



T.C.  
NİĞDE ÖMER HALİSDEMİR ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
MAKİNE MÜHENDİSLİĞİ ANA BİLİM DALI

BİRLEŞTİRİLMİŞ REJENERATİF PEM  
YAKIT HÜCRESİ STAĞI GELİŞTİRİLMESİ

NEBİ YELEGEN



T.C.  
NİĞDE ÖMER HALİSDEMİR ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
MAKİNE MÜHENDİSLİĞİ ANA BİLİM DALI

BİRLEŞTİRİLMİŞ REJENERATİF PEM  
YAKIT HÜCRESİ STAĞI GELİŞTİRİLMESİ

NEBİ YELEGEN

Doktora Tezi

Danışman

Prof. Dr. Yüksel KAPLAN

Şubat 2023

**Nebi Yelegen** tarafından **Prof. Dr. Yüksel Kaplan** danışmanlığında hazırlanan “**Birleştirilmiş Rejeneratif PEM Yakıt Hücresi Stağı Geliştirilmesi**” adlı bu çalışma jürimiz tarafından Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü **Makine Mühendisliği** Ana Bilim Dalı’nda Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan : Prof. Dr. Necmettin ŞAHİN, Aksaray Üniversitesi

Üye : Prof. Dr. Mustafa BAYRAK, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Üye : Prof. Dr. Bora TİMURKUTLUK, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Üye : Prof. Dr. Yüksel KAPLAN, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Üye : Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN, Aksaray Üniversitesi

**ONAY:**

Bu tez, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulunca belirlenmiş olan yukarıdaki jüri üyeleri tarafından .../.../20.... tarihinde uygun görülmüş ve Enstitü Yönetim Kurulu’nun .../.../20.... tarih ve ..... sayılı kararıyla kabul edilmiştir.

...../...../20...

**Prof. Dr. Mustafa KARATEPE**  
**MÜDÜR V.**

## TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin bilimsel ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

Nebi YELEGEN

## ÖZET

### BİRLEŞTİRİLMİŞ REJENERATİF PEM YAKIT HÜCRESİ STAĞI GELİŞTİRİLMESİ

YELEGEN, Nebi

Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Makine Mühendisliği Ana Bilim Dalı

Danışman : Prof. Dr. Yüksel KAPLAN

Şubat 2023, 89 sayfa

Bu çalışmada, hem elektrolizör hem de yakıt hücresi modunda çalışabilen Birleştirilmiş Rejeneratif Proton Değişim Membranlı Yakıt Hücresi (BR-PEMYH) deneysel ve teorik olarak incelenmiştir. Teorik çalışmada, BR-PEMYH’de meydana gelen ısı transferi, kütle transferi, akış ve kimyasal reaksiyonlar için 3 boyutlu bir matematiksel model geliştirilmiştir. Proses parametrelerine bağlı olarak iki fazlı akışa geçişi ve fazların davranışlarını içeren model nümerik olarak çözülmüş ve deneysel veriler ile valide edilmiştir. Deneysel çalışmalar kapsamında ise önce 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücreler test edilmiş, buradaki optimize edilen sonuçlar kullanılarak endüstriyel boyutlara (100 cm<sup>2</sup>) taşınmış daha sonra stak haline getirilmiştir. Sistemin performansını arttırmak için optimum akış ve ısı transferi koşulları incelenmiş olup sıcaklığın ve cıvata sayısının diğer proses parametrelerine göre performans üzerine etkisinin önemli olduğu görülmüştür. BR-PEMYH bileşenlerinin malzeme seçimleri, kalınlıkları, sıkıştırma kuvveti, sızdırmazlık elemanları ve kullanılan cıvata sayısı gibi parametreler için optimum koşullar belirlenmiştir. Ticari olarak satın alınan tersinir membran elektrot grubu (MEG) üzerinde yapılan modifikasyon çalışmaları ile 100 cm<sup>2</sup>’lik tek hücrede elektrolizör modunda %17,13, yakıt hücresi modunda %16,98; stakta ise elektrolizör modunda %16,96, yakıt hücresi modunda ise %16,81 oranda bir iyileşme elde edilmiştir.

*Anahtar Sözcükler:* Rejeneratif PEM yakıt hücresi, PEM elektrolizör, deneysel çalışmalar, nümerik analiz

## SUMMARY

### UNITIZED REGENERATIVE PEM FUEL CELL STACK IMPROVEMENT

YELEGEN, Nebi

Nigde Omer Halisdemir University  
Graduate School of Natural and Applied Sciences  
Department of Mechanical Engineering

Supervisor : Prof. Dr. Yüksel KAPLAN

February 2023, 89 pages

In this study, the Unitized Regenerative PEM Fuel Cell (UR-PEMFC), which can operate in both electrolyzer and fuel cell modes, is investigated experimentally and theoretically. In the theoretical study, a 3D mathematical model has been developed for the heat and mass transfer, flow and chemical reactions occurring in UR-PEMFC. The model, which includes the transition to two-phase flow and the behavior of the phases depending on the process parameters, was solved numerically and validated with experimental data. Within the scope of experimental studies, firstly cells with an active area of 5 cm<sup>2</sup> were tested, using the optimized results here, they were transported to industrial sizes (100 cm<sup>2</sup>) and then turned into a stack. In order to increase the performance of the system, optimum flow and heat transfer conditions have been examined and it has been seen that the effect of temperature and bolt number on performance is significant compared to other process parameters. Optimum parameters were determined such as material selection, thickness, compression force, sealing elements and number of bolts used for UR-PEMFC components. With the modification studies on commercially purchased reversible membran electrode assembly (MEA), 17.13% in the electrolyzer mode and 16.98% in the fuel cell mode in a 100 cm<sup>2</sup> single cell; for stack an improvement of 16,96% in the electrolyzer mode and 16,81% in the fuel cell mode was achieved.

*Keywords:* Regenerative PEM fuel cell, PEM electrolyzer, experimental studies, numerical analysis

## ÖN SÖZ

Doktora eğitimim süresince çalışmalarına yön veren, bilgi ve deneyimini esirgemeyen, akademik katkılarının yanında hayati anlamda da yol gösteren kıymetli danışman hocam, Sayın Prof. Dr. Yüksel KAPLAN'a en içten saygı ve şükranlarımı sunarım.

Doktora tezim süresince katkı ve destekleri ile yanımda olan Tez İzleme Komitesi üyelerim Prof. Dr. Bora TİMURKUTLUK'a ve Doç. Dr. Didem BALUN KAYAN'a, numerik çalışmalarda büyük emeği geçen Doç. Dr. Serkan TOROS'a, deneysel çalışmalarda tecrübelerine başvurduğum Prof. Dr. Selahattin ÇELİK'e, katalizör hazırlanması konusunda Doç. Dr. Talat BARAN'a, büyük özveri ile çalışmalarına katkı sağlayan Dr. Öğr. Üyesi Berre KÜMÜK'e teşekkürlerimi sunarım.

Deneysel çalışmalarımı yürüttüğüm Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Prof. Dr. Turhan Nejat Veziroğlu Temiz Enerji Uygulama ve Araştırma Merkezi'nde çalışmalarım sırasında, çalışma arkadaşlarım Arş. Gör. Sezer ÖNBİLGİN'e, Arş. Gör. Enis Selçuk ALTUNTOP'a, Mikail YAĞIZ'a ve Furkan TORUNTAY'a desteklerinden dolayı teşekkür ederim.

Tez çalışmalarım sırasında göstermiş oldukları anlayış, destek ve fedakârlıklarından dolayı çalışma arkadaşlarım Öğr. Gör. Dr. Esra KILAVUZ'a, Öğr. Gör. Zeynep BOSTANCI'ya, Öğr. Gör. Şükrü CANPOLAT'a, ve Öğr. Gör. Gülşah GERMEN TUTAŞ'a teşekkür ederim.

Hayatım boyunca maddi ve manevi destekleri ile her zaman yanımda olan aileme sonsuz teşekkürlerimi sunarım. Bu zorlu süreçte her zaman yanımda olan, büyük bir sabır ve anlayış ile her daim desteğini hissettiğim sevgili eşim Meltem YELEGEN ve oğlum Ahmet Akif YELEGEN'e çok teşekkür ederim.

Bu çalışmaya FEB2011/26 numaralı proje ile finansal destek sağlayan Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi ve çalışanlarına katkılarından dolayı teşekkür ederim.

## İÇİNDEKİLER

ÖZET .....	iv
SUMMARY .....	v
ÖN SÖZ .....	vi
ÇİZELGELER DİZİNİ .....	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ .....	x
FOTOĞRAFLAR DİZİNİ .....	xiii
SİMGE VE KISALTMALAR .....	xiv
BÖLÜM I.....	1
GİRİŞ .....	1
1.1 Tezin Amacı.....	2
1.2 Tezin Kapsamı .....	4
1.3 Ekolojik Uygunluk.....	5
1.4 Çalışma Güvenliği .....	5
BÖLÜM II .....	6
REJENERATİF YAKIT HÜCRELERİ.....	6
2.1 Ayırık Rejeneratif Yakıt Hücreleri .....	7
2.2 Birleştirilmiş Rejeneratif Yakıt Hücreleri.....	7
2.3 BRYH Türleri .....	11
2.4 BRYH'nin Elektrolizör Çalışma Modu .....	12
2.4.1 Oksijen Oluşumu Reaksiyonları (OER).....	14
2.4.2 Hidrojen Oluşumu Reaksiyonları (HER).....	15
2.5 BR-PEMYH'nin Yakıt Hücresi Çalışma Modu .....	18
2.6 Birleştirilmiş Rejeneratif PEM Yakıt Hücresi Bileşenleri.....	20
2.6.1 Membran Elektrot Grubu (MEG).....	21
2.6.2 Gaz Difüzyon Tabakası ve Sızdırmazlık Elemanları .....	22
2.6.3 Bipolar Plakalar.....	23
2.6.4 Akım Toplama Levhası ve Sıkıştırma Plakası .....	25
2.7 Literatür Özeti.....	26
2.8 RYH Tarihçesi .....	26
2.9 Önceki Çalışmalar.....	27

BÖLÜM III .....	37
MATEMATİKSEL MODELLEME .....	37
BÖLÜM IV .....	43
DENEYSEL ÇALIŞMALAR .....	43
4.1 BRYH Dizayn ve İmalatı .....	43
4.2 BRYH Stak Tasarım ve İmalatı .....	44
4.3 Membran Elektrot Grubu Modifikasyon Çalışmaları .....	45
4.4 BR-PEMYH Elemanlarının Birleştirilmesi ve Deneysel Düzenek .....	50
4.5 BR-PEMYH Elektrolizör Modu Testleri .....	51
4.6 BR-PEMYH'nin Yakıt Hücresi Modu Testleri .....	53
BÖLÜM V .....	55
BULGULAR .....	55
5.1 Nümerik Sonuçlar .....	55
5.2 Deneysel Sonuçlar .....	58
5.2.1 Sıkıştırma Torku Optimizasyon Çalışmaları ve Empedans Direnci .....	59
5.2.2 5 cm <sup>2</sup> 'lik BR-PEMYH Performans Sonuçları .....	62
5.2.3 100 cm <sup>2</sup> 'lik BR-PEMYH Performans Sonuçları .....	65
5.2.4 Stak Performans Sonuçları .....	68
5.2.5 Modifiye Edilmiş (Katkılı) MEG Performans Sonuçları .....	71
5.3 Nümerik Sonuçların Doğrulanması .....	73
BÖLÜM VI .....	75
SONUÇ VE ÖNERİLER .....	75
KAYNAKLAR .....	77
ÖZ GEÇMİŞ .....	89
TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER .....	90

## ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1. Çeşitli birleştirilmiş yakıt hücrelerinin karşılaştırılması .....	10
Çizelge 3.1. Modellemede kullanılan hücre boyutları .....	39
Çizelge 3.2. Yakıt hücresi ve elektrolizör modlarında denklem işaret seçimi .....	40
Çizelge 4.1. Geliştirilen elektrokatalizörün EDS sonuçları .....	49



## ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. Ayrık rejeneratif yakıt hücresi .....	6
Şekil 2.2. Birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücresi .....	8
Şekil 2.3. BR-PEMYH’de gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonların şematik gösterimi .....	8
Şekil 2.4. Yakıt hücresi (YH) ve elektrolizör (E) modlarında çalıştırılan çeşitli BRYH teknolojilerinin şematik diyagramı: (a) BR-PEMYH; (b) BR-AYH; (c) oksijen iyonu iletken elektrolitli BR-KOYH; (d) proton iletken elektrolit BR-KOYH (Pu vd., 2021) .....	10
Şekil 2.5. BRYH çalışma modları .....	12
Şekil 2.6. Volkan grafiği (Trasatti, 1984).....	15
Şekil 2.7. Farklı metaller üzerinde HER’in Volkan grafiği (Trasatti, 1972).....	16
Şekil 2.8. PEM elektrolizör hücresinde meydana gelen voltaj kayıpları (Trasatti, 1990) .....	17
Şekil 2.9. PEM elektrolizörde voltaj-akım yoğunluğu eğrisinde meydana gelen kayıplar .....	18
Şekil 2.10. PEM yakıt hücresi polarizasyon eğrisi .....	19
Şekil 2.11. Birleştirilmiş Rejeneratif PEM yakıt hücresi bileşenleri.....	21
Şekil 2.12. Bipolar plaka akış kanalları tasarımları .....	24
Şekil 2.13. Akım toplama levhası (a), Sıkıştırma plakası (b).....	25
Şekil 2.14. Ara yüzey temas direncinin farklı sıkıştırma basıncında çalışma basıncına göre etkisi ve $150 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ eşik değer için çeşitli sıkıştırma basıncında çalışma basınçları (Bhosale vd., 2017) .....	28
Şekil 2.15. BRYH bileşenleri (Bhosale vd., 2017).....	29
Şekil 2.16. Lyntech firmasının BRYH yığını (a), Proton Enerji Sistemleri firmasının BRYH yığını (b) (Burke, 2003).....	34
Şekil 2.17. Literatürde bildirilen BR-PEMYH yığınları: Sone (a), Grigoriev vd.,; Millet vd., (Soldan sağa); Proton Inc., LLNL ve Lynntech, Inc. (b) tarafından ticari yığınlar (Soldan sağa) (Wang vd., 2016).....	35
Şekil 3.1. Modellemede kullanılan geometri .....	38

Şekil 4.1. BRYH tasarım genel görünüşü.....	44
Şekil 4.2. Tek duvarlı ve çok duvarlı karbon nanotüpler.....	45
Şekil 4.3. Grafik karbon nitrürün kimyasal yapısı.....	46
Şekil 4.4. Kitosanın kimyasal yapısı.....	47
Şekil 4.5. Geliştirilen elektrokatalizörün SEM görüntüsü.....	48
Şekil 4.6. Geliştirilen elektrokatalizörün EDS spektrumu.....	48
Şekil 4.7. Geliştirilen elektrokatalizörün XRD spektrumu.....	49
Şekil 4.8. Deney düzeneğinin şematik gösterimi.....	51
Şekil 4.9. BR-PEMYH empedans ve polarizasyon eğrileri.....	54
Şekil 5.1. Elektrolizör modu için akım yoğunluğu dağılımı (a) ve hidrojen mol fraksiyonu ile akış çizgileri (b) .....	55
Şekil 5.2. Elektrolizör modu için su mol fraksiyonu (a) ve akış çizgileri (b).....	56
Şekil 5.3. Elektrolizör modu için basınç (a) ve hız dağılımı (b).....	56
Şekil 5.4. Yakıt hücresi modu için hidrojen akış çizgileri (a) ve mol kesri dağılımı (b).....	57
Şekil 5.5. Yakıt hücresi modu için oksijen akış çizgileri (a) ve mol kesri dağılımı (b).....	57
Şekil 5.6. Yakıt hücresi modu için su akım çizgisi (a) ve mol kesri dağılımı (b) .....	58
Şekil 5.7. Yakıt hücresi modu için hidrojen (a) ve havanın (b) basınç dağılımı .....	58
Şekil 5.8. 5 cm <sup>2</sup> 'lik BR-PEMYH için sıcaklık ile empedans değişimi.....	59
Şekil 5.9. 30 °C'de 2 ve 3 Nm için 5 cm <sup>2</sup> 'lik BR-PEMYH için elde edilen empedans grafikleri.....	60
Şekil 5.10. 5 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH deney sonuçları .....	62
Şekil 5.11. 5 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH düşük sıcaklık deney sonuçları .....	63
Şekil 5.12. 5 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH yüksek sıcaklık deney sonuçları .....	63
Şekil 5.13. BR-PEMYH (5cm <sup>2</sup> aktif alan) elektrolizör modunda 80 °C ve 1,89 V' de üretilen hidrojen ve oksijen gazı .....	64
Şekil 5.14. BR-PEMYH (5cm <sup>2</sup> aktif alan) yakıt hücresi polarizasyon eğrisi.....	65
Şekil 5.15. 100 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH deney sonuçları .....	66
Şekil 5.16. 100 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH düşük sıcaklık deney sonuçları .....	66
Şekil 5.17. 100 cm <sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH yüksek sıcaklık deney sonuçları .....	67
Şekil 5.18. BR-PEMYH (100 cm <sup>2</sup> aktif alan) elektrolizör modunda 60 °C' de üretilen hidrojen ve oksijen gazı .....	67
Şekil 5.19. BR-PEMYH (100 cm <sup>2</sup> aktif alan) yakıt hücresi polarizasyon eğrisi.....	68
Şekil 5.20. BR-PEMYH 3 hücreli stak deney sonuçları.....	69
Şekil 5.21. BR-PEMYH stak düşük sıcaklık sonuçları .....	69

Şekil 5.22. BR-PEMYH stak yüksek sıcaklık sonuçları.....	70
Şekil 5.23. BR-PEMYH stağından elektrolizör modunda 60 °C’de üretilen hidrojen ve oksijen gazı .....	70
Şekil 5.24. BR-PEMYH stağı yakıt hücresi modu 60 °C’de polarizasyon eğrisi.....	71
Şekil 5.25. 100 cm <sup>2</sup> ’lik hücre için standart ve modifiye edilmiş MEG polarizasyon eğrileri .....	72
Şekil 5.26. Stak için standart ve modifiye edilmiş membran polarizasyon eğrileri .....	73
Şekil 5.27. Deneysel ve numerik sonuçların karşılaştırılması .....	74



## FOTOĞRAFLAR DİZİNİ

Fotoğraf 2.1. Tersinir membran elektrot grubu .....	22
Fotoğraf 2.2. Gözenekli titanyum (a), Karbon kâğıt (b), Silikon conta (c) .....	23
Fotoğraf 4.1. Stak tasarımı ve imal edilmiş görünüşü .....	44
Fotoğraf 4.2. Performans testlerinde kullanılan BR-PEMYH'ler .....	50
Fotoğraf 4.3. BR-PEMYH elemanları .....	52
Fotoğraf 4.4. BR-PEMYH Elektroliz modu deney düzeneği .....	52
Fotoğraf 4.5. BR-PEMYH Elektroliz modu deney düzeneği .....	54
Fotoğraf 5.1. Sıkıştırma torku optimizasyonunda kullanılan basınç filmleri .....	60
Fotoğraf 5.2. 100 cm <sup>2</sup> 'lik hücre için basınç filmi .....	61
Fotoğraf 5.3. 3 hücreli staktan elde edilen basınç filmleri.....	61

## SİMGE VE KISALTMALAR

<b>Simgeler</b>	<b>Açıklama</b>
T	Sıcaklık
V	Volt
A/cm <sup>2</sup>	Akım yoğunluğu

<b>Kısaltmalar</b>	<b>Açıklama</b>
PV	Fotovoltaik
MEG	Membran Elektrot Grubu
PEM	Proton Değişim Membranlı
RYH	Rejeneratif Yakıt Hücresi
BR-PEMYH	Birleştirilmiş Rejeneratif PEM Yakıt Hücresi
BRYH	Birleştirilmiş Rejeneratif Yakıt Hücresi
ARYH	Ayrık Rejeneratif Yakıt Hücresi
kW	Kilo Watt
W	Watt
l/sa.	Litre/Saat
DC	Doğru Akım
OCV	Açık Devre Voltajı
HER	Hidrojen Oluşumu Reaksiyonu
OER	Oksijen Oluşumu Reaksiyonu
MΩ	Megaohm

# BÖLÜM I

## GİRİŞ

Gelişen teknoloji, sanayileşme, nüfus artışı gibi etkenlerden dolayı enerjiye olan ihtiyaç her geçen yıl önemli ölçüde artmaktadır. Azalan fosil yakıt kaynakları, özellikle petrol ve doğalgazda artan enerji maliyetleri ve bu kaynakların kullanımı sonucu ortaya çıkan karbondioksit gazının atmosferde tabaka oluşturarak sera etkisine neden olması gibi nedenler, enerji ihtiyacı için yenilenebilir kaynaklara olan ilgiyi artırmıştır. Ayrıca fosil yakıt tüketiminden kaynaklanan doğal dengenin bozulması, küresel ısınma sonucu denizlerin yükselmesi, asit yağmurları ve ozon tabakasının koruyucu etkisinin ortadan kalkması gibi sorunlar giderek artmaktadır.

Günümüzdeki enerji ihtiyacının karşılanmasında güneş, rüzgâr, hidrojen, biokütle, hidrolik, dalga ve gelgit gibi alternatif yenilenebilir enerji kaynaklarının kullanılmasının üzerinde durulmaktadır. Böylece dünya çapında fosil kaynakların kullanımı sonucu çevreye vermiş olduğu zararlar azaltılmış olacaktır. Yenilenebilir enerji kaynaklarının başında güneş enerjisi gelmektedir. Güneş pilleri olarak bilinen fotovoltaik (PV) paneller yüzeylerine gelen güneş ışığını doğrudan elektrik enerjisine dönüştürerek düşük güç ihtiyaçlarında oldukça tercih edilen sistemlerdir. Ancak bataryalı sistemlerde büyük miktarlarda enerji depolamanın maliyeti çok yüksek olduğu gibi, uzun süreli depolama mümkün değildir. Ayrıca klasik bataryalardan oluşmuş bir sistemde depolanan enerjinin sadece %20-30 kısmı çekilebilmekte ve batarya ömrü çok kısa olmaktadır. Özel olarak tasarlanmış genişletilmiş çevrime sahip bataryalarda çalışma ömrü 1-2 yıldan 5 yıla, enerji çekme oranının ise %80'lere çıkmasından dolayı maliyet üstel olarak artmaktadır (Radovic, 1997). Dolayısıyla rüzgâr ve güneş enerjisi tamamen çevreci ve bedava olmasına rağmen çoğu zaman istendiği zaman bulunamamaktadır. Örneğin gece elektriğe ihtiyaç duyulduğunda güneş enerjisi kullanılamamakta ayrıca rüzgârdan da sürekli bir enerji elde etmek mümkün olmamaktadır. Güneş ve rüzgâr enerjisi hidrojen ile birleştirildiğinde ise sürekli bir enerji kaynağı ortaya çıkmakta, bu durumda da hidrojen teknolojilerini ön plana çıkarmaktadır.

Alternatif enerji kaynaklarından beklenen karakteristikler; yüksek ısı değerine sahip, çevreyle dost, insan sağlığına zararsız olmaları, farklı enerji dönüştürücülerde

kullanılabilme özellikleri ve düşük maliyetleri şeklinde öne çıkmaktadır (Oral, 2005). Bu yüzden hidrojenle ilgili literatür çalışmaları hız kazanmıştır. Birincil enerji kaynağı olmayan hidrojen, bir başka enerji türünden elde edilebilen bir enerji taşıyıcısıdır. Üretimi, depolanması, taşınması ve yakıt hücrelerinde kullanılması gibi konularda yapılan çalışmalar tüm dünyada oluşturulan fonlarla desteklenmektedir. Hidrojen birincil enerji kaynağı olmayıp bir başka enerji tüketilerek elde edilen bir enerji taşıyıcısıdır. Fotovoltaik ve birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücresi birlikte kullanıldığında PV sistemlerinde karşılaşılan depolama sorunlarını büyük ölçüde ortadan kaldıran bir çözüm olarak günümüzde en iyi alternatiflerden biri olarak kabul edilmektedir. Böylelikle, kısa ve uzun süreli enerji depolamanın her ikisi için de uygun sistem kurulumları mümkün olmaktadır (Busquet vd., 2004).

## **1.1 Tezin Amacı**

Yakıt hücreleri, özellikle dünya fosil yakıt kaynaklarının azalması ve bunların kullanımlarının çevreye olan zararları nedeniyle son yıllarda büyük önem kazanmıştır. Yakıt hücresi sistemleri Carnot verimi ile sınırlı olmayıp, enerji dönüşüm verimleri %50-80'e kadar çıkabilmektedir. Yakıt hücrelerinin otomotiv, büyük güç santrallerinden taşınabilir elektronik aygıtlara kadar her alanda uygulaması vardır. Bunlar için de hidrojene ihtiyaç duyulmaktadır. Günümüzde hidrojen büyük oranda (yaklaşık %95) hidrokarbonlardan üretilmektedir. Hidrojen en temel elementlerden olduğundan birçok bileşiğin yapısında bulunmakta, buna bağlı olarak birçok üretim senaryosu ve tekniği bulunmaktadır. Hidrokarbon tabanlı yakıtların sebep olduğu çevre kirliliği ve küresel ısınma da hesaba katıldığında, hidrojeninin öncelikle çevre dostu temiz bir metot ile üretilmesi gerekmektedir. Hidrojenin temiz, yüksek performanslı ve yenilenebilir bir süreç ile üretilmesi için farklı teknikler üzerine çalışmalar devam etmektedir. Bu tekniklerden ilgi çeken, sudan yeşil hidrojen ve medikal oksijen üreten PEM elektrolizörlerdir. Rejeneratif yakıt hücreleri hem elektrolizör modunda hem de yakıt hücresi modunda çalışabilen sistemler olup son yıllarda araştırmacılar çalışmalarını BR-PEMYH'leri üzerine yoğunlaştırmışlardır.

Bu çalışmada BR-PEMYH'leri detaylı bir şekilde incelenmiş, elde edilen bilgilerle deneysel ve teorik çalışmalar yapılmıştır. Geliştirilen rejeneratif yakıt hücresi önce elektrolizör modunda, daha sonra yakıt hücresi modunda çalıştırılmıştır.

Teorik çalışmalar kapsamında geliştirilen matematiksel modelleme ile BR-PEMYH'de meydana gelen ısı ve kütle transferi, akış ve kimyasal reaksiyonlar için 3 boyutlu bir model geliştirilerek nümerik olarak çözülmüştür. Model, proses parametrelerine bağlı olarak iki fazlı akışa geçişi ve fazların davranışlarını da içermektedir.

Deneysel çalışmalarda ise; ticari olarak satın alınan ve TÜBİTAK projesi ön hazırlıkları kapsamında Aksaray Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü Laboratuvarlarında geliştirilen katalizör ile modifiye edilerek optimizasyon çalışmaları yapılmıştır. Çalışmalar kapsamında kitosan çözeltisi içerisinde, karbon bazlı (karbon nanotüp/karbon nitrür) destek materyali üzerine platinin, mikrodalga sentez yöntemiyle nano boyutta biriktirilmesi sağlanarak, nispeten ucuz, yenilikçi ve etkin bir elektrokatalizör geliştirilmiş ve karakterize edilmiştir. Kullanılan katalizör destek malzemelerinin ucuz, kolay ulaşılabilir ve basit bir şekilde hazırlanabilir olması, önemli oranda maliyeti oluşturan platin metalinin nano düzeyde kullanılması ve platin nanoparçacıklarının mikrodalga sentez yöntemiyle herhangi bir kimyasal ajan kullanmadan birkaç dakikalık bir sürede hazırlanması, BR-PEMYH'nin ticarileşme sürecine önemli katkılar sunması beklenmektedir. Böylece, sürdürülebilir bir BR-PEMYH sistemi üretme hedeflerine yaklaşılmıştır.

Ticari olarak satın alınan ve modifiye edilen MEG'ler önce 5 cm<sup>2</sup>'lik küçük boyutlu hücrede test edilmiştir. Daha sonra endüstriyel boyutlara (100 cm<sup>2</sup>) taşınarak scale-up sorunları çözülmüş ve üç hücreli stak haline getirilmiştir. Tek hücre testlerinden edindiğimiz bilgi ve tecrübeler çerçevesinde stak için yeni bir tasarım yapılarak imalatı yaptırılmıştır. Kurulan deneysel düzenele, farklı parametrelere bağlı olarak BR-PEMYH karakteristikleri incelenerek, matematiksel modeli geliştirmek için veriler oluşturulmuştur. Sistemin performansını arttırmak için optimum akış ve ısı transferi koşulları incelenmiş olup sıcaklığın ve civata sayısının diğer proses parametrelerine göre, performans üzerine etkisinin önemli ölçüde artırdığı görülmüştür.

Tüm dünyada BR-PEMYH üzerinde çalışmalar çok yoğun bir şekilde sürerken ülkemizde konu ile ilgili çalışmalar çok sınırlıdır. Dolayısıyla doktora tez çalışmasının en önemli amaçlarından birisi de rejeneratif yakıt hücresi teknolojilerinin çok iyi analiz edilerek konu ile ilgili bilgi birikimini arttırmak ve ilgili sanayiye öncülük etmektir.

## 1.2 Tezin Kapsamı

Tez kapsamında BR-PEMYH sistemlerinde meydana gelen akış, ısı ve kütle transferi ve elektrokimyasal olaylar teorik ve deneysel olarak incelenmiştir. Geliştirilen BR-PEMYH stağından yakıt hücresi modunda elde edilen maksimum güç 94,94 W ve elektrolizör modunda üretilen maksimum hidrojen ve oksijen debileri ise sırası ile 61,37 l/sa. ve 30,69 l/sa. olarak ölçülmüştür.

Yapılan çalışmalar aşağıda maddeler halinde verilmiştir.

- I. BR-PEMYH ana elemanları olan bipolar plaka, akım toplama plakası, sıkıştırma plakası ve son plakaların tasarımı yapılarak üretimi yaptırılmıştır. Hidrojen elektrot ve oksijen elektrot kısmında kullanılacak gaz difüzyon tabakaları ve yalıtım malzeme kalınlıkları belirlenmiştir. Daha sonra BR-PEMYH elemanları optimize edilen sıkıştırma kuvveti ile bir araya getirilerek deneysel çalışmalar kapsamında performans testleri yapılmıştır.
- II. Teorik çalışma kapsamında, rejeneratif yakıt hücresi sisteminin ısı ve kütle yönetimleri, hücre içi sıvı ve gaz akışı, elektrokimyasal olaylar, çıkış voltajı ve güç gibi elektriksel parametreler incelenmiştir.
- III. Grafitik karbon nitrür (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), çok duvarlı karbon nanotüp (ÇDKN), kitosan (Chi) çözeltisi ve nano boyutta platin metali kullanılarak mikrodalga sentez yöntemi ile ÇDKN/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Chi/ Pt nanokompozit solüsyonu hazırlanmıştır. Hazırlanan solüsyon ticari olarak satın alınan MEG'ler üzerinde bulunan anot ve katot elektrokatalizör bölgelere uygulanarak kurutulmuş ve performans testlerine hazır hale getirilmiştir.
- IV. Deney düzeneği oluşturularak, hem ticari olarak satın alınan MEG'ler hem de modifiye edilen MEG'lerin performans testleri yapılmıştır. Proses parametrelerine bağlı akım yoğunlukları, su, hidrojen ve oksijen debileri ölçülmüş ve sistemin performans karakteristikleri ortaya çıkarılmıştır. Elde edilen veriler özgün sistem elemanları için patent almaya yönelik kullanılacaktır.

BR-PEMYH ana bileşenleri anot, katot, MEG, bipolar tabakaların üretimi ve performans testleri sonuçları değerlendirilerek verimliliklerinin artırılmasına yönelik tasarım ve imalat yöntemleri belirlenmiştir.

### **1.3 Ekolojik Uygunluk**

Rejeneratif PEM yakıt hücre sistemleri genel olarak fosil kökenli yakıtların doğaya olan zararları nedeniyle gündeme gelmektedir. Bu çalışma ile geliştirilen BR-PEMYH sistemleri temel olarak mevcut şarj edilebilen ve edilemeyen pillerin yerine alternatif olarak düşünülmektedir. Taşınabilir elektronik cihazlarda kullanılan kuru piller çinko, kurşun, nikel, kadmiyum, gümüş ve cıva gibi ağır metalleri ile alkalinler ve elektrolitler içermektedirler. Bu maddeler hem insana hem de doğadaki canlılara ciddi zararlar vermektedirler. Örneğin 6 ton çöpün içine atılmış tek bir pil katı atık yönetmeliğinde izin verilen maksimum cıva miktarının aşılmasına neden olmaktadır.

BR-PEMYH kullanımının yaygınlaşması ile şarjlı veya şarjsız kuru pillerin neden olduğu çevresel zararların ortadan kalkabileceği düşünülmektedir.

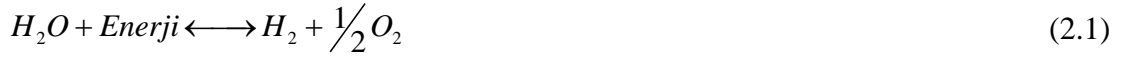
### **1.4 Çalışma Güvenliği**

BR-PEMYH sistemleri, mevcut pil sistemlerine alternatiftir. Bilindiği gibi mevcut pil sistemlerinde kurşun, kadmiyum ve cıva gibi ağır metaller kullanılmaktadır. Bu malzemelerin direkt olarak vücutla teması veya herhangi bir şekilde vücuda alınması, insan sağlığı açısından ciddi tehlikeler oluşturmaktadır. BR-PEMYH imalatında yukarıda bahsedilen maddeler kullanılmayacaktır. Bu durum işçi sağlığı ve çalışma güvenliği açısından bir avantaj oluşturmaktadır.

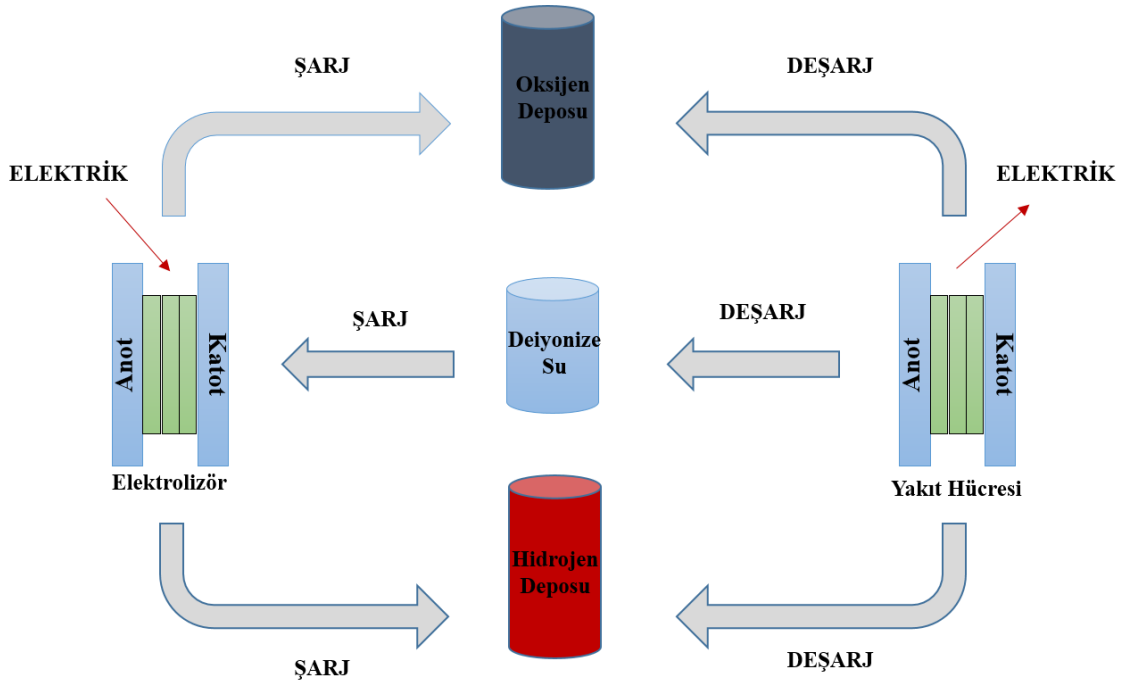
## BÖLÜM II

### REJENERATİF YAKIT HÜCRELERİ

Rejeneratif yakıt hücresi, elektrolizör veya yakıt hücresi olarak işlev görebilen tek bir cihaz veya sistemdir. Yakıt hücresi ve elektrolizör ayrı ayrı olup sistem haline getirilen sistemlerin yanı sıra tek bir hücrede birleştirildiği cihazlar da mevcuttur. Rejeneratif yakıt hücrelerinde gerçekleşen genel tersinir reaksiyon aşağıda verilmiştir.



Bu reaksiyona göre rejeneratif yakıt hücresi, elektrolizör modunda çalışırken elektrik enerjisi kullanarak suyu bileşenlerine yani oksijen ve hidrojen gazına ayırarak depolanmaktadır. Yakıt hücresi modunda ise depolanan hidrojen ve oksijen RYH'ye beslenerek ihtiyaç duyulan elektrik enerjisi üretilmektedir. Reaksiyon sonucu egzoz olarak ise sadece su veya su buharı oluşmaktadır. Yakıt hücresi modunda duyulan oksijen ihtiyacı kompresör vasıtası ile havadan da sağlanabilmektedir.



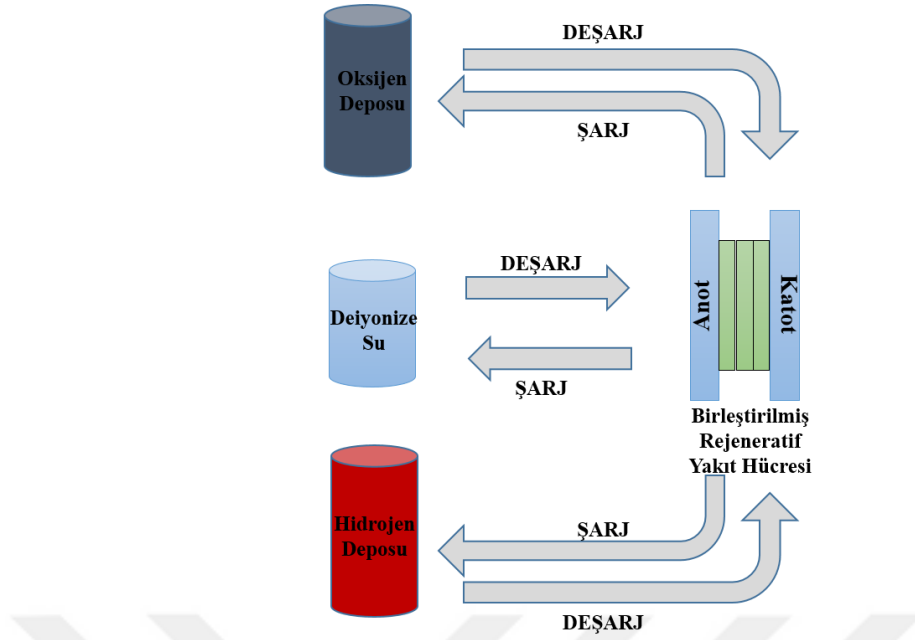
Şekil 2.1. Ayrık rejeneratif yakıt hücresi

## 2.1 Ayrık Rejeneratif Yakıt Hücreleri

Rejeneratif yakıt hücreleri, ayrık rejeneratif yakıt hücreleri ve birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücreleri olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Ayrık rejeneratif yakıt hücrelerinde (ARYH), elektrolizör ve yakıt hücresi ayrı sistemler olsa da birbirleri ile entegre bir şekilde çalıştıkları sistem haline getirilmiştir. Şekil 2.1’de de görüldüğü üzere ARYH sistemi, elektrolizör hücresi, yakıt hücresi, kontrol sistemi, hidrojen, oksijen ve su deposundan oluşmaktadır. Yakıt hücresinde açığa çıkan su, elektrolizör sisteminde kullanılan su deposuna gönderilerek su döngüsü sağlanabilmektedir. Böylece temiz su kaynağının kısıtlı olduğu uzay, uçak ve denizaltı gibi alanlarda kullanımını kolaylaştırmaktadır. Elektrolizör ve yakıt hücresinin ayrı olması bireysel performansları ve maliyetleri açısından optimize edilebilmesini kolaylaştırırken, kapasitelerinin de belirlenmesini sağlamaktadır. Ayrıca sistem izin verdiği sürece aynı anda da çalışabilmektedirler.

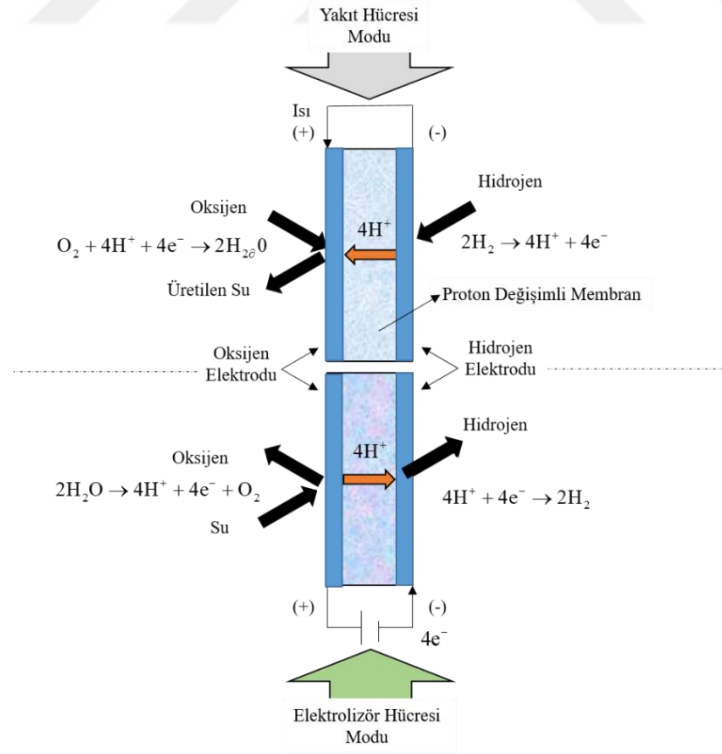
## 2.2 Birleştirilmiş Rejeneratif Yakıt Hücreleri

Birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücreleri (BRYH), yakıt hücresi ve elektrolizörün aynı modül üzerine entegre edilmesiyle geliştirilen bir sistemdir. Kullanılan çift yönlü polimer değişimli membran sayesinde elektrolizör ve yakıt hücresi olarak iki modda çalışabilmektedir. Elektrolizör modunda sistem dışardan aldığı elektrik enerjisi ile suyu elektrokimyasal olarak hidrojen ve oksijen gazına dönüştürürken, yakıt hücresi modunda üretilen hidrojen ve oksijen elektrokimyasal olarak birleşerek su ve elektrik üretirler (Gabbasa vd., 2014). BRYH bileşenleri Şekil 2.2’de görüldüğü gibi elektrolizör ve yakıt hücresi tek bir hücrede birleştirilerek sistem daha kompakt hale getirilmiştir. Ayrık sistemlere göre düşük yatırım maliyeti, daha basit yapı, daha yüksek özgül enerji gibi çeşitli avantajlar sağlamaktadır (Dutta vd., 2017).



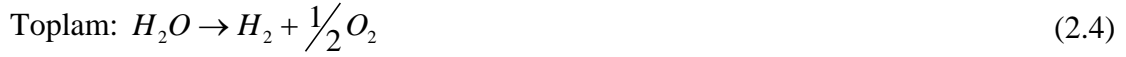
Şekil 2.2. Birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücresi

BR-PEMYH'de elektrolizör ve yakıt hücresi modunda gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonlar Şekil 2.3'te gösterilmiştir.



Şekil 2.3. BR-PEMYH'de gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonların şematik gösterimi

Elektrolizör modunda gerçekleşen reaksiyonlar;



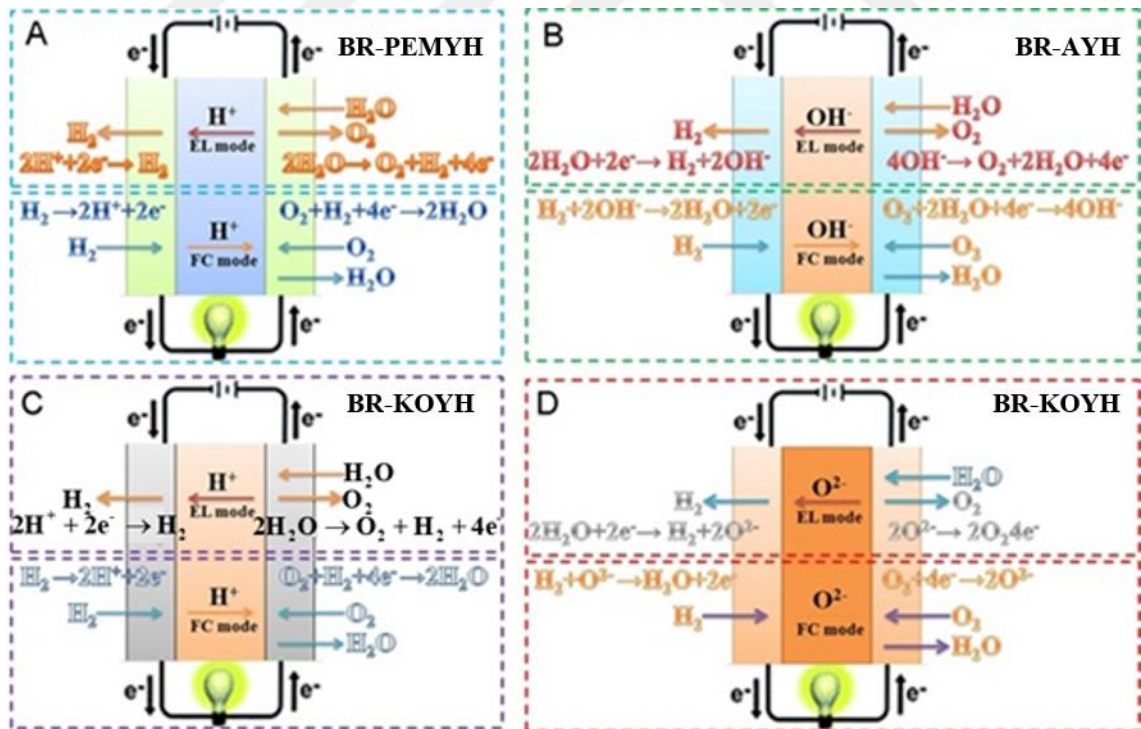
Yakıt hücresi modunda gerçekleşen reaksiyonlar;



Yakıt hücreleri, kullanılan elektrolite göre isimlendirilirler. Birleştirilmiş rejeneratif proton geçirgen membran yakıt hücresi (BR-PEMYH), birleştirilmiş rejeneratif alkali yakıt hücresi (BR-AYH), birleştirilmiş rejeneratif katı oksit yakıt hücresi (BR-KOYH) ve birleştirilmiş rejeneratif mikro akışkan yakıt hücresi (BR- MYH) olmak üzere dört farklı birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücresi üzerinde çalışmalar yapılmaktadır. Farklı tip BRYH aralarındaki temel fark oksidasyon ve indirgenme reaksiyonları için elektrolitten farklı iyonların transfer edilmesidir. Her iki modda çalıştırılan BRYH çeşitlerinin şematik gösterimi Şekil 2.4'te verilmiştir. BR-PEMYH ve BR-AYH için elektrolitteki iletken iyonlar sırasıyla  $H^+$  ve  $OH^-$ 'dir. BR-KOYH için ise  $O^{2-}$  ve  $H^+$  iyonlarının her ikisi de kullanılabilir. BR-MYH esnek elektrolit seçimi nedeniyle bu şekle dâhil edilmemiştir. Farklı tipteki BRYH sistemlerinin çalışma sıcaklığı, verim gibi temel özelliklerinin karşılaştırılması Çizelge 2.1'de verilmiştir (Y. Wang vd., 2016).

**Çizelge 2.1.** Çeşitli birleştirilmiş yakıt hücrelerinin karşılaştırılması (Y. Wang vd., 2016)

BRYH Türleri	Elektrolit	Temel Özellik	Çalışma Sıcaklığı (°C)	Şarj-Deşarj Verimliliği	Teknik Durum
<b>BR-PEMYH</b>	PEM	Soy metal katalizör	20-100	%40-50	Olgunlaşmış
<b>BR-AYH</b>	Alkali çözelti, AEM	Soy metal olmayan katalizör	20-120	%30-40	Gelişmekte
<b>BR-KOYH</b>	Proton iletken seramikler, Oksijen iyonu iletken seramikler	Yüksek çalışma sıcaklığı, Yüksek enerji verimliliği, Soy metal olmayan katalizör	500-1000	%60-80	Gelişmekte
<b>BR-MYH</b>	Asit/Alkali Çözelti	Membransız yapı, Düşük yatırım maliyeti	20-80	Vanadyum türleri için %60	İlk evreleri



**Şekil 2.4.** Yakıt hücresi (YH) ve elektrolizör (E) modlarında çalıştırılan çeşitli BRYH teknolojilerinin şematik diyagramı: (a) BR-PEMYH; (b) BR-AYH; (c) oksijen iyonu iletken elektrolitli BR-KOYH; (d) proton iletken elektrolit BR-KOYH (Pu vd., 2021)

### 2.3 BRYH Türleri

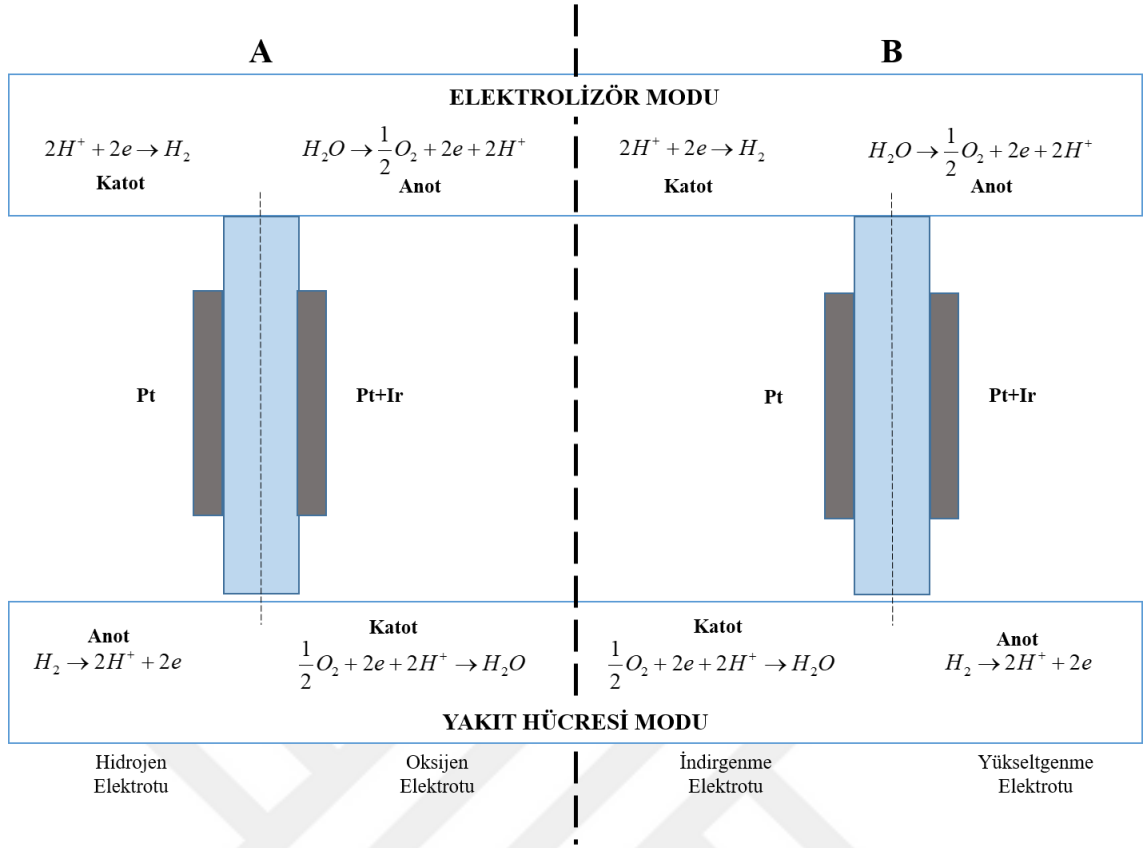
BR-PEMYH’de kullanılan elektrokatalizör tabakanın yapısı çift fonksiyonlu özelliğe sahip olup genel olarak iki farklı şekilde çalışabilmektedirler. En yaygın türü, Şekil 2.5 A’da verilen elektrolizör modunda hidrojen üretiminin olduğu ve yakıt hücresi modunda hidrojenin kullanıldığı sabit elektrotlu BRYH’lerdir. Benzer şekilde elektrolizör modunda oksijen çıkışının olduğu elektrot ile yakıt hücresi modunda oksijen veya havanın kullanıldığı elektrot sabittir. Bu çalışma kapsamında sabit oksijen ve hidrojen elektrodu esas alınarak deneysel çalışmalar yapılmıştır. Anot veya katot yerine oksijen elektrodu ve hidrojen elektrodu terimlerini kullanmak karışıklığın da önüne geçecektir. Elektrolizör ve yakıt hücresi modlarına göre anot ve katot bölgeleri değişmektedir.

Elektrolizör modunda, oksijen elektrodu üzerindeki katalizör tabaka ile su hidrojen ve oksijen bileşenlerine ayrıştırılırken, yakıt hücresi modunda tam tersi olan su oluşum reaksiyonu gerçekleşmektedir. Bu nedenle katalizörün iki işlevli olması gerekmektedir.

Hidrojen elektrodu katalizörü ise elektrolizör modunda hidrojen oluşum reaksiyonunu desteklerken, yakıt hücresi modunda ise hidrojen molekülünü ayırma reaksiyonunun gerçekleşmesini sağlamaktadır.

Sabit elektrotlara sahip BRYH’lerde gaz halindeki hidrojen ve oksijen kendi ortamlarında sınırlı kaldığından yönetilmesi kolaydır. Oksijen elektrodu tarafında gaz difüzyon elektrodu olarak karbon esaslı malzeme yerine gözenekli titanyum kullanılarak korozyonun önüne geçilmelidir.

Şekil 2.5 B’de ise hücre çalışma modu değiştirildiğinde oksijen ve hidrojen ile temas halindeki elektrotlar değişmektedir. Hem elektrolizör hem yakıt hücresi modunda elektrotlardan biri anot iken diğeri katot olmaktadır. İki mod için de oksidasyon ve indirgenme reaksiyonları aynı elektrotta olmaktadır. Bu tür BRYH’ler için uygun katalizör bulunması ve elektrot üretimi daha kolaydır.



Şekil 2.5. BRYH çalışma modları

Bu tür BRYH'lerde oksijen ve hidrojen elektrodu iki mod için değiştiğinden, membranın her iki tarafında da oksijen ve hidrojen karışmaktadır. Bu da hücre performansını düşürürken hidrojen ve oksijen karışımı yanma limitlerini aştığında güvenlik sorununa sebep olmaktadır. Bu olayı önlemek için elektrolizör ve yakıt hücresi modları arasında geçişlerde elektrotlar azot gibi soy gazlar ile tahliye edilmelidir. Ayrıca elektrolizör ve yakıt hücresi modunda her iki elektrot üzerindeki katmanlar ve gaz difüzyon tabakalarında korozyona karşı dayanıklı malzemeler tercih edilmelidir.

#### 2.4 BRYH'nin Elektrolizör Çalışma Modu

Elektrolizör çalışma modunda güç kaynağının pozitif ucunun bağlı olduğu oksijen elektrodundan deiyonize su verilmektedir. Suyun burada oksijen, hidrojen iyonu (proton) ve elektronları ayrışır. Protonlar membran üzerinden hidrojen elektroduna geçerken, elektronlar da dış devre üzerinden hidrojen elektroduna ulaşarak protonlar hidrojene indirgenmektedir.

Elektrolizör modunda meydana gelen reaksiyonların gerçekleşmesi için hücreye verilmesi gereken teorik enerji miktarı aşağıdaki eşitlikte verilmiştir.

$$\Delta H = \Delta G + T\Delta S \quad (2.8)$$

Burada  $\Delta H$  ; reaksiyonun entalpi değişimini,  $\Delta G$  ; Gibbs serbest enerji değişimini,  $T$  ; mutlak sıcaklığı ve  $\Delta S$  ; entropi değişimini ifade etmektedir.  $\Delta G$  , suyun elektrolizi için elektrik formunda sağlanması gereken enerjiye karşılık gelmektedir.

Standart şartlar altında, hidrojenin üst ısıl değeri 285,8 kJ/mol 2.9 nolu denklemde yerine konulduğunda Gibbs serbest enerji değişimi 237,2 kJ/mol olarak hesaplanmaktadır. Bu değer teorik olarak hidrojenin üst ısıl değerinin yaklaşık %83'üne karşılık gelmektedir. Kalan kısım ise ısı veya elektrik ile sağlanabilmektedir. Pratikte ise teorik olarak minimum enerji ve kayıplardan meydana gelen enerji ihtiyacının tamamı elektrik enerjisinden karşılanmaktadır.

Gibbs serbest enerji değişimi ve reaksiyon entalpisi kullanılarak iki farklı hücre voltajı hesaplanabilmektedir. Bunlardan birincisi tersinir hücre voltajı olarak adlandırılmakta olup  $E_0$  olarak gösterilmekte ve aşağıdaki eşitlik kullanılarak hesaplanabilmektedir.

$$E_0 = \frac{\Delta G}{2F} \quad (2.9)$$

Standart şartlarda bu değer 1,23 V'a eşit olup elektroliz reaksiyonunun gerçekleşmesi için gerekli minimum elektrik potansiyelini ifade etmektedir.

Reaksiyon entalpisinden hesaplanan voltaja, termonötral hücre potansiyeli adı verilmekte ve  $E_m$  ile gösterilmektedir.

$$E_m = \frac{\Delta H}{2F} \quad (2.10)$$

Termonötral ve tersinir hücre voltajları standart 1 bar basınç için sıcaklığın fonksiyonu olarak şu şekilde yazılabilmektedir;

$$\frac{\Delta H}{2F} = \frac{\Delta G}{2F} + \frac{T\Delta S}{2F} \quad (2.11)$$

Elektrolizör modunda hücreden akım çekebilmek için tersinir voltaj olan  $E_0$  'dan büyük olması gerekmektedir. Suyun elektrolizi için gereken hücre potansiyeli; tersinir hücre voltajı, hidrojen aşırı potansiyeli, oksijen aşırı potansiyeli ve elektrik dirençlerinden oluşan dört terimin toplamına eşittir.

$$E = E_0 + \eta_H + \eta_O + \eta_{ohm} \quad (2.12)$$

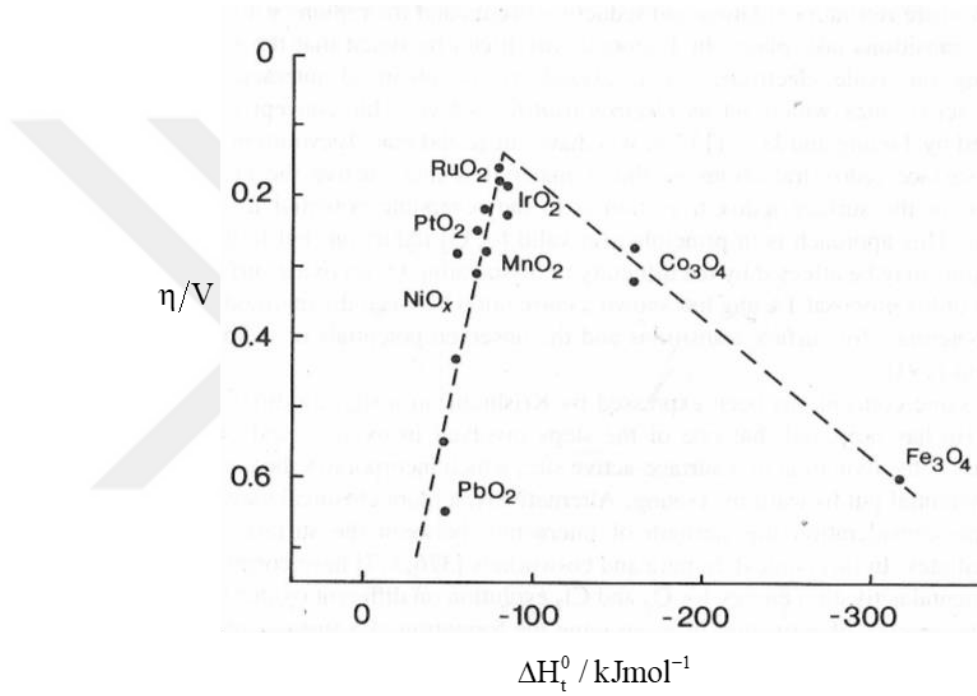
Bir PEM elektrolizörün anot ve katot katalizör tabakalarında sırası ile oksijen oluşumu reaksiyonu (OER) ve hidrojen oluşumu reaksiyonu (HER) olmak üzere iki farklı elektrokimyasal reaksiyon mekanizması işlemektedir.

#### **2.4.1 Oksijen Oluşumu Reaksiyonları (OER)**

Oksijen oluşumu için gerekli potansiyel altında metaller ince oksit tabaka ile kaplanmaktadır. Metal-Oksijen (M-O) bağı her zaman için Oksijen-Oksijen (O-O) arasındaki bağ enerjisinden daha güçlü olduğundan OER reaksiyonu her zaman oksit yüzeylerde meydana gelmektedir (Rasten, 2001). Oksijen oluşumu reaksiyonu aynı zamanda metal ve oksijen bileşikleri arasındaki bağın kopması ve oluşmasını da içermektedir (Trasatti, 1984). Bu nedenle elektrokatalitik reaksiyon sırasında bazı ara bileşikler ve malzeme kompozisyonlarında değişiklikler meydana gelmektedir. Söz konusu malzeme değişimi ve farklı malzemelerin reaksiyonları Şekil 2.6'da verilen Volkan grafiği ile anlaşılmaktadır. Burada  $0,1 \text{ mA/cm}^2$ 'de farklı metal oksitler üzerindeki alt oksidasyon seviyesinden üst oksidasyon seviyesine geçiş için gerekli entalpi-aşırıgerilim ilişkisi verilmiştir.

Volkan grafiğinde de görüldüğü gibi Ru ve Ir oksitler OER için en aktif katalizörlerdir. Bir malzemenin alt ve üst oksidasyon seviyeleri arası geçişin kolaylığı OER için katalitik

aktiviteyi belirlemektedir. Volkan grafiğinde x eksenini, elektrokatalitik aktif oksitini, alt oksidasyon durumundan üst oksidasyon durumuna geçişi için gerekli entalpiyi ( $\Delta H_t^\circ$ ) göstermektedir (Trasatti, 1984). Volkan grafiğinde  $\Delta H_t^\circ$ 'nin orta değerlerine sahip malzemeler en iyi aktivasyonu gösterirken,  $\Delta H_t^\circ$ 'si yüksek olan malzemeler çok kolay oksitlenmekte ve ortamdaki malzemeler ile çok güçlü bağ yapmaktadırlar. Benzer şekilde,  $\Delta H_t^\circ$ 'si düşük olan malzemelerin oksitlenmesi ( $\text{TiO}_2$  ve  $\text{PbO}_2$  gibi) neredeyse imkânsızdır. Dolayısıyla ortamdaki malzemelerle bağ yapma ihtimalleri çok zayıf olmaktadır.



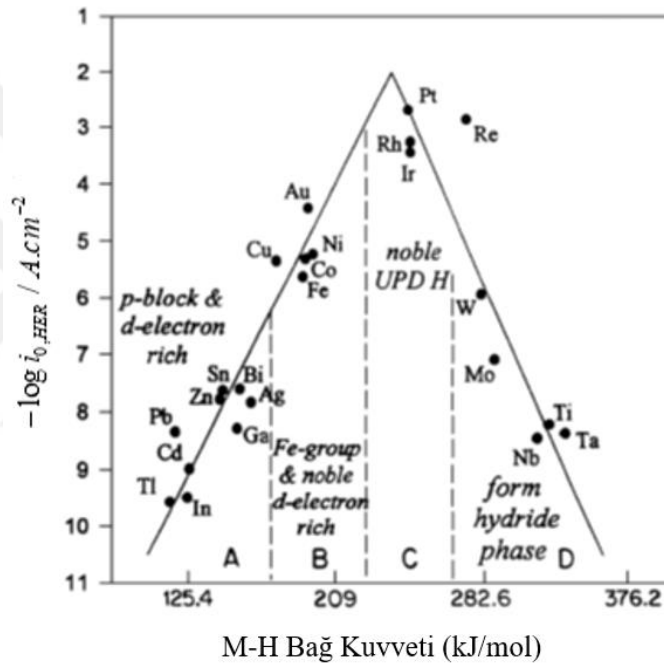
Şekil 2.6. Volkan grafiği (Trasatti, 1984)

#### 2.4.2 Hidrojen Oluşumu Reaksiyonları (HER)

Hidrojen elektrodunun standart potansiyeli sıfır olarak kabul edilmekte ve diğer potansiyeller buna göre ölçülmektedir. Farklı metallerin hidrojen oluşumu reaksiyonu için aktivitesi, Volkan grafiğinde görülebilmektedir (Şekil 2.7). Metale kimyasal olarak tutunmuş hidrojen atomunun bağ enerjisi Volkan grafiğindeki  $\log(i_0)$ , ile ilişkilidir. Volkan grafiğinden de görülebileceği gibi HER için en aktif metaller, bağ enerjisi orta değerlerde olan, yani M-H bağ kuvveti ne çok kuvvetli ne de çok zayıf olan soy

metallerdir. Soy metaller ayrıca asidik ortamda korozyona karşı dirençleri ile ayrıca avantaj oluşturmaktadırlar.

Volkan grafiğinin her iki yanındaki metalleri birleştirerek orta düzey bağ enerjili katalizör geliştirme çalışmaları devam etmektedir. Fakat başarıya ulaşan metallerin sayısı çok azdır. Brewer-Engel teorisine benzer şekilde platinin elektron konfigürasyonu, Volkan grafiğinin sağ ve soldaki metalleri birleştirerek taklit edilebilmektedir (Trasatti, 1990). Bu birleştirme işlemi dış kabuğunda beşten az d-elektronu olan metal ile dış kabuğunda beşten fazla d-elektronu bulunan metallerle yapılmaktadır.



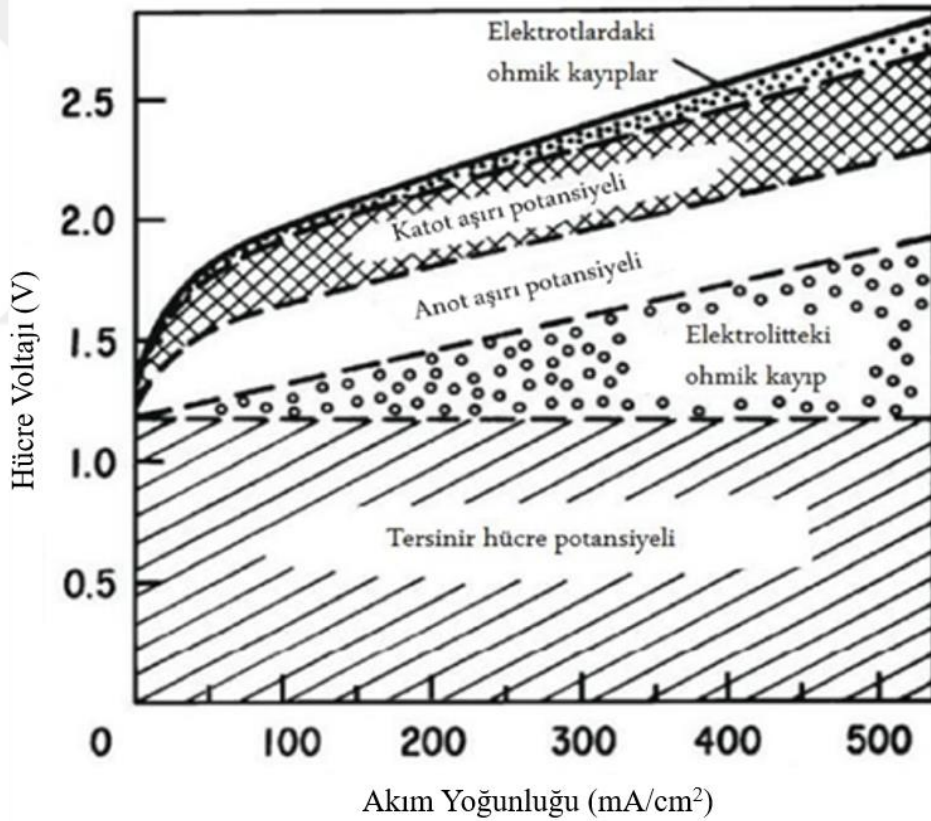
Şekil 2.7. Farklı metaller üzerinde HER'in Volkan grafiği (Trasatti, 1972)

PEM elektrolizörlerdeki membranın asidik olması nedeniyle malzeme seçiminde genelde Pt, Pd, RuO<sub>2</sub> ve IrO<sub>2</sub> gibi soy metal oksitleri tercih edilmektedir (Trasatti, 1990). Platin hidrojen oluşumu reaksiyonu için bilinen en aktif katalizördür. Yakıt hücrelerinde de hidrojen oksidasyonu ve oksijen indirgemesi için yaygın olarak kullanılmaktadır. Ticari olarak bulunabilecek bu katalizörlerin yüzey alanı mümkün olduğunca geniş tutularak gerekli katalizör miktarı en aza indirilmektedir.

PEM elektrolizör hücresine uygulanan voltaj ve meydana gelen kayıplar şu şekildedir;

$$V_{hücre} = E_{tersinir} - \eta_{a,a} - |\eta_{k,a}| - \eta_e - \eta_k \quad (2.13)$$

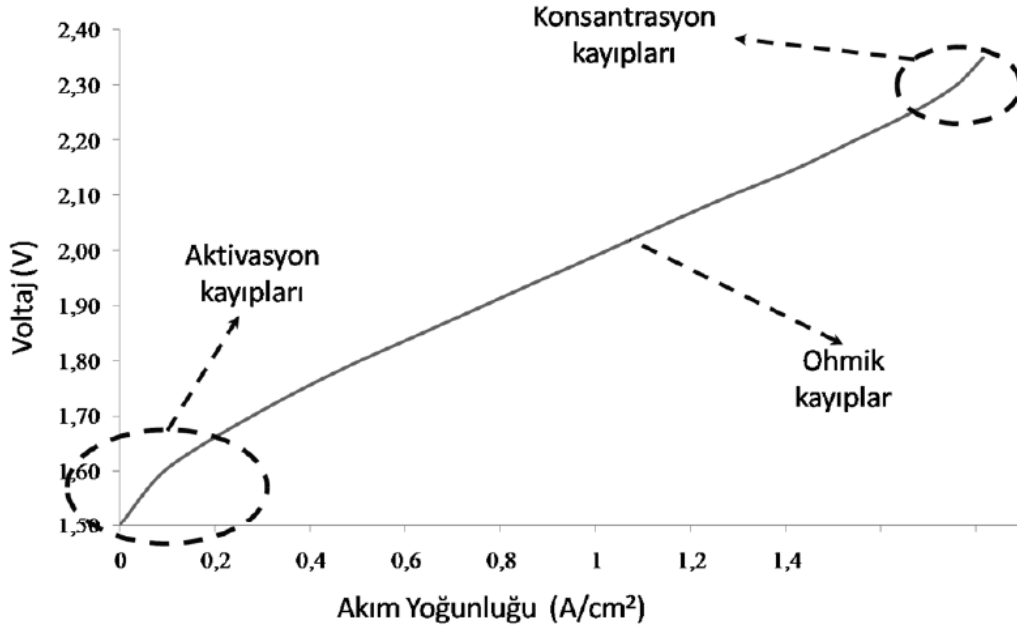
Burada geçen,  $E_{tersinir}$ ; suyun elektrolizi için uygulanması gereken minimum voltaj,  $\eta_{a,a}$ ; anot aktivasyon potansiyeli,  $\eta_{k,a}$ ; katot aktivasyon potansiyeli,  $\eta_e$ ; elektrot,  $\eta_k$ ; elektrolit ve diğer hücre elemanlarında oluşan ohmik kayıplar ile konsantrasyon kayıplarını temsil etmektedir. Bu kayıplar aynı zamanda Şekil 2.8’de verilmiştir. Grafikten de görüldüğü üzere hücre üzerinden geçen akım yoğunluğunun artması ile anot ve katot aşırı potansiyelleri ile ohmik kayıplar da artmaktadır.



**Şekil 2.8.** PEM elektrolizör hücresinde meydana gelen voltaj kayıpları (Trasatti, 1990)

PEM elektrolizör hücresinde meydana gelen tersinmezliklerden dolayı 1,48 V'tan düşük potansiyel uygulandığında hücreden akım çekilememekte dolayısı ile elektrokimyasal reaksiyonlar başlayamamaktadır. Reaksiyon başladığında ise aktivasyon, ohmik ve konsantrasyon kayıpları olmaktadır. Voltaj-akım yoğunluğu grafiğinde bu kayıpların

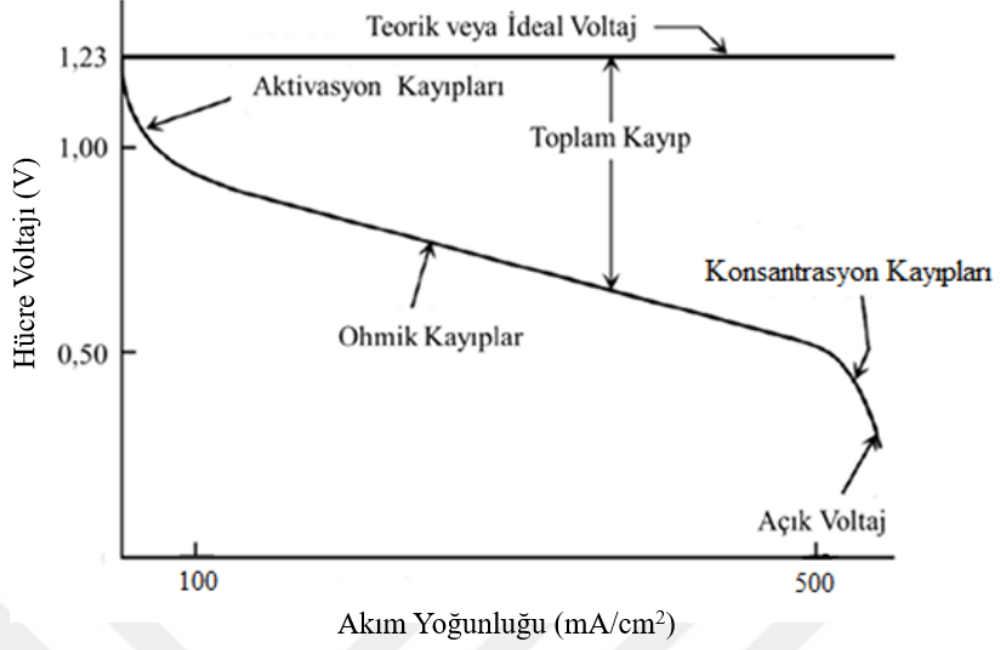
olduğu bölgeler Şekil 2.9’da verilmiştir. Düşük akım yoğunluklarında anot ve katot elektrotlarda aktivasyon kayıpları etkili olmaktadır. Bu kayıplar, hücre dizaynı ve iyi bir montaj ile minimize edilebilir. Voltaj arttıkça iyonik iletkenliğin önemli rol oynadığı membrandaki ohmik kayıplar da artmaktadır. Konsantrasyon kayıpları ise çok yüksek akım yoğunluklarında, katalizör tabakasına yeterince suyun ulaşamadığı durumlarda ortaya çıkmaktadır. Düşük akım yoğunluklarında görülmemektedir.



Şekil 2.9. PEM elektrolizörde voltaj-akım yoğunluğu eğrisinde meydana gelen kayıplar

## 2.5 BR-PEMYH'nin Yakıt Hücresi Çalışma Modu

PEM yakıt hücrelerinde hidrojen molekülünün atomlarına ayrışması platin katalizörler ile kolaylaştırılabilir de oksijen molekülünün atomlarına ayrıştırılması daha zordur. Bu olay da voltaj kayıplarına yol açmaktadır. PEM yakıt hücrelerinde Gibbs yasasına göre maksimum teorik verim oda sıcaklığında %83 olup pratikte %40-60 arasındadır (Zhang, 2013). Verime neden olan başlıca kayıplar aktivasyon, direnç ve kütle transferi kayıplarıdır.



Şekil 2.10. PEM yakıt hücresi polarizasyon eğrisi

PEM yakıt hücresi voltajı ve meydana gelen kayıplar şu şekildedir;

$$V_{hücre} = E_{Nerst} - \eta_{aktivasyon} - \eta_{ohmik} - \eta_{konsantrasyon} \quad (2.14)$$

Standart koşullar altında teorik PEM yakıt hücresi voltajı 1,23 V'tur. Ancak gerçek hücre voltaj değeri teorik yakıt hücresi voltajından daha düşük olup açık devre voltajı (OCV) olarak tanımlanmaktadır. Pratikte bu değer 1 V'un altındadır. Yüksek voltaj gereken durumlarda hücreler birbirlerine seri bağlanarak istenilen voltaj değeri sağlanabilmektedir.

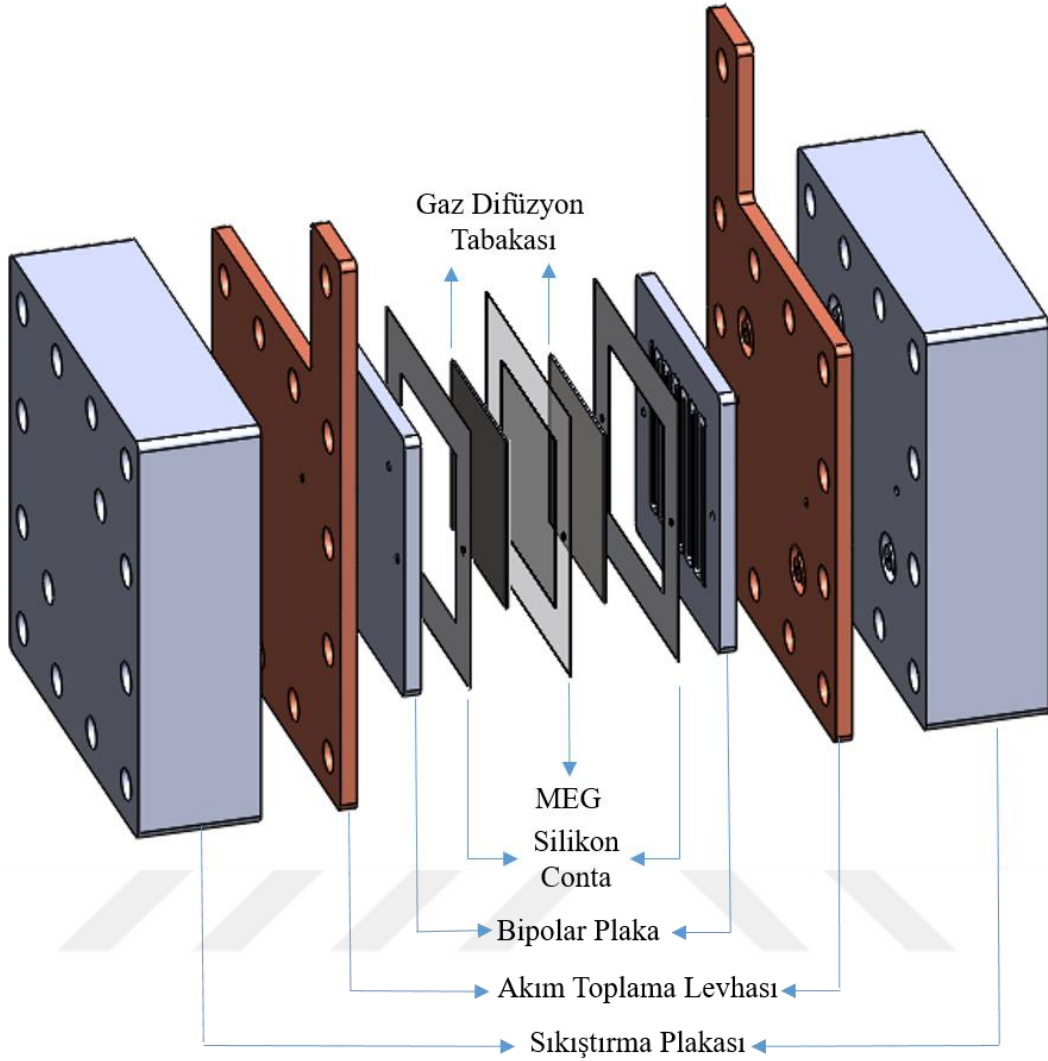
Şekil 2.10'da verilen polarizasyon eğrisine göre PEM yakıt hücrelerinde aktivasyon, ohmik ve konsantrasyon kayıpları meydana gelmektedir. Aktivasyon kayıpları, reaksiyonu başlatmak için gerekli enerjiden kaynaklı kayıplardır. Düşük akım yoğunluklarında görülür. Her iki elektrotta görülmesine rağmen katot reaksiyonu anot reaksiyonuna göre daha yavaştır. Kayıpları en aza indirmek için iyi bir katalizör kullanılması gerekmektedir. Bu nedenle yaygın olarak platin kullanılmaktadır. Hücre sıcaklığının, çalışma basıncının ve reaktantların derişiminin artırılması, aktivasyon enerjisinin neden olduğu kayıpları azaltmaktadır.

Ohmik kayıplar ise, hücre bileşenlerinin toplam elektriksel direncinden kaynaklanmaktadır. Elektronların, bipolar plakaların ve akım toplayıcı plakaların elektriksel direnci elektronların transferinde doğrudan etkili olduğundan kayıplara neden olurlar. Polimer elektrolit membranın proton iletim direnci de kritik bir parametredir. Membrandan kaynaklı voltaj kayıpları, membran kalınlığı, proton iletkenliği ve hücre çalışma sıcaklığından etkilenmektedir. Ohmik kayıpların etkisi polarizasyon eğrisinde orta akım yoğunluklarında gözlemlenmektedir.

Konsantrasyon kayıpları ise, hidrojen ve oksijen gazlarının elektrot yüzeyine yeterli hızda ulaşamamasından veya reaksiyon sonucu oluşan suyun yeterli hızda uzaklaştırılmamasından kaynaklanan kayıplardır. Konsantrasyon kayıplarının en aza indirilmesi için katalizör destek malzemesinin reaktant ve ürün difüzyonunu kolaylaştıracak bir gözeneklilik yapısında olması gerekir. Konsantrasyon kayıplarının etkisi polarizasyon eğrisinde genellikle yüksek akım yoğunluğu değerlerinde gözlenir.

## **2.6 Birleştirilmiş Rejeneratif PEM Yakıt Hücresi Bileşenleri**

BR-PEMYH temel elemanları Şekil 2.11’de görülmektedir. Hücrede dıştan içe doğru, sıkıştırma plakaları, akım toplama plakaları, bipolar plakalar, sızdırmazlık elemanları, gaz difüzyon tabakası ve MEG bulunmaktadır. Genel olarak, oksijen elektrodu tarafında gaz difüzyon tabakası olarak gözenekli titanyum kullanılırken, hidrojen elektrodu tarafında ise karbon kâğıt kullanılmaktadır. Bu tez çalışmasında, sızdırmazlık elemanı kalınlık seçiminde kullanılan gaz difüzyon tabakaların kalınlıkları dikkate alınarak oksijen ve hidrojen elektrodu tarafında farklı kalınlıklarda silikon conta kullanılmıştır.

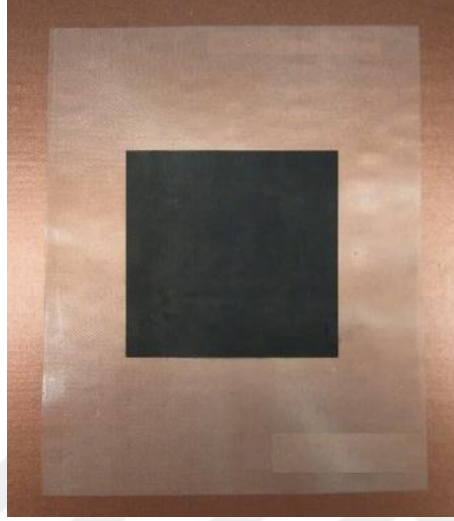


Şekil 2.11. Birleştirilmiş Rejeneratif PEM yakıt hücresi bileşenleri

### 2.6.1 Membran Elektrot Grubu (MEG)

Membran elektrot grubu, rejeneratif PEM yakıt hücrelerinde performansı etkileyen en önemli elemanlardan birisidir. Reaksiyonların gerçekleştiği katalizör tabakalar ve iyonik iletkenliği sağlayan polimerik membrandan oluşmaktadır. Bu tez çalışmasında, hem elektrolizör hem de yakıt hücresi uygulamaları için kullanılabilen tersinir katalizör kaplı membran kullanılmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan MEG'in anot katalizör kısmı platin ve iridyum rutenyum oksitten oluşurken katot katalizör kısmında platin siyahı kullanılmaktadır. MEG grubunda kullanılan Nafion™ seçilirken, beklenen diferansiyel basınç, membran destek türü ve çalışma ömrü gibi etkenler dikkate alınmalıdır. Kullanılan MEG grubunda 127 µm kalınlığında Nafion™ 115 kullanılmıştır. Yüksek

verimlilik için yeterince ince olan Nafion™ 115 anot ve katot arası çapraz geçişleri azaltacak kadar kalındır. Uzun vadede stabil davranabilmektedir. Fotoğraf 2.1’de görülen 2,2 cm x 2,2 cm aktif alana sahip MEG, *Versa Laser* kesim cihazı ile uygun ölçülerde kesilerek montaja hazırlanmıştır.



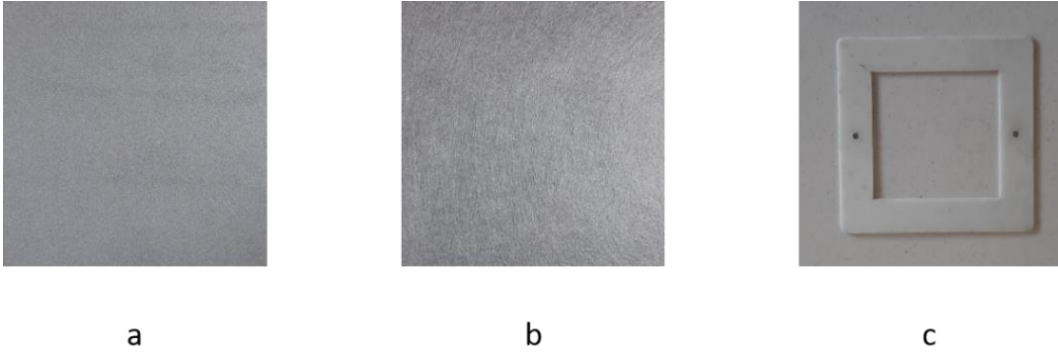
**Fotoğraf 2.1.** Tersinir membran elektrot grubu

Ticari tersinir MEG’ler, hazırlanan TÜBİTAK projesi için ön çalışmalar kapsamında Aksaray Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü Laboratuvarlarında geliştirilen katalizör çözeltisi ile modifiye edilerek çalışmalar çerçevesinde de performans testleri yapılmıştır.

### **2.6.2 Gaz Difüzyon Tabakası ve Sızdırmazlık Elemanları**

Difüzyon tabakası, reaktantların katalizör tabakaya ulaşmasını sağlarken aynı zamanda açığa çıkan ürünlerinde katalizör tabakasından uzaklaştırılmasını sağlamaktadır. Kullanılan gaz difüzyon tabakalarının seçiminde hem elektrolizör hem yakıt hücresi modunda zarar görmeden çalışabilmesi göz önünde bulundurulmuştur. Anot tarafında korozyona dayanıklı yaklaşık %53 gözenekli titanyum, katot tarafında ise %78 gözenekliliğe sahip TGP-H-120 karbon kâğıt kullanılmıştır. Gözenekli titanyum 0,24 mm kalınlığında, karbon kâğıt ise 0,33 mm kalınlığındadır. Bu ölçüler conta seçiminde göz önünde bulundurulmuş olup anot tarafına 0,25 mm kalınlığında, katot tarafına ise 0,35

mm kalınlığında silikon contalar kullanılmıřtır. Kullanılan malzemeler Fotoğraf 2.2’de gösterilmiřtir.



**Fotoğraf 2.2.** Gözenekli titanyum (a), Karbon kâğıt (b), Silikon conta (c)

### 2.6.3 Bipolar Plakalar

Tek bir hücreden elde edilebilecek voltaj, hücrede meydana gelen elektrokimyasal reaksiyonlara bağılı olup yakıt hücresi modunda 1 V’un altında, elektrolizör modunda ise 2 V’un altındadır. Bu nedenle daha yüksek voltajlar elde edilebilmesi için hücrelerin seri bağlanması gerekmektedir. Seri bağlamanın en kolay yolu, bir hücrenin anodunu diğeri hücrenin katoduna bağlamaktır. Birden fazla hücre arasında bağlantı yapabilmek için geliştirilen en iyi bağlantı aracı bipolar plakalardır. Bipolar levha, bir hücrenin tüm katot yüzeyi ile diğeri hücrenin tüm anot yüzeyini birleřtirmektedir. Bipolar tabaka iyi bir seri bağlama aracı olmakla beraber aynı zamanda yakıt hücresi modunda katoda oksijen ve anoda yakıt, elektrolizör modunda ise anotta su ve oksijen, katotta hidrojen sağılayan kanalları da bulundurmaktadır. Su, hidrojen ve oksijenin birbirine karışmaması için çok iyi dizayn yapılması gerekmektedir. Bipolar tabaka ile sadece bir kenar yerine tüm yüzeylerden elektrik toplamak mümkün olmaktadır. Bipolar tabakanın görevlerini;

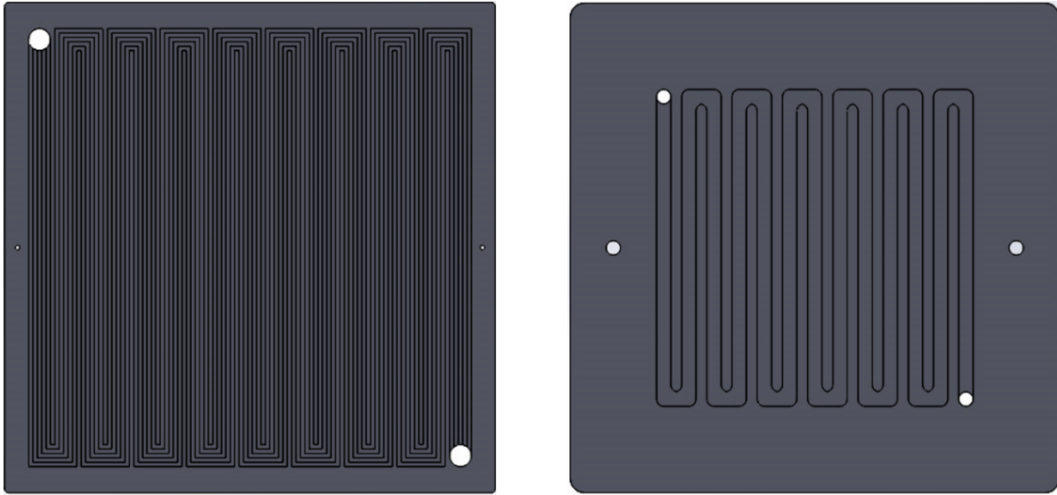
1. akışkanların aktif alana uniform bir şekilde dağılmasını sağılamak,
2. aktif alanlardan ısının atılması,
3. hücreden hücreye akımın iletilmesi,
4. akışkan sızıntısının önlenmesi,
5. MEG’i mekanik olarak desteklemesi

şeklinde özetlemek mümkündür.

Bipolar plakaların malzeme seçiminde, malzemenin korozyona dayanıklılığı, elektronik iletkenliği, gaz difüzyon/geçirgenliği, işlenebilirliği, yoğunluğu ve ısıl iletkenliği dikkat edilmesi gereken önemli parametrelerdir.

Bipolar plaka malzemesi olarak, elektro-grafit, karbon-karbon komposit, metal levha, grafit-polimer kompozitler kullanılmaktadır. Yüksek saflıktaki elektro-grafit prototip plakalar için ideal malzemelerdir. Fakat bu malzemelerin çok pahalı olması, kullanımını kısıtlamaktadır.

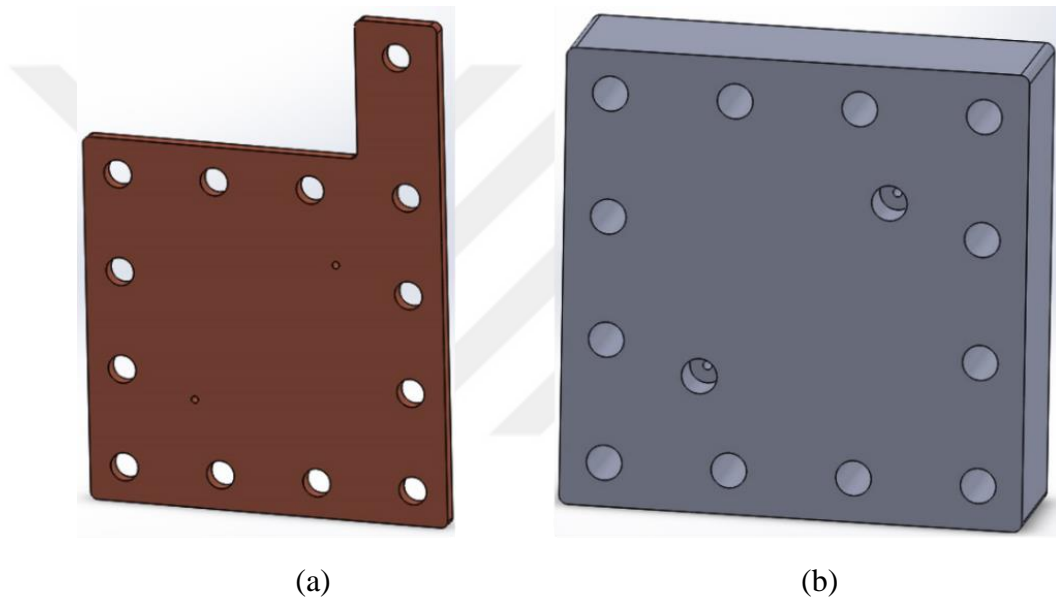
Elektroliz modunda hücreye verilen deiyonize su ve işlem sonrası açığa çıkan oksijen, korozyona karşı elverişli ortam oluşturmaktadır. Bu nedenle akış alanı malzeme seçimi yapılırken, korozyona karşı dayanıklı, elektriksel iletkenliği yüksek olması göz önünde bulundurulmuş ve paslanmaz çelik plaka kullanılmıştır. Daha önceki yapılan çalışmalar incelendiğinde, rejeneratif PEM yakıt hücrelerinde en yaygın kullanılan ve performansı yüksek akış kanalı dizaynının, paralel serpantin olduğu görülmektedir (Y. Wang vd., 2016). Deneysel çalışmalarda kullanılan bipolar plaka tasarımları Şekil 2.12’de verilmiştir. Küçük hücrede tekli serpantin tercih edilirken büyük hücrede 3 kanallı çoklu serpantin kullanılmıştır.



**Şekil 2.12.** Bipolar plaka akış kanalları tasarımları

#### 2.6.4 Akım Toplama Levhası ve Sıkıştırma Plakası

Akım toplama levhası, elektriksel iletkenliğinin yüksek ve düşük maliyetli olması nedeniyle bakır malzeme, sıkıştırma plakası ise paslanmaz çelik kullanılarak imal ettirilmiştir. Sıkıştırma plakaları hücre elemanlarını bir arada tutmak için uygulanan torku homojen bir şekilde dağıtmaktadır. Ayrıca hücreye reaktantların girişini ve reaksiyonlar sonucu açığa çıkan ürünlerin çıkışlarını sağlayan manifold delikleri de sıkıştırma plakası üzerinde bulunmaktadır. Her iki sıkıştırma plakasında da ikişer adet manifold deliği bulunmaktadır.



Şekil 2.13. Akım toplama levhası (a), Sıkıştırma plakası (b)

## 2.7 Literatür Özeti

Rejeneratif yakıt hücrelerine yönelik çalışma ve uygulamalar dünya teknoloji çevrelerinde büyük bir hızla devam etmektedir. Konu büyük bir gelecek vaat etmesine rağmen beş ana teknolojik problemin iyileştirilmesi ve çözülmesi gerekmektedir. Bu problemler;

1. yüksek maliyetin ana etkeni olan platinin ve rutenyumun azaltılması
2. daha verimli çalışan ve daha ucuz membranların geliştirilmesi
3. anot bölgesindeki iki fazlı akışın kontrolü
4. anottan katoda su geçişi
5. yüksek aktivasyon polarizasyon kayıplarıdır.

MEG'ler yakıt hücresinin en önemli bölgesidir. Bu bölge üzerinde gerek dizayn gerekse malzeme yönünden yapılan gelişmeler genel olarak sistem performansını etkileyen etkili faktördür. Yakıt hücresi modunda çalışırken membranlardaki sıcaklık, iyonik iletkenlik, kalınlık, nemlilik gibi faktörler üzerlerine yoğun araştırmalar devam etmektedir. İyonik iletkenlik için nemlilik gerekirken, fazla nem durumunda oluşan su, kanalları kapatmakta ve hücre tıkanmasına neden olmaktadır. Membran kanallarının açık veya dar oluşları, genel anlamıyla membran morfolojisi ve kimyası, araştırmaların yapıldığı kritik bölgelerdir. Aktif reaksiyonların gerçekleştiği ve aktif bölge olarak adlandırılan yük transfer ara yüzeyi, ince bir katalizör tabakası içermektedir. Katalizör malzemesi olarak platinin kullanıldığı bu bölgede, platin miktarı maliyete etki eden en büyük unsurdur. Platin kullanımının azaltılması veya alternatif katalizör malzemelerinin geliştirilmesi konuları, yakıt hücresinde teknolojik devrimin beklendiği alanlardır.

## 2.8 RYH Tarihçesi

Rejeneratif PEM yakıt hücresi fikri ilk olarak 1960'ların başında Bone vd., 1961, tarafından ortaya atılmıştır. BRYH teknolojisi ilk olarak 1972'de ABD firması General Elektrik tarafından test edilmiş ve BRYH sistemlerinin uzay uydularında güç yönetim sistemleri olarak kullanılması için geliştirilmesine öncülük etmiştir (Mitlitsky vd., 1998; Chludzinski vd., 1973). 90'lı yıllarda tersinir hücreler üzerine araştırma ve geliştirme

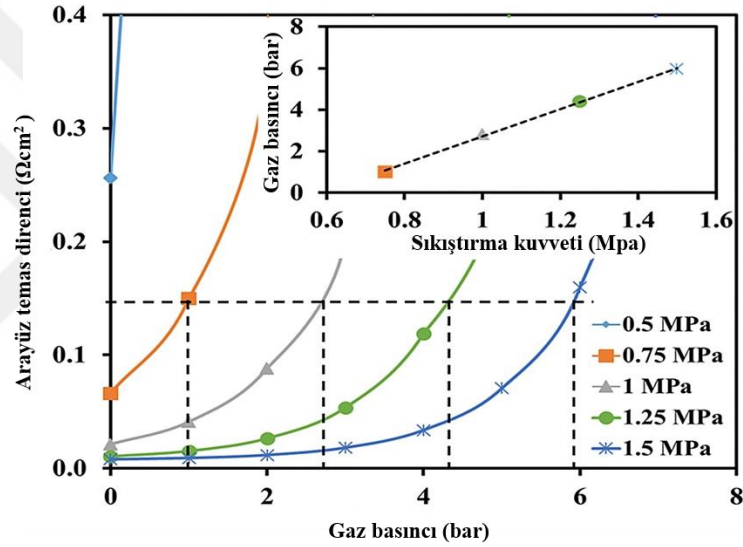
çalışmaları Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) ve Liberya'daki Aerovironment firması tarafından yapılmıştır (Hauff vd., 1992; Smith, 2000). İnsansız yüksek irtifa hava araçları için özgül güç yoğunluğu 450 Wh/kg olan tersinir bir sistem başarılı bir şekilde geliştirilmiştir. Daha sonra LLNL ve Hamilton Standard tarafından BRYH temelli arabalar üzerine çalışmalar yapılmıştır (Hauff vd., 1992). 1990'ların ikinci yarısından itibaren BRYH sistemleri küçük uydular, sıfır emisyonlu karasal araçlar ve kesintisiz güç uygulamalarında kullanılmak üzere LLNL, Proton Energy Systems Inc., United Technologies Corporation, Hamilton Standard ve diğer firmalar tarafından geliştirilmektedir. 2000'li yılların başında Proton Enerji Sistemleri (şimdiki adı Proton Onsite) tarafından BRYH sistemi ticari ürün olarak piyasaya sunulmuştur. Daha sonra Giner Inc ve Lynntech Inc gibi diğer Amerika firmaları da ticari BRYH sistemleri geliştirmeye başlamıştır. Avrupa'da, Avrupa Birliği'nin desteklediği Revcell projesi kapsamında Nedstack, Inabensa, Greencell ve diğer firmalar güneş hücresi ile çalışan BRYH sistemleri ve uzun süreli hidrojen depolama alanlarında çalışmalar yapmıştır. Ayrıca BRYH sistemleri üzerindeki araştırma ve geliştirme çalışmaları Kanada firması olan Green Volt Power (Farret vd., 2006), Amerikan şirketleri olan Lynntech Inc., Glenn Research Center (Burke vd., 2003), Giner Inc. ve bazı diğer firmalar tarafından da yapılmıştır. Fransa Toulouse Üniversitesi (Laplace Laboratory) tarafından da deneysel geliştirme çalışmaları yapılmıştır (Rabin vd., 2008).

## 2.9 Önceki Çalışmalar

Literatürde rejeneratif PEM yakıt hücreleri üzerine birçok deneysel ve teorik çalışmalar yapılmış olmasına rağmen ülkemizde bu konuda yapılan çalışmalar sınırlıdır. Gabbasa vd., 2014, performans ve elektrokimyasal davranışlara odaklanarak BRYH yığınının maliyetini azaltmak için geniş bir literatür taraması yapmıştır. Mevcut durumda da karşılaşılan yüksek membran maliyeti ve enerji verimliliği gibi alanlarda karşılaşılan sorunlara dikkat çekmişlerdir. Benzer şekilde, Wang vd., 2016, başlangıç maliyetine ve enerji verimliliğine odaklanarak hücre bileşenleri ve sistematik sorunlar üzerindeki araştırma ilerlemesini değerlendirmişlerdir.

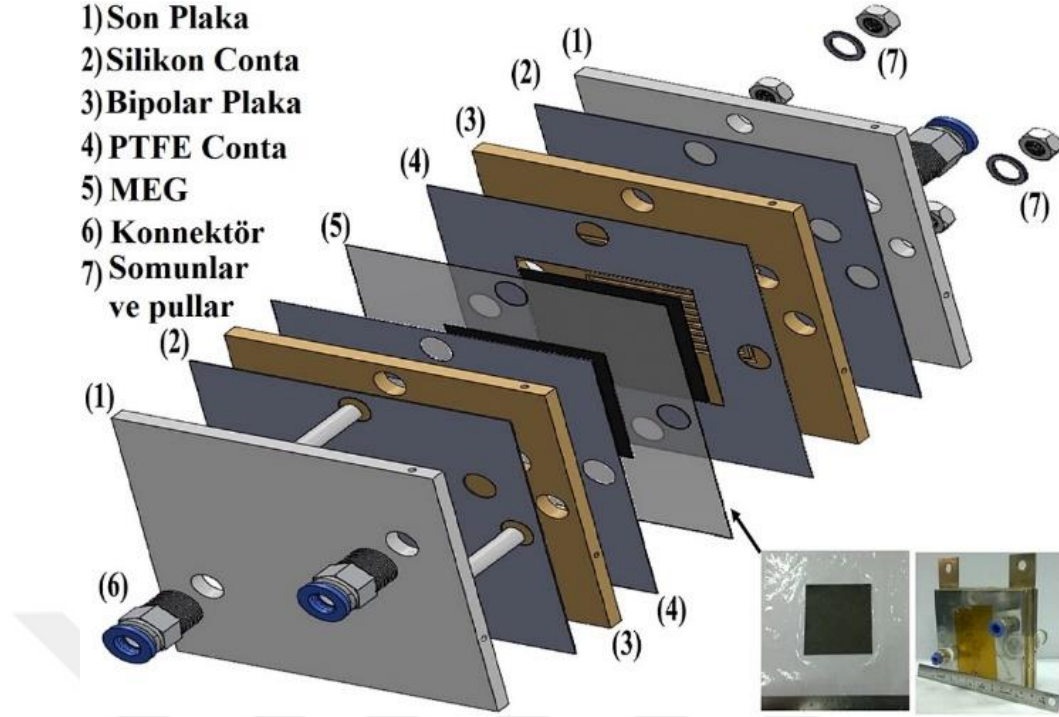
Bhosale vd., 2017, elektrolizör modunda birleştirilmiş rejeneratif yakıt hücresinin performansını modellemişler ve deneysel olarak da doğrulamışlardır. BRYH'de farklı sıkıştırma basıncı altında elektrot ve bipolar plaka arasındaki ara yüzey temas basıncı

dağılımı ve çalışma basıncının etkileri deneysel olarak incelenmiştir. Geliştirdikleri hesaplamalı akışkanlar dinamiği modeline, gaz difüzyon tabakası ve bipolar plaka arasındaki ara yüzey temas direncini de dâhil etmişlerdir. Farklı sıkıştırma basınçlarında ve çalışma basınçlarında simülasyonlar yapmışlar ve elde edilen sonuçların deneysel veriler ile uyum içerisinde olduğunu gözlemlemişlerdir. Ara yüzey temas direncini  $150 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$ 'nin altında tutmak için  $1.5 \text{ MPa}$  sıkıştırma basıncında çalışma basıncının da  $5.9 \text{ bar}$  altında tutulması gerektiğini belirtmişlerdir (Şekil 2.14). Aşırı sıkma basıncı ara yüzey temas direncini biraz daha düşürebilmekte fakat gaz difüzyon tabakasına ve membrana ciddi şekilde zarar verebilmektedir. Ayrıca kütle transferi kayıplarını da arttırabilmektedir (Bhosale vd., 2017; Zhou vd., 2007).



**Şekil 2.14.** Ara yüzey temas direncinin farklı sıkıştırma basıncında çalışma basıncına göre etkisi ve  $150 \text{ m}\Omega \text{ cm}^2$  eşik değeri için çeşitli sıkıştırma basıncında çalışma basınçları (Bhosale vd., 2017)

Bhosale vd., 2017, yaptıkları çalışmalarda  $22,5 \text{ cm}^2$ 'lik aktif alana sahip BRYH kullanmışlardır. Kullandıkları hücre tasarımı Şekil 2.15'te verilmiştir. Serpantin akış alanına sahip bipolar plakalarda, titanyum üzerine azot kaplanmış malzeme kullanmışlardır.



Şekil 2.15. BRYH bileşenleri (Bhosale vd., 2017)

Sadhasivam vd., 2017, yaptıkları çalışmada BRYH sistemlerinde kullanılan malzemelerin ve bileşenlerin sınırlamalarını, zorluklarını ve bu hücrelerin gelişmeleri hakkında yapılan çalışmaları kapsamlı bir şekilde rapor etmişlerdir. BRYH sisteminin her bir bileşeni ile ilgili zorluklar ve sınırlamaları;

- i. *Elektrokatalizörler:* Platin elektrokatalizörün yüksek maliyeti, destek malzemelerin karbon korozyonu, elektrokatalizörlerin agregasyonu ve göçü,
- ii. *Nafyon bağlayıcı:* Nafyon bağlayıcı çözücülerin çözünmesi veya çözünürlüğü ve bağlayıcının çatlaması,
- iii. *Polimer elektrolit membran:* Boyutsal değişiklik ve düşük proton iletkenliği,
- iv. *Gaz difüzyon tabakası ve bipolar plakalar:* Yüksek karbon korozyonu, başlıklarıyla özetlemiştir.

BRYH uygulamaları için Pt, PtIr, Pt<sub>3</sub>Ir, PtIrO<sub>2</sub> ve RuO<sub>2</sub>-IrO<sub>2</sub>/Pt gibi elektrokatalizör malzemelerin kullanımı incelenmiştir (H.Y. Jung vd., 2009a; Kong, Zhang, Yin, Zhang, vd., 2012b; Roca-Ayats vd., 2014; Y. Zhang vd., 2007). Pt elektrokatalizörü oksijen indirgenme reaksiyonu için olağanüstü elektrokimyasal performans gösterirken, oksijen oluşumu reaksiyonu için daha düşük elektrokatalitik performans göstermektedir (Kong, Zhang, Yin, Zhang, vd., 2012a). Suyun ayrıştırılma işleminde, oksijen oluşumu

reaksiyonunun performansını iyileştirmek için farklı metal, metal oksit ve kompozit/alaşımlar elektrokatalizör olarak kullanılmıştır. Özellikle RuO<sub>2</sub> ve IrO<sub>2</sub> elektrolizör modunda performansı arttırmak için kullanılmaktadır (Di Blasi vd., 2009; Gutsche vd., 2016; Jeevagan vd., 2014). Kompozit Pt/gözenekli IrO<sub>2</sub>'nin elektriksel iletkenliği ve BRYH performansı, geleneksel Pt ve Pt/ticari IrO<sub>2</sub> elektrokatalizörlerinden daha yüksektir. IrO<sub>2</sub> katalizörüne kıyasla, RuO<sub>2</sub> düşük potansiyel ve düşük maliyet bakımından oksijen oluşumu reaksiyonu için etkin bir aday olarak düşünülebilmektedir. Bununla birlikte RuO<sub>2</sub>'nin stabilitesi, yüksek anodik potansiyelde uzun süreli çalışmasında minimuma indirilmiş ve rutenyumun oksidasyon durumunu arttırmıştır. Sınırlamaları aşmak için BRYH sistemlerinde oksijen oluşumu reaksiyonu performansını arttırmak için IrO<sub>2</sub> ve RuO<sub>2</sub>'nin karışık halde kullanılabilir (Audichon vd., 2014). Temel olarak metal ve metal oksitler, sırasıyla oksijen indirgenme ve oksijen oluşumu reaksiyonlarını geliştirmek için etkili katalizördür.

Pt elektrokatalizörü, yakıt hücresi teknolojisinde oksijen indirgenme ve hidrojen oksidasyonu için önde gelen malzemelerden olsa da yüksek maliyet ve az bulunması ile pratik uygulamalar için uygulanabilir bir elektrokatalizör materyal olarak kabul edilememektedir (Qu vd., 2010; Vesborg ve Jaramillo, 2012; Zhao vd., 2015). Elektrokimyasal performansı arttırmak için birçok metal ve metal oksit Pt ile birleştirilmektedir. PtIr (Yim vd., 2005), Pt/IrO<sub>2</sub> (Cruz, Rivas, vd., 2012), Pt/Gözenekli-IrO<sub>2</sub> (Kong, Zhang, Yin, Zhang, vd., 2012a), RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>/Pt (Y. Zhang vd., 2007) gibi farklı katalizörler kullanılmıştır.

Paul ve Andrews (2017), özellikle son beş yılda PEM tabanlı rejeneratif yakıt hücre çalışmaları üzerinde yoğunlaşarak teknolojinin güncel durumunu gözden geçirmiş, korozyona dirençli bipolar plakalar, sistem tasarımı, üretimi ile ilgili teknik zorluklar ve gelecekte geliştirilebilecek konular üzerinde araştırma yapmışlardır.

BRYH sisteminin kalbi olarak düşünülen membran elektrot grubu geliştirmede en önemli konulardan biri, çift fonksiyonlu elektrodun performans ve stabilitesidir (H.Y. Jung vd., 2009b). Oksijen tarafında kullanılan çift fonksiyonlu katalizörler, Pt-Ir, IrO<sub>2</sub>, Ru-Ir, RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>/RuO<sub>2</sub>, Ir<sub>x</sub>(IrO<sub>2</sub>)<sub>10-x</sub>, Pt/TiO<sub>2</sub> ve Ir/TiO<sub>2</sub>'dir (Cruz, Baglio, vd., 2012; Kong, Zhang, Yin, Zhang, vd., 2012a; Sui vd., 2011; Yao vd., 2007; Yim vd., 2005; Y. Zhang vd., 2007). Son zamanlarda gümüş nano tozların elektrokatalizör olarak

kullanımı ile ilgili çalışmalar da yapılmaktadır. Araştırmalar sonucu Ru ve oksitlerinin çalışma koşullarında oksijen oluşum reaksiyonlarında yüksek katalitik aktivite göstermelerine rağmen kararsız oldukları görülmektedir (Takasu vd., 2008). Bu yüzden genel olarak Pt/IrO<sub>2</sub> mükemmel çift fazlı katalizör olarak kabul edilmektedir (Chen vd., 2001; Cruz, Baglio, vd., 2012; Kong, Zhang, Yin, Wang, vd., 2012; Y. Zhang vd., 2010).

BR-PEMYH sistemlerinde bir diğer zorluk ise elektrolizör modunda malzemelerin katalitik yüklenmesini azaltan ve stabilitesini yükselten katalizör desteğinin geliştirilmesidir. Huang vd., yaptıkları test sonucu destekli Pt-Ir/TiO<sub>2</sub> (%42) ile desteklenmeyen Pt-Ir siyahının (%30) enerji dönüşüm veriminin anlamlı derecede fazla olduğunu gözlemlemişlerdir (Huang vd., 2012).

Yakıt hücrelerinde, katalizör desteği olarak birçok malzeme çalışılmıştır. Kullanılan malzemeler arasında geleneksel nafyon, karbon kumaş ve kâğıt, grafitleştirilmiş karbon, M-TiO<sub>2</sub>, WO<sub>3</sub>, S-ZrO<sub>2</sub>, Sn-In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, WC, Ti<sub>n</sub>O<sub>2-n-1</sub>, TiC, TiCN bulunmaktadır. Ayrıca Pt ve Pd gibi katalizör nanopartiküllerin karbon tozu üzerinde nanotüpler ve nano lifler halinde plazma destekli birikimi üzerinde de çalışmalar yapılmaktadır (Chhina vd., 2007; Fedotov vd., 2013; García vd., 2013; Pai ve Tseng, 2012; Sui vd., 2011; Suzuki vd., 2007; S. Zhang vd., 2007). Ebonex oksijen oluşum reaksiyonlarında genelde, elektriksel olarak iletken seramik malzeme tabanlı Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub> ve Ti<sub>5</sub>O<sub>9</sub> kullanılmaktadır (Escalante-García vd., 2010; Vračar vd., 2006). Diğer bazı çalışmalarda, bu malzemenin oksijen oluşum reaksiyonunda destek katalizör olarak da kullanılabilceği bildirilmiştir (Escalante-García vd., 2010; Vračar vd., 2006). Ancak bu malzeme Vulcan XC-72' ye kıyasla daha düşük yüzey alanına sahiptir (Paunović vd., 2010). Sb katkılı SnO<sub>2</sub> (ATO) katalizör destek malzeme için başka bir alternatif olabilir. Ebonex ile karşılaştırıldığında düşük elektriksel direnç ve arttırılmış yüzey alanına sahiptir (Antolini ve Gonzalez, 2009). Bazı araştırma grupları tarafından 47 m<sup>2</sup>g<sup>-1</sup> yüzey alanına ve 30-40 nm partikül boyutuna sahip ticari ATO (Sigma-Aldrich) kullanılmıştır (Marshall ve Haverkamp, 2010; Wu ve Scott, 2011). Cruz vd., katalizör destek malzemesi olarak sentezlenen ATO kullanıldığında, daha iyi performans sergilediğini gözlemlemişlerdir (Cruz, Rivas, vd., 2012). Son zamanlarda, titanyum karbonitrit (TiCN) destekli Pt<sub>3</sub>Ru, Pt<sub>3</sub>Ir ve Pt<sub>3</sub>Ta olmak üzere üç farklı nanopartikül katalizörün BRYH' lerinde oksijen elektrodunda kullanıldığı çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmada, TiCN desteğinin aktif fazı stabilize ettiği ve rutenyum çözünmesini geciktirdiği görülmüştür (Roca-Ayats vd., 2016).

Gaz difüzyon tabakası BRYH sistemlerinin çalışmasında önemli rol oynamaktadır. Geleneksel PEM yakıt hücrelerinde oksijen elektrodunda gaz difüzyon tabakası olarak, yüksek oranda hidrofobize edilmiş karbon kâğıt kullanılmaktadır (Aricò vd., 2008; Park ve Popov, 2011). Genellikle gaz difüzyon desteği olarak kullanılan karbon kâğıt hidrofobik mikro gözenekli tabaka (MPL) ile kaplanmaktadır. MPL'nin temel fonksiyonu, katalizör alanının aktif bölgesinden su ayrılmasını kolaylaştırmaktır. MPL genellikle, ince karbon parçacıklar ile politetrafloretülenin (PTFE) karışımıdır (Hwang vd., 2012). Çalışmalarda MPL'nin gaz difüzyon tabakasının gözenek yapısını değiştirerek, hem su yönetimini hem de kütle transferini iyileştirdiği gözlemlenmiştir (Chun vd., 2013; Park ve Popov, 2009). MPL, düşük akım yoğunluğunda elektrodun hızlı kurummasını önlemeye ve yakıt hücresi modunda yüksek akım yoğunluklarında boğulmayı önlemeye yardımcı olmaktadır (Chun vd., 2013; Park ve Popov, 2009).

BRYH sisteminde oksijen tarafındaki korozyon ve bozulmaları önlemek için gaz difüzyon tabakası olarak, koruyucu mikro gözenekli iridyum-titanyum nitrit kaplı karbon, titanyum köpük, titanyum keçe, niyobyum katkılı TiO<sub>2</sub> kaplı karbon kâğıt ve titanyum karbür (TiC) kullanımları araştırılmıştır (Alvar vd., 2014; Chen vd., 2010; Huang vd., 2012; Hwang vd., 2011; Wittstadt vd., 2005).

Bipolar plakalar yakıt hücrelerinde, yakıt dağıtımı ve soğutulması, ısı ve su yönetimi, hücreye akım dağıtma ve toplama ve membrana mekanik destek olmak gibi birçok kritik göreve sahiptir (Y. Wang ve Northwood, 2008; Yoon vd., 2008). PEM yakıt hücrelerinde kimyasal ve termal kararlılıklarından dolayı karbon tabanlı bipolar plakalar kullanılmasına rağmen BRYH sistemlerinde elektrolizör modunda yüksek çalışma voltajına çıkıldığından korozyona sebep vermesi nedeniyle kullanılamamaktadır (Chung vd., 2009; H.Y. Jung vd., 2009; Kinumoto vd., 2010). Wittstadt, Wagner ve Jungman bipolar malzemesi olarak titanyum kullanmışlar (Wittstadt vd., 2005). Hodgson ve arkadaşları, hafif bir bipolar plaka olarak titanyum kaplanmış plaka kullanarak yüksek volumetrik ve gravimetrik güç yoğunluklarına ulaşmışlardır (Hodgson vd., 2001). Wang ve arkadaşları, titanyum levhayı altın ile kaplayarak hafif ve korozyona dayanıklı bipolar plaka geliştirmişlerdir (S.H. Wang vd., 2006). 2006 yılında yaptıkları başka bir çalışmada ise titanyum bipolar plaka üzerinde yüzey modifikasyonunun etkisini de araştırmışlardır

(S.H. Wang vd., 2006). İridyum oksit ve platin olmak üzere iki farklı yüzey modifikasyon materyali çalışmışlar ve bu iki plakanın da performansının grafit plakaya çok benzer olduğunu bulmuşlardır. Lin, Wan ve Wu, SS304 ile Ti tabanlı (Ti, Zr)N ince filmle kaplanmış metal bipolar plakalar arasında korozyon davranışını karşılaştırmışlardır. Deney sonuçları (Ti,Zr)N kaplamanın SS304' ün korozyon direncini yaklaşık 215 kat artırdığını, Ti alttaşın kaplanmamış Ti' ye göre 200 kat daha dirençli olduğunu göstermiştir (Lin vd., 2013).

BR-PEMYH'ler için çift fonksiyonlu katalizörün oksijen indirgenme ve yükseltgenme aktivitelerini iyileştirmek için Pt yüzeyine genellikle Ir, Ru, Os, Rh ve Ta gibi metaller eklenmiştir (Hunsom vd., 2018). Yim vd., 2004, Pt siyahına Ir eklenmesi ile elektrolizör modu performansını artırdığı, yakıt hücresi modu performansını ise etkilemediğini bildirmişlerdir. PtIr'deki Ir bileşimini ağırlıkça %0'dan %50'ye kadar artırdıklarında elektrolizör modu performansının önemli ölçüde arttığını tespit etmişlerdir (Yim vd., 2004, 2005).

Çift fonksiyonlu membranlarda üçlü katalizörler ile ilgili de birçok araştırma yapılmıştır. Genel olarak Pt, Ru, Os, Ir ve Rh'in kombinasyonları incelenmiştir (Chen vd., 2001). PtRuIr üçlü katalizörlerin PtRu bakımından zengin bölgesi, hem oksijen indirgenme hem de oksijen yükseltgenme reaksiyonlarında yüksek aktivite göstererek, anodik korozyona karşı da iyi bir direnç sergilemiştir. Ru'nun eklenmesi reaksiyon hızını artırmıştır (Hunsom vd., 2018).

Nafyon membran üzerine biriktirilen Pt siyahı katmanına Ir ve Ru eklenmesi, Pt siyahının elektrolizör modu performansını, PtIr > PtRu > PtRuIr > Pt siyahı sırasıyla artırırken, oksijen indirgenme reaksiyonu performansını ise PtRuIr > PtRu > PtIr > Pt siyahı şeklinde arttırmıştır (Pettersson vd., 2006). Buna rağmen PtRu ile birlikte kullanılan Ir oranının çok az veya çok fazla olduğu durumlarda PtRuIr katalizörünün morfolojisi ve spesifik yüzey alanındaki sebep olduğu değişiklikler nedeniyle performansa katkı sunmadığını belirtmişlerdir (Ye vd., 2018).

Li vd., 2022, BR-PEMYH performansının düşmesine sebep olan bozulmaların ne zaman ve nerede meydana geldiği ile bozulmanın temel nedeni üzerine araştırma yapmışlardır. İlk olarak performans düşüşünün önce hangi modda meydana geldiğini ayırt etmek için

iki adet 16 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH ile deney düzeneği kurarak, yakıt hücresi ve elektrolizör modu için bozunma deneyleri gerçekleştirmişlerdir. BR-PEMYH performansındaki esas düşüşün ilk olarak elektrolizör modunda meydana geldiğini ve artan elektrolitik voltajı ile hızlandığını gözlemlemişlerdir. Bozunmaya ise gaz difüzyonu tabakasında meydana gelen karbon korozyonunun sebep olduğunu, bunun doğrudan elektronik dirençte artışa neden olmadığını, bunun yerine membran ile gaz difüzyon arasındaki mikro gözenek yapıyı yok ederek suyun aşınmış gözeneklerde daha kolay tutulmasına neden olduğunu ve su taşıma kapasitesinin azaldığını ortaya koymuşlardır (Li vd., 2022).

Basıncı PEM elektrolizörlerinde 350 bara kadar çıkılmasına rağmen BRYH sistemlerinde basınçlandırma çalışmaları çok azdır. 2001'in başlarında ve 2003 yılında Proton Enerji Sistemleri ve Lyntech INC NASA işbirliği ile basınçlı BRYH geliştirmişlerdir. Şekil 2.16a'da görülen sistem Lyntech tarafından geliştirilmiş ve 8 hücreden oluşmaktadır. Her bir hücresi 200 cm<sup>2</sup> aktif alana sahiptir. Şekil 2.16b'de görülen sistem ise Proton Enerji Sistemleri tarafından geliştirilmiştir (Burke, 2003).



(a)



(b)

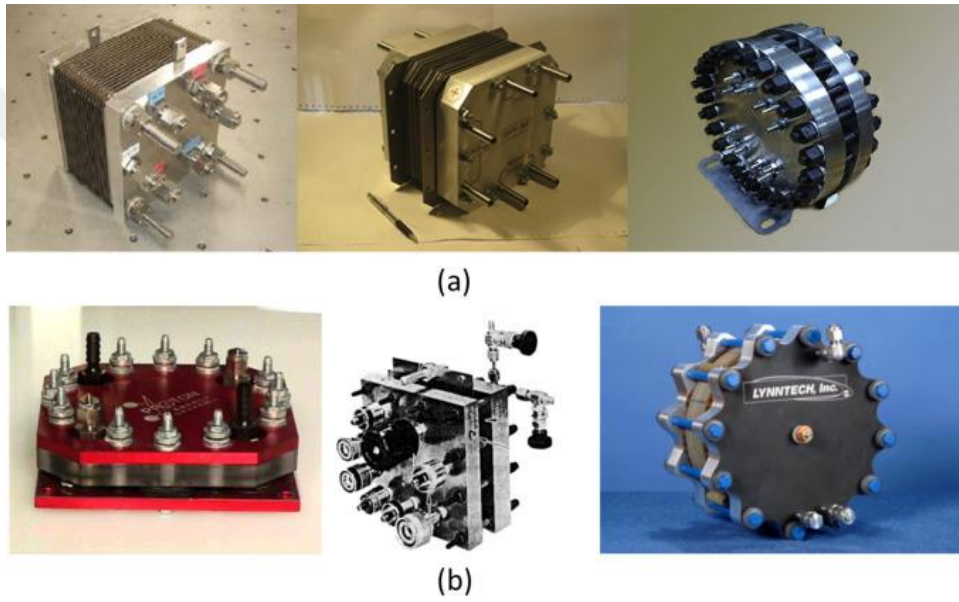
**Şekil 2.16.** Lyntech firmasının BRYH yığını (a), Proton Enerji Sistemleri firmasının BRYH yığını (b) (Burke, 2003)

Giner firmasının basınçlı BRYH sistemleri üzerinde yaptıkları çalışmada, basınçlı sistemlerin hidrojenin geri geçişini engellemek için daha kalın membrana ihtiyaç duyduğunu gözlemlemişlerdir (Mittelsteadt vd., 2015).

Tek bir hücrenin enerji depolama ve güç çıkışı sınırlı olması nedeniyle pratik talepleri karşılaması yetersiz olacaktır. Bu nedenle, birden fazla birleştirilmiş PEM yakıt hücresinin seri veya paralel olarak istiflenmesi gerekmektedir. Şekil 2.17'de Proton Inc.,

LLNL, Lynntech Inc firmalarından ticari ürünler ile Sone, Grigoriev vd., ve Millet vd., tarafından geliştirilen laboratuvar çalışma ürünleri gösterilmektedir.

Su vd., küçük bir güç kaynağı olarak düzlemsel altı hücreli tasarladıkları BRYH stağı, elektrolizör modunda ürettiği hidrojeni hidrojen depolama alanında depolayabilmekte ve yakıt hücresi modunda çalışabilmesi için yakıt sağlayabilmektedir. Test sonuçlarında 4,9 V' luk açık devre voltajı ve 74,8 mW/cm<sup>2</sup> maksimum güç yoğunluğu elde etmişlerdir. Stak hidrojen depolama alanınının kısıtlı olması nedeniyle 20 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda, 40 dakika çalıştırılmıştır (Su vd., 2009).



**Şekil 2.17.** Literatürde bildirilen BR-PEMYH yığınları: Sone (a), Grigoriev vd., Millet vd., (Soldan sağa); Proton Inc., LLNL ve Lynntech, Inc. (b) tarafından ticari yığınlar (Soldan sağa) (Wang vd., 2016)

Sone, Takasago Thermal Engineering Co. firması ile birlikte 17 hücreli bir stak geliştirmişlerdir. Yakıt hücresi modunda nominal akım 12 V'da 15 A ve elektrolizör modunda 28 V'da nominal akım 30 A'dan düşük değer almışlar. Üstelik her hücrenin iki modda da çok stabil çalıştığını gözlemlemişlerdir. Stak 40-60 °C aralığında çalıştırıldığında hücreler arası fark sadece 20 mV olarak ölçülmüştür (Sone, 2011).

Grigoriev vd., geliştirdikleri 7 hücreli birleştirilmiş rejeneratif PEM yakıt hücresi (BR-PEMYH) stağını 80 °C'de test etmişlerdir. Elektrolizör modunda 1,5 kW nominal elektrik tüketimi ve yakıt hücresi modunda 0,5 kW nominal elektrik gücü üretimi elde etmişlerdir.

0,5 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda elektrolizör modu için ortalama hücre voltajını 1,74 V olarak yakıt hücresi modu için ise 0,55 V olarak ölçmüşlerdir (Grigoriev vd., 2011).

2005-2008 yılları arasında GenHyPEM projesi kapsamında, Millet ve arkadaşlarının geliştirdikleri 2 hücreli stakta gerçekleştirilen performans testleri sonuçları ayırık elektrolizör ve yakıt hücresinden alınan verilere çok yakın çıkmıştır. Ancak uzun vadedeki kararlılığın hala yeterince iyi olmadığını gözlemlemişlerdir (Millet vd., 2011).



## BÖLÜM III

### MATEMATİKSEL MODELLEME

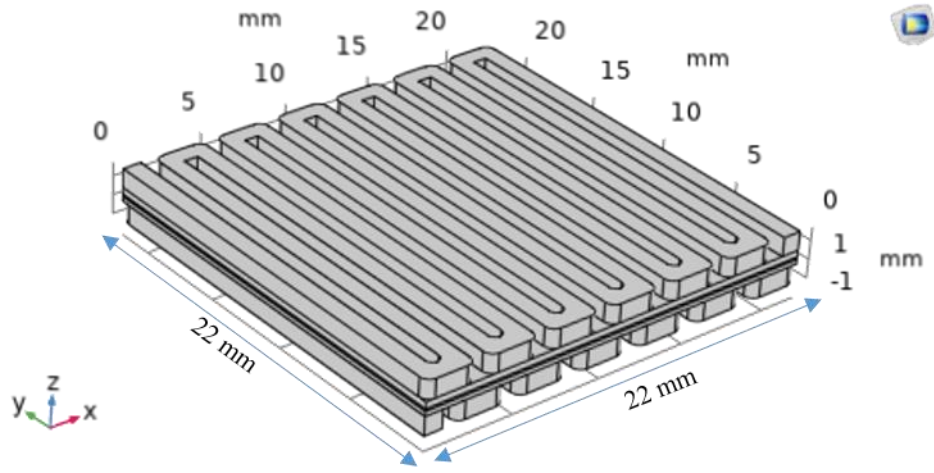
Birleştirilmiş rejenaratif PEM yakıt hücreleri için geliştirilen matematiksel modelleme üç gruba ayrılabilir. Birinci grup tamamen ampirik korelasyonlara bağlı olup uygulanabilirliği sadece spesifik problemlerle sınırlı kalmaktadır. İkinci grup detaylı transport olaylarını ele almakla beraber ya katalizör tabakasındaki olaylar ihmal edilmekte veya çok ince katalizör tabakası kabul edilmektedir. Diğer kategorideki matematiksel modellerde ise tüm fiziksel ve elektrokimyasal olaylar ele alınmaktadır.

Literatürde BR-PEMYH için birçok model bulunmasına rağmen hiçbir model fazları ayrı ayrı ele almamaktadır. Bu tez çalışmasında ise aşağıdaki fiziksel ve elektrokimyasal olaylar göz önüne alınarak 3 boyutlu matematiksel model geliştirilmiştir. Bu kapsamda;

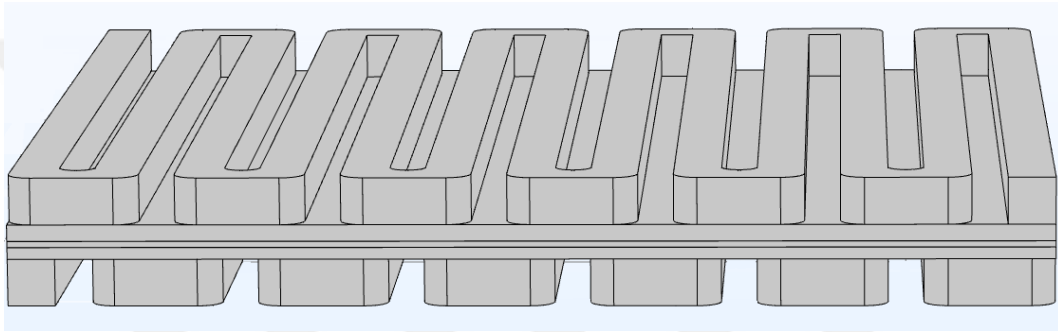
- İki fazlı akış
- Akış kanallarında taşınım ile ısı ve kütle transferi
- Poroz elektrotlarda madde diffüzyonu
- Elektrokimyasal reaksiyonlar
- $H^+$  protonlarının membran içindeki hareketi
- Akım dağılımı
- Suyun membran içindeki hareketi

göz önüne alınarak yukarıda belirtilen tüm fiziksel ve elektrokimyasal olayların kapsanması için kütle ve momentumun korunumu denklemlerinin, enerji denklemlerinin ve özel denklemlerin çözülmesi gerekmektedir. Bu özel denklemlere maddelerin korunumunu içeren Stefan–Maxwell denklemi, proton hareketi için Nernst-Planck denklemi, elektrokimyasal reaksiyonlar için Butler–Volmer denklemi ve membranın içinde su hareketini temsil eden Schlögl denklemleri örnek olarak verilebilir.

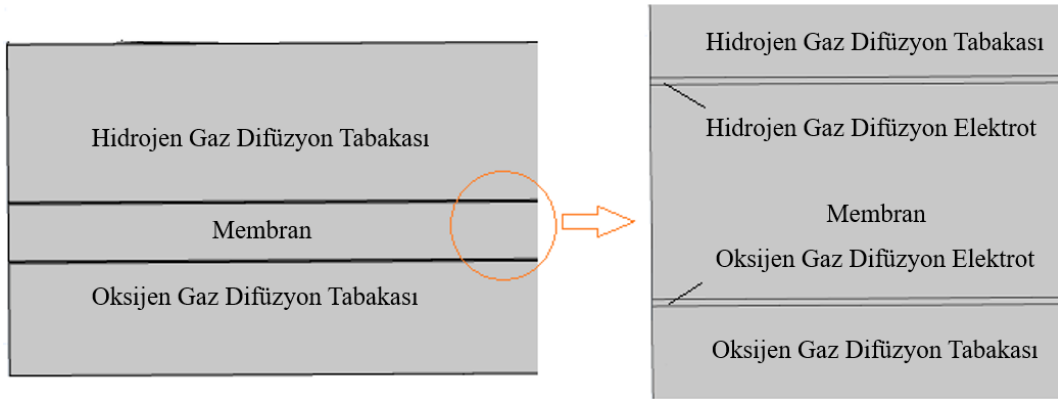
Çalışma kapsamında nümerik modelleme için COMSOL Multiphysics, Batarya ve Yakıt Hücresi Modülü kullanılmıştır. Modellemede kullanılan hücre geometrisi ve katmanları Şekil 3.1’de verilmiştir.



(a)



(b)



(c)

**Şekil 3.1.** Modellemede kullanılan geometri

Numerik model oksijen ve hidrojen akış kanalları, gaz difüzyon tabakaları, gaz difüzyon elektrotları ve MEG'den oluşmaktadır. Katmanların ölçüleri Çizelge 3.1'de verilmiştir. Hidrojen tarafındaki gaz akış kanalında  $H_2$  ve  $H_2O$  karışımı, oksijen tarafında ise  $O_2$  ve  $H_2O$  karışımı dolaşmaktadır.

**Çizelge 3.1.** Modellemede kullanılan hücre boyutları

Parametre	Değer
Aktif alan	5 cm <sup>2</sup>
Kanal uzunluğu	22 cm
Kanal yüksekliği	1 mm
Kanal sayısı	13
Hidrojen gaz difüzyon tabakası kalınlığı	0,25 mm
Oksijen/Hidrojen elektrot kalınlığı	0,003 mm
Membran kalınlığı	0,128 mm
Oksijen gaz difüzyon tabakası kalınlığı	0,35 mm

Geliştirilecek model ile her bölgede geçerli olan iki fazlı akış modeli uygulanmış, sıvı ve gaz hareketini incelemek için ise iki fazlı akış modeli kullanılmıştır. Bu modelde sistemde gaz ve sıvı fazları için ayrı ayrı transport denklemleri uygulanmıştır. Her bir fazın hacimsel oranının toplamı 1 olmak zorundadır. Dolayısıyla,

$$\alpha_L + \alpha_G = 1 \quad (3.1)$$

ifadesini yazabiliriz. Bu denklemden  $\alpha_L$  ve  $\alpha_G$  sırasıyla sıvı ve gaz fazının hacimsel oranıdır.

*Kütlenin korunumu denklemi;*

$$\frac{\partial(\rho\varepsilon)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon \rho \vec{v}) = S_m \quad (3.2)$$

şeklinde gösterilir. Burada kaynak terim  $S_m$  sürekli faza ilave olan kütleyi göstermektedir. Diğer terimlerden  $\rho$  yoğunluğu,  $\varepsilon$  gözenekliliği ve  $v$  akışkanın hızını göstermektedir. Bu denklem en genel kütle korunum denklemidir ve hem sıkıştırılmaz hem de sıkıştırılabilir akışlar için geçerlidir (Bilgili ve Sivrioğlu, 2016).

Momentum korunumu denklemi;

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon v) + \nabla(\rho \varepsilon v v) = -\varepsilon \nabla p + \nabla(\varepsilon \mu \nabla v) + \overline{S_u} \quad (3.3)$$

şeklindedir. Burada  $p$  statik basınç,  $\mu$  moleküler viskozite ve  $S_u$  dış kuvvetlerdir.

Genelleştirilmiş Ohm kanununa dayanan *yük dengesi denklemleri* aşağıdaki gibi ifade edilebilir;

$$\nabla(-\sigma_l \nabla \phi_l) = \pm a_v i_{loc} \quad (3.4)$$

$$\nabla(-\sigma_s \nabla \phi_s) = \pm a_v i_{loc} \quad (3.5)$$

Denklemlerdeki  $\sigma_l$  ve  $\sigma_s$  sırasıyla iyonik ve elektronik iletkenliklerdir.  $\phi_l$  ve  $\phi_s$  sırasıyla iyonik ve elektronik potansiyellerdir.  $a_v$  ise aktif spesifik yüzey alanıdır. Denklemlerin sağ tarafında bulunan  $\pm$  işaretleri Çizelge 3.2' ye göre belirlenir (L. Wang vd., 2016).

**Çizelge 3.2.** Yakıt hücresi ve elektrolizör modlarında denklem işaret seçimi

Denklemler	Mod			
	Yakıt Hücresi Modu		Elektrolizör Modu	
	Hidrojen Elektrodu	Oksijen Elektrodu	Hidrojen Elektrodu	Oksijen Elektrodu
$\nabla(-\sigma_l \nabla \phi_l) = \pm a_v i_{loc}$	+	-	-	+
$\nabla(-\sigma_s \nabla \phi_s) = \pm a_v i_{loc}$	-	+	+	-

Denklemlerde geçen  $i_{loc}$  akım yoğunluğu Butler-Volmer denklemi ile tanımlanabilir;

$$i_{loc} = i_0 \left( \exp\left(\frac{\alpha_a F \eta}{RT}\right) - \exp\left(\frac{-\alpha_c F \eta}{RT}\right) \right) \quad (3.6)$$

$i_0$  : Reaktant ve üretim konsantrasyonlarına bağlı akım yoğunluğu değişimi

$\alpha_a$  ve  $\alpha_c$  : Anot ve katot transfer katsayısı

$\eta$  : Aşırı gerilim aşağıdaki denklemde açıklanmıştır;

$$\eta = \phi_s - \phi_l - E_{eq} \quad (3.7)$$

$$E_{eq} = E_{eq.ref} + dE_{eq} / dT (T - T_{ref}) \quad (3.8)$$

Burada  $E_{eq.ref}$  referans denge potansiyeli,  $E_{eq}$  ise denge potansiyelidir (Wang vd., 2016).

*Enerjinin korunum denklemi;*

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon h) + \nabla(\rho \varepsilon v h) = \nabla(k \nabla T) + S_h \quad (3.9)$$

şeklinde entalpi değerlerine bağlı olarak verilebilir.  $S_h$  terimi, suyun oluşum ısısı, ohmik ısınma, elektrik işi v suyun gizli ısısını içeren terimlerden oluşmaktadır.

*Maxwell–Stefan*' ın konveksiyon ve difüzyon denklemleri aşağıdaki gibi tanımlanabilir;

$$\rho \frac{\partial \omega_i}{\partial t} + \nabla \cdot j_i + \rho(u \cdot \nabla) \omega_i = R_i \quad (3.10)$$

$$R_i = v_i \frac{a_v i_{loc}}{\eta_i F} \quad (3.11)$$

$$j_i = -\rho \omega_i \sum_k D_{ik} d_k \quad (3.12)$$

$$d_k = \nabla x_k + (x_k - \omega_k) \frac{\nabla p}{p} \quad (3.13)$$

$$x_k = \frac{\omega_k}{M} M \quad (3.14)$$

$$\frac{1}{M} = \sum_i \frac{\omega_i}{M_i} \quad (3.15)$$

$$\rho \frac{\partial \omega_i}{\partial t} + \nabla \left( \omega_i \rho u - \rho \omega_i \sum_{k=1}^Q D_{ik} \left( \frac{M}{M_k} \left( \nabla \omega_k + \omega_k \frac{\nabla M}{M} \right) + (x_k - \omega_k) \frac{\nabla p}{p} \right) \right) = R_i \quad (3.16)$$

Maxwell–Stefan denkleminde bulunan,  $\omega_i$  kütle oranını,  $j_i$  ortalama kütle hızına göre kütle akısını,  $D_{ik}$  çok bileşenli Fick yayılma oranını,  $d_k$  difüzyonel itici gücü,  $x_k$  mol kesri,  $M$  ortalama molar kütle ve  $R_i$  üretim veya tüketim oranını açıklayan ifadelerdir.

Gaz akış kanallarındaki akışlarla ilgili Navier–Stokes denklemleri;

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho(u \cdot \nabla)u = \nabla \cdot \left[ -p1 + \mu(\nabla u + (\nabla u)^T) - \frac{2}{3}\mu(\nabla u)1 \right] \quad (3.17)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = 0 \quad (3.18)$$

Gözenekli elektrotlardaki akış, Brinkman denklemleri ile açıklanmaktadır;

$$\frac{\rho}{\varepsilon} \left( \frac{\partial u}{\partial t} + (u \cdot \nabla) \frac{u}{\varepsilon} \right) = \nabla \cdot \left[ -p1 + \frac{\mu}{\varepsilon}(\nabla u + (\nabla u)^T) - \frac{2\mu}{3\varepsilon}(\nabla u)1 \right] - \left( \frac{\mu}{\kappa} + \frac{S_m}{\varepsilon^2} \right) u \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = s_m \quad (3.20)$$

Denklemlerde geçen  $\varepsilon$  ve  $\kappa$  ifadeleri sırasıyla gaz difüzyon tabakası veya katalizör tabakanın gözeneklilik ve geçirgenlik değerleridir.  $s_m$  aşağıdaki ifadede gösterildiği gibi akım yoğunluğu ile de ilişkilidir (Wang vd., 2016).

$$s_m = \sum_i \frac{a_v i_{loc} M_i}{\eta_i F} \quad (3.21)$$

## BÖLÜM IV

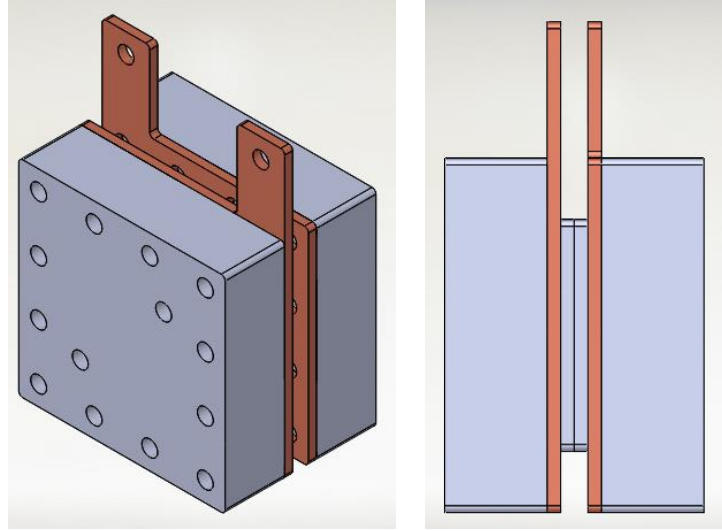
### DENEYSEL ÇALIŞMALAR

Tek hücrede (5cm<sup>2</sup>) meydana gelen elektrokimyasal olayları, ısı ve kütle transferi, akışa ait diferansiyel denklemler nümerik olarak çözülmüş ve simülasyon sonuçlarına göre bipolar plakalar dizayn edilmiştir. İlk olarak tek hücrenin tüm testleri başarı ile tamamlandıktan sonra scale-up (ölçek büyütme) sorunları dikkate alınarak 100 cm<sup>2</sup> tek hücre için performans testleri yapılmıştır. Daha sonra 3 hücreli stak imalatına geçilmiştir. Stak membran elektrot grupları, bipolar plakalar ve sızdırmazlık elemanlarından oluşmuştur. Çalışmalar çerçevesinde stak performans testleri de yapılmıştır.

Her bir tasarım için optimum sıkıştırma torku ve sızdırmazlık elemanları belirlenerek 5 cm<sup>2</sup> tek hücre testleri 5-80 °C aralığında, 100 cm<sup>2</sup> tek hücre ve stak testleri ise 5-60 °C sıcaklık aralıklarında test edilmiştir.

#### 4.1 BRYH Dizayn ve İmalatı

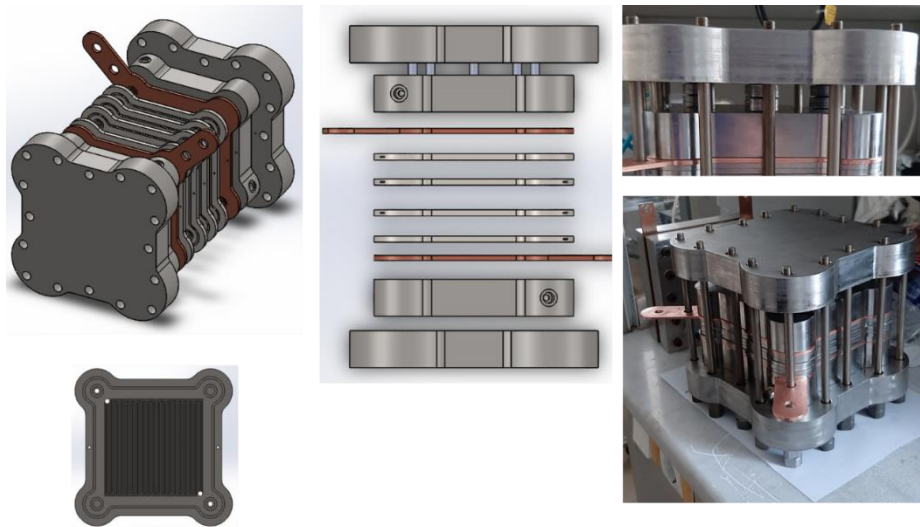
Öncelikle 5 cm<sup>2</sup> ve 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip rejeneratif yakıt hücresi tasarım ve imatları yapılmıştır. Deneyler sonucunda tasarımda yapılabilecek iyileştirmeler belirlenerek, uygulanan sıkıştırma kuvvetini daha homojen dağıtan, ihtiyaca göre hücre sayısının artırılabilceği bir stak tasarlanmış ve imalatı gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.1’de görülen hücre tasarımı genel olarak bipolar plakalar, akım toplama/dağıtma plakaları ve sıkıştırma plakalarından oluşmaktadır. Bipolar plakalarda titanyum malzeme tercih edilirken, akım dağıtma/toplama plakaları bakırdan, sıkıştırma plakaları ise paslanmaz çelik malzemedden imal edilmiştir.



Şekil 4.1. BRYH tasarım genel görünüşü

#### 4.2 BRYH Stak Tasarım ve İmalatı

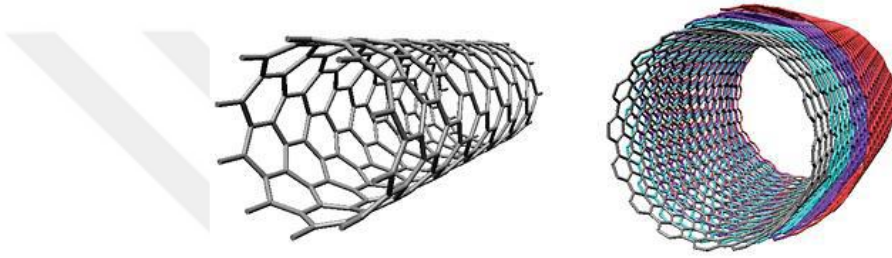
Tekli hücrelerden edinilen tecrübelerle, stak elemanlarını bir araya getirirken uygulanan sıkıştırma kuvvetini daha homojen dağıtmak için köşeli tasarım yerine daha yuvarlak hatlara sahip stak tasarlanmıştır. Ayrıca kullanılan disk yayların hücre merkezine odaklayarak daha dengeli baskı yapması hedeflenmektedir. Yeniden tasarlanan ve ilgili sanayi kuruluşu tarafından üretimi yapılan 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip 3'lü stak Fotoğraf 4.1'de verilmiştir.



Fotoğraf 4.1. Stak tasarımı ve imal edilmiş görünüşü

### 4.3 Membran Elektrot Grubu Modifikasyon Çalışmaları

Karbon nanotüp ve grafitik karbon nitrürün, kitosan çözeltisi içerisinde dispersiyeye edildiği karbon bazlı bir kompozit yapı tercih edilerek bu yapının nano boyutta Pt nanoparçacıklarıyla dekore edilmesiyle etkin bir katalizör geliştirilmiştir. Karbon nanotüpler, sadece karbon atomundan meydana gelen grafen tabakasının uçlarının birleştirilerek silindir biçiminde katlanmasıyla elde edilmektedirler. Grafen tabakasının tek tabaka olarak sarılmasıyla tek duvarlı karbon nanotüp, çok tabakalı sarılmasıyla çok duvarlı karbon nanotüpler (ÇDKN) elde edilmektedir (Şekil 4.2).

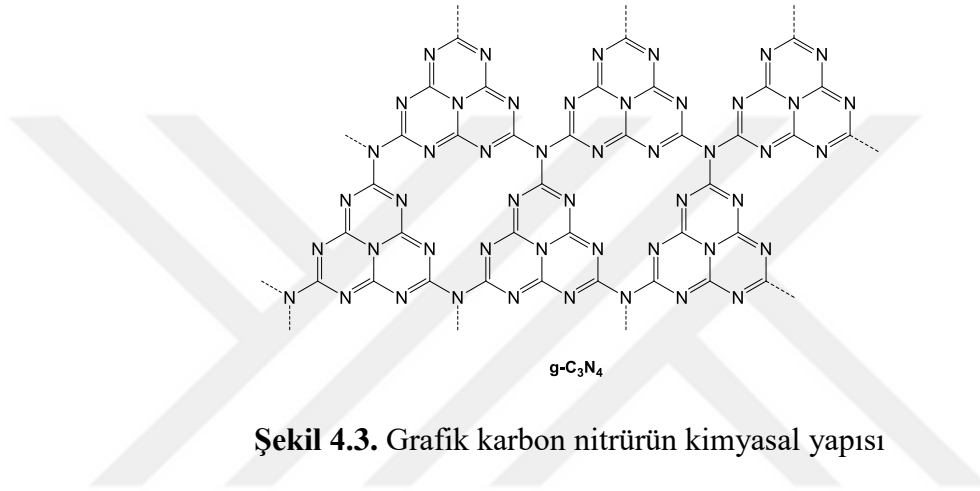


Şekil 4.2. Tek duvarlı ve çok duvarlı karbon nanotüpler

Karbon nanotüplerin elektrokimyasal alanda sıklıkla kullanılmalarının nedenleri arasında, geniş yüzey alanına, yüksek adsorplama özelliğine sahip olmaları, modifikasyon işlemlerine uygun olmaları, kuvvetli bağ yapabilmeleri, dayanıklı, hafif, elastik ve kararlı olmaları sayılabilir. Karbon nanotüpler aynı zamanda çok yüksek mekanik özelliklere sahip olup, özellikle elektriksel ve termal açıdan diğer karbon malzemelerden daha avantajlıdır. Bu özelliklerinden dolayı, kompozit malzemelerde, hidrojen enerjisi depolamada, biyoteknolojide, kaplamalarda, liflerde, filmlerde ve mikro elektronikte geniş uygulama alanı bulmaktadırlar (Gupta vd., 2019).

Diğer taraftan, karbon bazlı nanomateriyallerin kullanımı, yüksek iletkenlik, yüksek mekanik mukavemet, geniş yüzey alanı ve mükemmel fizikokimyasal özelliklerinden dolayı katalizör sistemleri için en umut verici adaylardan biri olarak büyük ilgi görmüştür (Veisi vd., 2020). Toksik olmayan, asidik/bazik koşullara karşı dayanıklı, yüksek optik özelliklere sahip olan grafitik karbon nitrür en önemli karbon nanomalzemelerden birisidir (Y. Zhang vd., 2018). Katmanlar arası van der Waals bağları ve katmanlar içi C-

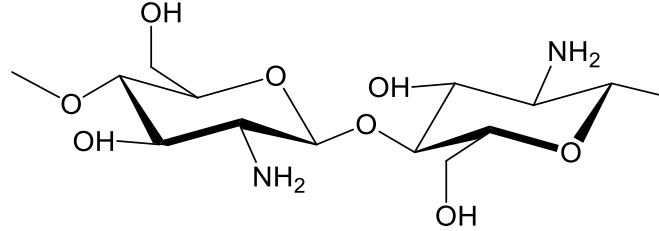
N kovalent bağlarının kombinasyonu grafitte benzer iki boyutlu katmanlı bir yapıya sahiptir (Şekil 4.3). Ancak termal ve kimyasal kararlılığı, grafitte göre oldukça yüksektir. Ayrıca, g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ucuz ve mevcut öncüllerden çok daha basit bir yolla sentezlenebilmektedir. Dahası, benzersiz bir delokalize olmuş konjuge yapıya sahip g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, üçüncül aminler aracılığıyla birbirlerine bağlanan C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> katmanlarının grafit yığınınını içermesi, onu yüksek elektronik iletkenliğe sahip kılmaktadır. Bu özelliklerinden dolayı fotokataliz, sensörler, fotovoltaikler gibi çeşitli uygulamalarda yaygın olarak kullanılmaktadır (Hayat vd., 2022; Ismael, 2020).



**Şekil 4.3.** Grafik karbon nitrürün kimyasal yapısı

Üstün özellikleri sayılan karbon nanotüp ve grafitik karbon nitrür, kitosan çözeltisinde dispersiye edilerek temelde karbon destekli bir katalizör malzeme geliştirilmiştir. Bilindiği üzere kitosan, kitinin alkali bir çözeltide deasetilasyonu ile hazırlanan hidrofobik ve lineer bir polisakkarittir. Biyolojik olarak parçalanabilir, toksik olmayan ve yenilenebilir doğası nedeniyle yaygın olarak kullanılan çevre dostu bir biyopolimer olarak kabul edilir (Nasrollahzadeh vd., 2021). Ayrıca yüksek hidrofilik özelliğe ve geçiş metallerine karşı güçlü bir çekiciliğe sahiptir. Bu mükemmel özelliklerinden dolayı kitosan, gıda endüstrisi, tarım endüstrileri, yenilebilir film endüstrisi, tekstil, yara iyileştirme, ilaç dağıtımı ve doku mühendisliği gibi çok farklı uygulamalarda yaygın olarak kullanılmaktadır (Morin-Crini vd., 2019). Kitosan kabul edilebilir bir mekanik mukavemet ile iyi kimyasal ve termal stabiliteye sahiptir. Daha da önemlisi, bu çok yönlü biyopolimer, omurgasındaki serbest reaktif hidroksil (-OH) ve amin gruplarına (-NH<sub>2</sub>) sahip olup bu fonksiyonel gruplar sayesinde (Şekil 4.4), organik veya inorganik malzemelerle pul, ince toz, boncuk, membran sünger, lif, jel veya film yapısında çok çeşitli kompozitler oluşturulabilmektedir (Vedula ve Yadav, 2021). Bu özellikler

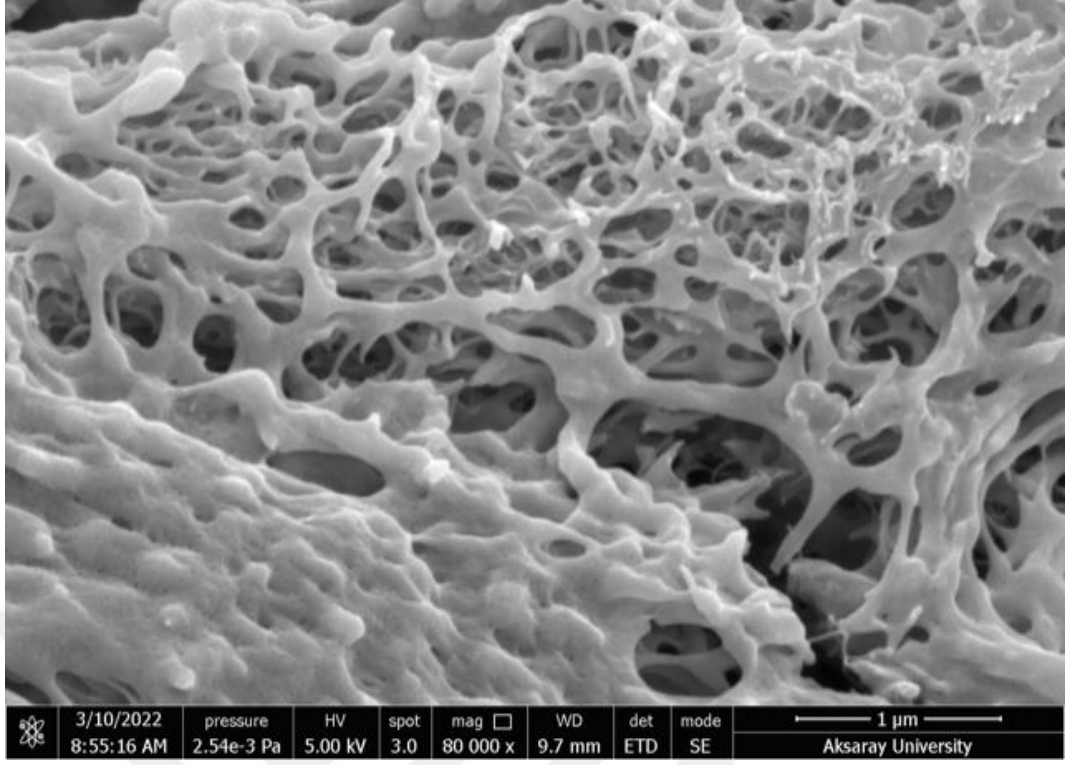
kitosanı, katalizör sistemleri için ideal bir destek materyali haline getirirken, kitosan matrisinin, kimyasal/mekanik gücünü arttırmak amacıyla, farklı organik/inorganik malzemelerle karıştırılarak elde edilen kompozitler de çeşitli metalik katalizörlerin hazırlanması için ideal bir platform sağlayabilmektedir.



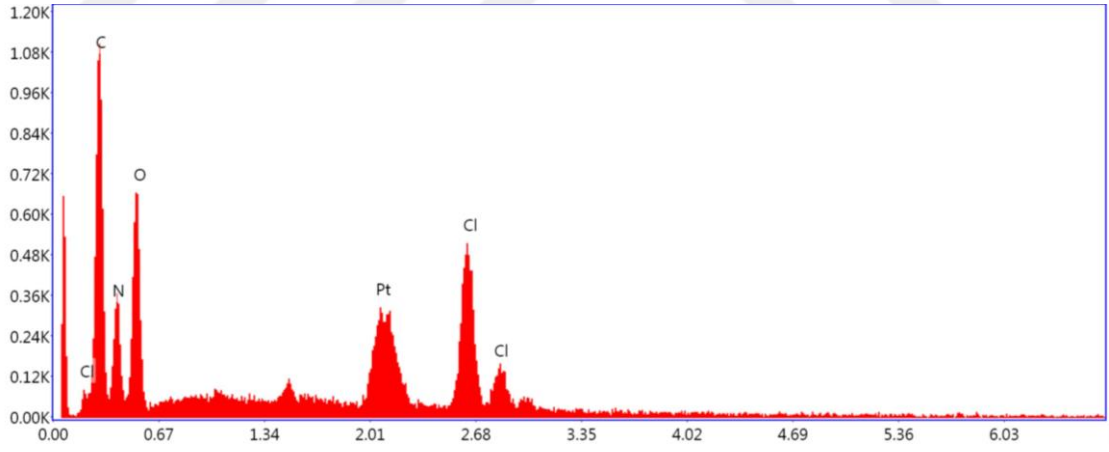
**Şekil 4.4.** Kitosanın kimyasal yapısı

Hazırlanan katalizör ile kitosan çözeltisi içerisinde karbon nanotüp ve grafitik karbon nitrürün homojen dispersiyonuyla, yapıdaki birçok fonksiyonel grubun sayesinde, çok sayıda aktif merkez oluşarak proste en önemli rolü üstlenen Pt metalinin bu aktif merkezlere nano boyutta tutulması hedeflenmiş, aynı zamanda kitosanın bilinen korozyon inhibitörü olma özelliğiyle, hücre içerisinde olası korozyon oluşumunun önüne geçilmesine de katkı sağlanmıştır.

Geliştirilen katalizör çözeltisi öncelikle taramalı elektron mikroskobu (SEM), enerji dağılımlı spektroskopisi (EDS) ve X-Işını kırınım (XRD) analizleri ile karakterize edilmiştir. Şekil 4.5'te verilen SEM görüntüsü FEI Quanta FEG 250 cihazı ile 5 kV çalışma voltajında, 9,7 mm uzaklıktan alınmıştır. SEM görüntüsüne bakıldığında, katalitik proseslerde oldukça önemli olan yüksek yüzey alanı sunan gözenekli bir yapı ve bu yapı içerisine dağılmış Pt nanoparçacıkları görülmektedir. Yapıda bulunan Pt nanoparçacıkların varlığı EDS ve XRD analizleri ile desteklenmiştir. EDS ile elde edilen spektrum Şekil 4.6'da, elementlerin oranları ise Çizelge 4.1'de verilmiştir. Pt nanoparçacığın pikleri ve yapı içerisindeki oranı açıkça görülmektedir.



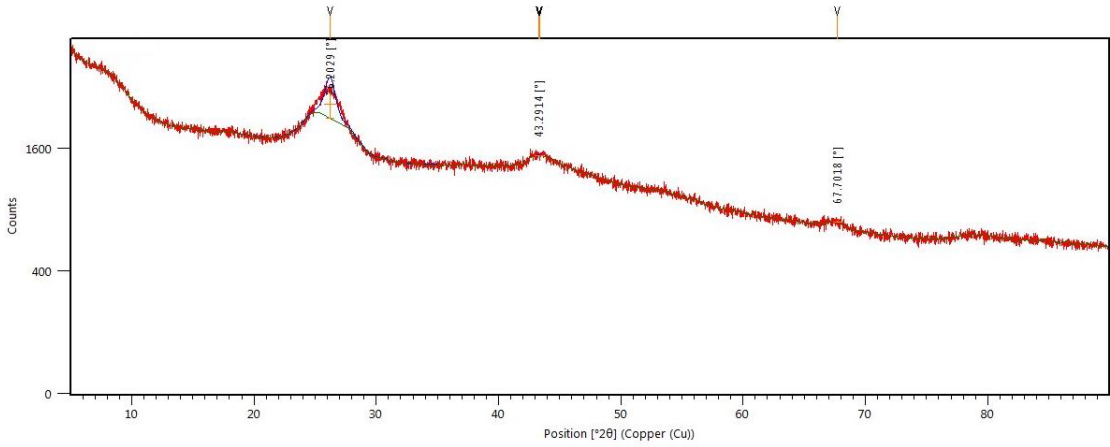
Şekil 4.5. Geliştirilen elektrokatalizörün SEM görüntüsü



Şekil 4.6. Geliştirilen elektrokatalizörün EDS spektrumu

**Çizelge 4.1.** Geliştirilen elektrokatalizörün EDS sonuçları

Element	% (Ağırlıkça)	% (Atomik)	Net Pik Şiddeti	% Hata
C K	34.82	48.08	186.18	9.93
N K	21.73	25.73	63.61	12.53
O K	18.01	18.66	121.7	10.94
PtM	11.42	0.97	72.46	9.14
ClK	14.02	6.56	155.73	4.44

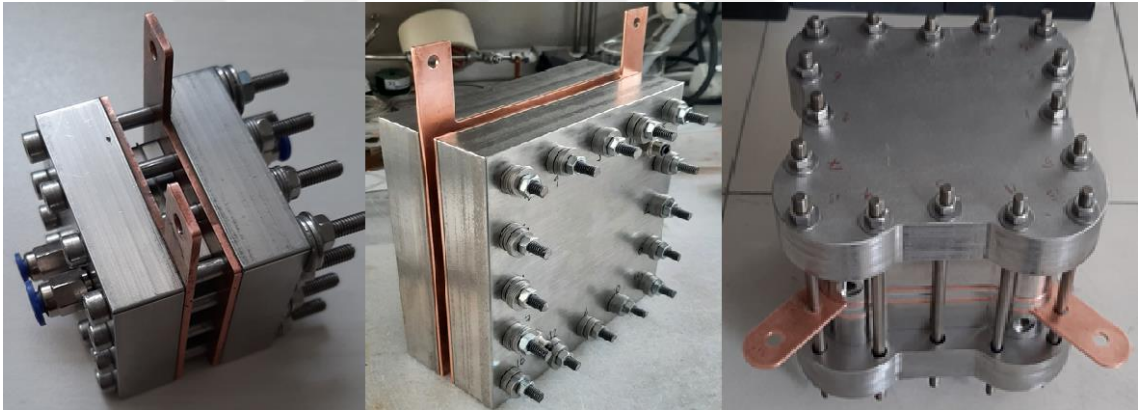


**Şekil 4.7.** Geliştirilen elektrokatalizörün XRD spektrumu

XRD analizi ise Malvern Panalytical marka Empyrean model cihaz ile  $5^{\circ}$ - $90^{\circ}$  aralığında, Cu tüp kullanılarak  $1 \text{ sn}'de 0,013^{\circ}$  adım ile gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.7'de verilen spektrumun değerlendirilmesinde ise HighScore Plus yazılımı kullanılmıştır. Elektrokatalizörün difraktogramı  $26,2029^{\circ}$ 'de güçlü bir tepe noktası ve  $43,2914^{\circ}$ 'de zayıf bir tepe noktası göstermiştir. Bu pikler, çok duvarlı karbon nitrürün (ÇDKN) (002) ve (100) düzleminde geldiğini göstermektedir (Liu vd., 2014).  $67,7018^{\circ}$ 'de görülen pik ise (220) düzlemleri Pt'den geldiği görülmektedir (Singh ve Miyabayashi, 2019). ÇDKN'ün  $26,2029^{\circ}$ 'deki yoğun piki, g- $C_3N_4$ 'ün yaklaşık  $27^{\circ}$ 'lik pikini baskılamış ve bu nedenle spektrumda gözlemlenememiştir.

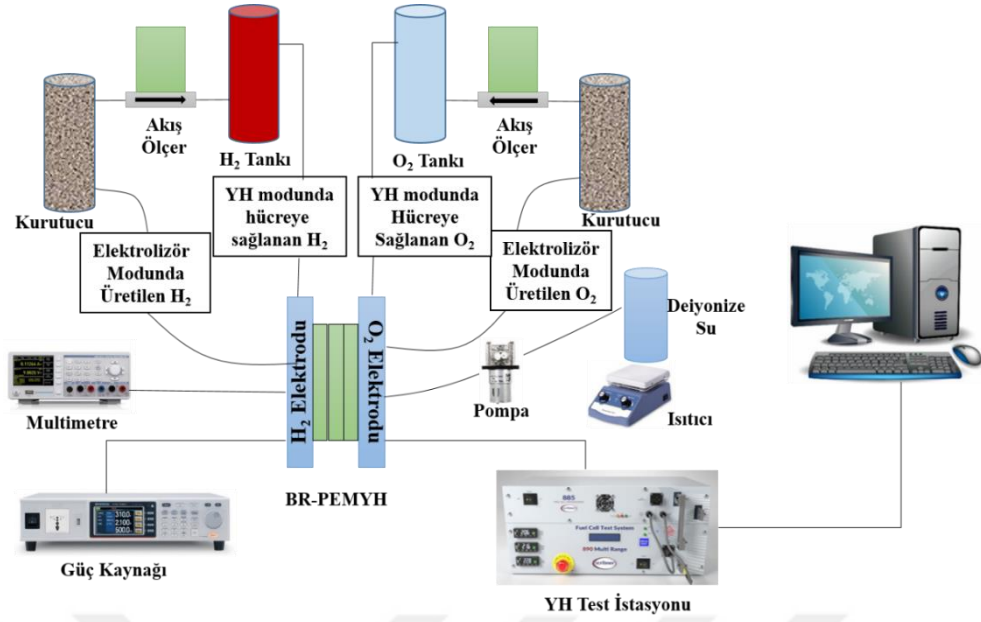
#### 4.4 BR-PEMYH Elemanlarının Birleştirilmesi ve Deneysel D zenek

H cre elemanları bir araya getirilmeden  nce kullanılacak MEG, gaz dif zyon tabakaları, silikon contalar ve mylar film uygun  ekil ve boyutlarda lazer kesim cihazı ile kesilerek montaja hazır hale getirilmiŐtir. H crenin dıŐ y zeylerini yalıtım  in sıkıŐtırma plakalarının i  y zeyine ve akım toplama plakasının dıŐa bakan y zeyine mylar kaplanır. Kaplanan mylar -45  C ile 135  C aralıĐında kullanılabilmekte olup kendinden yapıŐkanlıdır. H cre elemanlarını bir arada tutmak  in kullanılan cıvataların da h cre elemanlarına temas eden kısımları makaron ile kaplanarak yalıtılmıŐtır. SıkıŐtırma plakası ve akım toplama levhası  zerinde bulunan manifold deliklerinin  evresine a ılan o-ring kanallarına da uygun  ap ve kalınlıkta o-ringler yerleŐtirilerek sızdırmazlık saĐlanmaktadır. Performans testlerinde kullanılan birleŐtirilmiŐ rejeneratif PEM yakıt h creleri ve  cl  stak FotoĐraf 4.2’de g r lmektedir.



**FotoĐraf 4.2.** Performans testlerinde kullanılan BR-PEMYH’ler

GeliŐtirilen BR-PEMYH’lerinin ve staĐının testleri  in, oluŐturulan deney d zeneĐi Őekil 4.8’de Őematik olarak verilmiŐtir.



**Şekil 4.8.** Deney düzeneğinin şematik gösterimi

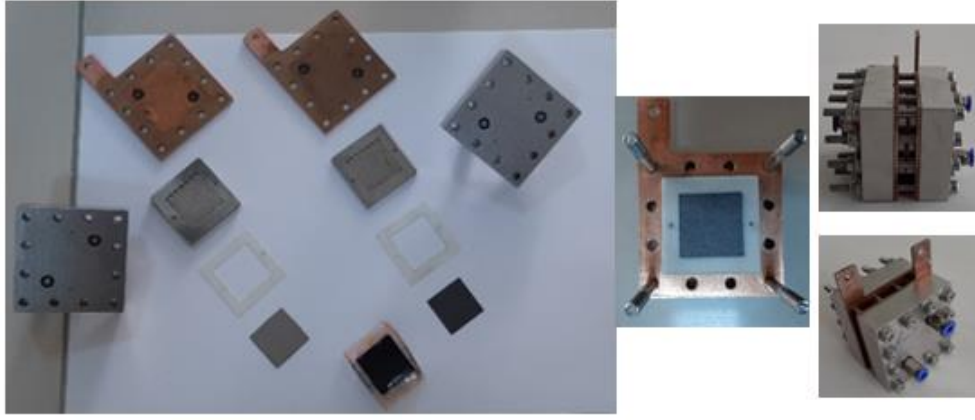
#### 4.5 BR-PEMYH Elektrolizör Modu Testleri

Elektrolizör modunda çalışırken anottan beslenen deiyonize su, anot katalizör tabasında oksijen gazı, hidrojen iyonları ve hidrojen elektronlarına ayrışmaktadır. Oksijen gazı kullanılmayan su ile birlikte anot tarafından hücre dışına çıkarken, hidrojen iyonları MEG üzerinden geçerek, elektronlar ise dış devreden katot tarafına ulaşmaktadır. Katot katalizör tabakasında ise hidrojen iyonları ve elektronları birleşerek hidrojen gazını oluşturmaktadır (Genç ve Kallioğlu, 2018).

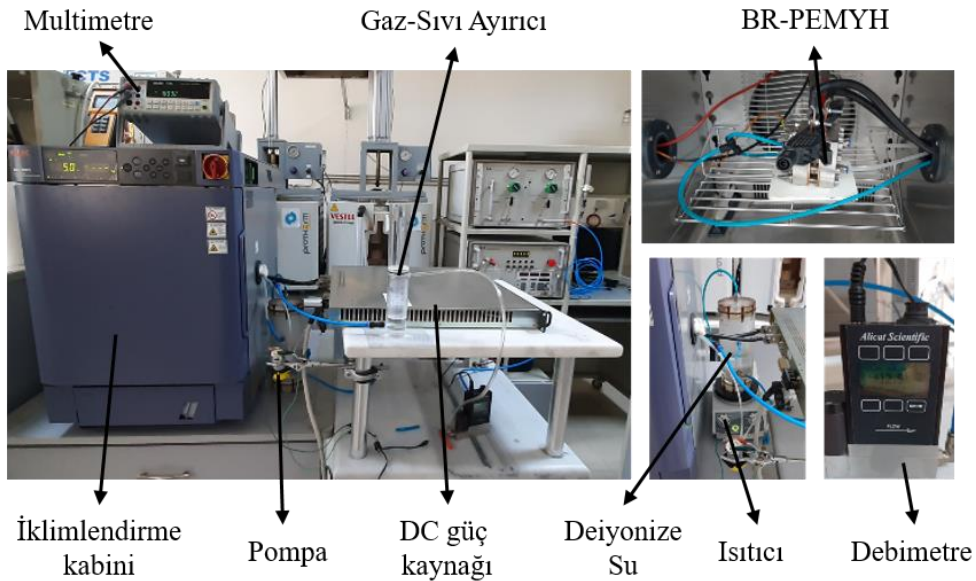
FuelCellEtc firmasından alınan membranların aktif hale gelebilmesi için Fotoğraf 4.3'te görülen hücre elemanları bir araya getirilerek elektrolizör modunda çalıştırılmış, uygulanan voltaj kademeli olarak arttırılmıştır. Elektroliz modu için, anot tarafında platin siyahı ile iridyum rutenyum oksit katalizör karışımı bulunmaktadır. Katot tarafında ise platin siyahı kullanılmıştır. Kullanılan deiyonize suyun direnci 16-18 MΩ aralığındadır. Elektroliz modunda deiyonize su ve güç kaynağının pozitif ucu anot tarafına bağlanır. Güç kaynağından uygulanan potansiyel 2 V'tan düşük kalmalıdır. Gaz difüzyon tabakası olarak, anot tarafında gözenekli titanyum, katot tarafında ise karbon kâğıt kullanılmıştır.

Elektroliz modu deneysel çalışmaları Fotoğraf 4.4'te görülen düzenekte yapılmıştır. Membranın zarar görmemesi için uygulanan voltaj 2V'un altında tutulmuş, 5 cm<sup>2</sup> tek

hücre için sıcaklık aralığı 5-80 °C, 100 cm<sup>2</sup> tekli hücre ve stak için ise 5-60 °C olarak belirlenerek performans analizleri yapılmıştır. 100 cm<sup>2</sup>'lik hücelere modifiye işlemleri yapılarak performans testleri tekrarlanacağı için yüksek sıcaklığa çıkılmamıştır. Bu çalışma ortamını sağlayabilmek için -20 °C ile 150 °C aralığında çalışabilen test kabini kullanılmıştır. Hücreye gönderilen deiyonize su, ayarlanan sıcaklığa yakın dereceye ısıtılarak veya soğutulmuş olarak gönderilmekte ve en az 30 dakika sıcaklığın dengeye gelmesi beklenmektedir. Uygulanan voltaja karşı hücrenin çektiği akım Escort marka 3136A model multimetre ile ölçülerek kaydedilmiştir. Üretilen nemli hidrojen separatörden geçirilerek debimetre ile ölçülmüştür.



**Fotoğraf 4.3.** BR-PEMYH elemanları



**Fotoğraf 4.4.** BR-PEMYH Elektroliz modu deney düzeneği

#### 4.6 BR- PEMYH'nin Yakıt Hücresi Modu Testleri

Yakıt hücreleri, kullanılan yakıttan aldığı kimyasal enerjiyi direkt olarak elektrokimyasal proseslerle elektrik enerjisine çeviren sistemlerdir. Yakıt ve oksijen sürekli olarak reaksiyonun gerçekleştiği yakıt hücresinin iki ayrı elektroduna gönderilir. Elektrotlar arasında bulunan elektrolitte ise hidrojen beslemesinin yapıldığı anottan oksijenin bulunduğu katoda doğru bir iyon geçişi gerçekleşir. Hidrojen gazı anot üzerinden geçerken hava da katot üzerinden geçmektedir. Elektrolit ise pozitif iyonların geçmesine izin veren ve elektronların geçmesini engelleyen özelliğindedir.

Elektronlar, elektrik devresine akarken hidrojen protonları da elektrolite doğru akar. Hidrojen protonları ile elektronların katotta oksijen akışı ile birleşmesiyle su oluşurken, atık ısı ve elektrik enerjisi açığa çıkmaktadır.

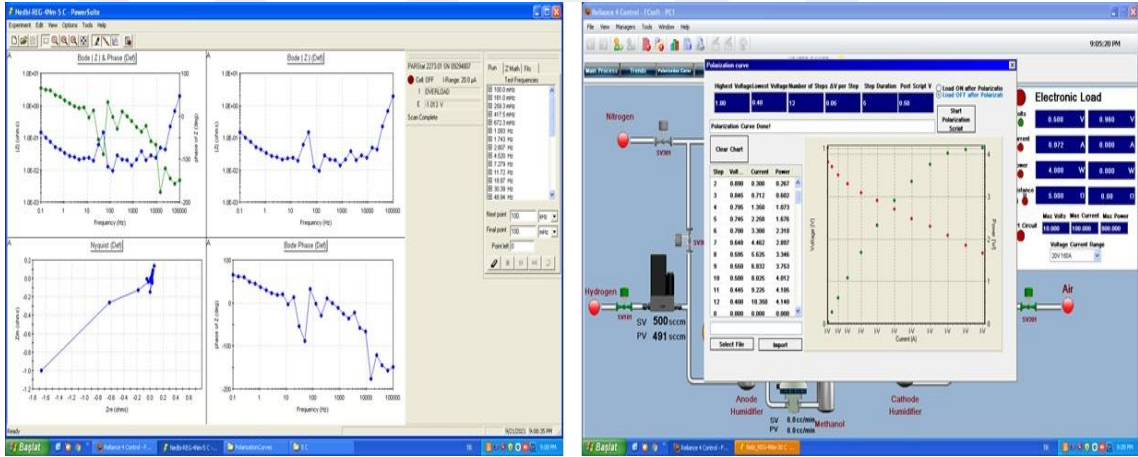
BR-PEMYH, yakıt hücresi modunda ElectroChem marka SDL 1032 model cihaz kullanılarak testler yapılmıştır. Test istasyonu ve deneysel düzenek Fotoğraf 4.5'te verilmektedir. 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücrenin anot kısmına 500 sccm hidrojen, katot kısmına ise 1500 sccm hava gönderilmiştir. 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücre için ise anot tarafına 50 sccm hidrojen, katot tarafına ise 150 sccm hava gönderilmiştir. Gönderilen hidrojen ve hava su dolu kaptan geçirilerek nemlendirilmiştir. Çalışma sıcaklığının dengeye gelmesi için 30 dakika çalıştırdıktan sonra polarizasyon ve empedans eğrileri alınmıştır. Şekil 4.9'da bir örneği verilmiştir. Alınan empedans ölçümleri hücre verimine direkt etkisi olan direnç hakkında bilgi verirken, polarizasyon eğrisi ise hücreden elde edilen güç hakkında bilgi vermektedir.



Empedans ölçüm cihazı

Yakıt hücresi test istasyonu

Fotoğraf 4.5. BR-PEMYH Elektroliz modu deney düzeneği



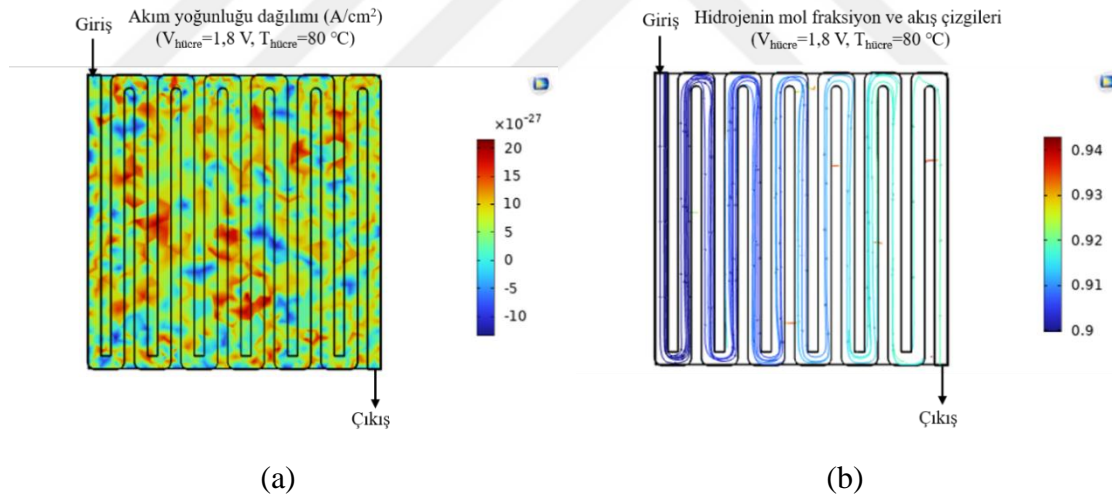
Şekil 4.9. BR-PEMYH empedans ve polarizasyon eğrileri

## BÖLÜM V

### BULGULAR

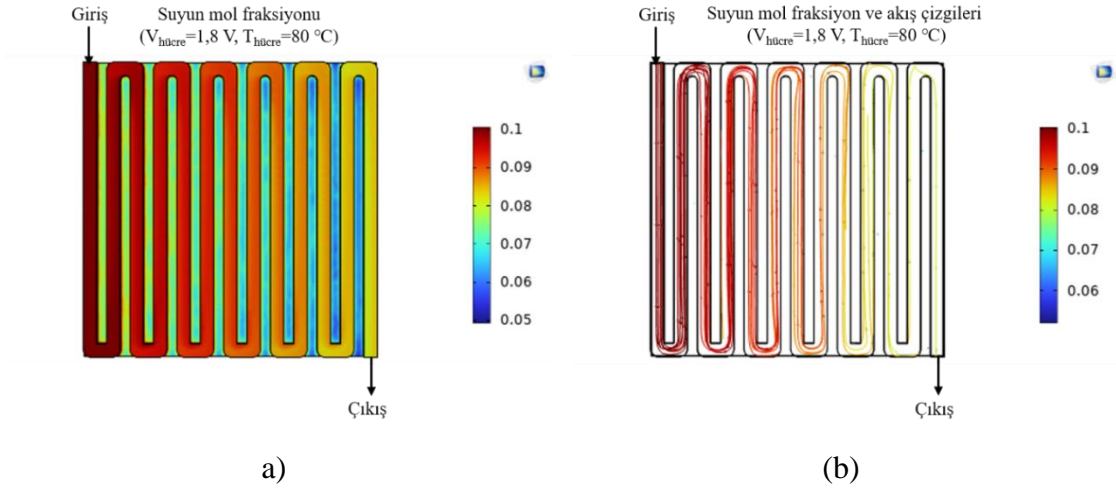
#### 5.1 Nümerik Sonuçlar

Geliştirilen model, birleştirilmiş rejeneratif PEM yakıt hücresi sayısal sonuçlarını elde etmek için elektrolizör ve yakıt hücresi modunda çalıştırılmıştır. Elektrolizör modeli için anot tarafından su beslenirken, katot tarafından ise üretilen hidrojen toplanmaktadır. Şekil 5.1'de 80 °C çalışma sıcaklığında, 1,8 V voltaj uygulanırken kanallar ve gaz difüzyon tabakası üzerindeki akım yoğunluğu dağılımı, hidrojen mol fraksiyonu ve akış çizgileri görülmektedir. Normalde elektroliz sonucu oluşan hidrojen iyonları membrandan katot tarafına geçer. Ancak şekilde gösterilen geometrinin sol üst köşesi modelleme sırasında hidrojen girişi olarak tanımlanmaktadır. Elde edilen hidrojenin akış çizgileri her katmanda eşit olarak dağılırken, kanal çıkışına doğru arttığı görülmektedir.



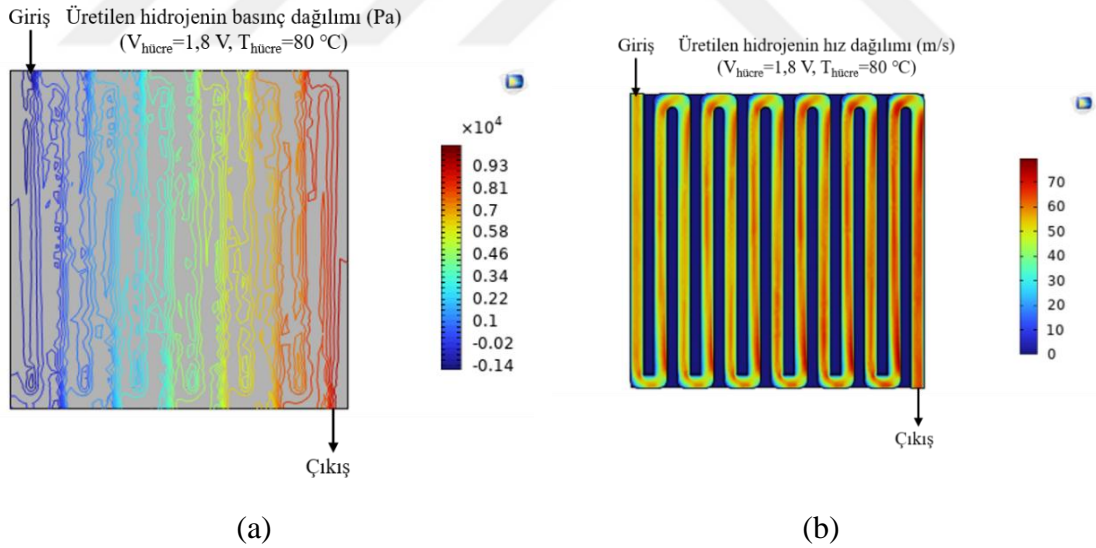
**Şekil 5.1.** Elektrolizör modu için akım yoğunluğu dağılımı (a) ve hidrojen mol fraksiyonu ile akış çizgileri (b)

Hücrenin diğer tarafında, sağlanan su mol kesri ve akış çizgileri Şekil 5.2'de verilmiştir. Hücreye verilen su, elektroliz yöntemi ile oksijen ve hidrojen atomlarına parçalandığından kanal çıkışına doğru azaldığı görülmektedir.



**Şekil 5.2.** Elektrolizör modu için su mol fraksiyonu (a) ve akış çizgileri (b)

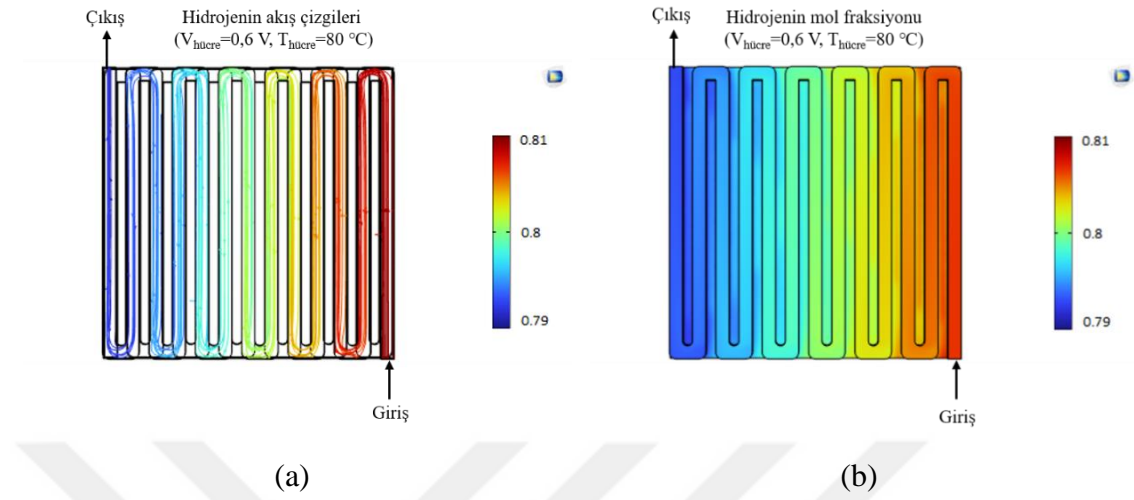
Aynı zamanda elde edilen hidrojen gazının basıncı ve hızı da göz önüne alınarak değerlendirilmiş ve sonuçlar Şekil 5.3'te verilmiştir. Elektrokimyasal reaksiyon sonucu üretilen hidrojenin katot tarafında yoğunluğu arttığından basınç ve hızının kanal çıkışına doğru arttığı görülmektedir.



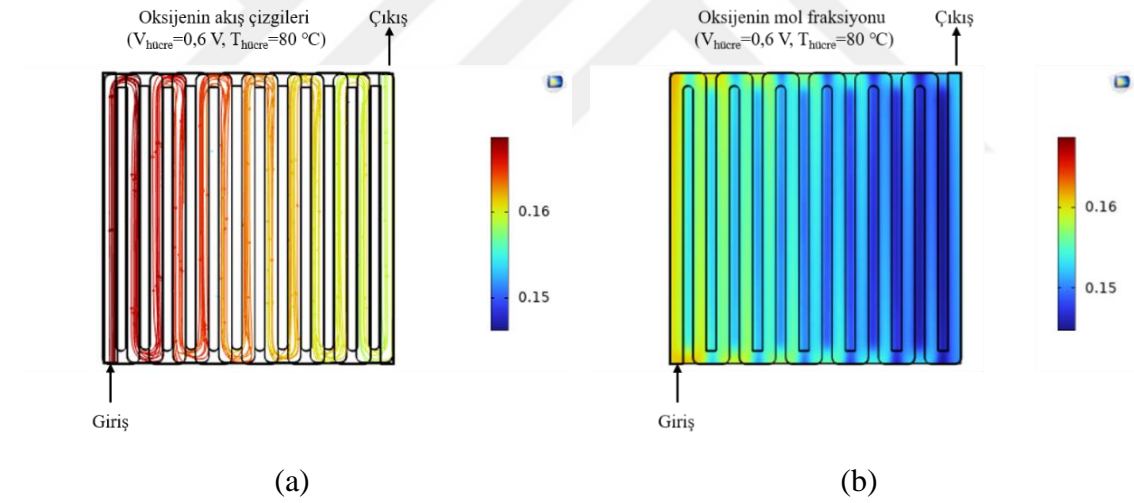
**Şekil 5.3.** Elektrolizör modu için basınç (a) ve hız dağılımı (b)

Yakıt hücresi modunda ise anot tarafından hidrojen beslenirken, katot tarafından hava beslenmekte ve birleştirilmiş rejeneratif PEM yakıt hücresine 80 °C ve 0,6 V voltaj uygulanırken, yakıt olarak hücreye beslenen hidrojen miktarının kanal çıkışına doğru

azaldığı Şekil 5.4'te görülmektedir. Benzer şekilde Şekil 5.5'te hücreye yakıt olarak beslenen hava miktarının da kanal çıkışına doğru azaldığı görülmektedir.

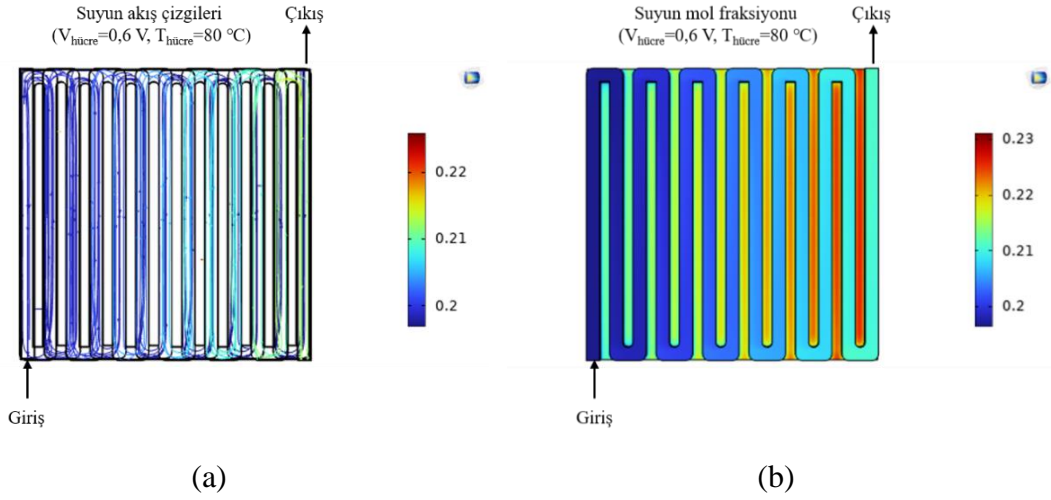


Şekil 5.4. Yakıt hücresi modu için hidrojen akış çizgileri (a) ve mol kesri dağılımı (b)



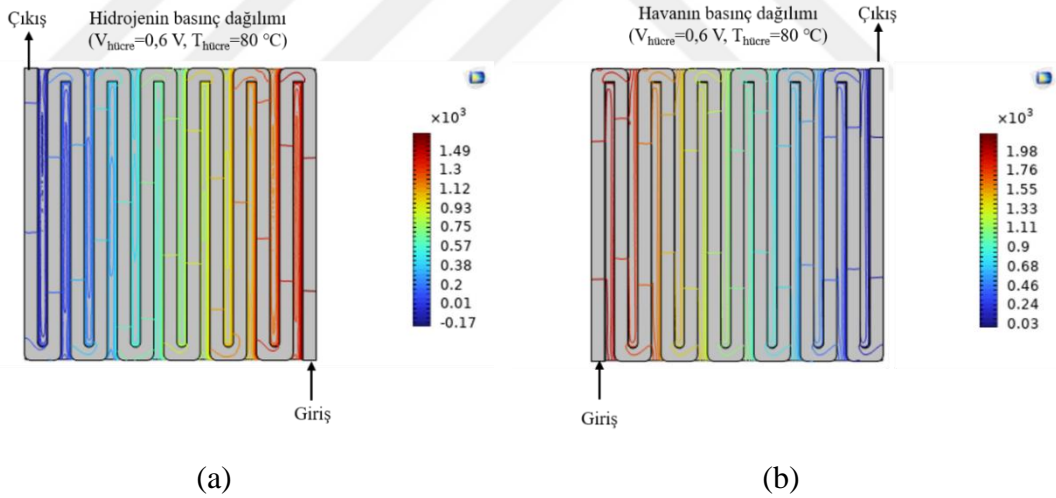
Şekil 5.5. Yakıt hücresi modu için oksijen akış çizgileri (a) ve mol kesri dağılımı (b)

Şekil 5.6, PEM yakıt hücresi reaksiyonu sonucunda açığa çıkan su miktarının kanal çıkışına doğru arttığını göstermektedir. Kullanılan MEG'in performansı nemli ortamlarda artmasına rağmen kanallardan reaktant geçişine engel olacak kadar birikecek olan su, performansı düşürecektir. Bu nedenle oluşan su, hücreden uzaklaştırılmıştır.



**Şekil 5.6.** Yakıt hücresi modu için su akım çizgisi (a) ve mol kesri dağılımı (b)

Şekil 5.7’de görüldüğü gibi yakıt hücresi modunda R-PEMYH’ye gönderilen hidrojen ve hava basıncı dağılımları girişte maksimum olup çıkışta azalmıştır. Bunun temel nedeni, hidrojen ve havadaki oksijenin kullanılarak azalmasıdır.



**Şekil 5.7.** Yakıt hücresi modu için hidrojen (a) ve havanın (b) basınç dağılımı

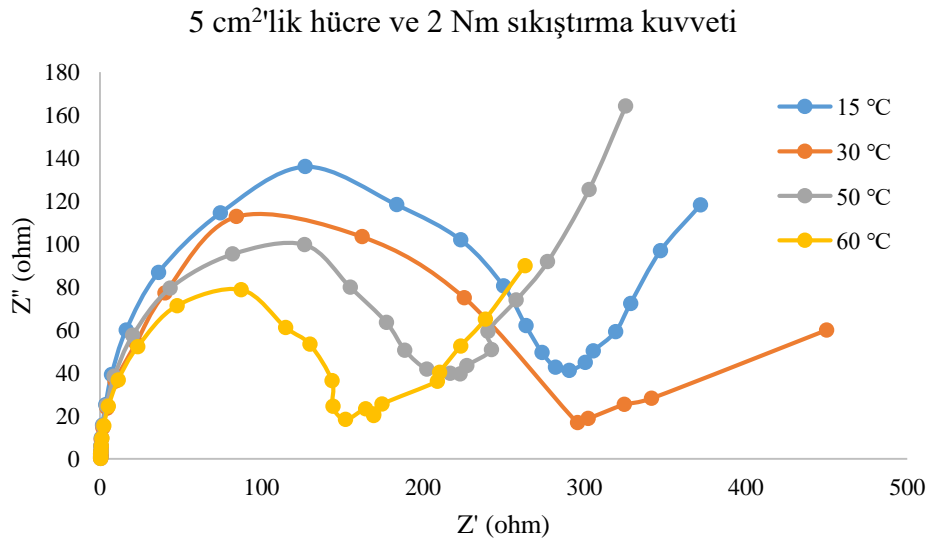
## 5.2 Deneysel Sonuçlar

Deneysel çalışmalarda kullanılan hücreler ve stak, basınç filmlerindeki homojen dağılım ve empedans dirençlerine göre belirlenen optimum sıkıştırma kuvvetleri uygulanarak elemanları bir araya getirilerek performans testleri yapılmıştır. Farklı sıcaklıklarda hem elektrolizör hem de yakıt hücresi modlarında çalıştırılarak, elektrolizör modunda üretilen

hidrojen ve oksijen gazı debisi, yakıt hücresi modunda ise elde edilen güç yoğunlukları verileri değerlendirilmiştir.

### 5.2.1 Sıkıştırma Torku Optimizasyon Çalışmaları ve Empedans Direnci

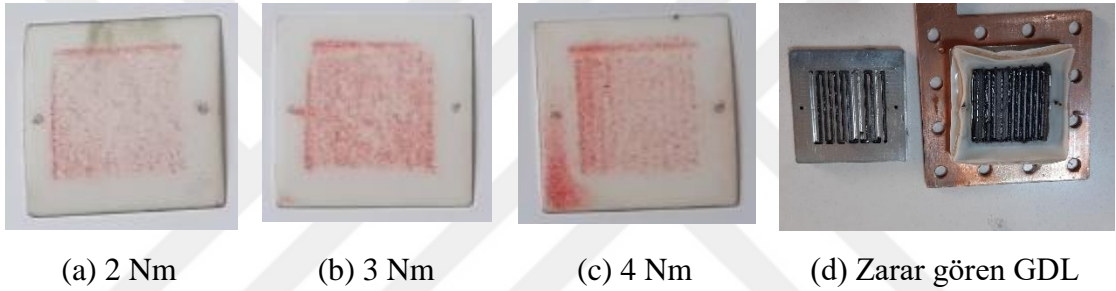
Çözelti direnci, yük transferi direnci gibi dirençlerin toplamı olan empedans direnci hücre verimliliğini doğrudan etkilemektedir. Düşük empedans değerleri daha yüksek iletkenliği göstermektedir (Balun Kayan ve Polat, 2017; Kayan ve Köleli, 2015). Sıkıştırma torku ve sıcaklığa bağlı değişen empedans direnci, Parstat 2273 marka elektrokimyasal empedans spektroskopisi cihazı kullanılarak 100 kHz-100 mHz aralığında, açık devre voltajında ölçülmüştür. Dört farklı sıcaklık (15 °C, 30 °C, 50 °C ve 60 °C) ve üç farklı sıkıştırma kuvveti (2 Nm, 3 Nm ve 4 Nm) kullanılarak sıkıştırılan 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücreden elde edilen Nyquist diyagramından elektrot arayüz özelliklerini tanımlamak mümkündür. Şekil 5.8'te 5 cm<sup>2</sup>'lik hücrenin 2 Nm tork ile sıkıştırıldığında alınan empedans grafiği görülmektedir. Sıcaklık arttıkça, aktivasyon kayıpları azalarak, reaksiyon ve kütle transfer hızlarının arttığından empedans direncinin düştüğü görülmektedir. Bu da hücre performansını artırmaktadır.



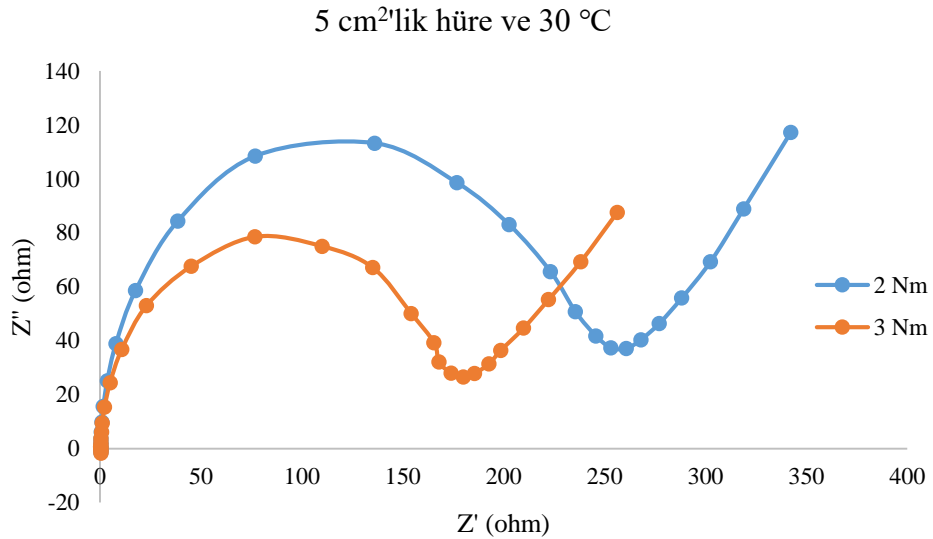
Şekil 5.8. 5 cm<sup>2</sup>'lik BR-PEMYH için sıcaklık ile empedans değişimi

Hücre elemanlarını bir araya getirip birleştirirken uyguladığımız sıkıştırma kuvveti kontak direncini dolayısı ile de empedansı doğrudan etkilemektedir. Sıkıştırma torku

artırıldığında reaktantların dolaştığı bipolar plakalar ile elektrokimyasal reaksiyonların meydana geldiği elektrolit tabakalar daha iyi temas halinde olduğundan temas direnci düşmektedir. Gereğinden fazla uygulandığında ise gaz difüzyon tabakalarına ve membrana zarar verdiğinden optimum sıkıştırma torqu basınç filmleri yardımı ile tayin edilmiştir. Kullanılan basınç filmleri Fotoğraf 5.1’de verilmiştir. Fotoğraflardan da görüldüğü üzere 2Nm’lik sıkıştırma torqu uygulandığında yeterli temas sağlanamamış, 4 Nm’lik sıkıştırma torqu uygulandığında ise gaz difüzyon tabakasında fazla baskı uygulama sonucu deformasyonlar oluşmuştur. Bu nedenle, 5 cm<sup>2</sup>’lik aktif alan sahip rejeneratif PEM yakıt hücresi için optimum sıkıştırma kuvveti 3 Nm olarak belirlenmiştir. Şekil 5.9’da da görüldüğü üzere, 5 cm<sup>2</sup>’lik hücre için 3 Nm olarak belirlenen sıkıştırma torqunda 2 Nm’ye göre daha düşük empedans direnci ölçülmüştür.

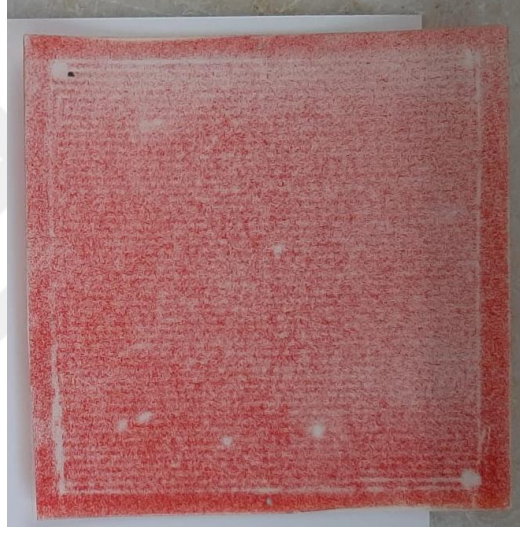


**Fotoğraf 5.1.** Sıkıştırma kuvveti optimizasyonunda kullanılan basınç filmleri

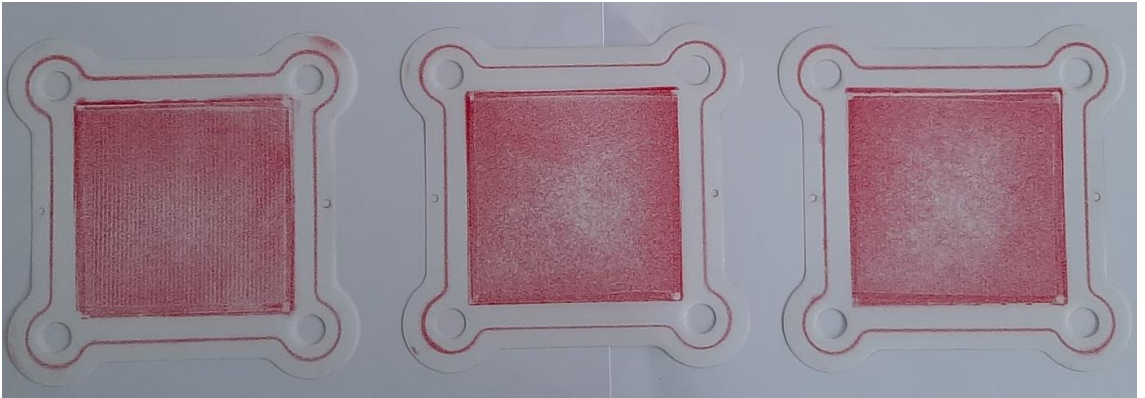


**Şekil 5.9.** 30 °C’de 2 ve 3 Nm için 5 cm<sup>2</sup>’lik BR-PEMYH için elde edilen empedans grafikleri

5 cm<sup>2</sup>'lik hücrede yapılan deneylerden sonra aynı ölçümler daha büyük ölçek olarak 100 cm<sup>2</sup>'lik hücrede gerçekleştirilmiştir. 100 cm<sup>2</sup>'lik hücre ve 3 hücreli stak montajında kullanılacak silikon conta kalınlıkları, cıvata sayıları ve sıkıştırma torku ile ilgili optimizasyon çalışmaları yapılarak her iki tasarım için de optimum değer 4 Nm olarak belirlenmiştir. 100 cm<sup>2</sup>'lik hücreden alınan basınç filmi Fotoğraf 5.2'de verilmiştir. Burada da görüldüğü üzere homojen bir basınç dağılımı sağlanmış aynı zamanda da gaz difüzyon tabakası ve MEG zarar görmemiştir. 3 hücreli staktan alınan basınç filmleri ise Fotoğraf 5.3'te verilmiştir. Fotoğrafta soldan sağa doğru 1. hücre, 2. hücre ve 3. hücreden alınan görüntüler birbirlerine yakın homojen bir basınç dağılımı sağlandığını göstermektedir.



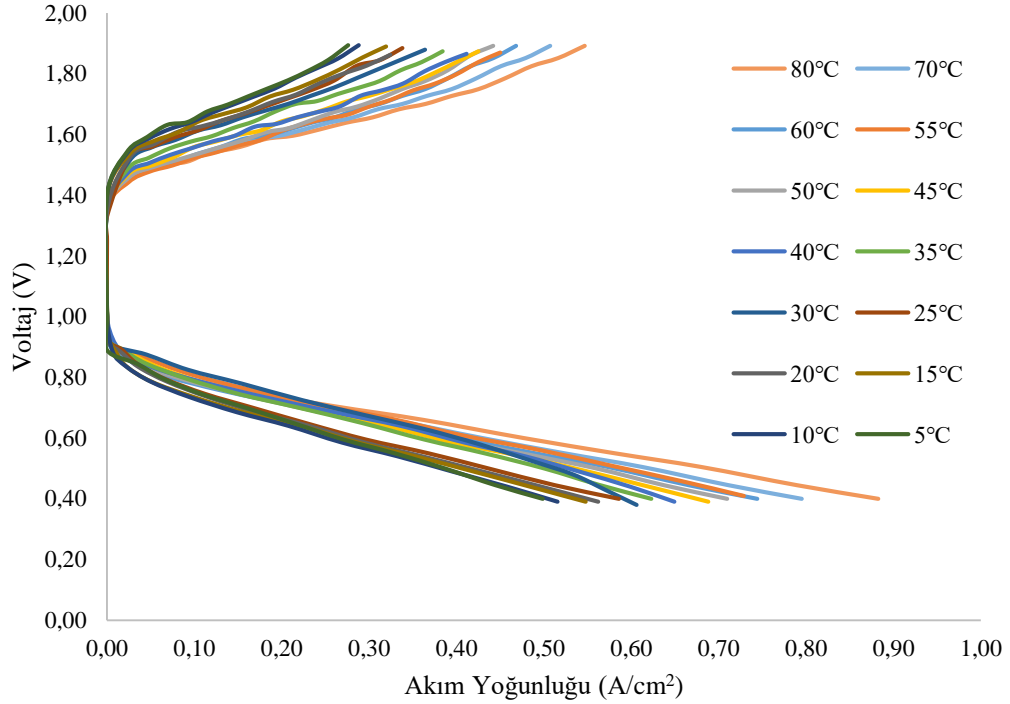
**Fotoğraf 5.2.** 100 cm<sup>2</sup>'lik hücre için basınç filmi



**Fotoğraf 5.3.** 3 hücreli staktan elde edilen basınç filmleri

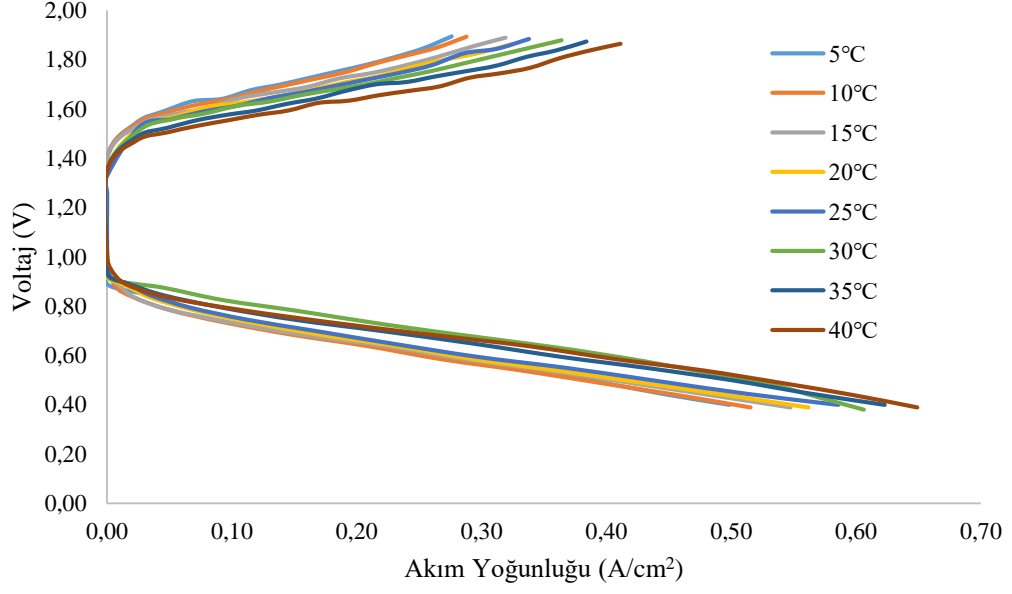
### 5.2.2 5 cm<sup>2</sup>'lik BR-PEMYH Performans Sonuçları

BR-PEMYH' ler kullanılan Nafion™ tabanlı membran elektrot grubunun (MEG) nemli halde iyonik iletkenliği arttığından testlere ilk olarak elektrolizör modunda başlanmış daha sonra yakıt hücresi modunda devam edilmiştir. 5 °C'den 80 °C'ye kadar farklı sıcaklıklarda alınan elektrolizör ve yakıt hücresi verileri Şekil 5.10'da verilmiştir.

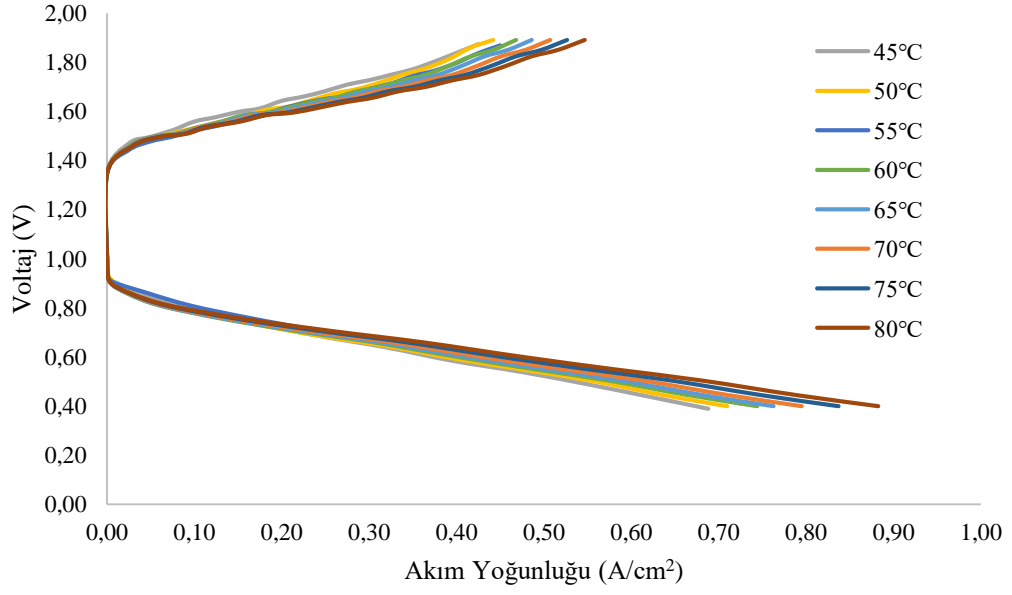


Şekil 5.10. 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH deney sonuçları

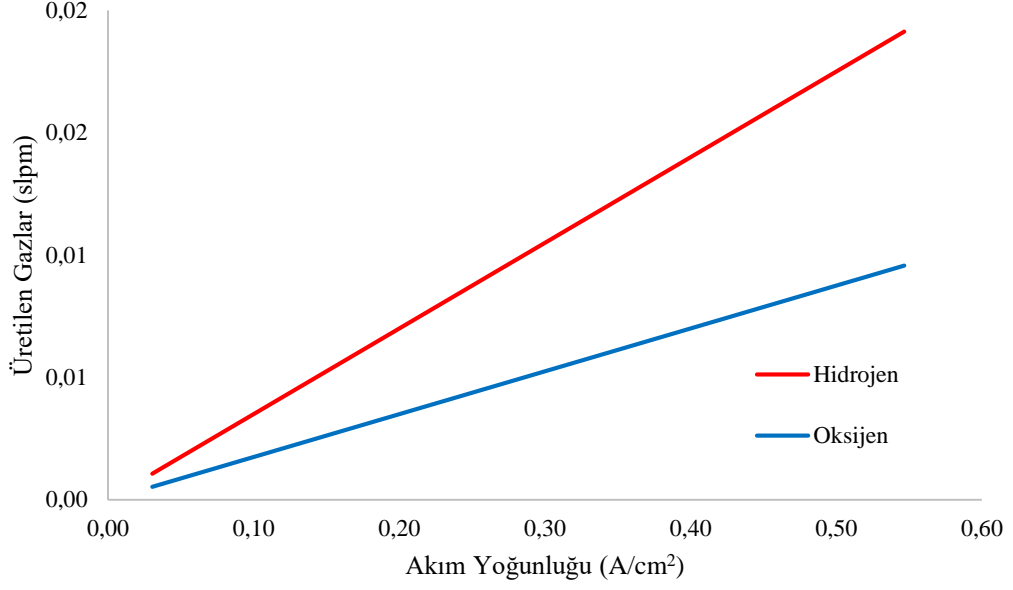
Çalışma sıcaklığı arttıkça, membranın iyon iletkenliği ve reaksiyon kinetiği artmakta dolayısı ile hücre performansı iyileşmektedir. Sıcaklığın artması membran deformasyonunu hızlandırmakta, metal malzemelerin korozyon direncini düşürmektedir. Hem elektrolizör hem yakıt hücresi modunda Şekil 5.10'da görüldüğü üzere artan sıcaklık ile aynı akım yoğunluğu değerleri elektrolizör modunda daha düşük potansiyelde elde edilirken yakıt hücresi modunda ise daha yüksek potansiyele karşılık gelmektedir. Bu da hücre veriminin sıcaklık ile doğru orantılı bir şekilde arttığını göstermektedir. Performans testleri düşük sıcaklık (5-40 °C) ve yüksek sıcaklık (45-80 °C) aralıklarında tekrar edilmiş, elde edilen sonuçlar Şekil 5.11 ve 5.12'de gösterilmiştir.



Şekil 5.11. 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH düşük sıcaklık deney sonuçları

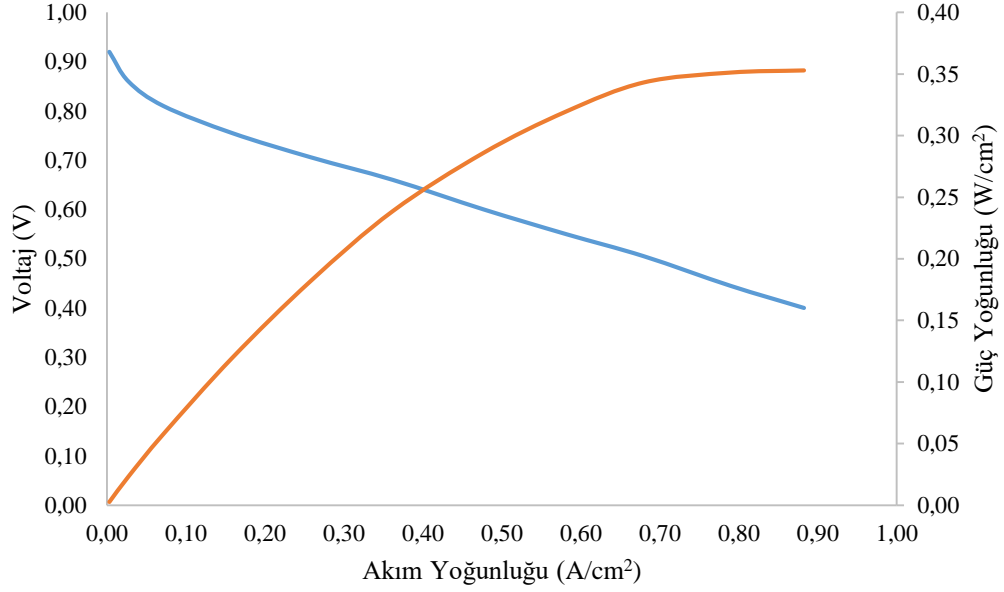


Şekil 5.12. 5 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH yüksek sıcaklık deney sonuçları



**Şekil 5.13.** BR-PEMYH (5cm<sup>2</sup> aktif alan) elektrolizör modunda 80 °C ve 1,89 V' de üretilen hidrojen ve oksijen gazı

Aynı zamanda, elektrolizör modunda elde edilen hidrojen ve oksijen gazı miktarı debimetre ile ölçülerek, elde edilen sonuçlar Şekil 5.13'te gösterilmiştir. 80 °C'de 1,89 V ve 0,547 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda dakikada 0,019 litre hidrojen gazı üretilirken 0,0095 litre de oksijen gazı üretilmektedir. Hücreden çekilen akım yoğunluğu arttıkça üretilen hidrojen ve oksijen miktarı da doğru orantılı bir şekilde artmaktadır.

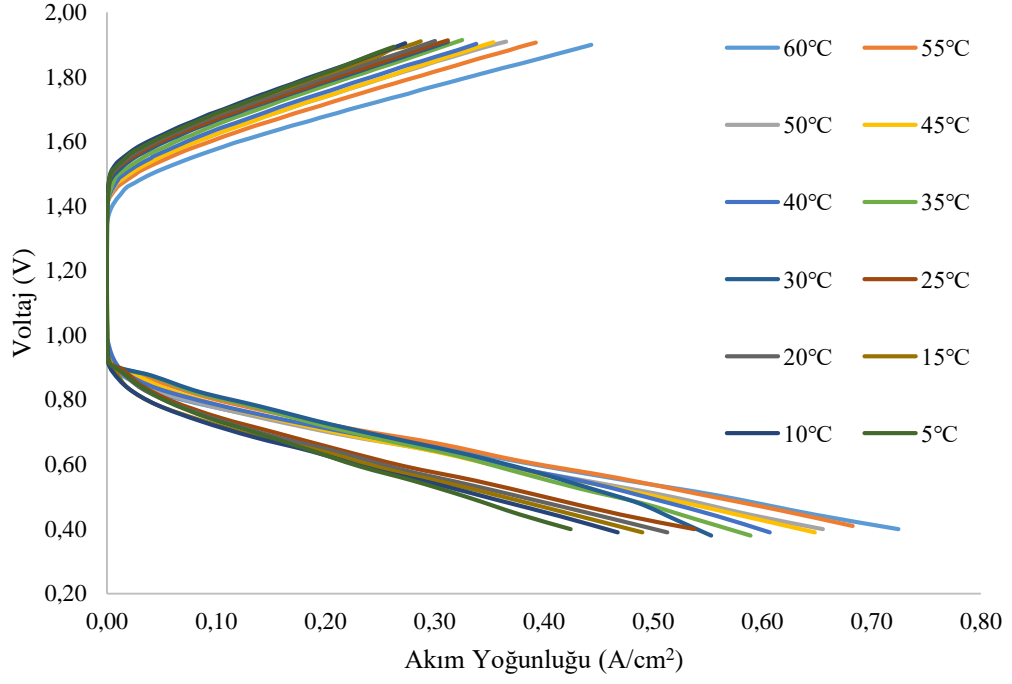


**Şekil 5.14.** BR-PEMYH (5cm<sup>2</sup> aktif alan) yakıt hücresi polarizasyon eğrisi

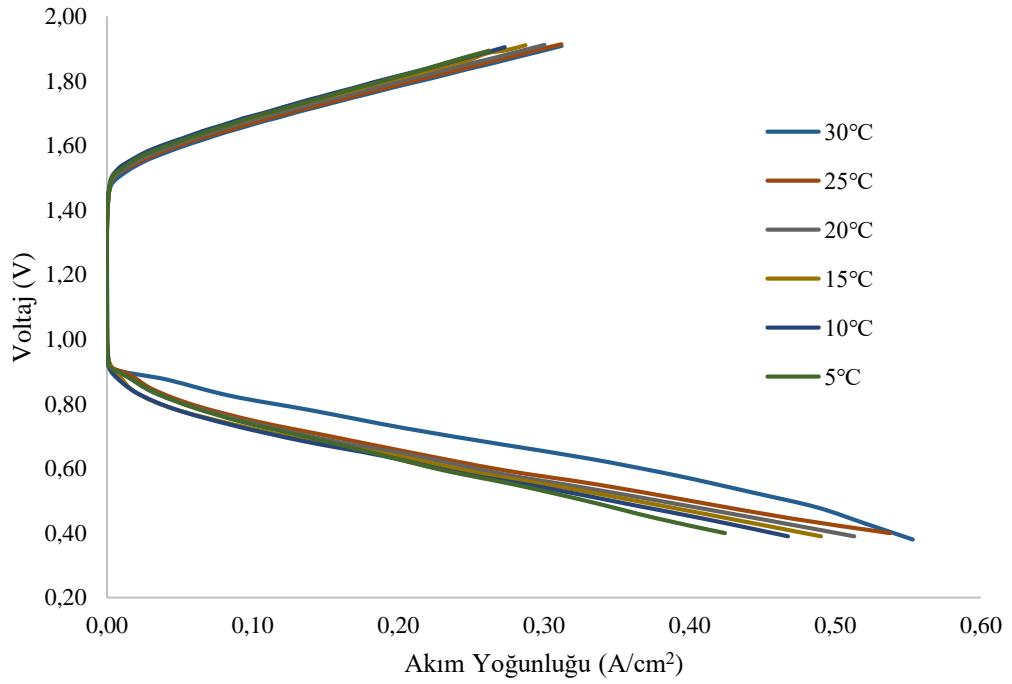
Yakıt hücresi modunda, 80 °C'de açık devre voltajı 0,92 V iken hücreden akım çektikçe voltaj düşmektedir. 5 cm<sup>2</sup>'lik aktif alana sahip hücreden elde edilen maksimum güç yoğunluğu ise 0,35 W/cm<sup>2</sup> olduğu Şekil 5.14'te görülmektedir. Hücrenin optimum çalışma voltajı iki eğrinin kesiştiği yaklaşık 0,64 V olarak belirlenebilir. Bu durumda ise elde edilen güç yoğunluğu 0,25 W/cm<sup>2</sup> olmaktadır.

### 5.2.3 100 cm<sup>2</sup>'lik BR-PEMYH Performans Sonuçları

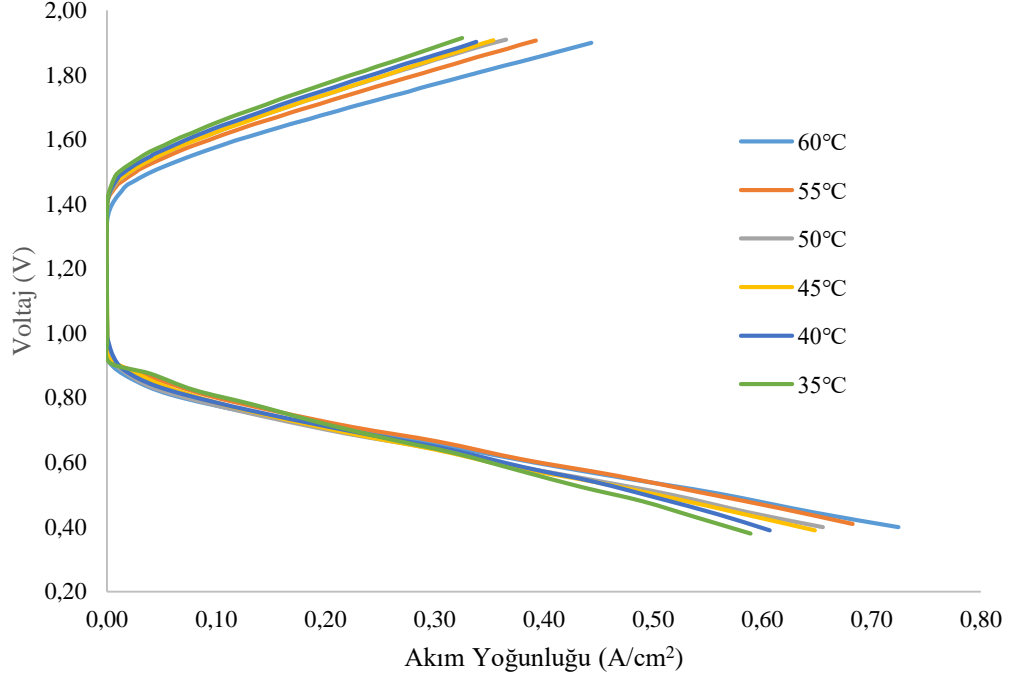
BR-PEMYH'lerinde aktif alanın artırılması elektrolizör modunda üretilen hidrojen ve oksijen gazı miktarını artırırken yakıt hücresi modunda ise elde edilen gücü artırmaktadır. 5 °C ile 60 °C aralığında yapılan performans testlerinde artan sıcaklık ile hem elektrolizör hem de yakıt hücresi performansının arttığı Şekil 5.15-17'de görülmektedir.



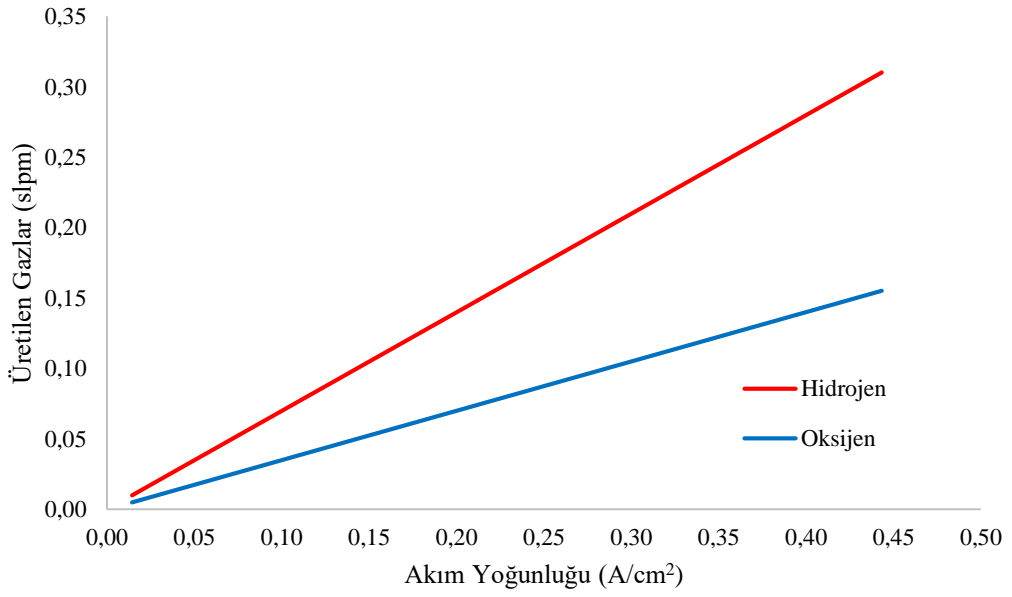
Şekil 5.15. 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH deney sonuçları



Şekil 5.16. 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH düşük sıcaklık deney sonuçları

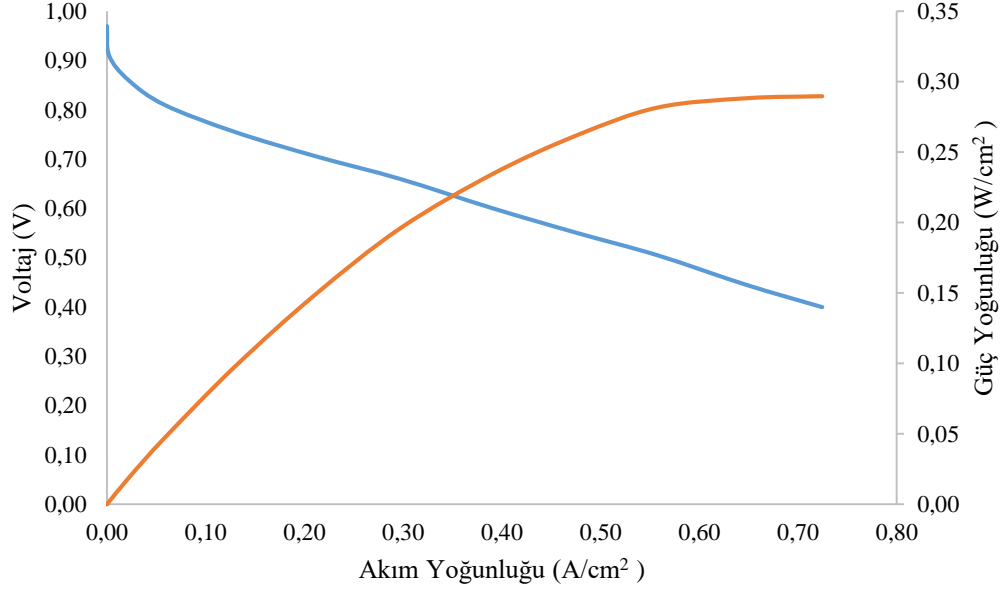


Şekil 5.17. 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip BR-PEMYH yüksek sıcaklık deney sonuçları



Şekil 5.18. BR-PEMYH (100 cm<sup>2</sup> aktif alan) elektrolizör modunda 60 °C' de üretilen hidrojen ve oksijen gazı

100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücreden elektrolizör modunda 1,9 V ve 0,443 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda dakikada 0,3 litre hidrojen gazı üretilirken 0,15 litre de oksijen gazı üretilmektedir (Şekil 5.18).

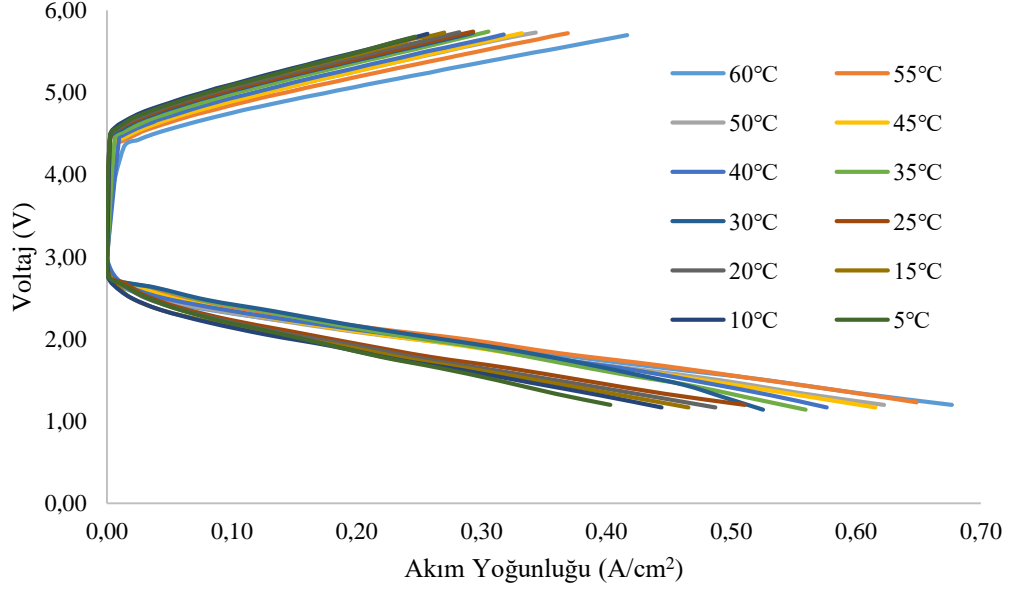


**Şekil 5.19.** BR-PEMYH (100 cm<sup>2</sup> aktif alan) yakıt hücresi polarizasyon eğrisi

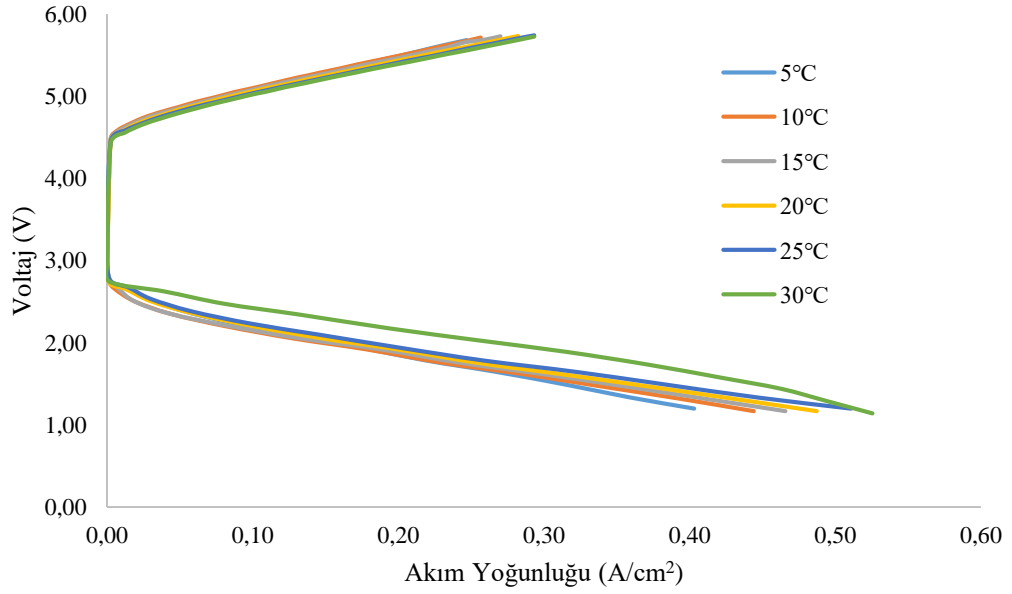
Yakıt hücresi modunda, 60 °C'de OCV değeri 0,92 V iken hücreden akım çekildikçe düşmektedir. 100 cm<sup>2</sup>'lik aktif alana sahip hücreden elde edilen maksimum güç yoğunluğu ise 0,29 W/cm<sup>2</sup> olduğu Şekil 5.19'da görülmektedir. Hücrenin optimum çalışma voltajı iki eğrinin çakıştığı yaklaşık 0,66 V olarak belirlenmiştir. Bu durumda ise elde edilen güç yoğunluğu 0,20 W/cm<sup>2</sup> olmaktadır.

#### 5.2.4 Stak Performans Sonuçları

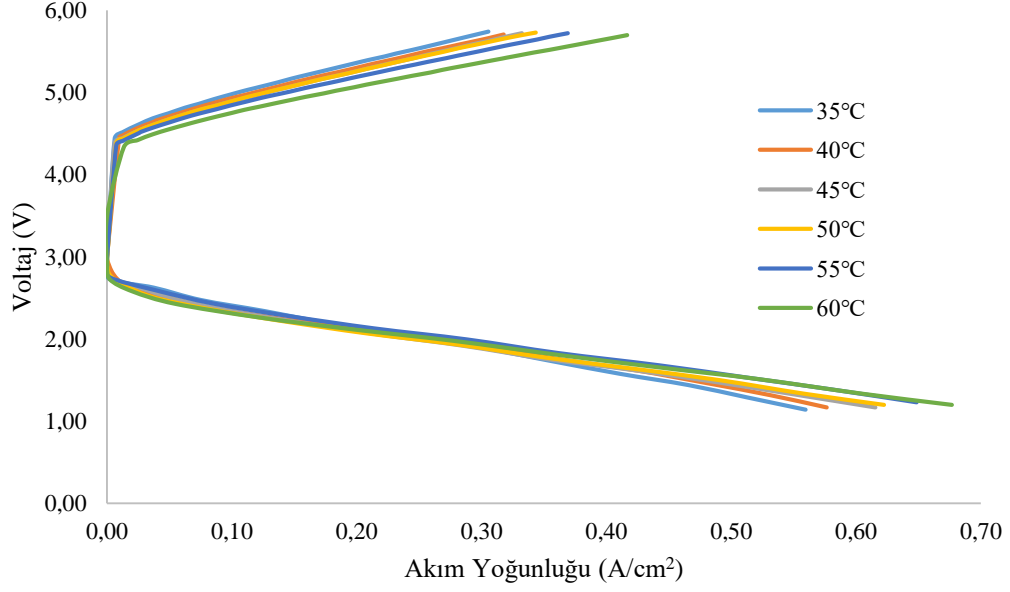
Üç adet 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip hücreden oluşan stak ile yapılan deneylerden alınan polarizasyon eğrileri Şekil 5.20-22'de verilmiştir. Her iki mod için de sıcaklık ile stak performansının arttığı açıkça görülmektedir. Kullanım yeri ve ihtiyaca göre hücre sayıları artırıp azaltılarak elektrolizör modunda gerekli hidrojen ve oksijen üretimi sağlanırken yakıt hücresi modunda ise ihtiyaç duyulan güç karşılanabilir.



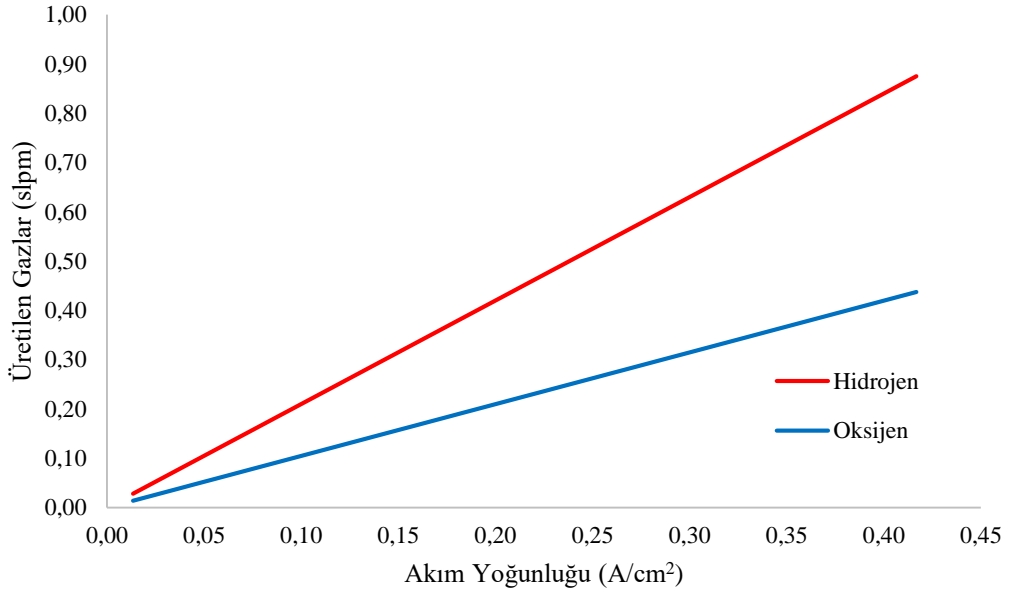
Şekil 5.20. BR-PEMYH 3 hücreli stak deney sonuçları



Şekil 5.21. BR-PEMYH stak düşük sıcaklık sonuçları

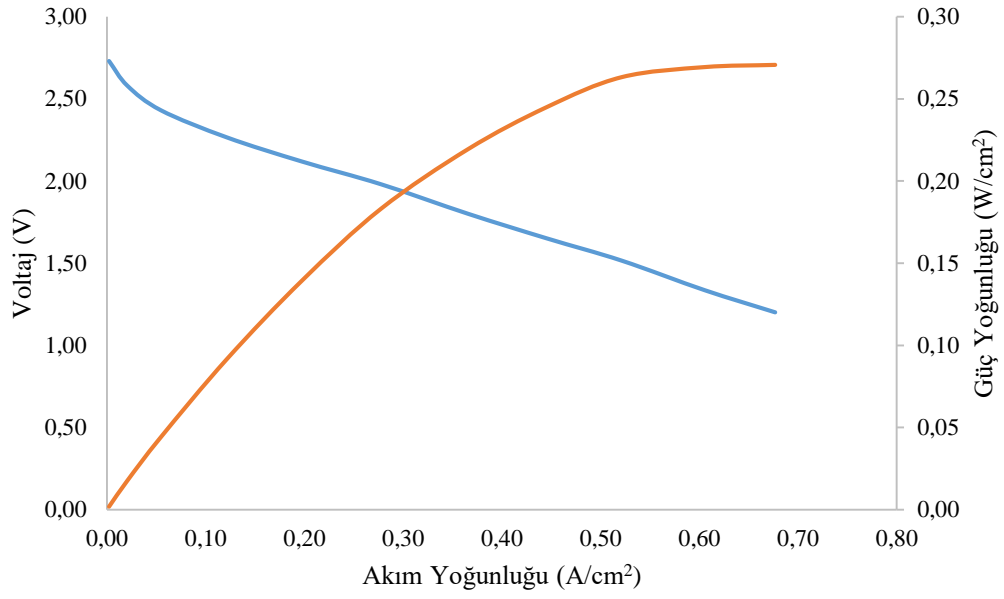


Şekil 5.22. BR-PEMYH stak yüksek sıcaklık sonuçları



Şekil 5.23. BR-PEMYH taşından elektrolizör modunda 60 °C'de üretilen hidrojen ve oksijen gazı

BR-PEMYH taşından elektrolizör modunda 60 °C'de 5,7 V ve 0,417 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda dakikada 0,875 litre hidrojen üretilirken 0,438 litre de oksijen üretilmektedir (Şekil 5.23).

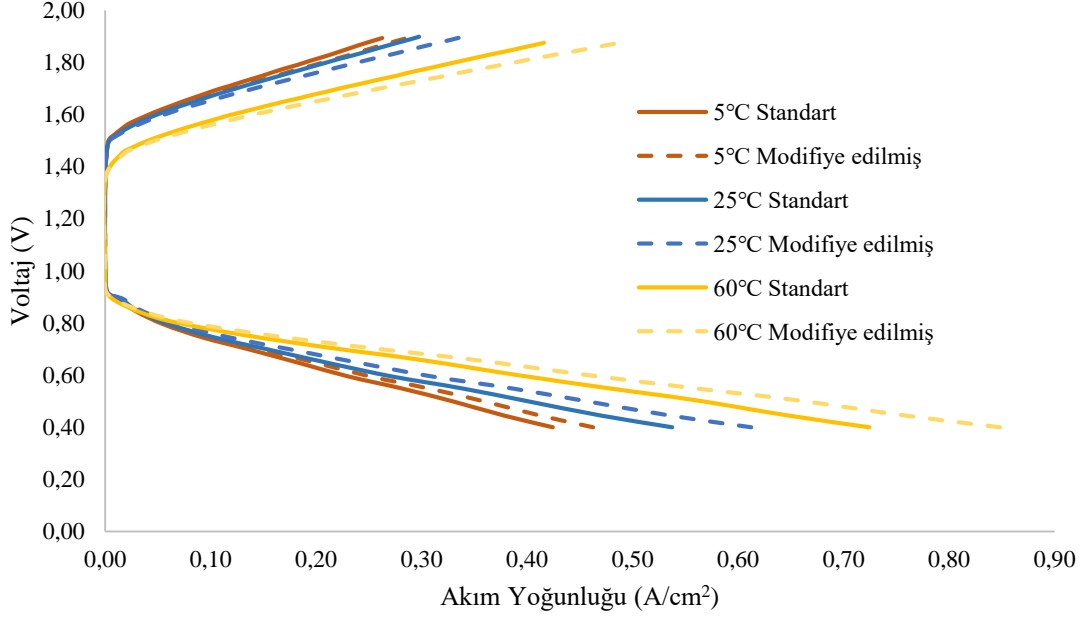


**Şekil 5.24.** BR-PEMYH stağı yakıt hücresi modu 60 °C’de polarizasyon eğrisi

BR-PEMYH stağından 60 °C’de elde edilen maksimum güç yoğunluğu 0,271 W/cm<sup>2</sup>’dir. Stak için optimum çalışma voltajı olan 2 V potansiyelde ise güç yoğunluğu 0,185 W/cm<sup>2</sup> olmaktadır (Şekil 5.24).

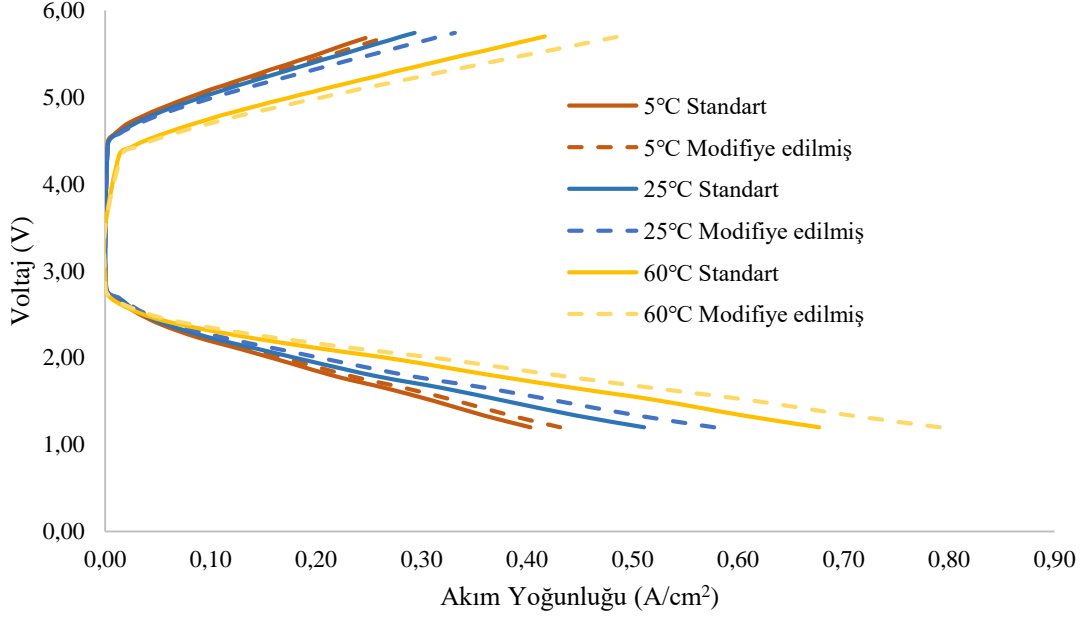
### 5.2.5 Modifiye Edilmiş (Katkılı) MEG Performans Sonuçları

Standart membran üzerine geliştirilen katalizör çözeltisi uygulandığında hem 100 cm<sup>2</sup>’lik tekli hücrede hem de stakta her iki mod için de performansının arttığı Şekil 5.25 ve 5.26’da görülmektedir. 100 cm<sup>2</sup>’lik tekli BR-PEMYH’sinden 60 °C’de yakıt hücresi modunda 0,7 V potansiyelde 0,212 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu elde edilirken aynı potansiyelde modifiye edilmiş membran ile 0,248 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu alınmıştır. Bu da %16,98’lik performans artışı olduğunu göstermektedir. Elektolizör modunda ise 1,76 V potansiyel uygulandığında 0,286 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilirken modifiye edilmiş membran ile 0,335 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilmiş olup %17,13’lük performans artışı görülmüştür (Şekil 5.25).



**Şekil 5.25.** 100 cm<sup>2</sup>'lik hücre için standart ve modifiye edilmiş MEG polarizasyon eğrileri

Modifiye edilmiş membranlar ile 3 lü stak oluşturulduğunda ise yakıt hücresi modunda standart membran ile 1,65 V potansiyelde 0,446 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilirken modifiye edilmiş membranlar ile 0,521 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilmiştir. Elektrolizör modunda ise stağa 5,49 V uygulandığında standart membranlar ile 0,342 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilirken modifiye edilmiş membranlar ile 0,4 A/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu çekilmiştir. Sonuç olarak modifiye edilmiş membranlar reaksiyon kinetiğini artırarak stak için yakıt hücresi modunda %16,81'lik, elektrolizör hücresi modunda ise %16,96'lık performans artışı sağlamıştır (Şekil 5.26).

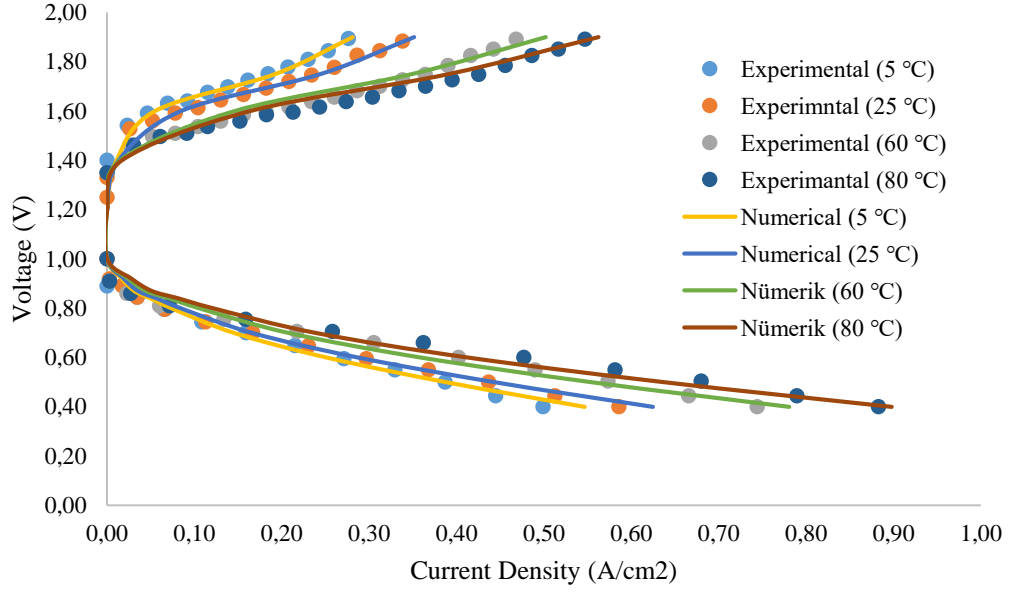


**Şekil 5.26.** Stak için standart ve modifiye edilmiş membran polarizasyon eğrileri

Wittsrat vd., 2005 farklı membran tipleri ile deneysel çalışmalar yapmış ve en iyi performansa sahip membran ile yakıt pili modunda  $0,5 \text{ A/cm}^2$  akım yoğunluğuna ulaşırken, elektrolizör modunda yaklaşık  $0,57 \text{ A/cm}^2$  akım yoğunluğuna ulaşmıştır. Grigoev vd., 2014 ise geliştirdikleri 7 hücreli rejeneratif PEM yakıt pili yığımından hem yakıt pili hem de elektrolizör modlarında  $0,5 \text{ A/cm}^2$  akım yoğunluğu elde etmişlerdir. Böylece elde ettiğimiz sonuçların literatürle de uyumlu olduğu görülmektedir.

### 5.3 Nümerik Sonuçların Doğrulanması

Tez çalışması kapsamında, COMSOL Multiphysics programı kullanılarak  $5 \text{ cm}^2$  aktif alana sahip rejeneratif PEM yakıt hücresi için geliştirilen modelden alınan akım yoğunluğu-voltaj eğrileri ile deneysel sonuçlar karşılaştırıldığında birbirleri ile uyumlu olduğu Şekil 5.27’de de görülmüştür.



Şekil 5.27. Deneysel ve numerik sonuçların karşılaştırılması

## BÖLÜM VI

### SONUÇ VE ÖNERİLER

Çalışma kapsamında 5 cm<sup>2</sup> ve 100 cm<sup>2</sup> aktif alana sahip iki farklı boyutta BR-PEMYH ile 100 cm<sup>2</sup>'lik aktif alana sahip 3 hücreden oluşan stak tasarımı geliştirilmiştir. Geliştirilen tasarımlar üretilmiş olup performans testleri yapılmıştır. Aynı zamanda COMSOL Multiphysics programı kullanılarak 3 boyutlu, iki fazlı model geliştirilerek çözdürülmüştür. Deneylerden aldığımız datalar ile numerik analiz sonucu aldığımız datalar karşılaştırılmış ve sonuçların birbirleri ile uyumlu olduğu görülmüştür. Böylece matematiksel model doğrulanmıştır.

Küçük aktif alandan endüstriyel boyutlara geçişte karşılaşılan sızdırmazlık, hücreler arası reaktant akışı, iletkenlik gibi durumlar tecrübe edilerek çözüm geliştirilmiştir. Hücre elemanlarını bir araya getirirken uygulanan sıkıştırma torkunun homojen dağılımına katkı sağlayan stak dizaynı yapılmıştır.

BR-PEMYH'de en yüksek maliyeti oluşturan MEG ile ilgili modifikasyon çalışması yapılarak tek hücre ve stak performansında iyileşmeler elde edilmiştir.

Modifiye edilmiş MEG'ler ile 3 hücreli, yakıt hücresi modunda maksimum 94,94 W güç ve elektrolizör modunda maksimum 61,37 l/sa. hidrojen gazı ile 30,69 l/sa. oksijen gazı üretim kapasiteli bir prototip geliştirilmiştir.

BR-PEMYH elemanlarından olan bipolar plaka ile ilgili alternatif malzeme ve üretim şekli üzerine yapılacak çalışmalar literatüre büyük katkı sağlayacaktır. İlerde hem bu konu üzerinde hem de soy metal içeriği azaltılarak ucuzlatılmış MEG üretimi ile ilgili çalışmalar yürütülecektir.

Konu ile ilgili önerileri ise şu şekilde sıralayabiliriz;

1. Bipolar plakaların monel alaşım levhadan üretilerek nano seviyede gümüş kaplama kalınlıkları maliyet, iletkenlik ve korozyon direnç değerlerine göre optimize edilerek kütle kayıplarının minimize edilmesi hedeflenebilir.

2. BR-PEMYH'nin en önemli proses parametrelerinden olan ortalama çıkış basıncı ticari olan elektrolizörler için 30-50 bar aralığındadır. Geliştirilen BR-PEMYH stağı elektrolizör modunda farklı basınçlarda (1-100 bar) çalıştırılarak performans analizleri yapılabilir.
3. BR-PEMYH'de sıklıkla karşılaşılan, sistemin yüksek basınçta çalışmasından ve hücre içerisindeki iki fazlı akışlara müdahale edilememesinden kaynaklanan suyun hücre içerisine alınamaması veya oksijenin her iki manifolddan çıkabilmesi sorunlarının manyetik alan oluşturularak çözülebilir.
4. BR-PEMYH performansının, ultrasonik radyasyon kullanılan yeni bir yöntemle artırılacağı ön görülmektedir. Ultrasonik frekans, akustik güç gibi değişkenler bu kapsamda incelenerek PEM elektrolizörün en iyi performansı gösterdiği optimum koşullar belirlenebilir.
5. Stağın uzun süreli çalışma testleri de yapılabilir.

## KAYNAKLAR

Alvar, E.N., Zhou, B., ve Eichhorn, S.H., “Oxidative treatment to improve coating and electrochemical stability of carbon fiber paper with niobium doped titanium dioxide sols for potential applications in fuel cells” *Electrochimica Acta*, 132, 347–355, 2014.

Antolini, E., ve Gonzalez, E.R., “Ceramic materials as supports for low-temperature fuel cell catalysts” *Solid State Ionics*, 180(9–10), 746–763, 2009.

Ardizzone, S., Fregonara, G., ve Trasatti, S., “Inner and outer active surface of RuO<sub>2</sub> electrodes” *Electrochimica Acta*, 35(1), 263–267, 1990.

Aricò, A.S., Stassi, A., Modica, E., Ornelas, R., Gatto, I., Passalacqua, E., ve Antonucci, V., “Performance and degradation of high temperature polymer electrolyte fuel cell catalysts” *Journal of Power Sources*, 178(2), 525–536, 2008.

Audichon, T., Mayousse, E., Morisset, S., Morais, C., Comminges, C., Napporn, T.W., ve Kokoh, K.B., “Electroactivity of RuO<sub>2</sub>–IrO<sub>2</sub> mixed nanocatalysts toward the oxygen evolution reaction in a water electrolyzer supplied by a solar profile” *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(30), 16785–16796, 2014.

Balun Kayan, D., ve Polat, V., “Improvement of electrochemical and structural properties of polycarbazole by simultaneous electrodeposition of chitosan” *Turkish Journal of Chemistry*, 41(2), 233–242, 2017.

Bhosale, A.C., Mane, S.R., Singdeo, D., ve Ghosh, P.C., “Modeling and experimental validation of a unitized regenerative fuel cell in electrolysis mode of operation” *Energy*, 121, 256–263, 2017.

Bhosale, A.C., Mane, S.R., Singdeo, D., ve Ghosh, P.C., “Modeling and experimental validation of a unitized regenerative fuel cell in electrolysis mode of operation” *Energy*, 121, 256–263, 2017.

Bilgili, M., ve Sivrioğlu, M., “3D numerical analysis of PEM fuel cell at different meathicknesses and operating pressure conditions” *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 31(1), 2016.

Burke, K.A., “Unitized regenerative fuel cell system development” *1st International Energy Conversion Engineering Conference IECEC*, December, 2003.

Busquet, S., Hubert, C.E., Labbé, J., Mayer, D., ve Metkemeijer, R., “A new approach to empirical electrical modelling of a fuel cell, an electrolyser or a regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 134(1), 41–48, 2004.

Chen, G., Delafuente, D.A., Sarangapani, S., ve Mallouk, T.E., “Combinatorial discovery of bifunctional oxygen reduction — water oxidation electrocatalysts for regenerative fuel cells” *Catalysis Today*, 67(4), 341–355, 2001.

Chen, G., Delafuente, D.A., Sarangapani, S., ve Mallouk, T.E., “Combinatorial discovery of bifunctional oxygen reduction — water oxidation electrocatalysts for regenerative fuel cells” *Catalysis Today*, 67(4), 341–355, 2001.

Chen, G., Zhang, H., Zhong, H., ve Ma, H., “Gas diffusion layer with titanium carbide for a unitized regenerative fuel cell” *Electrochimica Acta*, 55(28), 8801–8807, 2010.

Chhina, H., Campbell, S., ve Kesler, O., “Thermal and electrochemical stability of tungsten carbide catalyst supports” *Journal of Power Sources*, 164(2), 431–440, 2007.

Chun, J.H., Jo, D.H., Kim, S.G., Park, S.H., Lee, C.H., Lee, E.S., Jyoung, J.Y., ve Kim, S.H., “Development of a porosity-graded micro porous layer using thermal expandable graphite for proton exchange membrane fuel cells” *Renewable Energy*, 58, 28–33, 2013.

Chung, C.Y., Chen, S.K., Chin, T.S., Ko, T.H., Lin, S.W., Chang, W.M., ve Hsiao, S.N., “Catalyst layer-free carbon-coated steel—An easy route to bipolar plates of polymer electrolyte membrane fuel cells: Characterization on structure and electrochemistry” *Journal of Power Sources*, 186(2), 393–398, 2009.

Cruz, J.C., Baglio, V., Siracusano, S., Ornelas, R., Arriaga, L.G., Antonucci, V., ve Aricò, A.S., “Nanosized Pt/IrO<sub>2</sub> electrocatalyst prepared by modified polyol method for application as dual function oxygen electrode in unitized regenerative fuel cells” *International Journal of Hydrogen Energy*, 37(7), 5508–5517, 2012.

Cruz, J.C., Rivas, S., Beltran, D., Meas, Y., Ornelas, R., Osorio-Monreal, G., Ortiz-Frade, L., Ledesma-García, J., ve Arriaga, L.G., “Synthesis and evaluation of ATO as a support for Pt-IrO<sub>2</sub> in a unitized regenerative fuel cell” *International Journal of Hydrogen Energy*, 37(18), 13522–13528, 2012.

Di Blasi, A., D’Urso, C., Baglio, V., Antonucci, V., Arico, A.S., Ornelas, R., Matteucci, F., Orozco, G., Beltran, D., Meas, Y., ve Arriaga, L.G., “Preparation and evaluation of RuO<sub>2</sub>–IrO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>–Pt and IrO<sub>2</sub>–Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> catalysts for the oxygen evolution reaction in an SPE electrolyzer” *Journal of Applied Electrochemistry*, 39(2), 191–196, 2009.

Dutta, K., Rana, D., Han, H.S., ve Kundu, P.P., “Unitized Regenerative Fuel Cells: A Review on Developed Catalyst Systems and Bipolar Plates” *Fuel Cells*, 17(6), 736–751, 2017.

Escalante-García, I.L., Duron-Torres, S.M., Cruz, J.C., ve Arriaga-Hurtado, L.G., “Electrochemical characterization of IrO<sub>2</sub>-Pt and RuO<sub>2</sub>-Pt mixtures as bifunctional electrodes for unitized regenerative fuel cells” *J New Mat Electrochem Sys*, 13, 227–233, 2010.

Fedotov, A.A., Grigoriev, S.A., Millet, P., ve Fateev, V.N., “Plasma-assisted Pt and Pt–Pd nano-particles deposition on carbon carriers for application in PEM electrochemical cells” *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(20), 8568–8574, 2013.

Gabbasa, M., Sopian, K., Fudholi, A., ve Asim, N., “A review of unitized regenerative fuel cell stack: Material, design and research achievements” *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(31), 17765–17778, 2014.

García, G., Roca-Ayats, M., Lillo, A., Galante, J.L., Peña, M.A., ve Martínez-Huerta, M.V., “Catalyst support effects at the oxygen electrode of unitized regenerative fuel cells” *Catalysis Today*, 210, 67–74, 2013.

Genç, Ö., ve Kallioğlu, M.A., “ProtonElektrolit Membranli (Pem)Elektrolizörün Sayısalİncelenmesi ve Deneysel Doğrulanması” *Ömer Halisdemir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 7(1), 370–380, 2018.

Grigoriev S.A., Millet P, Porembsky V.I., Fateev V.N., “Development and preliminary testing of a unitized regenerative fuel cell based on PEM technology” *Int J Hydrogen Energy* 36:4164–8, 2011.

Grigoriev, S.A., Millet, P., Porembsky, V.I., ve Fateev, V.N., “Development and preliminary testing of a unitized regenerative fuel cell based on PEM technology” *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(6), 4164–4168, 2011.

Gupta, N., Gupta, S.M., ve Sharma, S.K., “Carbon nanotubes: synthesis, properties and engineering applications” *Carbon Letters*, 29(5), 419–447, 2019.

Gutsche, C., Moeller, C.J., Knipper, M., Borchert, H., Parisi, J., ve Plaggenborg, T., “Synthesis, Structure, and Electrochemical Stability of Ir-Decorated RuO<sub>2</sub> Nanoparticles and Pt Nanorods as Oxygen Catalysts” *The Journal of Physical Chemistry C*, 120(2), 1137–1146, 2016.

Hayat, A., Al-Sehemi, A.G., El-Nasser, K.S., Taha, T.A., Al-Ghamdi, A.A., Jawad Ali Shah Syed, Amin, M.A., Ali, T., Bashir, T., Palamanit, A., Khan, J., ve Nawawi, W.I., “Graphitic carbon nitride (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)-based semiconductor as a beneficial candidate in photocatalysis diversity” *International Journal of Hydrogen Energy*, 47(8), 5142–5191, 2022.

Hodgson, D.R., May, B., Adcock, P.L., ve Davies, D.P., “New lightweight bipolar plate system for polymer electrolyte membrane fuel cells” *Journal of Power Sources*, 96(1), 233–235, 2001.

<https://www.fuelcellsetc.com/store/Reversible-CCM>, (Anonymous, Aralık 2022)

Huang, S.Y., Ganesan, P., Jung, H.Y., ve Popov, B.N., “Development of supported bifunctional oxygen electrocatalysts and corrosion-resistant gas diffusion layer for unitized regenerative fuel cell applications” *Journal of Power Sources*, 198, 23–29, 2012.

Hunsom, M., Kaewsai, D., ve Kannan, A.M., “Recent developments in bifunctional air electrodes for unitized regenerative proton exchange membrane fuel cells – A review” *International Journal of Hydrogen Energy*, 43(46), 21478–21501, 2018.

Hwang, C.M., Ishida, M., Ito, H., Maeda, T., Nakano, A., Hasegawa, Y., Yokoi, N., Kato, A., ve Yoshida, T., “Influence of properties of gas diffusion layers on the performance of polymer electrolyte-based unitized reversible fuel cells” *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(2), 1740–1753, 2011.

Hwang, C.M., Ishida, M., Ito, H., Maeda, T., Nakano, A., Kato, A., ve Yoshida, T., “Effect of titanium powder loading in gas diffusion layer of a polymer electrolyte unitized reversible fuel cell” *Journal of Power Sources*, 202, 108–113, 2012.

Ismael, M.,” A review on graphitic carbon nitride (g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) based nanocomposites: Synthesis, categories, and their application in photocatalysis” *Journal of Alloys and Compounds*, 846, 156446, 2020.

Jeevagan, A.J., Suzuki, Y., Gunji, T., Saravanan, G., Irii, Y., Tsuda, T., Onobuchi, T., Kaneko, S., Kobayashi, G., ve Matsumoto, F., “Electrocatalytic Oxygen Reduction and Water-Oxidation on Transition Metal Ion-Doped MnO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub> and IrO<sub>2</sub> in Alkaline Aqueous Solutions” *ECS Transactions*, 58(20), 9, 2014.

Jung, H.Y., Park, S., ve Popov, B.N., “Electrochemical studies of an unsupported PtIr electrocatalyst as a bifunctional oxygen electrode in a unitized regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 191(2), 357–361, 2009a.

Jung, H.Y., Park, S., ve Popov, B.N., “Electrochemical studies of an unsupported PtIr electrocatalyst as a bifunctional oxygen electrode in a unitized regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 191(2), 357–361, 2009b.

Jung, H.Y., Huang, S.Y., Ganesan, P., ve Popov, B.N., “Performance of gold-coated titanium bipolar plates in unitized regenerative fuel cell operation” *Journal of Power Sources*, 194(2), 972–975, 2009.

Kayan, D.B., ve Köleli, F., “Dinitrogen reduction on a polypyrrole coated Pt electrode under high-pressure conditions: Electrochemical impedance spectroscopy studies” *Turkish Journal of Chemistry*, 39(3), 648–659, 2015.

Kinumoto, T., Nagano, K., Tsumura, T., ve Toyoda, M., “Thermal and electrochemical durability of carbonaceous composites used as a bipolar plate of proton exchange membrane fuel cell” *Journal of Power Sources*, 195(19), 6473–6477, 2010.

Kong, F.D., Zhang, S., Yin, G.P., Wang, Z.B., Du, C.Y., Chen, G.Y., ve Zhang, N., “Electrochemical studies of Pt/Ir-IrO<sub>2</sub> electrocatalyst as a bifunctional oxygen electrode” *International Journal of Hydrogen Energy*, 37(1), 59–67, 2012.

Kong, F.D., Zhang, S., Yin, G.P., Zhang, N., Wang, Z.B., ve Du, C.Y., “Pt/porous-IrO<sub>2</sub> nanocomposite as promising electrocatalyst for unitized regenerative fuel cell” *Electrochemistry Communications*, 14(1), 63–66, 2012a.

Kong, F.D., Zhang, S., Yin, G.P., Zhang, N., Wang, Z.B., ve Du, C.Y., “Preparation of Pt/Ir<sub>x</sub>(IrO<sub>2</sub>)<sub>10-x</sub> bifunctional oxygen catalyst for unitized regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 210, 321–326, 2012b.

Li, P., Qiu, D., Peng, L., Shen, S., ve Lai, X., “ Analysis of degradation mechanism in unitized regenerative fuel cell under the cyclic operation” *Energy Conversion and Management*, 254, 115210, 2002.

Lin, M.T., Wan, C.H., ve Wu, W., “Comparison of corrosion behaviors between SS304 and Ti substrate coated with (Ti,Zr)N thin films as Metal bipolar plate for unitized regenerative fuel cell” *Thin Solid Films*, 544, 162–169, 2013.

Liu, Q., Shi, Y., Zheng, S., Ning, L., Ye, Q., Tao, M., ve He, Y., “Amine-functionalized low-cost industrial grade multi-walled carbon nanotubes for the capture of carbon dioxide” *Journal of Energy Chemistry*, 23:111–8, 2014.

Millet, P., Ngameni, R., Grigoriev, S.A., ve Fateev, V.N., “Scientific and engineering issues related to PEM technology: Water electrolyzers, fuel cells and unitized regenerative systems” *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(6), 4156–4163, 2011.

Morin-Crini, N., Lichtfouse, E., Torri, G., ve Crini, G., “Fundamentals and Applications of Chitosan” *Sustainable Agriculture Reviews 35: Chitin and Chitosan: History, Fundamentals and Innovations* (ss. 49–123), 2019. Springer International Publishing.

Nasrollahzadeh, M., Sajjadi, M., Irvani, S., ve Varma, R.S., “Starch, cellulose, pectin, gum, alginate, chitin and chitosan derived (nano)materials for sustainable water treatment: A review” *Carbohydrate Polymers*, 251, 116986, 2021.

Oral, E. “Hidrojen Yakıtlı Proton Dönüşüm Zarlı Yakıt Pili Ve Modellenmesi” *Kirikkale University, Yüksek Lisans Tezi*, 2005.

Pai, Y.H., ve Tseng, C.W., “Preparation and characterization of bifunctional graphitized carbon-supported Pt composite electrode for unitized regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 202, 28–34, 2012

Park, S., ve Popov, B.N., “Effect of cathode GDL characteristics on mass transport in PEM fuel cells” *Fuel*, 88(11), 2068–2073, 2009.

Park, S., ve Popov, B.N., “Effect of a GDL based on carbon paper or carbon cloth on PEM fuel cell performance” *Fuel*, 90(1), 436–440, 2011.

Paul, B., ve Andrews, J., “PEM unitised reversible/regenerative hydrogen fuel cell systems: State of the art and technical challenges” *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 79(April 2016), 585–599, 2017.

Paunović, P., Popovski, O., Fidančevska, E., Ranguelov, B., Gogovska, D.S., Dimitrov, A.T., ve Jordanov, S.H., “Co-Magneli phases electrocatalysts for hydrogen/oxygen evolution” *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(19), 10073–10080, 2010.

Pettersson, J., Ramsey, B.J., ve Harrison, D.J. “ Fabrication of bifunctional membrane electrode assemblies for unitised regenerative polymer electrolyte fuel cells” *Electronics Letters*, 42, 25, 2006.

Pu, Z., Zhang, G., Hassanpour, A., Zheng, D., Wang, S., Liao, S., Chen, Z., ve Sun, S., “Regenerative fuel cells: Recent progress, challenges, perspectives and their applications for space energy system” *Applied Energy*, 283(May 2020), 116376, 2021.

Qu, L., Liu, Y., Baek, J.B., ve Dai, L., “Nitrogen-doped graphene as efficient metal-free electrocatalyst for oxygen reduction in fuel cells” *ACS Nano*, 4(3), 1321–1326, 2010.

Radovic, L.R., “Energy and Fuels In Society” *M.G. Hill (Ed.), Energy and Fuels in Society (Second Edi)*. Primis, 1997.

Rasten, E., ”Electrocatalysis in Water Electrolysis with Solid Polymer Electrolyte” *Science And Technology*, 7264, 2001.

Roca-Ayats, M., García, G., Galante, J.L., Peña, M.A., ve Martínez-Huerta, M.V., “Electrocatalytic stability of Ti based-supported Pt3Ir nanoparticles for unitized regenerative fuel cells” *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(10), 5477–5484, 2014.

Roca-Ayats, M., Herreros, E., García, G., Peña, M.A., ve Martínez-Huerta, M.V., “Promotion of oxygen reduction and water oxidation at Pt-based electrocatalysts by titanium carbonitride” *Applied Catalysis B: Environmental*, 183, 53–60, 2016.

Sadhasivam, T., Dhanabalan, K., Roh, S.H., Kim, T.H., Park, K.W., Jung, S., Kurkuri, M.D., ve Jung, H.Y., “A comprehensive review on unitized regenerative fuel cells: Crucial challenges and developments” *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(7), 4415–4433, 2017.

Singh A, Miyabayashi K., “Novel continuous flow synthesis of Pt NPs with narrow size distribution for Pt@carbon catalysts” *RSC Adv*, 10:362–6, 2019.

Sone, Y., “A 100-W class regenerative fuel cell system for lunar and planetary missions” *Journal of Power Sources*, 196(21), 9076–9080, 2011.

Su, H.N., Liao, S.J., ve Xu, L.M., ”Design, fabrication and preliminary study of a mini power source with a planar six-cell PEM unitised regenerative fuel cell stack” *Fuel Cells*, 9(5), 522–527, 2009

Sui, S., Ma, L., ve Zhai, Y., “TiC supported Pt-Ir electrocatalyst prepared by a plasma process for the oxygen electrode in unitized regenerative fuel cells” *Journal of Power Sources*, 196(13), 5416–542, 2011.

Suzuki, Y., Ishihara, A., Mitsushima, S., Kamiya, N., ve Ota, K., “Sulfated-zirconia as a support of Pt catalyst for polymer electrolyte fuel cells” *Electrochemical and Solid-State Letters*, 10(7), B105, 2007.

Takasu, Y., Yoshinaga, N., ve Sugimoto, W., “Oxygen reduction behavior of RuO<sub>2</sub>/Ti, IrO<sub>2</sub>/Ti and IrM (M: Ru, Mo, W, V) Ox/Ti binary oxide electrodes in a sulfuric acid solution” *Electrochemistry Communications*, 10(4), 668–672, 2008.

Trasatti, S. “Electrocatalysis in the anodic evolution of oxygen and chlorine” *Electrochimica Acta*, 29(11), 1503–1512, 1984.

Trasatti, S., “Work function, electronegativity, and electrochemical behaviour of metals: III. Electrolytic hydrogen evolution in acid solutions”, *Journal of Electroanalytical Chemistry and Interfacial Electrochemistry*, 39(1), 163–184, 1972.

Vedula, S.S., ve Yadav, G.D., “Chitosan-based membranes preparation and applications: Challenges and opportunities” *Journal of the Indian Chemical Society*, 98(2), 100017, 2021.

Veisi, H., Mohammadi, P., ve Ozturk, T., “Design, synthesis, characterization, and catalytic properties of g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-SO<sub>3</sub>H as an efficient nanosheet ionic liquid for one-pot synthesis of pyrazolo[3,4-b]pyridines and bis(indolyl)methanes” *Journal of Molecular Liquids*, 303, 112625, 2020.

Vesborg, P.C.K., ve Jaramillo, T.F., ”Addressing the terawatt challenge: Scalability in the supply of chemical elements for renewable energy” *RSC Advances*, 2(21), 7933–7947, 2012.

Vračar, L.M., Krstajić, N.V., Radmilović, V.R., ve Jakšić, M.M., “ Electrocatalysis by nanoparticles–oxygen reduction on Ebonex/Pt electrode. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 587(1), 99–107, 2006.

Wang, L., Guo, H., Ye, F., ve Ma, C., “Two-dimensional simulation of mass transfer in unitized regenerative fuel cells under operation mode switching” *Energies*, 9(1), 2016.

Wang, S.H., Peng, J., ve Lui, W.B. “Surface modification and development of titanium bipolar plates for PEM fuel cells” *Journal of Power Sources*, 160(1), 485–489, 2006.

Wang, S.H., Peng, J., Lui, W.B., ve Zhang, J.S., “Performance of the gold-plated titanium bipolar plates for the light weight PEM fuel cells” *Journal of Power Sources*, 162(1), 486–491, 2006.

Wang, Y., ve Northwood, D.O., “An investigation into the effects of a nano-thick gold interlayer on polypyrrole coatings on 316L stainless steel for the bipolar plates of PEM fuel cells” *Journal of Power Sources*, 175(1), 40–48, 2008.

Wang, Y., Leung, D.Y.C., Xuan, J., ve Wang, H., “A review on unitized regenerative fuel cell technologies, part-A: Unitized regenerative proton exchange membrane fuel cells” *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 65, 961–977, 2016.

Wittstadt U, Wagner E, Jungmann T., “Membrane electrode assemblies for unitised regenerative polymer electrolyte fuel cells” *J Power Sources* ,145:555–62, 2005.

Wittstadt, U., Wagner, E., ve Jungmann, T., Membrane electrode assemblies for unitised regenerative polymer electrolyte fuel cells” *Journal of Power Sources*, 145(2), 555–562, 2005.

Wu, X., ve Scott, K., “RuO<sub>2</sub> supported on Sb-doped SnO<sub>2</sub> nanoparticles for polymer electrolyte membrane water electrolyzers” *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(10), 5806–5810, 2011.

Yao, W., Yang, J., Wang, J., ve Nuli, Y., “Chemical deposition of platinum nanoparticles on iridium oxide for oxygen electrode of unitized regenerative fuel cell” *Electrochemistry Communications*, 9(5), 1029–1034, 2007.

Ye, F., Xu, C., Liu, G., Li, J., Wang, X., Du, X., ve Lee, J.K., “ A novel PtRuIr nanoclusters synthesized by selectively electrodepositing Ir on PtRu as highly active bifunctional electrocatalysts for oxygen evolution and reduction” *Energy Conversion and Management*, 155, 182–187, 2018.

Yim, S.D., Lee, W.Y., Yoon, Y.G., Sohn, Y.J., Park, G.G., Yang, T.H., ve Kim, C.S., “Optimization of bifunctional electrocatalyst for PEM unitized regenerative fuel cell” *Electrochimica Acta*, 50(2-3 SPEC. ISS.), 713–718, 2004.

Yim, S.D., Park, G.G., Sohn, Y.J., Lee, W.Y., Yoon, Y.G., Yang, T.H., Um, S., Yu, S.P., ve Kim, C.S., “Optimization of PtIr electrocatalyst for PEM URFC” *International Journal of Hydrogen Energy*, 30(12), 1345–1350, 2005.

Yim, S.D., Park, G.G., Sohn, Y.J., Lee, W.Y., Yoon, Y.G., Yang, T.H., Um, S., Yu, S.P., ve Kim, C.S., “Optimization of PtIr electrocatalyst for PEM URFC” *International Journal of Hydrogen Energy*, 30(12), 1345–1350, 2005.

Yoon, W., Huang, X., Fazzino, P., Reifsnider, K.L., ve Akkaoui, M.A., “Evaluation of coated metallic bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells” *Journal of Power Sources*, 179(1), 265–273, 2008.

Zhang, S., Hong, Z.H.U., Hongmei, Y.U., Junbo, H.O.U., Baolian, Y.I., ve Pingwen, M., “The oxidation resistance of tungsten carbide as catalyst support for proton exchange membrane fuel cells” *Chinese Journal of Catalysis*, 28(2), 109–111, 2007.

Zhang, Y., Wang, C., Wan, N., ve Mao, Z., “Deposited RuO<sub>2</sub>-IrO<sub>2</sub>/Pt electrocatalyst for the regenerative fuel cell” *International Journal of Hydrogen Energy*, 32(3), 400–404, 2007.

Zhang, Y., Zhang, H., Ma, Y., Cheng, J., Zhong, H., Song, S., ve Ma, H., “A novel bifunctional electrocatalyst for unitized regenerative fuel cell” *Journal of Power Sources*, 195(1), 142–145, 2010.

Zhang, Y., Zhou, J., Feng, Q., Chen, X., ve Hu, Z., “Visible light photocatalytic degradation of MB using UiO-66/g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> heterojunction nanocatalyst” *Chemosphere*, 212, 523–532, 2018.

Zhao, Y., Kamiya, K., Hashimoto, K., ve Nakanishi, S., “Efficient bifunctional Fe/C/N electrocatalysts for oxygen reduction and evolution reaction” *The Journal of Physical Chemistry C*, 119(5), 2583–2588, 2015.

Zhou, P., Wu, C.W., ve Ma, G.J., “Influence of clamping force on the performance of PEMFCs” *Journal of Power Sources*, 163(2), 874–881, 2007.

Zhuo, X., Sui, S., ve Zhang, J. “Electrode structure optimization combined with water feeding modes for Bi-Functional Unitized Regenerative Fuel Cells” *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(11), 4792–4797, 2013.

## ÖZ GEÇMİŞ

Nebi Yelegen ..... tarihinde ..... doğdu. İlk ve orta öğrenimini ..... tamamladı. 2006 yılında girdiği Niğde Üniversitesi Makine Mühendisliği Bölümü'nden 2011'de mezun oldu. 2014 yılından bu yana Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makine Mühendisliği Anabilim Dalında Doktora çalışmalarını sürdürmektedir. Aynı zamanda 2014 yılından itibaren Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarında öğretim görevlisi olarak çalışmaktadır.



## TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER

Bu tez çalışmasından, 1 (bir) adet uluslararası makale ile 3 (üç) adet uluslararası bildiri üretilmiştir. Ayrıca 1 (bir) adet uluslararası makale de değerlendirme aşamasındadır. Bu çalışmalar aşağıda sunulmuştur.

Yelegen, N., Kümük, B., Kaplan, R.N., İlbaş, M., Kaplan, Y., “Numerical and Experimental Studies on Unitized Regenerative Proton Exchange Membrane Fuel Cell”, *International Journal of Hydrogen Energy*, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2022.12.210>

Yelegen, N., Altuntop, E. N., Atalmış, G., Kaplan, Y., “The Experimental Studies on Electrolyser Mode Operation of Unitized Regenerative Pem Fuel Cell”, *23rd World Hydrogen Energy Conference (WHEC-2022)*, 26 June 2022 (*International Journal of Hydrogen Energy* dergisinde yayınlanmak üzere seçilmiştir, değerlendirmede).

Yelegen, N., Atalmış, G., Bektaş, A., Kaplan, Y., “Experimental Studies on Regenerative PEM Fuel Cells”, *6th International Hydrogen Technologies Congress (IHTEC-2022)*, 23-26 January 2022.

Yelegen, N., Atalmış, G., “The Effects of Regenerative Pem Fuel Cell Components on Efficiency”, *6nd International Conference on Material Science and Technology in Cappadocia (IMSTEC’21)*, 26-28 November 2021.

