişimleri sunulmuştur.

Kararlı hal çalışmasında ise yakıt hücresi çalışma parametrelerinin (çalışma basıncı, dönüşüm katsayısı ve stokiyometrik akış oranı) PEM yakıt hücresi performansı üzerindeki etkileri incelenmiştir. Yakıt hücresi performansı değerlendirilmesi için standart eğri olan polarizasyon eğrileri oluşturulmuştur.

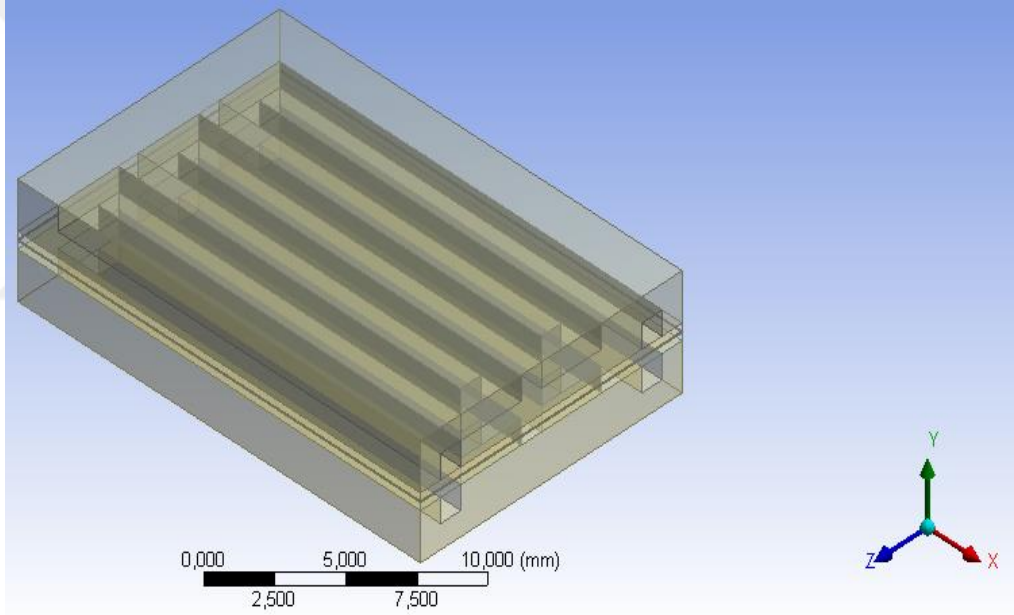
Model 'Ansys Design Modeler' katı model çizim programı aracılığıyla oluşturulmuş, membran, katalizör tabakaları, gaz difüzyon tabakaları, gaz akış kanalları, anot ve katot akım toplayıcı plakalar dahil olmak üzere tam bir PEMFC göz önüne alınmıştır. Elde

edilen model küçük boyutta elemanlara ‘Ansys ICEM CFD’ aracılığıyla bölünmüş, sınır koşulları tanımlanmış ve çözücü ayarları yapılarak ANSYS/FLUENT yazılımı ile çözülmüştür.

Analiz sonuçları literatürdeki sonuçlarla karşılaştırılarak model doğrulanmıştır. Model doğrulanmasının ardından geçici rejim ve kararlı hal analizleri yapılmıştır.

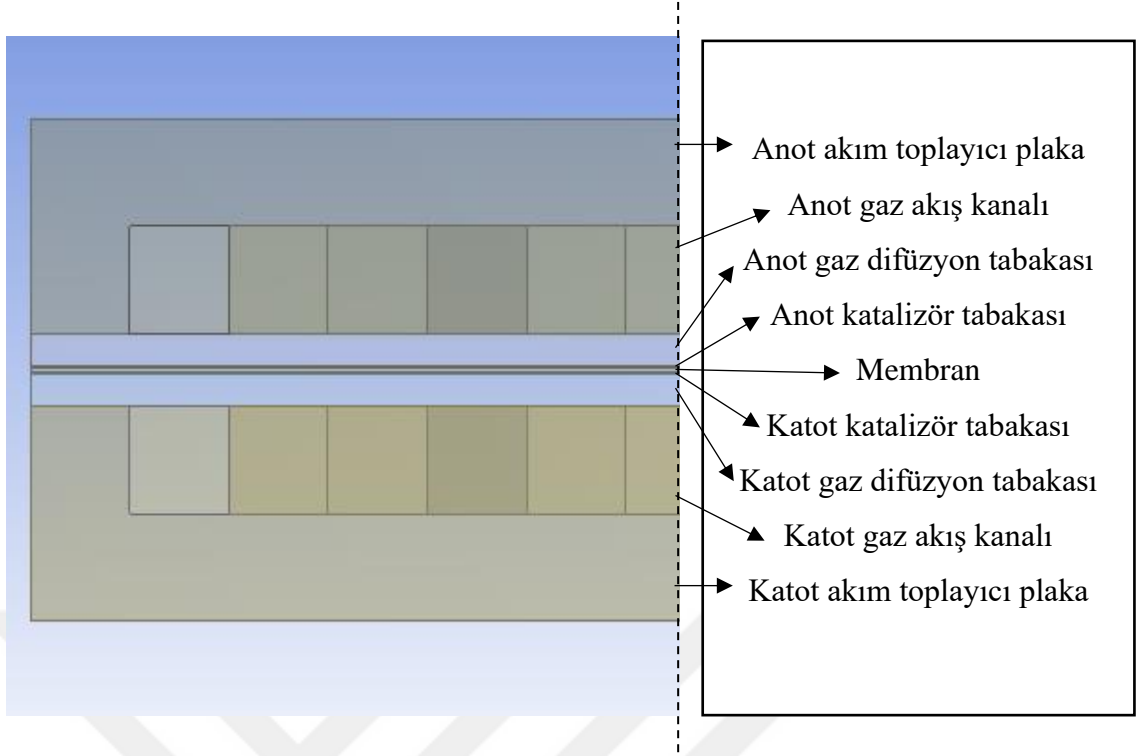
3.2.1. Geometri oluşturma

Yakıt hücresi modeli bilgisayar destekli çizim programı ‘Ansys Design Modeler’ katı model çizim programıyla oluşturulmuştur, Şekil 3.2’de sunulmaktadır.



Şekil 3.2. Oluşturulan üç boyutlu PEM yakıt hücresi fiziksel modeli

Model membran, katalizör tabakaları, gaz difüzyon tabakaları, gaz kanalları ve akım toplayıcı plakalar olmak üzere 9 hacim bölgesinden oluşmaktadır, model geometrisi önden kesit görünümü ve yakıt hücresi bileşenleri Şekil 3.3’te verilmiştir.



Şekil 3.3. Model geometrisi önden kesit görünümü ve yakıt hücresi bileşenleri

Anot ve katot akım toplayıcı plakalar katı (solid), membran, katalizör tabakaları, gaz difüzyon tabakaları ve gaz akış kanalları akışkan (fluid) olarak modellenmiştir.

Çalışmada analiz edilen PEM yakıt hücresinin boyutları, Le ve Zhou (2008) tarafından yapılmış olan sayısal çalışmadan alınmış, Çizelge 3.2’de verilmiştir.

Çizelge 3.2. PEM yakıt hücresinin geometrik boyutları

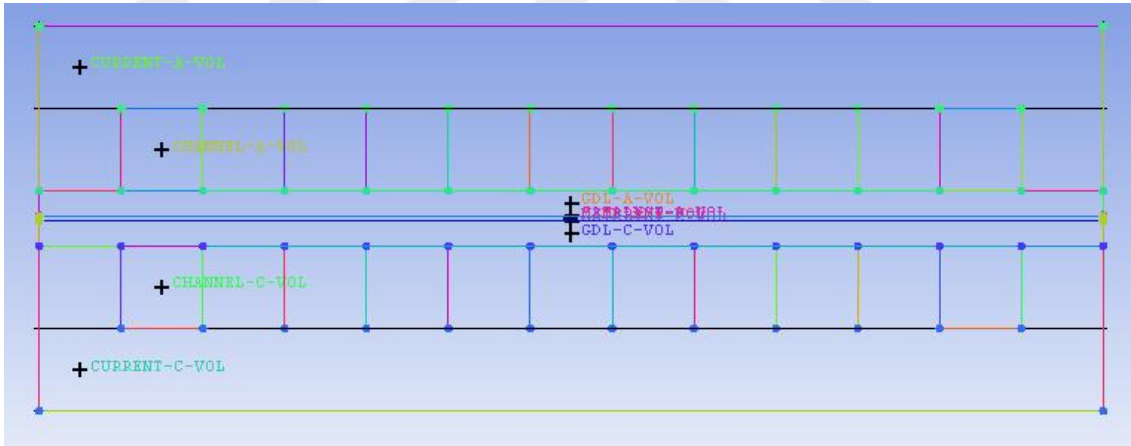
Parça Adı	Yükseklik (mm)	Genişlik (mm)	Uzunluk (mm)
Gaz Akış Kanalları	1	1	115
Gaz Difüzyon Tabakaları	0,3	13	20
Katalizör Tabakaları	0,01	13	20
Membran	0,05	13	20
Akım Toplayıcı Plaka	2	13	20
Toplam Hücre	4,67	13	20

3.2.2. Ağ yapısı ve sınır şartları oluşturma

Çalışmada PEM yakıt hücresine ait ağ yapısı 'Ansys ICEM CFD' aracılığıyla gerçekleştirilmiştir.

ICEM CFD ile ağ yapısı oluşturmak için önce geometri hazırlanır, ICEM CFD çalıştırıldıktan sonra bir tel kafes geometrisi görünmelidir. İlk adım olarak sınır yüzeyleri oluşturmak için adlandırma işlemi yapılır. Daha sonra hacim bölgeleri oluşturulur.

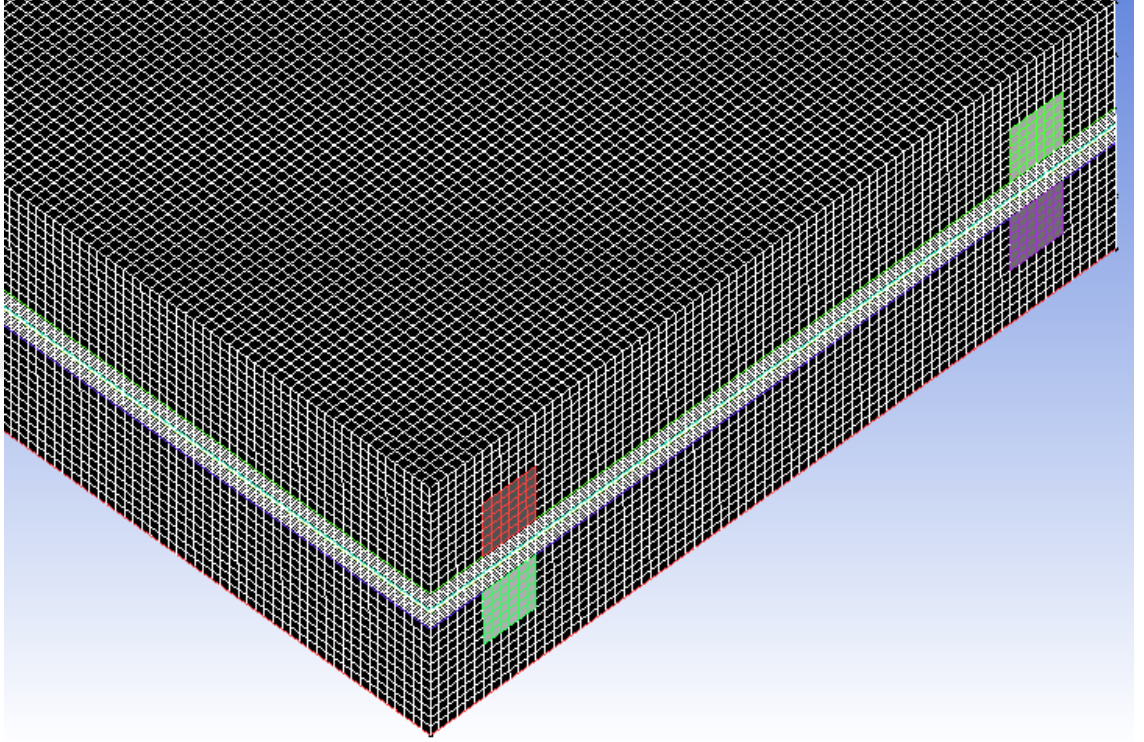
Ağ yapısı oluşturmak için bloklama işlemi yapılır. İlk önce tüm iç hacmi kaplayan bir başlangıç bloğu oluşturulur ve daha sonra bir ekmeği dilimlemiş gibi yakıt hücresi birkaç ayrı parçaya sahip olana kadar bölme işlemi gerçekleştirilir. İşlem tamamlandıktan sonra toplam dokuz blok olmalıdır. Oluşturulan blokların kenarlarını gösteren çizgileri görmek çok zordur çünkü geometriyi gösteren çizgilerle çakışır. Şekil 3.4'te bloklama işleminden sonra yakıt hücresi görüntüsü verilmiştir.



Şekil 3.4. Yakıt hücresinde blok oluşturma

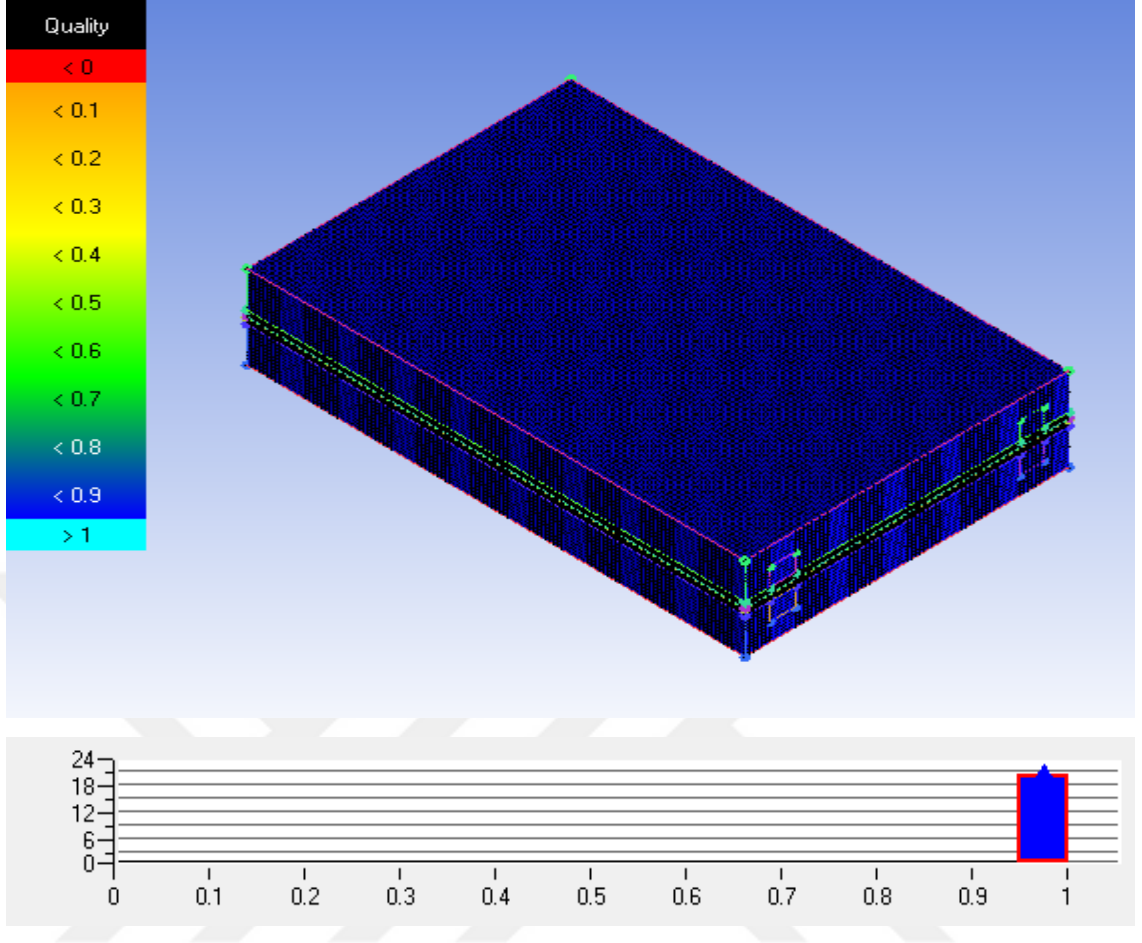
Bloklar oluşturulduktan sonra bloğun her kenarındaki düğüm sayısı değiştirilir. Kenar parametrelerini değiştirme işlemi ağın hassasiyeti için önemlidir. Burada amaç gerektiği kadar çok ögeye sahip ancak simülasyondaki olası hataları en aza indirmek için mümkün olduğunca az ögeye sahip bir kafes oluşturmaktır.

PEM yakıt hücresi modeli çözüm alanı, daha doğru çözüm için ICEM CFD kullanılarak tek tip altı yüzlü elemanlardan oluşturulmuştur ve ağ 635888 elemana sahiptir. Ağ bağımsızlık analizinden sonra elde edilen ağ yapısı Şekil 3.5'te verilmiştir.



Şekil 3.5. PEM yakıt hücresine ait ağ yapısı

Ağ yapısı oluşturulduktan sonra öğelerin kalitesini kontrol etmek, ağın kalitesi çözümün doğruluğunu etkilediği için önemlidir. Amaç oluşturulan histogramda öğelerin çoğunun 1'e yakın olmasını sağlamaktır. Kalite raporu tüm öğelerin 0,9'dan daha iyi bir kaliteye sahip olduğunu göstermektedir, bu ideal durumdur. Oluşturulan ağ yapısında eleman kalitesini gösteren histogram Şekil 3.6'da verilmiştir.



Şekil 3.6. Eleman kalitesi için histogram

Ayarlanması gereken sınır koşulları anot ve katot akış kanalları için girişler, anot ve katot akış kanalları için çıkışlar ve anot ve katot terminalleridir. Çalışmada anot ve katot gaz akış kanalları giriş yüzeylerinde ‘kütlesel debi giriş’ sınır şartı tanımlanmış, anot ve katot gaz kanalları çıkışında ‘basınç tanımlı çıkış’ sınır şartı kullanılmış ve anot terminaline sıfır elektrik potansiyel değeri, katot terminaline sabit bir hücre potansiyel değeri tanımlanmıştır.

Fluent anot ve katot akış kanalları giriş ve çıkış yüzeyleri dışındaki tüm yüzeyleri otomatik olarak duvar sınır şartı şeklinde tanımlar. Anot ve katot akış kanalları giriş ve çıkış yüzeyleri hariç tüm dış yüzeyler, akım toplayıcı plakalar ile gaz difüzyon tabakaları temas yüzeyleri ve akım toplayıcı plakalar ile gaz akış kanalları temas yüzeyleri duvar sınır şartı olarak tanımlanmıştır. Ayrıca membran ile katalizör tabakaları, gaz difüzyon

tabakaları ile katalizör tabakaları ve gaz difüzyon tabakaları ile gaz akış kanalları temas yüzeylerinde gözenekli tabaka geçiş sınır şartı tanımlanmıştır.

3.2.3. Çözüm prosedürü

Model ANSYS/FLUENT yazılımı ile çözülmüştür. FLUENT yazılımı akış, türbülans, ısı ve kütle transferi ve reaksiyon modellemede kullanılan bir HAD yazılımıdır. FLUENT süreklilik, momentum ve enerji korunum denklemlerini çözer. Yazılımda tanımlı birçok çözümleyici bulunmaktadır ve bazı çözümleyicilerin aktif olması için komut satırına gerekli kodun girilmesi gerekir. Çalışmada kullanılan PEM yakıt hücresi modülü kullanıcı ara yüzüne (define/models/addon-module) komutu girilerek yüklenir. PEM yakıt hücresi modülü kullanılarak yakıt hücresindeki elektrokimyasal denklemler, süreklilik, momentum, enerji ve tür denklemleri uygun sınır koşulları ile çözülmüştür. FLUENT yazılımı denklem çözümlerini nümerik bir yöntem olan sonlu hacimler metodunu kullanarak yapmaktadır. Basınç-hız eşleşmesi için çözüm prosedürü SIMPLE algoritmasına dayandırılmıştır.

Analiz çalışmalarında kullanılan çalışma koşulları ve elektrokimyasal parametreler Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4'te listelenmiştir (Özdemir 2012).

Çizelge 3.3. Çalışma koşulları (Özdemir 2012)

Anot Girişi		
Basınç	3	atm
Sıcaklık	343,15	K
Bağıl Nem	100%	-
Stokiyometrik Akış Oranı	2	
Kütle Akış Oranı	$1,1 \times 10^{-7}$	kg s^{-1}
H_2 Kütle Kesri	0,495	-
H_2O Kütle Kesri	0,505	-
Katot Girişi		
Basınç	3	atm
Sıcaklık	343,15	K
Bağıl Nem	100%	-
Stokiyometrik Akış Oranı	2	
Kütle Akış Oranı	$1,99 \times 10^{-6}$	kg s^{-1}
O_2 Kütle Kesri	0,217	-
H_2O Kütle Kesri	0,0664	-
Çalışma Basıncı	1	atm
Anot Terminal Sıcaklığı	343,15	K
Katot Terminal Sıcaklığı	343,15	K
Referans Akım Yoğunluğu	1	A/cm^2

Çizelge 3.4. Elektrokimyasal parametreler (Özdemir 2012)

Parametre	Değer	Birim
Anot		
Referans Akım Yoğunluğu	2465,598	A/m^2
Referans Mol Konsantrasyonu	0,5465	$Kmol/m^3$
Konsantrasyon Üssü	0,5	
Dönüşüm Katsayısı	2	
Katot		
Referans Akım Yoğunluğu	$1,8081 \times 10^{-3}$	A/m^2
Referans Mol Konsantrasyonu	0,00339	$Kmol/m^3$
Konsantrasyon Üssü	1	
Dönüşüm Katsayısı	2	
Diğer Parametreler		
Hidrojen Referans Diffüzitesi	11×10^{-5}	m^2s^{-1}
Oksijen Referans Diffüzitesi	$3,2 \times 10^{-5}$	m^2s^{-1}
Su Referans Diffüzitesi	$7,35 \times 10^{-5}$	m^2s^{-1}
Diğer Türlerin Referans Diffüzitesi	$1,1 \times 10^{-5}$	m^2s^{-1}
Açık Devre Voltajı	0,98-1	V
Membran Gözenekliliği	0,5	
GDL Gözenekliliği	0,5	
Katalizör Gözenekliliği	0,5	
GDL Geçirgenliği	$1,76 \times 10^{-11}$	
Membran Geçirgenliği	$1,76 \times 10^{-11}$	
Eşdeğer Membran Ağırlığı	$1,1 \times 10^3$	kg/kmol
Membran protonik iletim katsayısı	1	
Membran protonik iletim üssü	1	
Gaz Difüzyon Tabaka viskoz direnci	1×10^{12}	m^{-2}
Katalizör Tabaka viskoz direnci	1×10^{12}	m^{-2}

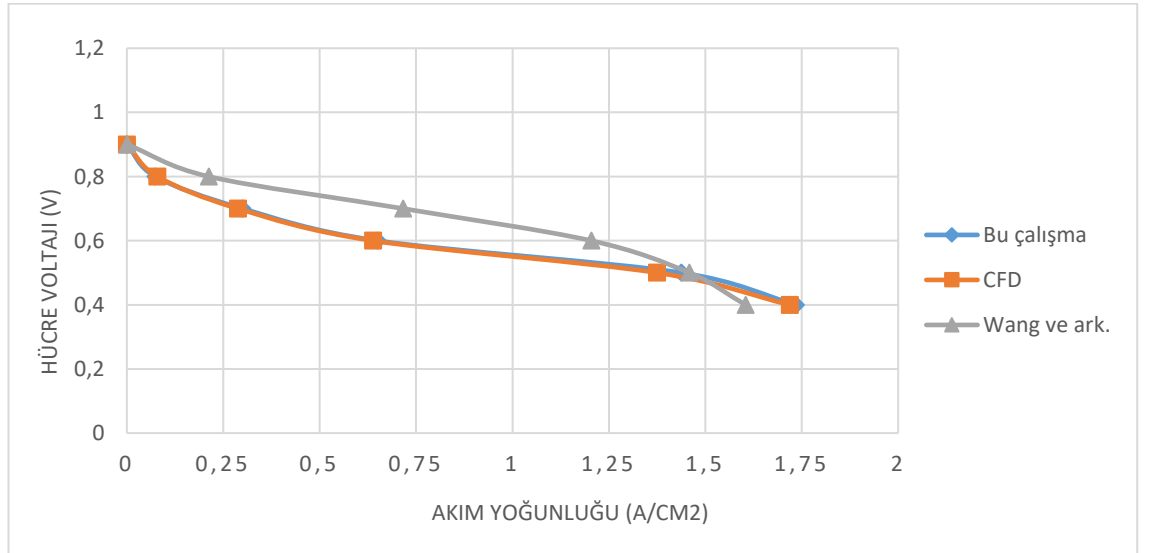
3.2.4. Model varsayımları

Yakıt hücresinde üç boyutlu, laminer ve Bölüm 4.1’de kararsız akış rejimi, Bölüm 4.2’de kararlı akış rejimi hakimdir. Reaksiyona giren reaktanlar ideal gaz davranışı gösterir ve üretilen suyun tamamı gaz fazı olarak bulunur, faz değişimi olmaz. Membran tamamen nemlendirilir ve protonik iletkenlik sabittir. Membran, katalizör tabakaları ve gaz difüzyon tabakaları izotropik geçirgendirler. Membran gazlara karşı geçirgen değildir ve reaktan gazların çapraz geçişi ihmal edilir.

4. BULGULAR ve TARTIŞMA

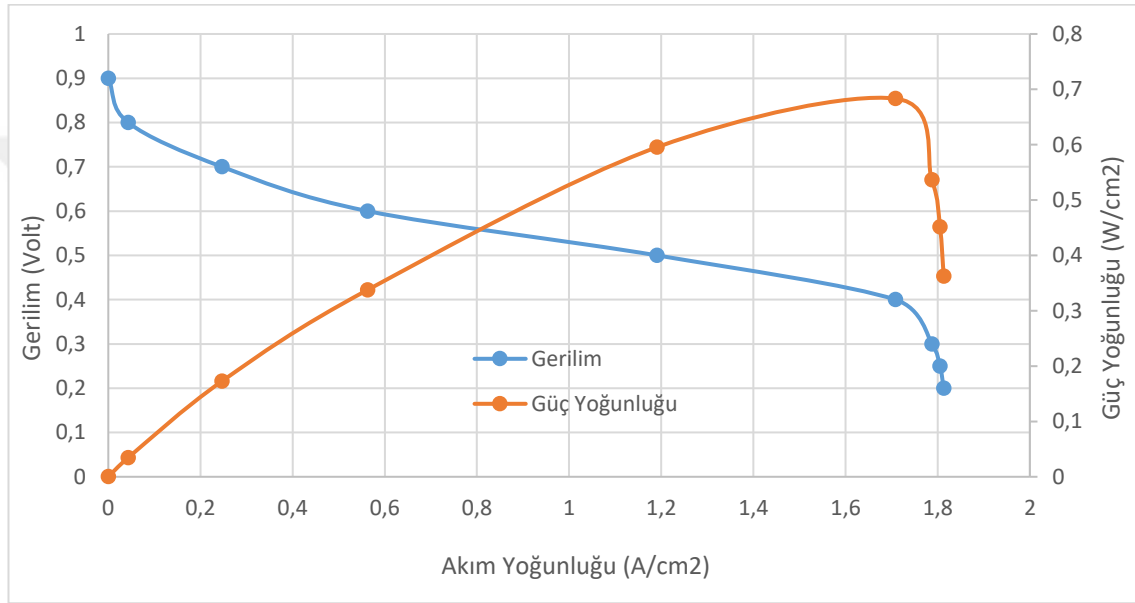
Bu çalışmada geliştirilen modeli doğrulamak için, simülasyon sonuçları daha önce elde edilen sonuçlarla karşılaştırılmıştır. Karşılaştırma çalışması için Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4'teki çalışma koşulları ve elektrokimyasal parametreler kullanılmış ancak analiz kararlı halde ve açık devre voltajı 1 V iken yapılmıştır. Sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı sırasıyla 0,4-0,5-0,6-0,7-0,8 ve 0,9 V olarak değiştirilerek hücre karakteristiğini ifade eden polarizasyon eğrileri elde edilmiştir. Sonuçlar arasındaki uyum Şekil 4.1'deki polarizasyon eğrilerinde görülmektedir.

Ayrıca sonuçlar Wang ve ark. (2003) elde ettikleri deneysel sonuçlarla da karşılaştırılmış özellikle düşük hücre voltaj değerlerinde farklılıklar olduğu görülmüştür. Deneysel çalışma sonuçları 70°C çalışma sıcaklığı, 3 atm basınçta tamamen nemlendirilmiş reaktanlar kullanılarak elde edilmiş, özellikle ohmik kayıp ve konsantrasyon kayıp bölgelerinde yapılan çalışmadaki sonuçlardan sapmalar görülmüştür. Bu farklılıklar, deneylerde kullanılan yakıt hücresinin parçalarına ait yoğunluk, özgül ısı, ısı iletkenlik gibi fiziksel özelliklerin bilinmemesinden ve sayısal analizlerin tek fazlı olarak ve basitleştirilmiş bir model kullanılarak yapılmasından kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.1. Polarizasyon eğrilerinin karşılaştırılması

Analiz kararlı halde, açık devre voltajı 0,98 V iken Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4'teki çalışma koşulları ile elektrokimyasal parametreler kullanılarak tekrar edilmiş, sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı sırasıyla 0,2-0,25-0,3-0,4-0,5-0,6-0,7-0,8 ve 0,9 V olarak değiştirilerek IV ve PI eğrileri elde edilmiş, Şekil 4.2'de sunulmuştur. 0,4 V'dan sonra 0,3-0,25-0,2 değerlerine de inmenin nedeni sonuçlar arasındaki farkın yüksek akım yoğunluklarında kendini göstermesidir, bu sebeple farkı görebilmek için düşük gerilim değerlerinde de analiz yapılmıştır.

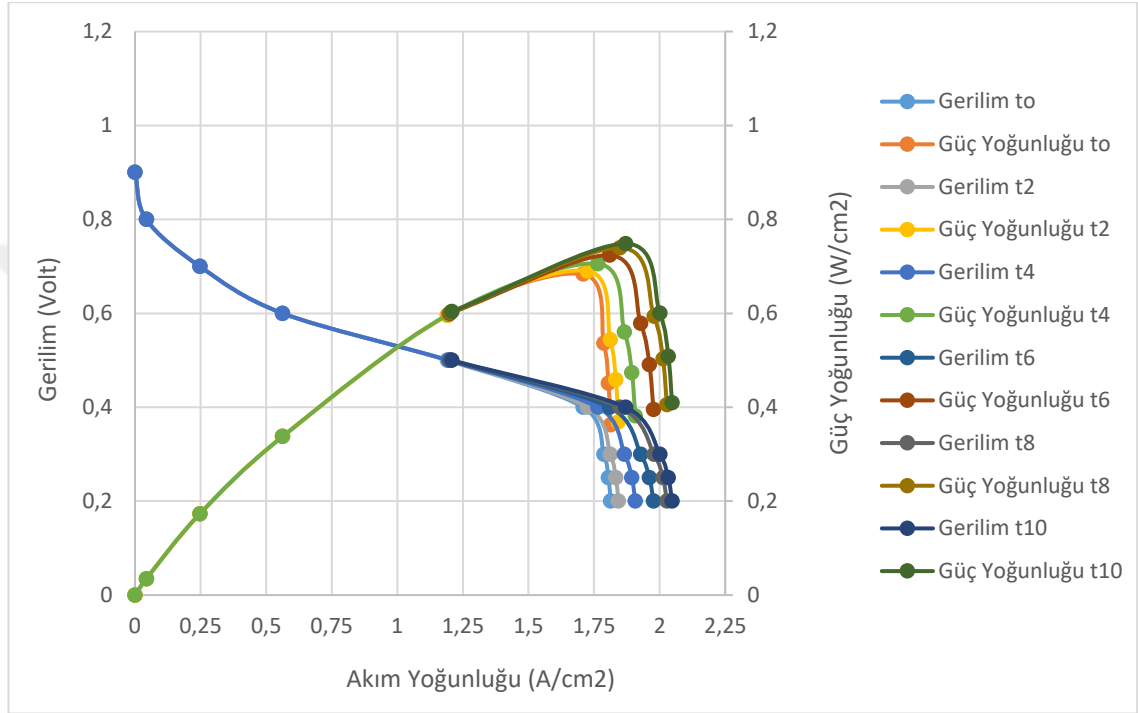


Şekil 4.2. IV ve PI eğrileri

4.1. Geçici Rejim Çalışması

Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4'teki çalışma koşulları ve elektrokimyasal parametreler kullanılarak, açık devre voltajı 0,98 V iken yapılan geçici rejim çalışması sonuçları Şekil 4.3'te verilmiştir. Zaman adım boyutu 1 milisaniye olarak belirlenmiştir. Sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı sırasıyla 0,2-0,25-0,3-0,4-0,5-0,6-0,7-0,8 ve 0,9 V olarak değiştirilerek t₀,t₁,t₂,t₃ ve t₄ zamanları için yapılan analizlerde görülmüştür ki akım yoğunluğu değerleri düşük hücre voltajı değerlerinde değişim göstermeye devam ederken yüksek hücre voltajı değerlerinde aynı kalmıştır. Bundan dolayı t₅,t₆,t₇,t₈,t₉ ve t₁₀ zamanında analizler 0,2-0,25-0,3-0,4 ve 0,5 V için yapılmaya devam edilmiştir, analizlerin son bulunduğu t₁₀ zamanı bu hücre voltajı değerleri içinde artık değişimin göz

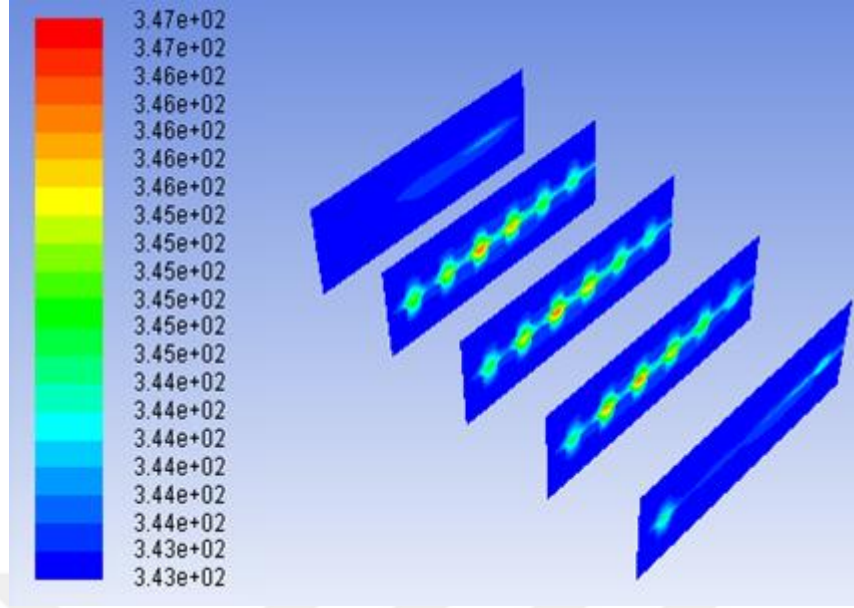
ardı edilebilecek kadar az olduğu zamana karşılık gelmektedir. Yani analizler akım ve güç yoğunluğundaki değişiklikler göz ardı edilinceye kadar sürdürülmüştür. Giriş sınır şartı olarak tanımlanan kütle akış oranı t_0 'da değiştirilmemiş, t_1 'de anotta %20 arttırılmış ve t_2 'de anotta %20 ve katotta da anot ve katot debileri oranı bozulmayacak şekilde hesaplanarak arttırılmıştır.



Şekil 4.3. IV ve PI eğrileri: $t_0 = 0$; $t_1 = 16$ ms; $t_2 = 19$ ms; $t_4 = 25$ ms; $t_6 = 33$ ms; $t_8 = 43$ ms; $t_{10} = 53$ ms

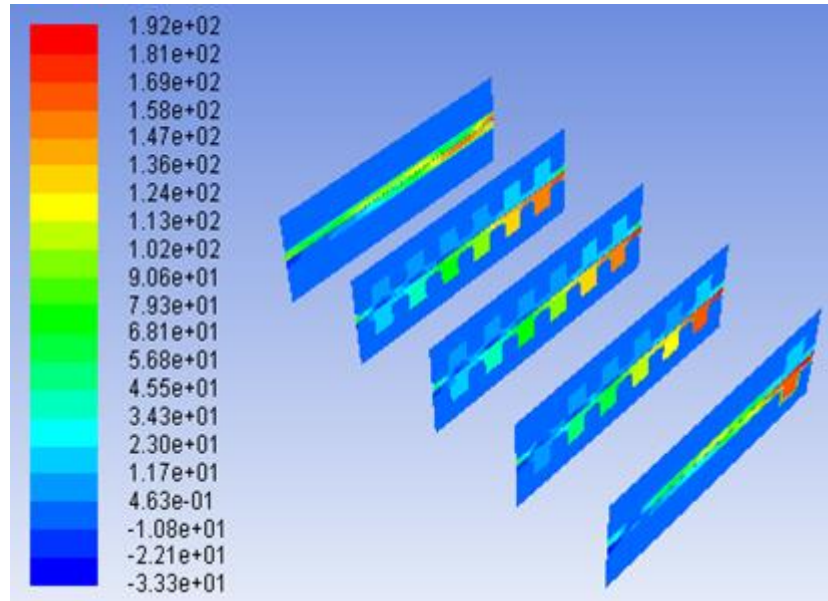
$0,748235 \text{ W/cm}^2$ değerindeki maksimum güç yoğunluğuna ulaşılan $0,4 \text{ V}$ hücre voltajında hücre içindeki sıcaklık, basınç ve konsantrasyon dağılımı incelenmiştir. Dağılımlar, PEM yakıt hücresi modeli üzerinde seçilen yüzeylerde ($x = 0-5-10-15-20$ mm) gösterilmiştir.

Kanallar boyunca sıcaklık değişimleri, esas olarak reaktan konsantrasyonu ve hücredeki ısı transferine bağlı olarak meydana gelen elektrokimyasal reaksiyon ile birlikte gözlenmiştir. Özellikle katot katalizör bölgesinde diğer bölgelere göre daha fazla sıcaklık artışı olmuştur. Hücredeki maksimum sıcaklığın $346,7 \text{ K}$ olduğu gözlenmiştir. Sıcaklık dağılımı Şekil 4.4'te verilmiştir.



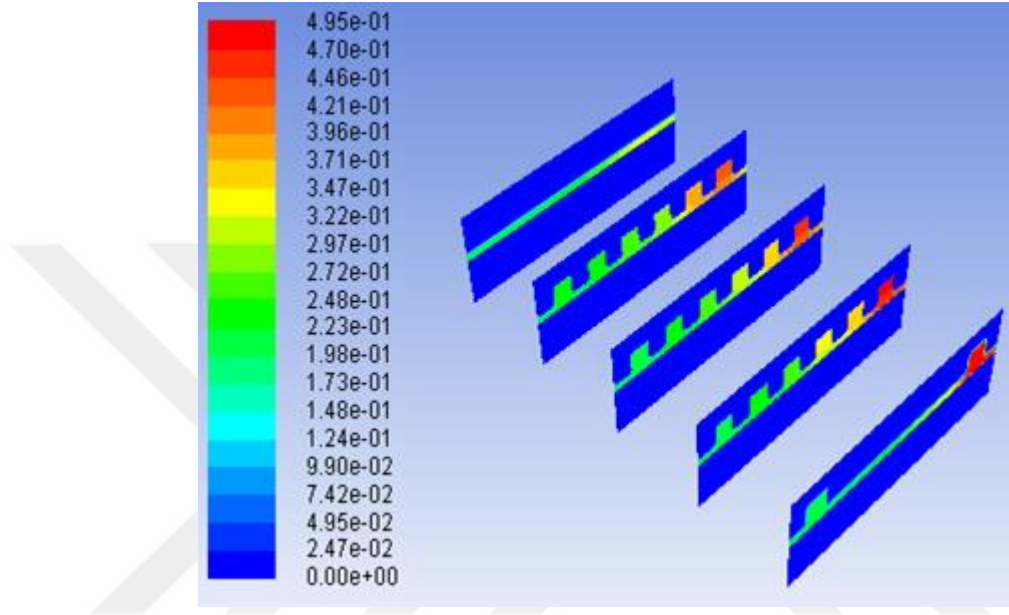
Şekil 4.4. Sıcaklık dağılımı

Şekil 4.5'te sürtünme kayıpları nedeniyle girişten çıkış bölümlerine akış kanallarındaki statik basınç düşüşleri gözükmemektedir. Görüldüğü gibi, katot kanalındaki basınç, katot tarafındaki yüksek kütle akış oranı nedeniyle anot kanalından daha yüksektir. Bu nedenle bitişik kanallar arasında önemli bir basınç farkı meydana gelir, bu da bitişik kanallar arasında önemli bir çapraz sızıntı akışına yol açar.



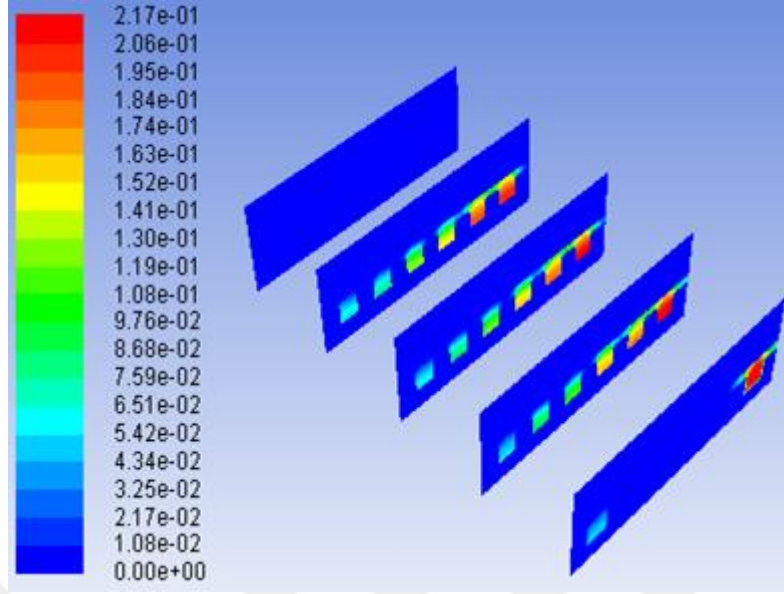
Şekil 4.5. Basınç dağılımı

Hidrojen kütle kesri anot tarafında meydana gelen yükseltgenme reaksiyonu nedeniyle gaz kanalı girişinden çıkışına azalmıştır. Hidrojen kütle kesri, anot gaz kanalı girişinde sınır koşulu olarak 0,495 olarak tanımlanır. Bu değer elektrokimyasal reaksiyonlardaki hidrojen tüketimi nedeniyle çıkışta yaklaşık 0,21'e ulaşmıştır. Hidrojen kütle kesri dağılımı Şekil 4.6'da verilmiştir.



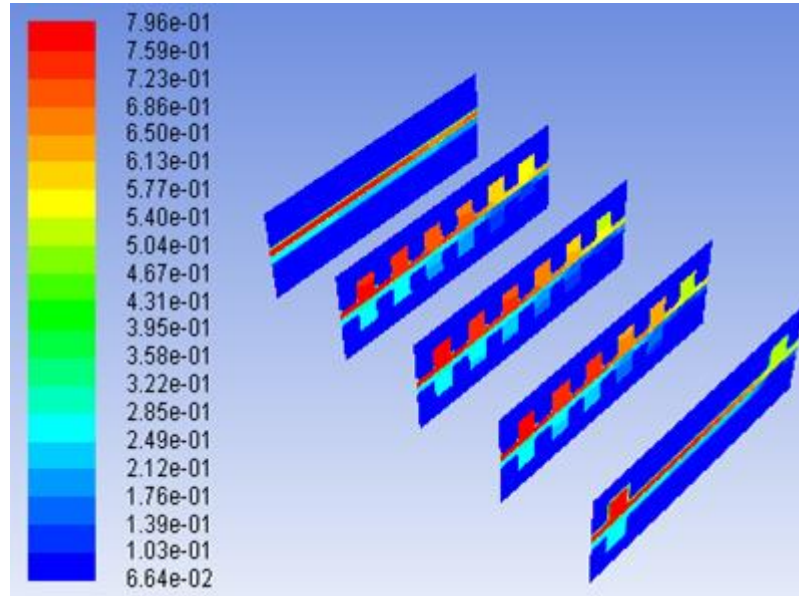
Şekil 4.6. Hidrojen kütle kesri dağılımı

Diğer taraftan oksijen kütle kesri katot tarafındaki indirgenme reaksiyonu nedeniyle gaz kanalı girişinden çıkışına doğru azalmıştır. Oksijen kütle kesri, katot gaz kanalı girişinde sınır koşulu olarak 0,217 olarak tanımlanmış ve çıkışta yaklaşık 0,041 değerine düşmüştür. Oksijen kütle kesri dağılımı Şekil 4.7'de verilmiştir.



Şekil 4.7. Oksijen kütle kesri dağılımı

Su kütle kesrinin anot ve katot gaz kanallarının girişlerinden çıkışlara doğru arttığı gözlenmiştir. Anot girişinde 0,505 olan su kütle kesri değeri hidrojen tüketimine bağlı olarak yaklaşık 0,77'ye kadar artar. Öte yandan kimyasal reaksiyonlar nedeniyle su üretimi katot çıkışında su kütle kesrinde 0,2'ye kadar bir artışa yol açar. Su buharı kütle kesri dağılımı Şekil 4.8'de verilmiştir.

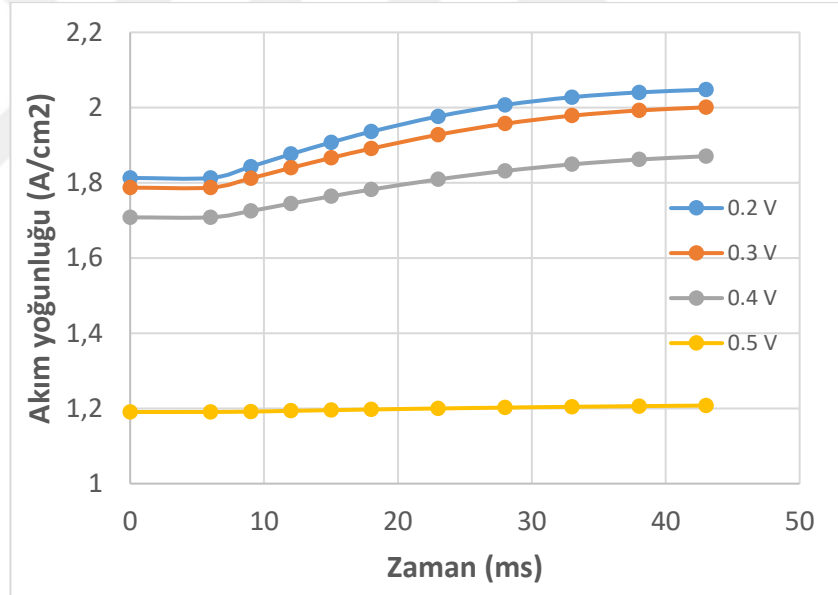


Şekil 4.8. Su buharı kütle kesri dağılımı

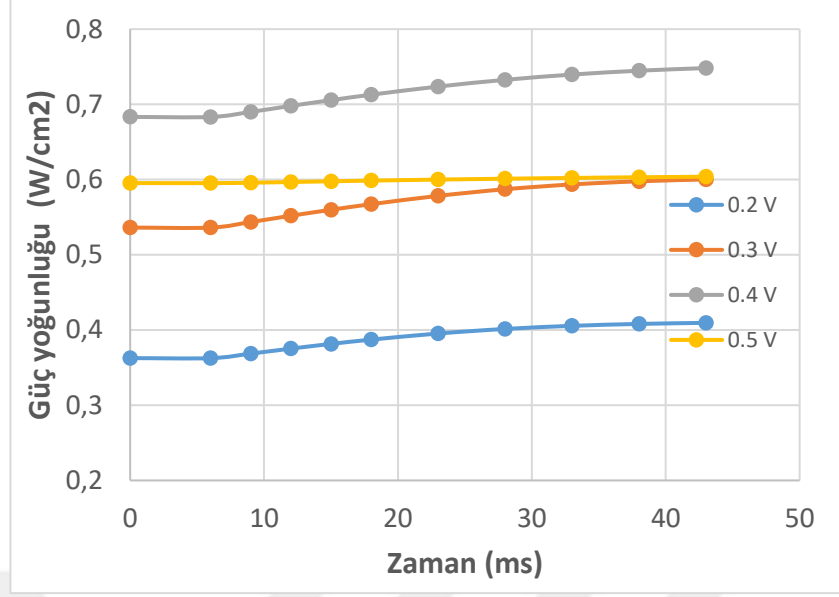
Anot ve katot çıkış yüzeyleri için zamana bağlı sıcaklık ve konsantrasyon dağılımı değişimleri Çizelge 4.1’de verilmiştir.

Çizelge 4.1. Anot ve katot çıkışında bazı parametrelerin zamanla değişimi

Anot çıkışı	t0	t4	t10	Katot çıkışı	t0	t4	t10
Sıcaklık (K)	343	343	344	Sıcaklık (K)	343	343	344
Hidrojen kütle kesri	0,423	0,398	0,21	Hidrojen kütle kesri	-	-	-
Oksijen kütle kesri	-	-	-	Oksijen kütle kesri	0,174	0,163	0,041
Su buharı kütle kesri	0,538	0,562	0,77	Su buharı kütle kesri	0,0116	0,0912	0,2

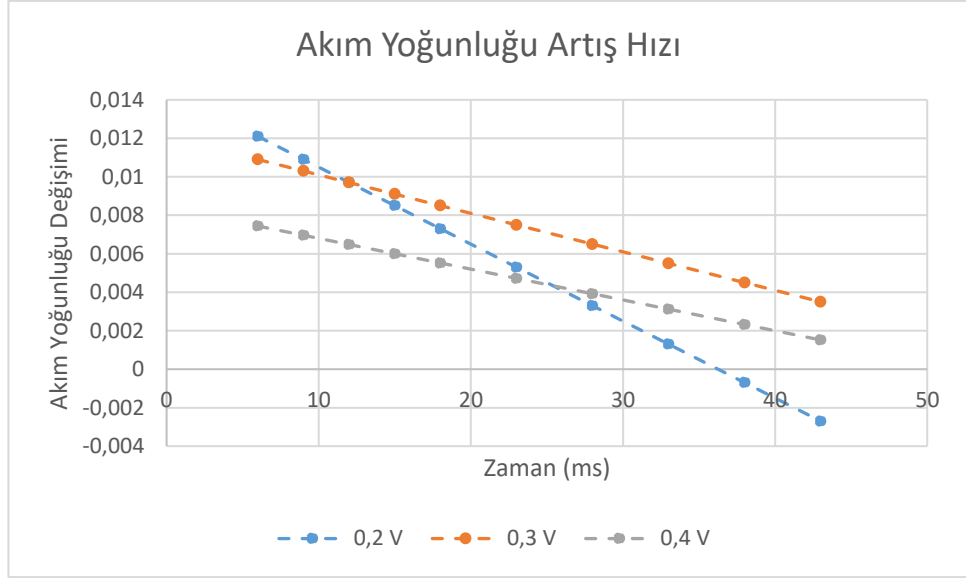


Şekil 4.9. Akım yoğunluğunun zamanla değişimi



Şekil 4.10. Güç yoğunluğunun zamanla değişimi

Şekil 4.3'ten görülebileceği gibi reaktan debisindeki artışa karşılık güç yoğunluğu ve sınırlayıcı akım yoğunluğunda bir yükselme meydana gelmektedir. Stokiyometrinin etkisi, konsantrasyon kaybı yoğun bölge olarak bilinen yüksek akım düşük gerilim bölgesinde hissedilir hale geldiği için $1,50 \text{ A/cm}^2$ 'nin altındaki akım yoğunluğu bölgesinde akım ve güç yoğunluğunda stokiyometriyle bağlantılı belirgin bir değişim görülmemiştir. Buna karşın $1,75 \text{ A/cm}^2$ akım yoğunluğundan sonra güç yoğunluğunda belirgin bir artış gözlenmeye başlamıştır. Reaktan debisi değiştikten sonra, yakıt pilinin maksimum akım yoğunluğuna ulaşabilmesi için zamana ihtiyaç olduğu tespit edilmiştir. Belli bir gerilimde çalışan yakıt pillerinde, reaktan debisinin yükseltilmesi ile akım ve güç yoğunlukları artarak kararlı rejime asimptotik olarak ulaşır (Şekil 4.9 ve Şekil 4.10).



Şekil 4.11. Hücre çalışma voltajına göre zamanla akım yoğunluğu değişimi

Reaktan debisi artışını takip eden ilk 6 milisaniyelik erken safhada, akım yoğunluğunda gözle görülür bir yükselme gözlenmemiştir. Reaktan kütlesi artışına karşın akım yoğunluğundaki yükselme cevabındaki gecikmenin sebebi, reaktan gazların eylemsizlik etkileri ile açıklanabilir. Eylemsizlik etkilerine gazların gözenekli bir ortam olan gaz dağıtım tabakası içinde maruz kaldığı difüzyon gecikmeleri de eklendiğinde, akım yoğunluğunun debi değişimine cevabı 6 ms gecikmiştir. Ayrıca özellikle katot tarafındaki ağır ilerleyen elektrokimyasal reaksiyon dinamiklerinden dolayı, reaktan debisi değişimi sonrasında maksimum akım yoğunluğuna ulaşılması zaman almaktadır. Reaktan debisi artışından sonra başlangıçtaki %10 fazlası olan $0,75 \text{ W/cm}^2$ lik maksimum akım yoğunluğuna $0,4 \text{ V}$ hücre geriliminde 40 milisaniyede ulaşılmıştır. Hücrenin, yanıt vermediği zaman aralığının sona ermesinden itibaren akım yoğunluğunun artmaya başladığı gözlenmiştir. Bununla birlikte akım yoğunluğu değişim hızının Şekil 4.11’de gösterildiği gibi $0,2 - 0,3$ ve $0,4$ hücre voltajları için birbirinden farklı olduğu belirlenmiştir. Gecikme süresinden sonra akım yoğunluğu tepkisinin en yüksek $0,2 \text{ V}$ ’da çalıştırılan hücrede 6 ms’den başlayarak 11ms’ye kadar olan aralıkta gerçekleştiği görülmüştür. 11. milisaniyede akım yoğunluğu artış hızının $0,3 \text{ V}$ ’da çalışan hücreye ait değere indiği gözlenmiştir. Son olarak akım yoğunluğu artış hızı değeri $0,4 \text{ V}$ ’da çalışan hücrenin akım yoğunluğu artış hızına düşmüştür. Düşük voltaj ve yüksek akım yoğunluğunda çalışan pillerde reaktan tüketim oranları nispeten daha fazla olduğu için

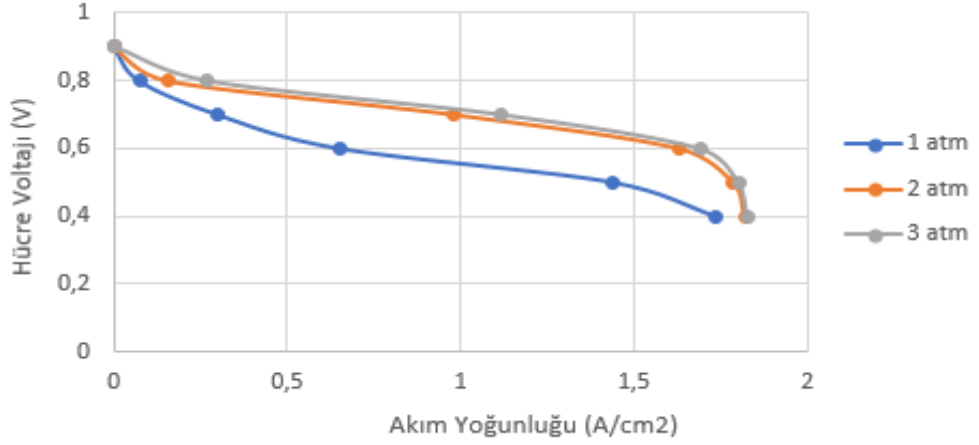
gaz akış kanalı ile kimyasal olarak aktif olan katalizör yüzeyindeki reaktan kısmi basınçları arasındaki fark daha büyüktür. Bu fark, 0,2 V potansiyel farkta işletilen pilde 0,3 V ve 0,4 V potansiyel farkta işletilen pillere göre daha yüksek olmakta ve reaktan gazların gözenekli ortamdan akarak aktif alana ulaşması için daha kuvvetli bir itici güç oluşturmaktadır. Şekil 4.11’de görüleceği üzere akım yoğunluğu artış hızı 0,2 V’da işletilen pilde en yüksek değere sahip olmakla beraber zamana bağlı olarak çok hızlı bir şekilde negatif değerlere kadar düşmüştür. Akım yoğunluğu artış hızının negatif değerlere kadar düşmesi, reaktan debisi artım işleminden sonra kanal içi gaz basıncıyla aktif katalizör katmanı arasındaki gaz kısmi basıncının azaldığı ve gözenekli ortam içindeki difüzyon ataletinin hızlı bir şekilde yenilerek gaz basıncının dengelendiği anlamına gelmektedir. Şekil 4.11’de 0,3 V potansiyel farkta işletilen pildeki akım yoğunluğu değişim hızının zamanla düşmesine rağmen 0,4 V’da işletilen pile göre daha yüksek olması; 0,3V’da daha yüksek akım çekildiği için pilin reaktan yoksunluğuna girmesi ve bu sebeple ortaya çıkan reaktan boşluğunun, daha hızlı doldurularak pilin kısa sürede dengeye geleceği şeklinde yorumlanabilir.

4.2. Kararlı Hal Çalışması

Çalışma koşullarındaki değişikliklerin PEM yakıt hücresi performansı üzerindeki etkileri polarizasyon eğrileri ile değerlendirilmiştir. Analizler Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4’teki çalışma koşulları ve elektrokimyasal parametreler kullanılarak, açık devre voltajı 1 V iken yapılmıştır.

4.2.1. Çalışma basıncının etkisi

PEM yakıt pilleri ile ilgili literatür incelendiğinde görülmektedir ki çalışma basıncının hücre performansı üzerindeki etkisi önemlidir. Burada hücre çalışma basıncı 1 atm, 2 atm ve 3 atm olarak değiştirilerek parametrenin yakıt hücresi performansı üzerindeki etkileri incelenmiştir. Basıncın performans üzerindeki etkileri incelenirken diğer parametreler sabit tutulmuştur. Elde edilen polarizasyon eğrileri Şekil 4.12’de verilmiştir.

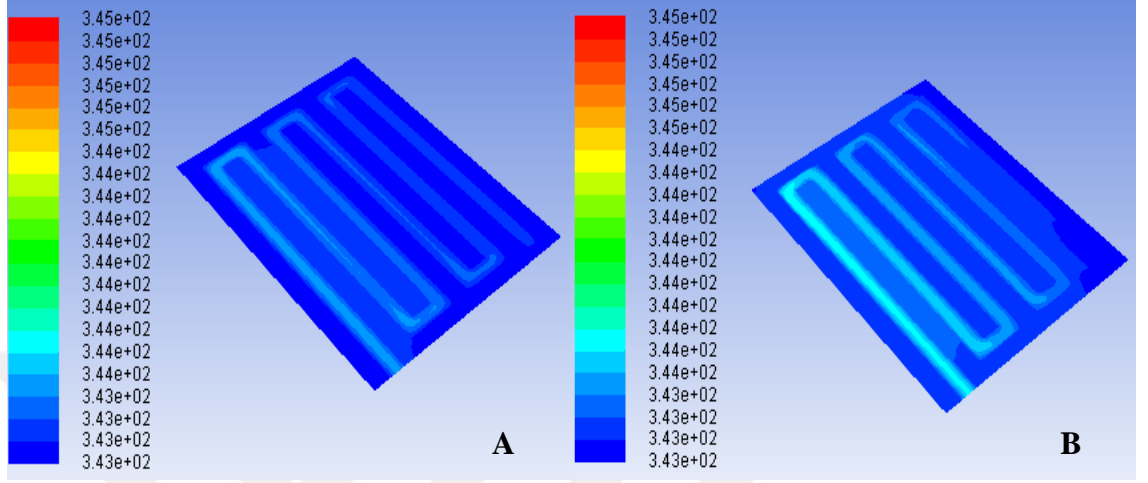


Şekil 4.12. Çalışma basıncının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi

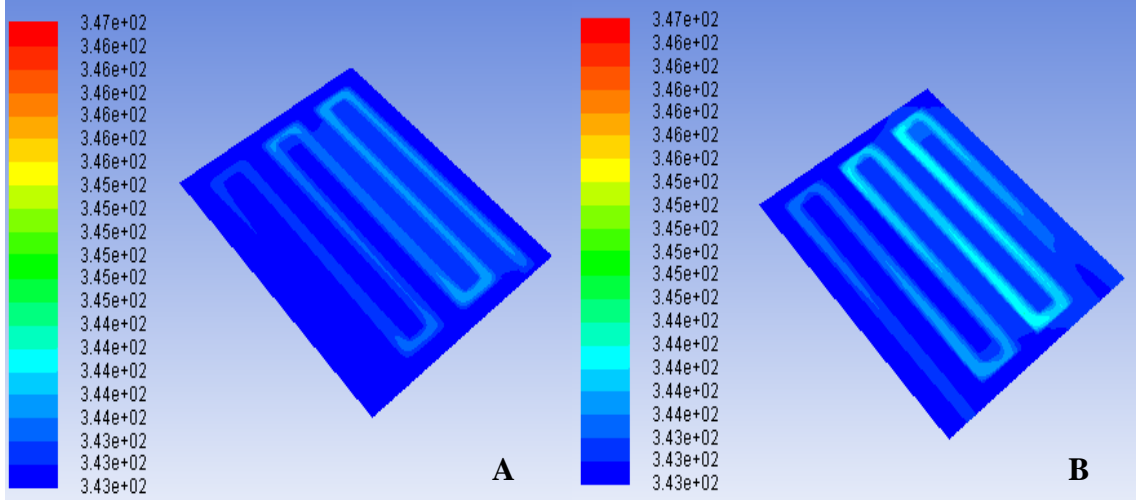
Şekilde 4.12'de görüldüğü gibi çalışma basıncının artması hücre performansını arttırmıştır. Literatür incelemelerinde de görülür ki genel polarizasyon eğrileri, basınç arttıkça pozitif olarak değişim gösterir. Çalışma basıncının artması sebebiyle hücre performansındaki iyileşme, reaktif gazların yayılımını artırarak, kütle taşınım direnci probleminin azaltılmasıyla açıklanabilir (Kahveci ve Taymaz 2018). Daha yüksek basınçlar oksijeni ve hidrojeni elektrolitle temasa geçmeye zorlar, kütle taşınım kaybını azaltır (Al-Baghdadi ve Al-Janabi 2007). İyileştirilmiş performansların diğer bir nedeni de, artan çalışma basıncına sahip reaktif gazların kısmi basınç artışıdır (Wang ve ark. 2003). Bununla birlikte PEM yakıt hücresi sistemi için, daha yüksek çalışma basıncı seviyelerinde yüksek performans elde edildiği fakat özellikle mühendislik uygulamalarında yüksek basınçlı operasyon seçerken işletme maliyeti, sistem hacmi gibi önemli konuların dikkate alınması gerektiği vurgulanmıştır. Gerçekte birçok PEM yakıt hücresi normal atmosfer basıncında çalışır. Yüksek basınçlı işlem yüksek hücre performansına kesinlikle yol açmaz, aslında yakıt hücresi sisteminin çalışma ihtiyacına bağlıdır (Yuan ve ark. 2010).

0,5 V hücre voltajında hücre içindeki sıcaklık, basınç ve konsantrasyon dağılımı incelenmiştir. Dağılımlar, PEM yakıt hücresi modeli üzerinde anot ve katot gaz akış kanalları orta yüzeylerinde (anotta $y = 0,86$ mm ve katotta $y = -0,81$ mm) gösterilmiştir.

Anot ve katot gaz giriş sıcaklıkları 343,15 K olarak tanımlanmış, yakıt hücresinde meydana gelen elektrokimyasal reaksiyon ile birlikte kanallar boyunca sıcaklık değişimleri gözlenmiştir. Sıcaklık dağılımları Şekil 4.13 ve Şekil 4.14’te verilmiştir.



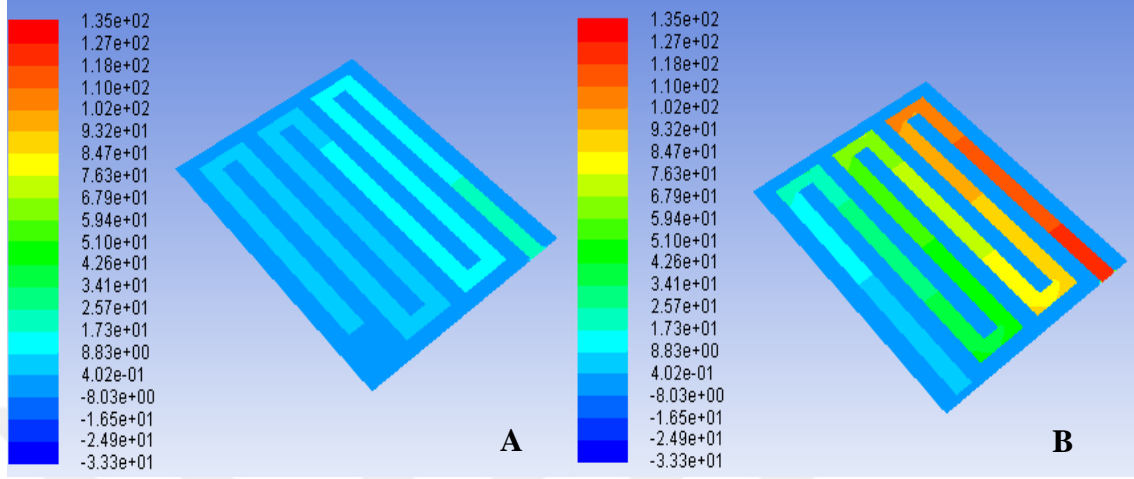
Şekil 4.13. 1 atm çalışma basıncında A) anot B) katot gaz akış kanallarında sıcaklık dağılımı



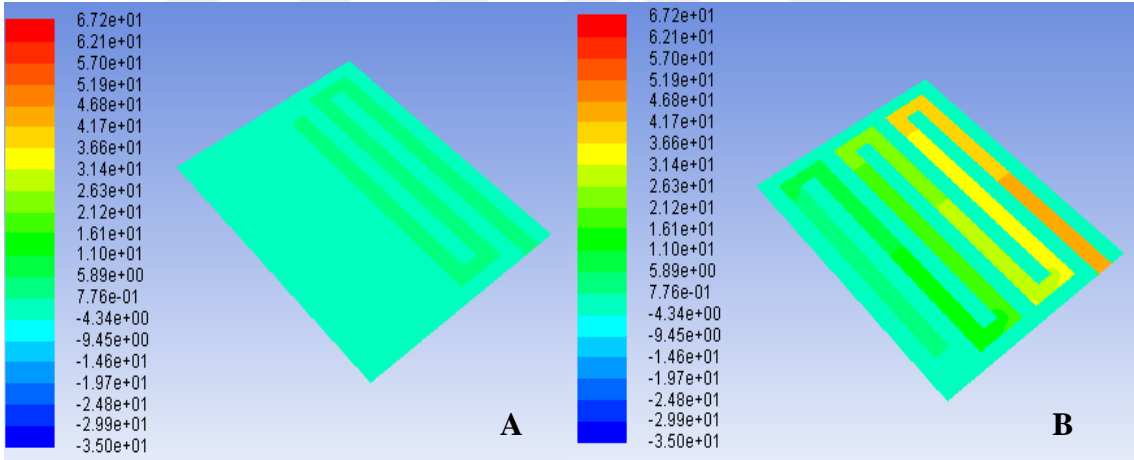
Şekil 4.14. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında sıcaklık dağılımı

Şekil 4.15 ve Şekil 4.16’da anot ve katot akış kanalları giriş yüzeyinden çıkış yüzeyine doğru basınç değeri düşüşleri gözükmemektedir. Katot gaz akış kanalında basıncın, katot

tarafında yüksek kütle akış oranı nedeniyle anot gaz akış kanalından daha yüksek olduğu gözükmemektedir. Kanallardaki basınç düşüşlerinin sebebi sürtünme kayıplarıdır.

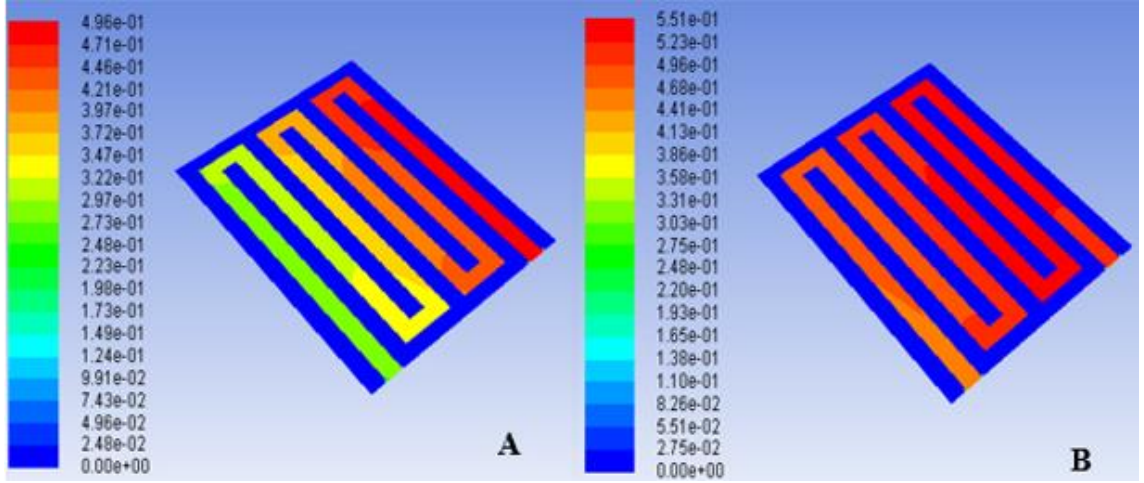


Şekil 4.15. 1 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı



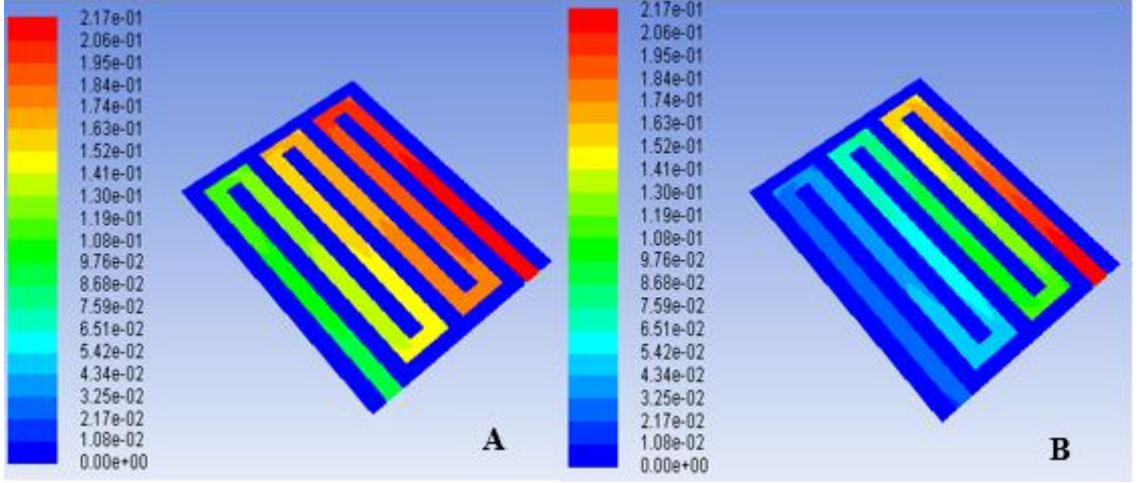
Şekil 4.16. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı

Hidrojen kütle kesri anot tarafında meydana gelen yükseltgenme reaksiyonu nedeniyle gaz kanalı girişinden çıkışına azalmıştır. Katot tarafında hidrojen kütle kesri söz konusu değildir. Hidrojen kütle kesri dağılımı Şekil 4.17’de verilmiştir.



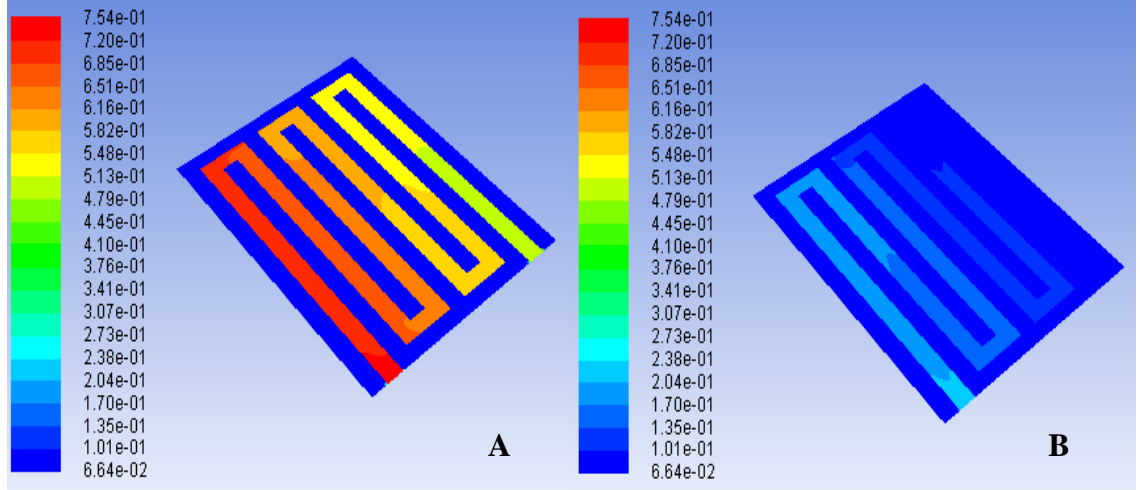
Şekil 4.17. Anot gaz akış kanalında A) 1 atm ve B) 3 atm çalışma basıncında hidrojen kütle kesri dağılımı

Oksijen kütle kesri katot tarafında meydana gelen indirgenme reaksiyonu nedeniyle gaz kanalı girişinden çıkışına doğru azalmıştır. Anot tarafında oksijen kütle kesri söz konusu değildir. Oksijen kütle kesri dağılımı Şekil 4.18’de verilmiştir.

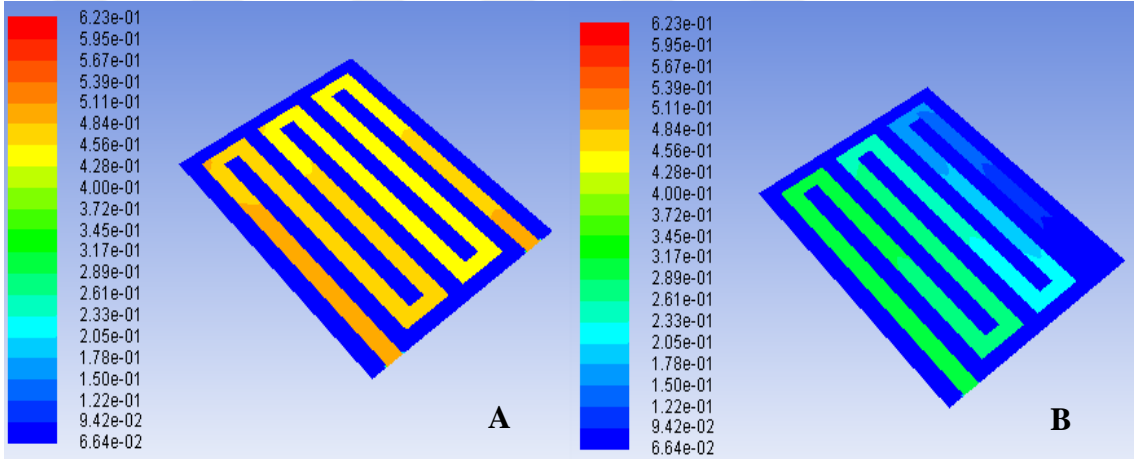


Şekil 4.18. Katot gaz akış kanalında A) 1 atm ve B) 3 atm çalışma basıncında oksijen kütle kesri dağılımı

Su kütle kesrinin anot ve katot gaz kanallarının girişlerinden çıkışlara doğru arttığı gözlenmiştir. Su buharı kütle kesri dağılımı Şekil 4.19 ve Şekil 4.20’de verilmiştir.



Şekil 4.19. 1 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı



Şekil 4.20. 3 atm çalışma basıncında A) anot ve B) katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı

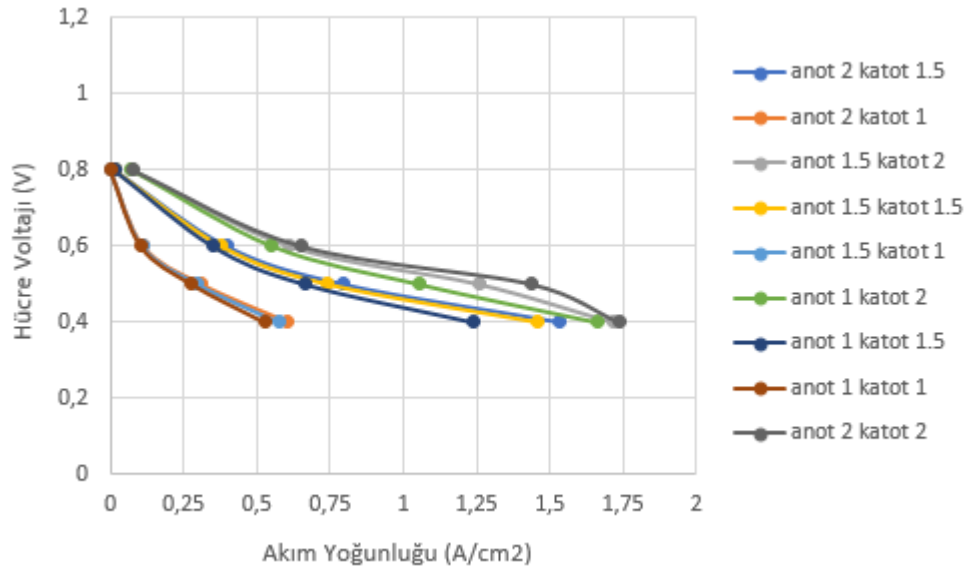
4.2.2. Dönüşüm katsayısının etkisi

Bu çalışmada Çizelge 3.4'teki anotta ve katotta 2 olan dönüşüm katsayısı değeri değiştirilerek parametrenin yakıt hücresi performansı üzerindeki etkisi incelenmiştir. Dönüşüm katsayısının performans üzerindeki etkileri incelenirken diğer parametreler sabit tutulmuştur. Sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı sırasıyla 0,4-0,5-0,6 ve 0,8 olarak değiştirilerek hücre karakteristiğini ifade eden polarizasyon eğrileri elde edilmiştir. Dönüşüm katsayısının etkisini incelerken anotta ve katotta alınan değerler Çizelge 4.2'de verilmiştir.

Çizelge 4.2. Dönüşüm katsayısı etkisi çalışmasında kullanılan değerler

Anot	Katot
2	1,5
2	1
1,5	2
1,5	1,5
1,5	1
1	2
1	1,5
1	1

Elde edilen polarizasyon eğrileri Şekil 4.21’de verilmiştir.



Şekil 4.21. Dönüşüm katsayısının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi

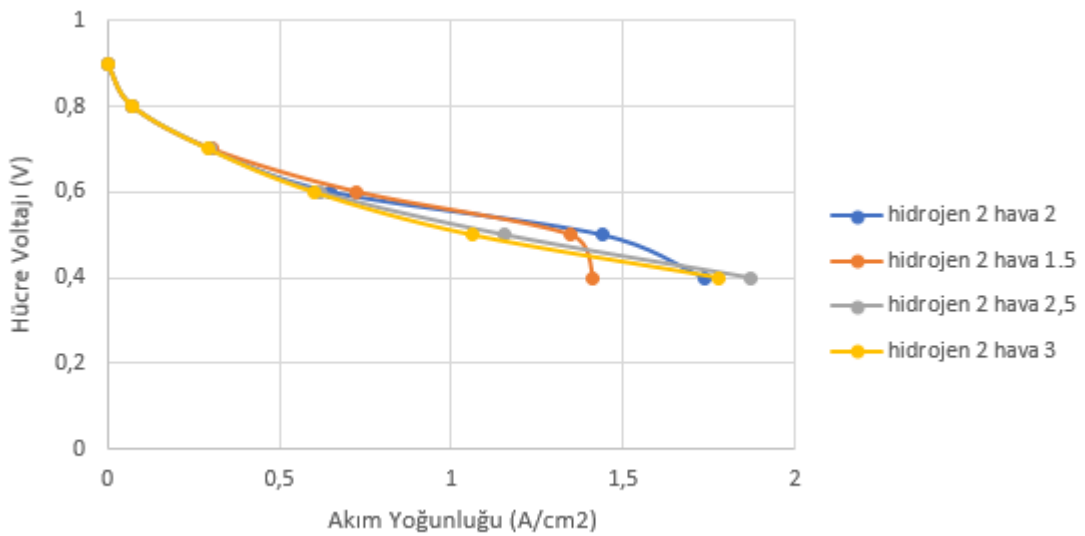
Şekilde görüldüğü gibi dönüşüm katsayısı değeri hücre performansını önemli ölçüde etkilemektedir. $0,718783 \text{ W/cm}^2$ değerindeki maksimum güç yoğunluğuna sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı $0,5 \text{ V}$ iken ve anotta ve katotta dönüşüm katsayısı değeri 2 iken ulaşılmıştır.

4.2.3. Stokiyometrik akış oranının etkisi

Stokiyometrik akış oranı PEM yakıt hücrelerinin performansını etkileyen önemli bir parametredir. Çalışmada yalnızca hava stokiyometrik akış oranının etkisi incelenmiştir. Hidrojen stokiyometrik akış oranı 2 alınmış ve hava stokiyometrik akış oranı sırasıyla 1,5-2-2,5-3 alınarak hesaplama için kullanılmıştır. Stokiyometrik akış oranının performans üzerindeki etkileri incelenirken diğer parametreler sabit tutulmuştur.

Stokiyometrik akış oranı yakıt hücresinde su yönetimi üzerinde önemli bir etkiye sahiptir (Al-Baghdadi ve Al-Janabi 2007). Hava stokiyometrik akış oranının hücre performansı üzerine etkisinin iki açıklaması vardır. İlk olarak, daha yüksek bir hava akış hızı daha yüksek bir oksijen konsantrasyonuna yol açar, daha sonra reaksiyon hızını artırır. İkincisi, daha yüksek bir hava akış hızı, katotta su basmasına neden olabilecek aşırı suyun giderilmesine yardımcı olur. Bu iki faktör, hücre performansını verimli bir şekilde geliştirmek için birleşir. Bununla birlikte, eğer hava nemlendirilmesi iyi yapılmazsa, ikinci faktörün daha yüksek bir su uzaklaştırma oranına neden olabileceği ve membranın yavaş yavaş kuruyabileceğinin bilinmesi gerekir. Bu yüzden, çalışma koşullarının optimizasyonu için hava stokiyometrik akış oranının optimum değeri sağlanmalıdır (Yuan ve ark. 2010).

Elde edilen polarizasyon eğrileri Şekil 4.22’de verilmiştir.



Şekil 4.22. Stokiyometrik akış oranının polarizasyon eğrisi üzerine etkisi

Hücre performansında düşük akım yoğunluklarında çok az değişiklik gözlenirken yüksek akım yoğunluklarında belirgin şekilde değişiklik gözlenmiştir. $0,7479798 \text{ W/cm}^2$ değerindeki maksimum güç yoğunluğuna sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı 0,4 V iken ve hava stokiometrik akış oranı 2,5 iken ulaşılmıştır.

Özetlemek gerekirse, artan oksijen akış hızı, oksijenin mevcudiyetinin pozitif etkisi membran dehidrasyonunun negatif etkisini telafi ederse hücre performansını iyileştirmek için faydalı olur (Yuan ve ark. 2010).

4.3. Yeni Bir Akış Alanı Tasarımı

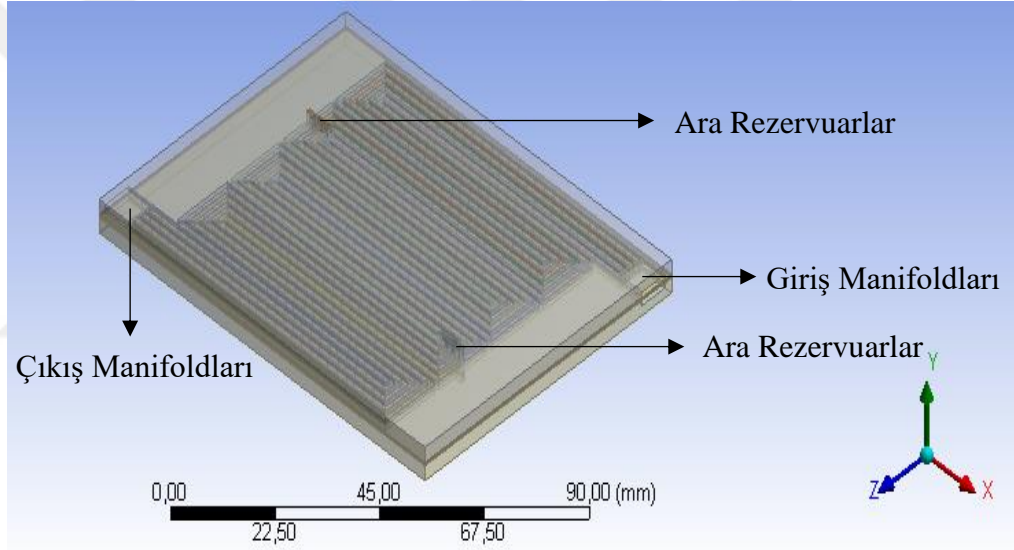
Yakıt hücrelerinde su ve ısı yönetimi en önemli optimizasyon problemlerinden biridir ve hassas bir şekilde ayarlanması gerekir. Yakıt hücresi içinde oluşan fazla su atılamazsa performans kayıpları meydana gelir. Hücre içinde ısı, nem ve su yönetimi iyi yapılmazsa yüksek akım ihtiyacında pil talebe cevap veremez. Bu durumun tersi ise membran kısmının fazla kurumaması ve sıcaklığa da bağlı olarak elektriksel enerji üretme özelliğini kaybetmesidir.

Yakıt hücrelerinde ısı ve su yönetimine membran, katalizör, gaz difüzyon tabakası, operasyon şartları gibi parametreler etki eder, ancak en büyük etkinin akım toplayıcı plaka üzerindeki gaz akış kanallarının şekli ve düzeni ile ilgili olduğu bilinmektedir.

Yapılan tasarımla manifold ve ara rezervuarların bulunduğu üç boyutlu yeni nesil serpantin akış alanı oluşturulmuştur. Yaygın kullanılan serpantin akış alanı tasarımlarında temel sorun kanallar arasında ve kanal boyunca gözlenen reaktant kısmi basıncı ve konsantrasyonu düşüştür. Reaktant konsantrasyonu giriş manifolduna yakın kısımlarda yüksekken akış uzunluğunun sonuna doğru konsantrasyon ve basınç kayıpları gözlenir ve bu durumun pil performansına olumsuz etkileri bilinmektedir. Bu problemin önüne geçmek için rezervuarlı bir tasarım oluşturulmuş ve akış kanalları belli aralıklarla rezervuarlarda toplanmıştır. Rezervuar kullanmanın bir amacı da yakıt pili içinde su yönetimine katkı sağlaması düşüncesidir. Yakıt pili içinde su birikimi olduğunda rezervuarlardan bu suyun tahliye edilmesi planlanmaktadır. Rezervuar çıkışlarında kanal

sayısı azaltılması çözümlü düşünülse de bu durumda membran aktif alanının verimli kullanımını kısıtlandığından bu çalışmada insanlardaki belli bir bölgeye ait aynı doku grubunun, farklı kollardan gelen atar damarlar ile beslenmesi teorisinden yola çıkılarak, tasarlanan ara beslemeli sistem ile aynı aktif yüzey alanından daha yüksek verim alınması sağlanacaktır.

Model 'Ansys Design Modeler' katı model çizim programı aracılığıyla oluşturulmuştur. Membran, katalizör tabakaları, gaz difüzyon tabakaları, gaz akış kanalları, anot ve katot akım toplayıcı plakalar, manifoldlar ve ara rezervuarlardan oluşan bir PEM yakıt hücresi oluşturulmuştur. Fiziksel model Şekil 4.23'te sunulmaktadır.



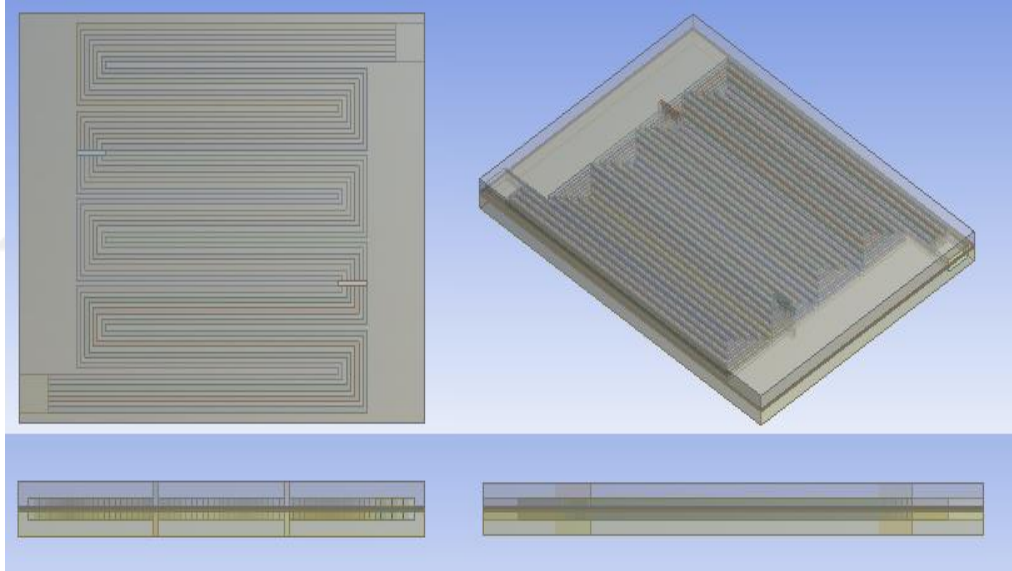
Şekil 4.23. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi akış alanı fiziksel modeli

Çalışmada analiz edilen PEM yakıt hücresinin boyutları Çizelge 4.3'te verilmiştir. Toplam hücre 6,67 mm yükseklik, 75 mm genişlik ve 99 mm uzunluktan oluşmaktadır.

Çizelge 4.3. PEM yakıt hücresinin geometrik boyutları

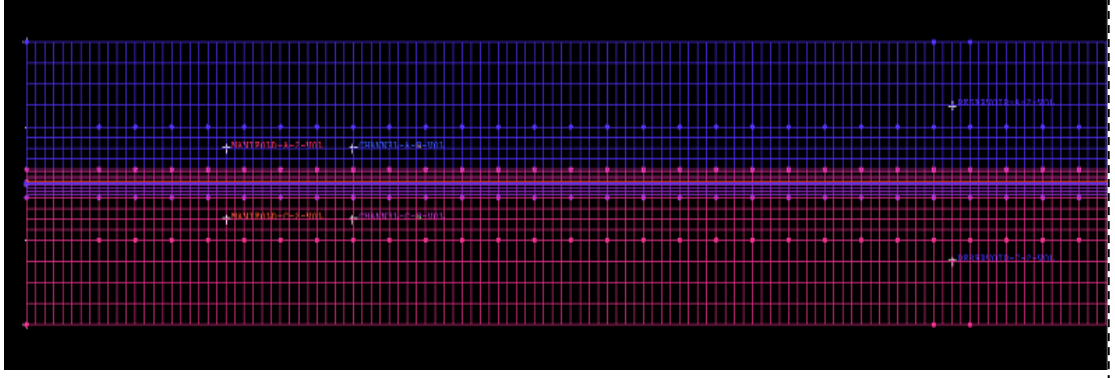
Parça Adı	Yükseklik (mm)	Genişlik (mm)
Gaz Akış Kanalları	1	1
Gaz Difüzyon Tabakaları	0,3	75
Katalizör Tabakaları	0,01	75
Membran	0,05	75
Akım Toplayıcı Plaka	3	75
Manifolddar	1	7
Ara Rezervuarlar	3	1

Modelin üstten, önden ve yandan görünüşleri Şekil 4.24’te verilmiştir.



Şekil 4.24. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi görünüşleri

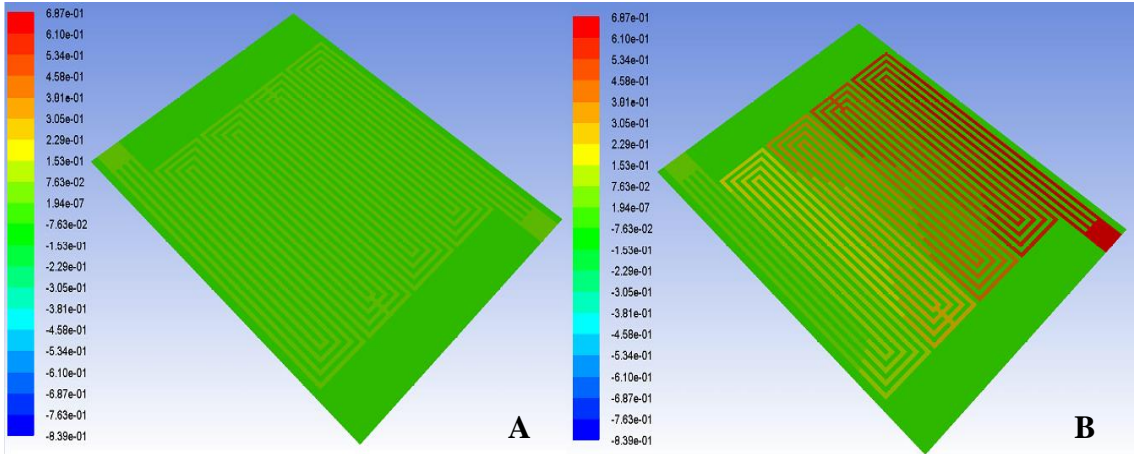
Yapılan tasarımda ağ yapısı ‘Ansys ICEM CFD’ aracılığıyla gerçekleştirilmiştir, ağ 5636176 elemana sahiptir. Elde edilen ağ yapısı önden kesit görünümü Şekil 4.25’te verilmiştir.



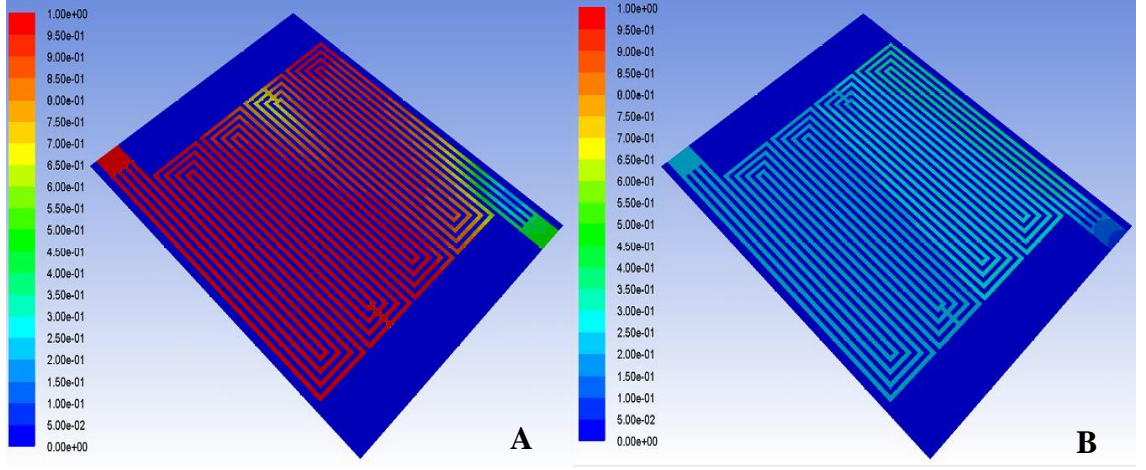
Şekil 4.25. Oluşturulan yeni PEM yakıt hücresi ağ yapısı önden kesit görünümü

Yapılan tasarımın çalışabilirliğini kontrol etmek amacıyla Çizelge 3.3 ve Çizelge 3.4'teki çalışma koşulları ve elektrokimyasal parametreler kullanılarak kararlı halde, açık devre voltajı 0,98 V iken, sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı 0,7 V iken analiz yapılmıştır. Anot ve katotta kütle akış oranı altı kat artırılmış ve üçte ikisi giriş manifoldundan verilirken üçte biri de giriş manifoldunu takip eden ara rezervuardan verilmiştir.

PEM yakıt hücresi modeli üzerinde anot ve katot gaz akış kanalları orta yüzeylerinde (anotta $y = 0,86$ mm ve katotta $y = -0,81$ mm) basınç ve su buharı kütle kesri dağılımı Şekil 4.26 ve Şekil 4.27'de gösterilmiştir.



Şekil 4.26. A) Anot B) Katot gaz akış kanallarında basınç dağılımı



Şekil 4.27. A) Anot B) Katot gaz akış kanallarında su buharı kütle kesri dağılımı

Bu yeni tasarımla ilgili çalışmalar 118M485 numaralı TÜBİTAK projesi kapsamında devam etmektedir.

5. SONUÇ

Bu çalışmada ilk olarak kararsız, üç boyutlu, çok bileşenli bir PEMFC modeli FLUENT kullanılarak çözülmüştür. Hücrenin anot ve katot girişindeki kütle akış oranlarındaki bir adım değişikliğine yanıtı aranmıştır. Bu çalışmaya dayanarak, aşağıdaki sonuçlar çıkarılabilir:

Akım yoğunluğu değerleri düşük hücre voltajı değerlerinde zamana bağlı değişim göstermeye devam ederken yüksek hücre voltajı değerlerinde aynı kalmıştır.

Düşük hücre voltajı değerlerinde akım yoğunluğunun zamanla arttığı görülmüştür. Akım yoğunluğunun hangi sürede sabit bir değere tutunduğu sonucu, yani sabitleme süresi analizin en önemli sonucudur.

Yakıt hücresi performansı için temel eğri olan polarizasyon eğrisinin yanında pik güç üretimi noktasını görmek için güç yoğunluğu-akım yoğunluğu eğrileri de oluşturulmuştur.

0,748235 W/cm² değerindeki maksimum güç yoğunluğuna 0,4 V hücre voltajında ulaşılmıştır.

İkinci olarak farklı çalışma koşullarının PEM yakıt hücresi performansı üzerindeki etkisini sayısal olarak incelemek için üç boyutlu, serpantin kanallı PEM yakıt hücresi, kararlı halde ve tek fazlı analiz edilmiştir. Çalışılan çalışma koşulları sırasıyla farklı çalışma basıncı, dönüşüm katsayısı ve stokiyometrik akış oranını içerir. Bu çalışmaya dayanarak, aşağıdaki sonuçlar çıkarılabilir:

PEM yakıt hücresinin performansı çalışma basıncının artmasıyla artar. Bunun sebebi artan kısmi basınç ve reaksiyon alanındaki reaktif gazların yayınımla kütle taşınım direnci probleminin azalmasıdır.

Hücre performansı, dönüşüm katsayısı değeri ile önemli ölçüde etkilenir. 0,718783 W/cm^2 değerindeki maksimum güç yoğunluğuna sınır şartı olarak katot terminaline uygulanan hücre voltajı 0,5 V iken ve anotta ve katotta dönüşüm katsayısı değeri 2 iken ulaşılmıştır.

Hava stokiyometrik akış oranının etkisiyle hücre performansında düşük akım yoğunluklarında çok az değişiklik gözlenirken yüksek akım yoğunluklarında belirgin şekilde değişiklik gözlenmiştir. PEM yakıt hücrelerinde pratik çalışmayı kolaylaştırmak için optimum bir hava stokiyometrik akış oranı değeri gereklidir.

Ek olarak yapılan doğrulama çalışmasında analiz sonuçlarıyla uyum polarizasyon eğrilerinde gösterilmiştir. Deneysel verilerle sonuçlar arasındaki farklılıkların da deneylerde kullanılan yakıt hücresinin parçalarına ait yoğunluk, özgül ısı, ısı iletkenlik gibi fiziksel özelliklerin bilinmemesi ve sayısal analizlerin tek fazlı olarak yapılmasından kaynaklandığı sonucuna varılmıştır.

Ayrıca yapılan yeni nesil serpantin akış alanı tasarımı ile ilgili çalışmalar TÜBİTAK projesi kapsamında devam etmektedir.

KAYNAKLAR

Al-Baghdadi, M.A.R.S., Al-Janabi, H.A.K.S. 2007. Parametric and optimization study of a PEM fuel cell performance using three-dimensional computational fluid dynamics model. *Renewable Energy*, 32: 1077-1101.

Anonim, 2017. Proton exchange membrane fuel cells (PEMFC). <https://hydrogeneurope.eu/fuel-cells> – (Eriřim tarihi:7.12.2019).

Anonim, 2019a. Benefits. <http://www.fuelcelltoday.com/about-fuel-cells/benefits> – (Eriřim tarihi:20.11.2019).

Anonim, 2019b. Proton exchange membrane fuel cell. <https://www.ceb.cam.ac.uk/research/groups/rg-eme/Edu/fuelcells/types-of-fuel-cells> – (Eriřim tarihi:7.12.2019).

Anonim, 2019c. PEMFC. <http://www.fuelcelltoday.com/technologies/pemfc> – (Eriřim tarihi:7.12.2019).

Anonim, 2019d. Polymer electrolyte membrane fuel cells. <https://www.energy.gov/eere/fuelcells/types-fuel-cells> – (Eriřim tarihi:7.12.2019).

Arvay, A., French, J., Wang, J.C., Peng, X.H., Kannan, A.M. 2013. Nature inspired flow field designs for proton exchange membrane fuel cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38: 3717-3726.

Aydın, M. 2007. PEM yakıt pilinin iki boyutlu modellemesi. *Yüksek Lisans Tezi*, İTÜ Enerji Enstitüsü, Enerji Bilim ve Teknoloji, İstanbul.

Barbir, F. 2005. PEM fuel cells: theory and practice. Elsevier Science & Technology, USA, 448 pp.

Bednarek, T., Tsotridis, G. 2017. Issues associated with modelling of proton exchange membrane fuel cell by computational fluid dynamics. *Journal of Power Sources*, 343: 550-563.

Berning, T., Lu, D.M., Djilali, N. 2002. Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 106: 284-294.

Budak, Y. 2019. Design, manufacturing and testing of high temperature PEM fuel cell stack. *MSc Thesis*, Atilim University The Graduate School of Natural and Applied Sciences, Department of Manufacturing Engineering, Ankara.

Çetinbaş, C.F. 2014. Modeling and optimization of the PEM fuel cell catalyst layer. *Ph. D. Thesis*, Faculty of the University of Delaware, Mechanical Engineering Department, Newark.

Daud, W.R.W., Rosli, R.E., Majlan, E.H., Hamid, S.A.A., Mohamed, R., Husaini, T. 2017. PEM fuel cell system control: A review. *Renewable Energy*, 113: 620-638.

Hakenjos, A., Muentner, H., Wittstadt, U., Hebling, C. 2004. A PEM fuel cell for combined measurement of current and temperature distribution, and flow field flooding. *Journal of Power Sources*, 131: 213-216.

Kahveci, E.E., Taymaz, I. 2018. Assessment of single-serpentine PEM fuel cell model developed by computational fluid dynamics. *Fuel*, 217: 51-58.

Kloess, J.P., Wang, X., Liu, J., Shi, Z., Guessous, L. 2009. Investigation of bio-inspired flow channel designs for bipolar plates in proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 188: 132-140.

Le, A.D., Zhou, B. 2008. A general model of proton exchange membrane fuel cell. *Journal of Power Sources*, 182: 197-222.

Li, X., Sabir, I., Park, J. 2007. A flow channel design procedure for PEM fuel cells with effective water removal. *Journal of Power Sources*, 163: 933-942.

Lim, B.H., Majlan, E.H., Daud, W.R.W., Rosli, M.I., Husaini T. 2019. Three-dimensional study of stack on the performance of the proton exchange membrane fuel cell. *Energy*, 169: 338-343.

Lorenzini-Gutierrez, D., Hernandez-Guerrero, A., Ramos-Alvarado, B., Perez-Raya, I., Alatorre-Ordaz, A. 2013. Performance analysis of a proton exchange membrane fuel cell using tree-shaped designs for flow distribution. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38: 14750-14763.

Mançuhan, C., 2006. Hidrojen ve yakıt pilleri tarihçesi. <https://www.termodinamik.info/hidrojen-ve-yakit-pilleri-tarihcesi> – (Erişim tarihi: 19.11.2019).

Mehta, V., Cooper, J.S. 2003. Review and analysis of PEM fuel cell design and manufacturing. *Journal of Power Sources*, 114: 32-53.

Özdal, A., 2018. Yakıt pili nedir. <https://www.muhandisbeyinler.net/yakit-pili-nedir/> - (Erişim tarihi:23.11.2019).

Özdemir, B. 2012. Serpantin kanallı PEM yakıt hücresinin sayısal analizi. *Yüksek Lisans Tezi*, G.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Makine Mühendisliği Anabilim Dalı, Ankara.

Roshandel, R., Arbabi, F., Moghaddam, G.K. 2012. Simulation of an innovative flow-field design based on a bio inspired pattern for PEM fuel cells. *Renewable Energy*, 41: 86-95.

Satija, R., Jacobson, D.L., Arif, M., Werner, S.A. 2004. In situ neutron imaging technique for evaluation of water management systems in operating PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, 129: 238-245.

Saygılı, Y. 2013. Modeling and control of a PEM fuel cell system. *MSc Thesis*, METU Graduate School of Natural and Applied Sciences, Chemical Engineering Department, Ankara.

Sopian, K., Daud, W.R.W. 2006. Challenges and future developments in proton exchange membrane fuel cells. *Renewable Energy*, 31: 719-727.

Spernjak, D., Prasad, A.K., Advani, S.G. 2007. Experimental investigation of liquid water formation and transport in a transparent single-serpentine PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 170: 334-344.

Straubhaar, B., Pauchet, J., Prat, M. 2016. Pore network modelling of condensation in gas diffusion layers of proton exchange membrane fuel cells. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 102: 891-901.

Su, A., Ferng, Y.M., Shih, J.C. 2010. CFD investigating the effects of different operating conditions on the performance and the characteristics of a high-temperature PEMFC. *Energy*, 35: 16-27.

Yakaryılmaz, A.C. 2018. Energy and exergy analysis of a proton exchange membrane fuel cell (PEMFC). *MSc Thesis*, ÇU Institute of Natural and Applied Sciences, Department of Automotive Engineering, Adana.

Yuan, W., Tang, Y., Pan, M., Li, Z., Tang, B. 2010. Model prediction of effects of operating parameters on proton exchange membrane fuel cell performance. *Renewable Energy*, 35: 656-666.

Wang, L., Husar, A., Zhou, T., Liu, H. 2003. A parametric study of PEM fuel cell performances. *International Journal of Hydrogen Energy*, 28: 1263-1272.

Wee, J. 2007. Applications of proton exchange membrane fuel cell systems. *Renewable & Sustainable Energy Reviews*, 11: 1720-1738.

Williams, M.C. 2011. Fuel cells: Fuel cells: Technologies for fuel processing, Ed.: Shekhawat, D., Spivey, J.J., Berry, D.A., National Energy Technology Laboratory, Morgantown, WV, USA, pp: 11-27.