



## مدلسازی سه بعدی پیل سوختی غشاء تبادل پروتون با زمینه جریان

### مستقیم

فاطمه هاشمی<sup>۱</sup>، سوسن روشن ضمیر<sup>۲</sup>

آزمایشگاه انرژی‌های تجدیدپذیر پیل سوختی، پژوهشکده سبز، دانشگاه علم و صنعت ایران  
f.hashemi17@yahoo.com

### چکیده

در این تحقیق، مدل سه بعدی از پیل سوختی غشاء الکترولیت پلیمری با کانال جریان مستقیم در قسمت آند و کاتد ارائه شده است. اجزای مدل شده در پیل سوختی شامل غشاء لایه‌های نفوذ گاز، لایه‌های کاتالیستی، کانال‌های جریان گاز و جمع‌کننده‌های جریان می‌باشند. در این مدل، پدیده‌های اصلی انتقال در پیل سوختی پلیمر جامد شامل انتقال جرم و انرژی، سینتیک‌های الکتروشیمیایی و میدان‌های پتانسیل در نظر گرفته شده است. کانتورهای توزیع چگالی جریان، جزء جرمی هیدروژن و اکسیژن در کانال‌های جریان تعیین گردیده‌اند. مقایسه نتایج مدلسازی با داده‌های آزمایشگاهی منابع منتشره رضایت بخش می‌باشد.

**واژه های کلیدی:** پیل‌های سوختی غشاء الکترولیت پلیمری، جمع‌کننده‌های جریان، زمینه‌ی جریان، صفحات دوقطبی، مدلسازی، دینامیک سیال محاسباتی

### ۱- مقدمه

پیل‌های سوختی غشاء الکترولیت پلیمری، انرژی شیمیایی سوخت (هیدروژن) را مستقیماً به انرژی الکتریکی تبدیل می‌کنند. این پیل‌های سوختی دارای مزایای بسیاری نظیر دمای عملیاتی پایین، دانسیته‌ی توانی بالا، وزن و حجم پایین، عمر بالای مجموعه و زمان راه‌اندازی کوتاه هستند. لذا مورد مناسبی برای حمل و نقل و تولید الکتریسیته و حرارت همزمان در کاربردهای ساکن می‌باشند. مطالعه روی پیل‌های سوختی به دو صورت آزمایشگاهی و شبیه‌سازی صورت می‌گیرد. اکثر مطالعات آزمایشگاهی پیل‌های سوختی غشاء الکترولیت پلیمری پرهزینه می‌باشند. همچنین این آزمایشات تنها در اسکیل کوچک قابل اجرا می‌باشند و موجب طراحی‌های محدود شده و دارای مشکلاتی در اندازه‌گیری‌ها هستند. از طرف دیگر، هزینه مدلسازی عددی پیل‌های سوختی پایین بوده و بکارگیری طراحی‌های پیچیده، آسان به نظر می‌رسد [۱]. مدلسازی‌ها و شبیه‌سازی‌های زیادی در حال حاضر در انیستیتوهای تحقیقاتی و در صنعت، در سراسر جهان، جهت درک بهتر فرآیندها، در حال اجرا می‌باشند. طی دهه اخیر، بررسی‌ها، مدل‌ها و شبیه‌سازی‌های عددی زیادی انجام شده‌اند تا به بررسی پدیده‌های

1- دانشجوی کارشناسی ارشد دانشکده مهندسی شیمی دانشگاه علم و صنعت ایران، فاطمه هاشمی

2- نویسنده مسئول، دکترای مهندسی شیمی، میدان رسالت- خیابان دانشگاه علم و صنعت- دانشگاه علم و صنعت ایران- کدپستی ۱۶۸۴۶-۱۳۱۱۴- پژوهشکده سبز- تلفن: ۷۷۴۹۱۲۲۳- نامبر: ۷۷۴۹۱۲۴۲- آدرس الکترونیکی: rowshanzamir@iust.ac.ir



انتقال و سینتیک‌های الکتروشیمیایی در پیل‌های سوختی پردازند [۲].

اولین مدلسازی پیل سوختی غشاء تبادل پروتون توسط Springer و همکارانش [۳] در سال ۱۹۹۰ انجام شد که شامل یک مدل یک بعدی، پایدار و براساس پارامترهای انتقال اندازه‌گیری شده به روش آزمایشگاهی بود. از سال ۱۹۹۳ تا ۱۹۹۸ مدل‌های دو بعدی توسط Nguyan و White [۴]، Fuller و Newman [۵] و Gurau و همکارانش [۶] منتشر شده‌اند. اخیراً امکان بررسی مدل‌های محاسباتی واقع‌بینانه‌تری را با در نظر گرفتن پدیده‌های انتقال سیال، حرارت و الکتروشیمی فراهم می‌کند. در نتیجه مدل‌های سه بعدی رو به گسترش هستند. اما مدلسازی سه بعدی هندسه‌ی پیل‌های سوختی PEM به ساده‌سازی‌هایی در جهت کاهش زمان محاسباتی نیاز دارد.

در این مقاله یک مدل سه بعدی و پایا با در نظر گرفتن پدیده‌های اصلی انتقال در پیل سوختی PEM که شامل انتقال جرم و انرژی، سینتیک‌های الکتروشیمیایی و میدان‌های پتانسیل هستند، توسعه داده شده است که در ادامه شرح داده می‌شود.

## ۲- تعریف مدل

مدل ارائه شده در این مقاله مدل کامل سه بعدی است که فرایندهای انتقال را در غشاء، لایه‌های نفوذ گاز و کانال‌های جریان گازهای واکنشگر، در پیل سوختی غشاء الکترولیت پلیمری، بررسی می‌کند.

### ۲-۱- فرضیات مدل

پیل سوختی در حالت پایا مدل شده است. از آنجا که سرعت گازهای واکنشگر در کانال‌های جریان پایین (عدد رینولدز پایین) است جریان لامینار در نظر گرفته شده است. برای گازها، قانون گاز ایده‌آل بکار رفته است. فرضیات دیگر عبارتند از:

- تمامی آب تولیدی از واکنش الکتروشیمیایی در فاز گاز است و تغییر فاز در نظر گرفته نمی‌شود.

- غشاء کاملاً مرطوب است و رسانایی پروتونی آن ثابت می‌باشد.

- غشاء نسبت به عبور گازهای واکنشگر نفوذناپذیر است و میان‌عبور کردن گازها در نظر گرفته نمی‌شود.

- لایه نفوذ گازی ایزوتروپ و هموزن است.

- اضافه ولتاژ اکتیواسیون در آند و کاتد ثابت است.

- غلظت پروتون در غشاء ثابت و برابر غلظت گروه‌های سولفونیک اسید است.

### ۲-۲- معادلات مدل

روابط انتقال برای یک پیل سوختی سه بعدی به صورت زیر هستند:

- معادله پیوستگی

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad (1)$$



- معادله مومنتم در جهت X:

$$\varepsilon_{eff} \left( u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} \right) = -\frac{\varepsilon_{eff}}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \nu \varepsilon_{eff} \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) + S_U \quad (2)$$

- معادله مومنتم در جهت y:

$$\varepsilon_{eff} \left( u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} + w \frac{\partial v}{\partial z} \right) = -\frac{\varepsilon_{eff}}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} + \nu \varepsilon_{eff} \left( \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) + S_V \quad (3)$$

- معادله مومنتم در جهت z:

$$\varepsilon_{eff} \left( u \frac{\partial w}{\partial x} + v \frac{\partial w}{\partial y} + w \frac{\partial w}{\partial z} \right) = -\frac{\varepsilon_{eff}}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \varepsilon_{eff} \left( \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right) + S_W \quad (4)$$

- معادله غلظت اجزا در جهت x:

$$\varepsilon_{eff} \left( u \frac{\partial C_K}{\partial x} + v \frac{\partial C_K}{\partial y} + w \frac{\partial C_K}{\partial z} \right) = D_{K,eff} \left( \frac{\partial^2 C_K}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_K}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C_K}{\partial z^2} \right) + S_C + S_L \quad (5)$$

در معادلات مومنتم،  $S_U, S_V, S_W$  ترم‌هایی بر پایه نیروی درگ در جهت X, Y, Z هستند که سیال در معرض دیواره‌های متخلخل، باعث افت فشار بالا در طول محیط متخلخل می‌گردد. جزئیات مربوط به این سه پارامتر در جدول (۱)، ارائه شده است. در جدول (۱)،  $\varepsilon_{eff}$  تخلخل مؤثر،  $C_F$  فاکتور ضریب درگ درجه دوم و  $Z_F$  ظرفیت یونی می‌باشد.  $D_{K,eff}$ ، ظرفیت مؤثر نفوذ کامین جزء است و  $K_p$  نفوذپذیری در مواد متخلخل است.

$C_K$  غلظت کامین جزء و  $S_L, S_C$  ترم‌هایی جهت بررسی واکنش شیمیایی و آب مایع تولیدی می‌باشند.  $S_C$  برای هیدروژن برابر  $\frac{-j_a}{2FC_{total,a}}$ ، برای اکسیژن برابر  $\frac{-j_c}{2FC_{total,c}}$  و برای بخار آب برابر  $\frac{-j_c}{2FC_{total,c}}$  می‌باشد. پارامترهای  $j_a, j_c$ ، دانسیته‌های جریانی آند و کاتد هستند که با معادله باتلر - والمر محاسبه می‌شوند:

$$j_a = A j_{O,a}^{ref} \left( \frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \right) \left( e^{(\alpha_a F / RT) \eta} - \frac{1}{e^{(\alpha_c F / RT) \eta}} \right) \quad (6)$$

$$j_c = A j_{O,c}^{ref} \left( \frac{C_{O_2}}{C_{O_2}^{ref}} \right) \left( e^{(\alpha_a F / RT) \eta} - \frac{1}{e^{(\alpha_c F / RT) \eta}} \right) \quad (7)$$

$A j_o^{ref}$ ، دانسیته جریان تبدالی مرجع،  $\alpha_c, \alpha_a$  سرعت‌های انتقال بار الکتریکی در آند و کاتد،  $\eta$ ، اضافه ولتاژ و  $F$ ، ثابت فارادی و  $T$ ، دمای پیل سوختی می‌باشد. توزیع دانسیته جریان محلی، از رابطه پتانسیل فاز محاسبه می‌شود:



۷ و ۸ آبان ۱۳۸۸  
October 28 & 29, 2009

سومین سمینار پیل سوختی ایران



3<sup>rd</sup> Fuel Cell Seminar of Iran



$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \sigma_m \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \sigma_m \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \sigma_m \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) = S_j \quad (8)$$

$\phi$  پتانسیل فاز و  $\sigma_m$  رسانایی غشاء است که به شدت وابسته به مقدار آب در غشاء می‌باشد و با فرمول [3] springer بیان می‌شود:

$$\sigma_m(T) = \sigma_m^{ref} \exp \left[ 1268 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (9)$$

$\sigma_m^{ref}$  رسانایی مرجع در غشاء است که با رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$\sigma_m^{ref} = 0.005139\lambda - 0.00326 \quad (10)$$

$$\lambda = \begin{cases} 0.043 + 17.81a - 39.85a^2 + 36a^3 & 0 \leq a \leq 1 \\ 14 + 1.4(a-1) & 0 < a \leq 3 \end{cases} \quad (11)$$

$a$ ، اکتیویته آب و  $\lambda$  مقدار آب در پیل سوختی است.  $S_j$  در رابطه (۹) نیز ترم پایه الکتریکی است که در پیل سوختی بدون واکنش الکتروشیمیایی برابر صفر و روی کاتد و آند برابر  $-j_c, -j_a$  می‌باشد. ترم پایه  $S_L$  در معادله غلظت اجزاء، تابعی از اشباع آب مایع است که در اینجا در نظر گرفته نمی‌شود. از روش SIMPLE (روش نیمه ضمنی برای معادلات میدان فشار) جهت حل معادلات حاکم استفاده شد.

### ۳- شرایط مرزی

در ورودی کانال‌های جریان آند و کاتد شرایط مرزی با توجه به عدد استوکیومتری، دما و جزء جرمی اکسیژن و هیدروژن، تعریف می‌شوند. شرط مرزی در ورودی کانال‌های جریان از نوع جریان جرمی ورودی و در خروجی کانال‌ها از نوع فشار خروجی است.

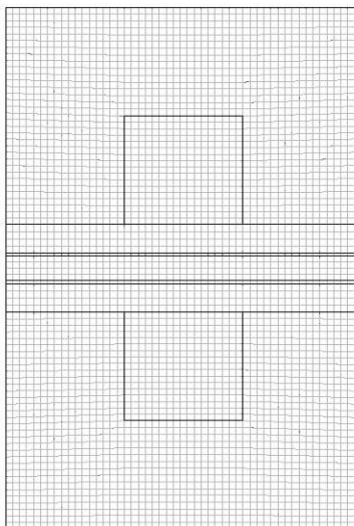


جدول ۱- ترم های پایه در معادلات حاکم بر مدل [۶]

S <sub>c</sub>	S <sub>w</sub>	S <sub>v</sub>	S <sub>u</sub>	
0	0	0	0	کنال
-	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}w - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho w}{\sqrt{K_p}}$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}v - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho v}{\sqrt{K_p}}$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}u - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho u}{\sqrt{K_p}}$	GDL
$H_2: -\frac{1}{2FC_{total,g}} \cdot j_a;$ $O_2: -\frac{1}{4FC_{total,g}} \cdot j_c;$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}w - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho w}{\sqrt{K_p}}$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}v - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho v}{\sqrt{K_p}}$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}u - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho u}{\sqrt{K_p}}$	لایه کاتالیستی
$H_2O: \frac{1}{2FC_{total,g}} \cdot j_c;$ $\frac{Z_F F}{RT} D_{k,eff,H} \cdot C_H + \left( \frac{d^2 \phi}{dx^2} + \frac{d^2 \phi}{dy^2} + \frac{d^2 \phi}{dz^2} \right)$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}w - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho w}{\sqrt{K_p}}$ $+ \frac{K_p}{v} Z_F C_H + F \cdot \nabla \phi \cdot w_z$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}v - \frac{\varepsilon_{eff}^3 C_F \rho v}{\sqrt{K_p}}$ $+ \frac{K_p}{v} Z_F C_H + F \cdot \nabla \phi \cdot v_y$	$-\frac{v\varepsilon_{eff}^2}{K_p}u - \frac{\varepsilon_{eff}^3}{\sqrt{K_p}}$ $+ \frac{K_p}{v} Z_F C_H + F \cdot \nabla \phi \cdot u_x$	غشاء

#### ۴- روش محاسباتی

معادلات انتقال حاکم بر مدل همراه با شرایط مرزی ذکر شده در قسمت قبل با بکارگیری کد دینامیک سیالات محاسباتی، Fluent 6.3 حل شده‌اند. در Fluent 6.3 از روش حجم محدود و حل‌کننده‌ی غیرضمنی تفکیکی استفاده شده است.



شکل ۱- سطح مقطع پیل سوختی مدل شده



۷ و ۷ آبان ۱۳۸۸  
October 28 & 29, 2009

سومین سمینار پیل سوختی ایران



3<sup>rd</sup> Fuel Cell Seminar of Iran



#### ۴-۱- پارامترها و هندسه ی مدل

هندسه ی پیل سوختی مدل شده شامل صفحات دوقطبی با کانال جریان مستقیم است که بوسیله ی مجموعه الکتروود-غشاء از هم جدا شده اند. سطح مقطع پیل سوختی در شکل (۱) نشان داده شده است. شبکه بندی غیر یکنواخت جهت کمینه کردن حجم محاسباتی و افزایش دقت در نواحی دارای گرادیان زیاد (نزدیک دیواره ها، الکتروودهای متخلخل) استفاده شد. ابعاد پیل سوختی مدل شده نیز در جدول (۱) داده شده است. شرایط عملیاتی در جدول (۲) ارائه گردیده است.

#### ۴-۲- نتایج مدل سازی

اعتبارسنجی مدل سازی حاصل از شرایط عملیاتی به کار گرفته شده با نتایج آزمایشگاهی wang و همکارانش [۷] صورت گرفت. نمودار پلاریزاسیون حاصل که در شکل ۲ دیده می شود بیانگر تطابق مدل با نمودار پلاریزاسیون آزمایشگاهی است. عدم تطابق مدل با نتایج آزمایشگاهی در دانسیته جریان های بالا مشاهده می گردد. این عدم تطابق نتیجه ی فرض ساده شونده ی مدل تک فازی است که کاهش انتقال جرم اکسیژن را که ناشی از طغیان آب در کاتد است، نادیده می گیرد. خشک شدن آند نیز عاملی مهم در دانسیته جریان های بالا محسوب می گردد. در شکل های (۳) و (۴) توزیع جزء جرمی اکسیژن و هیدروژن در پیل سوختی و در ولتاژ ۰/۶ ولت و دانسیته جریان ۱/۱۷ آمپر بر سانتیمتر مربع نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می شود توزیع گازهای واکنشگر از ورودی تا خروجی یکنواخت است.

جدول ۱- ابعاد فیزیکی پیل سوختی مدل شده

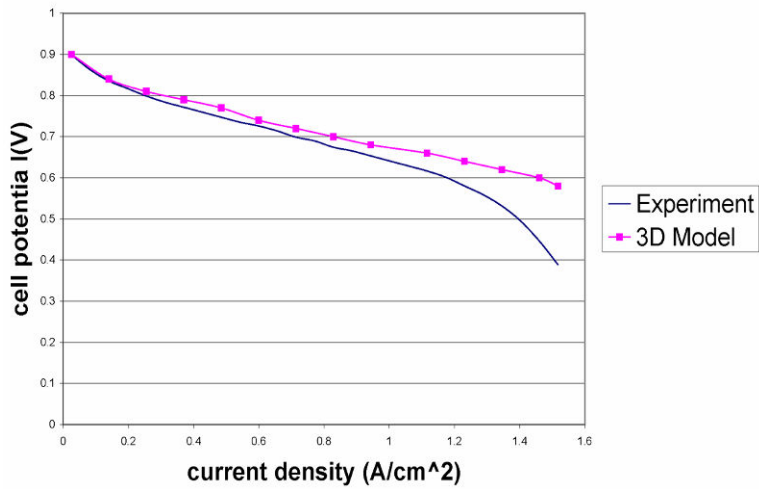
واحد	مقدار	پارامتر
m	۰/۰۵	طول کانال
m	۰/۰۰۱	عمق کانال
m	۰/۰۰۱	پهنای کانال
m	۰/۰۰۱	پهنای زمینه
m	$۰/۰۲۳ \times ۱۰^{-۳}$	ضخامت غشاء
m	$۰/۲۶ \times ۱۰^{-۳}$	ضخامت لایه نفوذ گاز
m	$۰/۰۲۸۷ \times ۱۰^{-۳}$	ضخامت لایه کاتالیستی



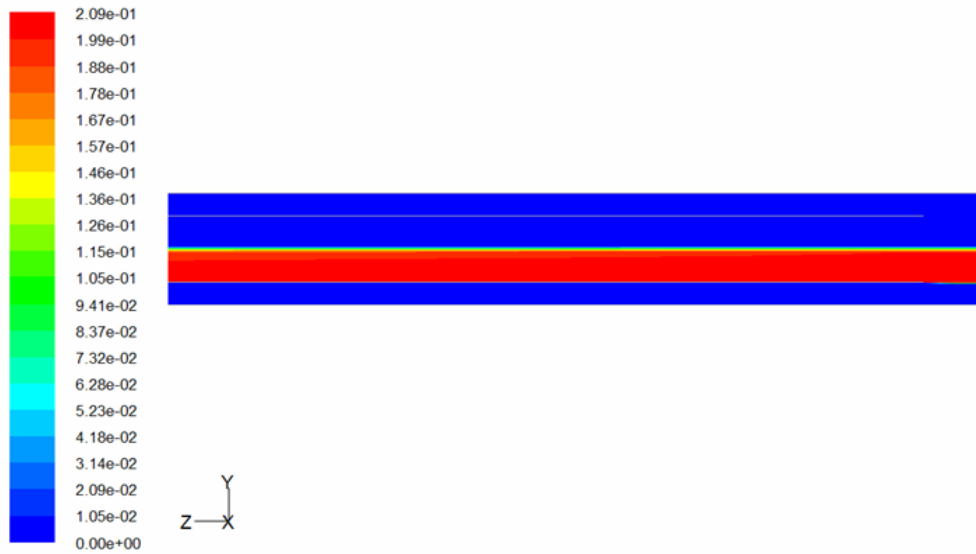
جدول ۲- شرایط عملیاتی بکار رفته

پارامتر	مقدار	واحد
دمای ورودی آند/کاتد	۸۰	°C
فشار ورودی آند/کاتد	۳	atm
سرعت جریان استوکیومتری آند/کاتد	۲	-
رطوبت نسبی گازهای ورودی	۱۰۰	%
نسبت مولی اکسیژن/ نیتروژن	۰/۲۱ به ۰/۷۹	-
جزء جرمی آب (آند)	۰/۳۸	-
جزء جرمی هیدروژن (آند)	۰/۶۲	-
جزء جرمی آب (کاتد)	۰/۱	-
جزء جرمی اکسیژن (کاتد)	۰/۲	-
جزء جرمی نیتروژن (کاتد)	۰/۷	-

شکل (۵) نیز دانسیته جریان را در سطح مقطع پیل سوختی مدل شده نمایش می‌دهد. مقدار دانسیته جریان در زیر ناحیه‌ی زمینه جریان بیشتر است. این مقدار بیشتر به این دلیل است که افت پتانسیل اهمیک در لایه نفوذ گازی بیشتر از کاهش غلظت واکنشگرها بر روی فعالیت کاتالیستی اثرگذار می‌باشد. در نتیجه مسیر جریان الکتریکی از لایه کاتالیستی که جریان تولید می‌شود تا منطقه‌ی زیر کانال جریان نسبت به زمینه جریان طولانی‌تر است و باعث کاهش دانسیته جریان در این ناحیه می‌گردد.



شکل ۲- مقایسه مدل سازی سه بعدی و نمودار پلاریزاسیون آزمایشگاهی

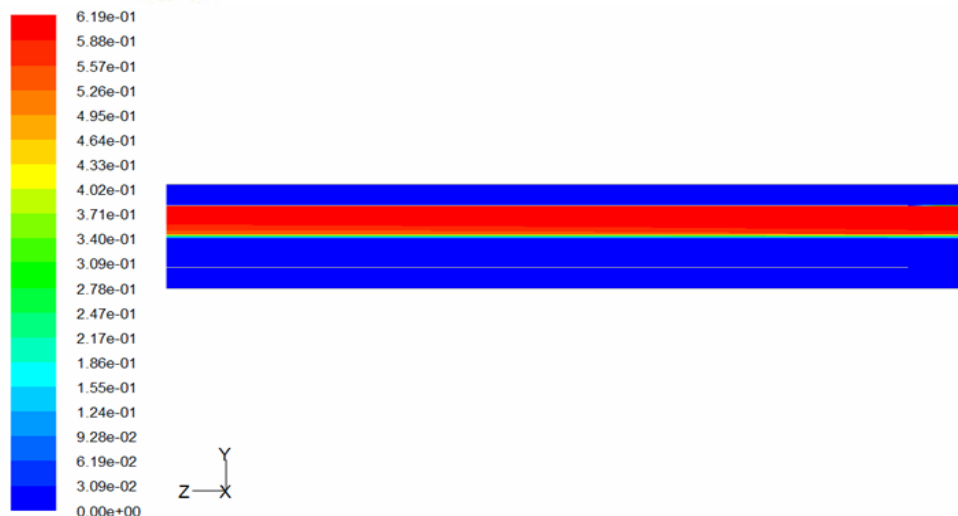


Contours of Mass fraction of o2

FLUENT 6.3 (3d, dp, pbns, spe, lam)

شکل ۳- توزیع جزء جرمی اکسیژن در کاتد ( $V = 0.6$  V و  $i = 1.17$  A/cm<sup>2</sup>)

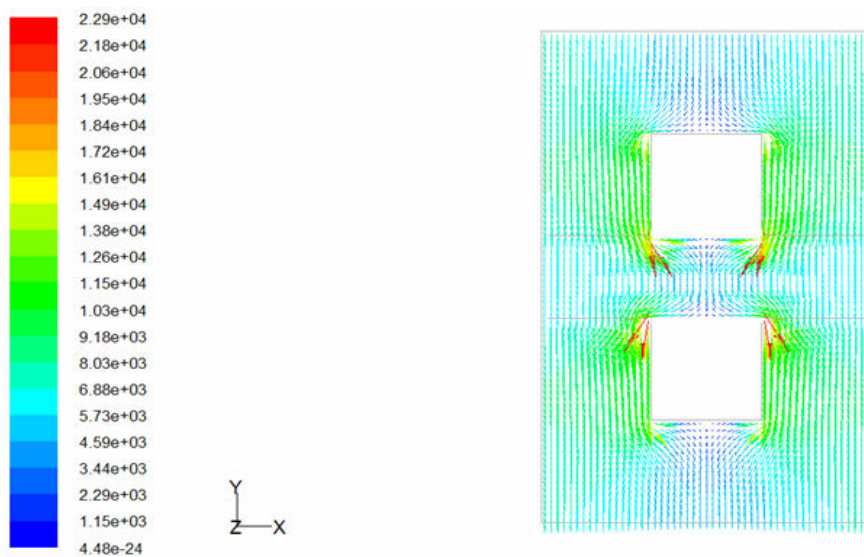




Contours of Mass fraction of h2

FLUENT 6.3 (3d, dp, pbns, spe, lam)

شکل ۴: توزیع جزء جرمی هیدروژن در آند ( $V=0.6$  V و  $i=1.17$  A/cm<sup>2</sup>)



current-flux-densityColored By Current Flux Density Magnitude (amp/m2)

FLUENT 6.3 (3d, dp, pbns, spe, lam)

شکل ۵- توزیع چگالی جریان در پیل سوختی

## ۵- نتیجه گیری

در این مقاله یک پیل سوختی غشاء الکترولیت پلیمری کامل بصورت سه بعدی و پایا مدل سازی شد. نتایج حاصل از مدل سازی با کارهای تجربی دیگر محققین مقایسه گردید. زمینه جریان دارای کانال جریان مستقیم و تک فازی در نظر گرفته شد. در دانسیته جریان های بالا، اختلاف بین مدل و داده های آزمایشگاهی به دلیل فرض مدل تک فازی است که



۷ و ۷ آبان ۱۳۸۸  
October 28 & 29, 2009

سومین سمینار پیل سوختی ایران



3<sup>rd</sup> Fuel Cell Seminar of Iran



پدیده طغیان آب در کاتد و خشک شدن در آنند را نادیده می‌گیرد. مقدار دانسیته جریان در داخل پیل سوختی و در ناحیه‌ای که مسیر جریان الکتریکی طولانی‌تر است بیشتر می‌باشد. همچنین توزیع مناسب گازهای واکنشگر از ورودی تا خروجی کانال‌ها مشهود است.

## مراجع

- [1] E. Hontanõn, M.J. Escudero, C. Bautista P.L. Garc'ia-Ybarra, L. Daza , " Optimisation of flow-field in polymer electrolyte membrane fuel cells using computational fluid dynamics techniques", Journal of Power Sources .Vol.86,pp.363–368 (2000)
- [2] W.M.Yan, H.Y. Li, P.C.Chiu, X.D.Wang, " Effects of serpentine flow field with outlet channel contraction on cell performance of proton exchange membrane exchange membrane fuel cells", Journal of Power Sources (2007).
- [3] T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, " Polymer Electrolyte Fuel Cell Model " ,J. Electrochem. Soc. 138 (1991) 2334-2342
- [4] T.V. Nguyen, R.E. White, J. Electrochem. Soc. 140 (8) (1993) 2178–2186.
- [5] T.F. Fuller, J. Newman, J. Electrochem. Soc. 140 (5) (1993) 1218–1225.
- [5] V. Gurau, H. Liu, S. Kakac, AIChE J. 44 (11) (1998) 2410–2421.
- [6] X.D Wang, Y.Y Duan, W.M Yan, F.B Weng , "Effect of humidity of reactants on the cell performance of PEM fuel cells with parallel and interdigitated flow field designs", J. Power Sources Vol.176,pp. 1122–1129 (2008).
- [7] Wang L, Husar A, Zhou T, Liu H. A parametric study of PEM fuel cell performances. Int J Hydrogen Energy 2003;28(11):1263–72