

Investigation of the Effect of Stoichiometry Ratio on Two-Cell PEM Fuel Cell Stack Performance

 Muhammed Salih CELLEK¹, Muhittin BİLGİLİ^{2,*}
^{1,2}Gazi University, Faculty of Engineering, Department of Mechanical Engineering, 06570, Maltepe, ANKARA

Graphical/Tabular Abstract

Article Info

Research article
 Received:24/09/2020
 Revision:27/01/2021
 Accepted:17/02/2021

Highlights

- Effects of stoichiometry
- Analysis of PEM stack
- CFD Modelling

Keywords

Stoichiometry ratio
 Polarization curves
 PEM Fuel Cell Stack

Two PEM fuel cells are constructed as a stack and effects of stoichiometric ratio values on stack performance are studied by numerically. Stoichiometric ratio values for fuel cell stack is investigated as an important operating parameter. Numerical studies are carried out for certain anode and cathode stoichiometric ratio values. Effect of stoichiometry ratio values on the performance of the stack compared by plotting polarization curves for each case.

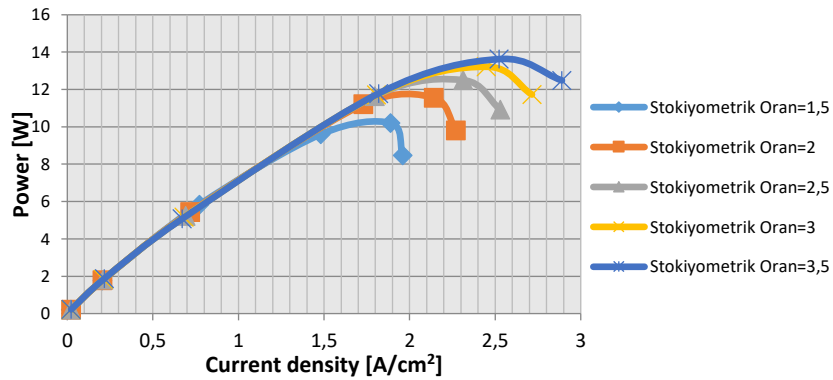


Figure A. Electrical power curves corresponding to stoichiometric values of PEMFC stack

Purpose: In this study, two units PEM fuel cells are designed and modelled to construct a stack. This fuel cell stack are numerically investigated by using different stoichiometric ratio values. At the selected stoichiometric ratio values (1.5, 2, 2.5, 3 and 3.5) analysis are carried out. Temperature distribution at the membrane, distribution of anode and cathode mass fractions contours within corresponding gas flow channels are also obtained for the prepared cases. Polarization curves and electrical power curves obtained and compared for these cases. Therefore, it is seen that stoichiometric ratio values are important operating parameter for fuel cell stack.

Theory and Methods: PEMFC stack model has been designed by CATIA V5R21. The designed cell stack model were investigated for selected anode and cathode stoichiometric values using CFD program named ANSYS FLUENT.

Results: For the selected stoichiometric ratio values (1.5, 2, 2.5, 3 and 3.5) numerical analysis are carried out for PEMFC stack in this study. Effects of stoichiometric ratio on performance of PEMFC stack is analyzed numerically. At the same time, when the stoichiometric values are increased, temperature distribution at the membrane became more homogeneous. It is concluded also that, anode and cathode mass fraction values increased and distribution of reactant gases inside the gas flow channel became more homogeneous for the increasing stoichiometric values.

Conclusion: It is seen that especially at high current density region of polarization curves for the increasing value of stoichiometric ratio, stack current density values also increased. However, effects of this increment ratio on the values of current density decreased when the stoichiometric values are increased.



Investigation of the Effect of Stoichiometry Ratio on Two-Cell PEM Fuel Cell Stack Performance

Muhammed Salih CELLEK¹, Muhittin BİLGİLİ^{2,*}

^{1,2}Gazi University, Faculty of Engineering, Department of Mechanical Engineering, 06570, Maltepe, ANKARA

Abstract

The importance of fossil fuels has increased with the use of steam energy in industry. But especially in recent days, the problem of global warming is being felt seriously in the world. The most important reason for this problem is harmful emissions caused by burning fossil fuels. The world has turned to various alternative energy sources in order to eliminate this problem. Interest in PEM fuel cells, which are among alternative the energy converters, has been increasing. In this study, the effect of stoichiometry ratio on the performance of two-cell PEM fuel cell stack was analyzed numerically. Two fuel cells each with an active area of 5.4 cm² were connected in series, and the gas flow channels were determined in parallel and stacked. Numerical analysis was performed with five different stoichiometry ratios (1.5, 2, 2.5, 3, and 3.5) at various cell voltage values (1 V, 1.2 V, 1.4 V, 1.6 V, 1.8 V). Polarization and power-current density curves were obtained for five different stoichiometry ratio values. In addition, in order to see the effect of the stoichiometry ratio on a constant voltage, temperature distribution of the membrane, the anode and the cathode mass fraction distributions formed by four different stoichiometric ratios at 1 Volt, where the maximum amount of power is obtained. With this study, it was observed that current density increased with the improvement in the stoichiometric ratio and the amount of this increment continued to decrease. The highest power value was obtained at the stoichiometric ratio of 3.5 and 1 V potential difference value. However, with the increasing stoichiometric ratio, it was concluded that hydrogen and oxygen distributions became more homogeneous in the anode and cathode channels while a limited increase in membrane temperature occurred.

Makale Bilgisi

Araştırma makalesi
Başyuru: 24/09/2020
Düzeltilme: 27/01/2021
Kabul: 17/02/2021

Keywords

Stoichiometry ratio
Polarization curves
PEM fuel cell stack

Anahtar Kelimeler

Stokiyometrik oran
Polarizasyon eğrileri
PEM yakıt hücresi yığı

Stokiyometri Oranının İki Hücreli PEM Yakıt Hücresi Yığını Performansına Etkisinin İncelenmesi

Öz

Buhar enerjisinin sanayide kullanılmaya başlanmasıyla beraber fosil yakıtların önemi artmıştır. Fakat özellikle son günlerde küresel ısınma sorunu dünyada ciddi olarak hissedilmektedir. Bu sorunun en önemli sebebi de fosil yakıtların yakılmasıyla açığa çıkan zararlı emisyonlardır. Dünya bu sorunu ortadan kaldırmak amacıyla çeşitli alternatif enerji kaynaklarına yönelmiştir. Alternatif enerji dönüştürücüleri arasında yer alan PEM yakıt hücrelerine olan ilgi artmaktadır. Bu çalışmada, iki hücreli PEM yakıt hücresi yığını performansına stokiyometri oranının etkisi sayısal olarak incelenmiştir. Her biri 5,4 cm² aktif alana sahip iki yakıt hücresi seri bağlanarak gaz akış kanalları paralel olacak şekilde belirlenip yığın haline getirilmiştir. Sayısal hesaplamalar yapıp çeşitli potansiyel fark değerlerinde (1 V, 1,2 V, 1,4 V, 1,6 V, 1,8 V) beş farklı stokiyometri oranı ("1,5", "2", "2,5", "3", "3,5") kullanılarak sayısal analizler gerçekleştirilmiştir. Beş farklı stokiyometri değeri için polarizasyon eğrileri ve güç-akım yoğunluğu eğrileri elde edilmiştir. Ayrıca sabit bir voltajdaki stokiyometri oranının etkisini görebilmek için en fazla güç miktarının elde edildiği 1Volt değerinde dört farklı stokiyometrik oran ile oluşan membran sıcaklık dağılımı, anot kütle kesri dağılımı ve katot kütle kesrinin dağılımları elde edilmiştir. Bu çalışma ile stokiyometrik oranın artmasıyla birlikte akım yoğunluğunun arttığı, bu artış oranının azalarak devam ettiği görülmüştür. En yüksek güç değerine ise 3,5 stokiyometrik oranında ve 1 V değerinde ulaşılmıştır. Bununla birlikte artan stokiyometrik oranla beraber membran sıcaklığında kısıtlı artış gerçekleşirken anot ve katot kanallarında hidrojen ve oksijen dağılımlarının daha homojen hale geldiği görülmüştür.

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Gelişen teknoloji, artan nüfus ve bunlara bağlı birçok nedenle beraber dünyada enerji ihtiyacı giderek artmaktadır. Bu ihtiyacı karşılayabilmek için fosil yakıt rezervleri uzun yıllardan beri kullanılmaktadır. Fakat azalan fosil enerji kaynaklarının artan talebe bir süre sonra yetmeyeceği düşünülmektedir. Bununla beraber bu tip yakıtlardan enerji üretilirken meydana gelen kirliliğin küresel ısınmaya sebep olması ve ekosisteme zarar vermesi bilim insanlarının alternatif enerji kaynaklarına yönelmelerine sebep olmaktadır.

Enerji ihtiyacını karşılamak için en verimli ve en ekonomik çözüm yollarını arayan bilim insanları, bugünün ve yarının enerji kaynağının hidrojen olduğunu düşünmekte [13], daha temiz bir çevre için PEM (Proton Exchange Membrane) yakıt hücresi üzerinde yoğunlaşarak bu konuda çeşitli araştırmalar yapmaktadır. Fosil yakıtların yanması sonucu açığa çıkan zararlı emisyonların aksine yakıt hücrelerinde meydana gelen reaksiyonlar sonucu yan ürün olarak sadece su oluşmaktadır. Bu nedenle yakıt hücreleri çevre dostu bir güç kaynağı olarak görülmektedir [12]. Ayrıca kimyasal enerjiyi doğrudan elektrik enerjisine çeviren PEM yakıt hücreleri yüksek güç yoğunluğu, yüksek enerji dönüşüm verimliliği ve çevre dostu olma gibi sayısız avantajlarından dolayı büyük bir öneme sahiptir [7].

Yapılan araştırmalar, hidrojenin diğer yakıt türlerine göre yaklaşık üç kat pahalı olduğunu ve yaygın bir enerji kaynağı olarak kullanılabilmesinin hidrojen üretiminin maliyetini düşürecek teknolojik gelişmelere bağlı olacağını ortaya koymaktadır. Bununla birlikte, üretilen ihtiyaç fazlası elektrik enerjisinin hidrojen olarak depolanması günümüz için farklı bir seçenek olarak düşünülebilir. Bu şekilde depolanan enerjinin yaygın olarak kullanılabilmesi yakıt hücresine dayalı teknolojilerin geliştirilmesine bağlıdır [13].

Yakıt hücresi, elektrokimyasal reaksiyon yoluyla hidrojen ve oksijeni elektrik enerjisine dönüştüren bir elektrik jeneratörüdür. Yakıt hücresinde termodinamik verimlilik yaklaşık % 60'a ulaşırken bu oran geleneksel motorda sadece %30'dur. Elektrik gücü, anot yüzeyinde hidrojen moleküllerinin oksidasyon reaksiyonları sonucu oluşur [9]. PEM yakıt hücreleri anot ve katot olmak üzere iki adet elektrotla sahiptir. Bu elektrotlar polimer membran ile ayrılmışlardır. Bu tür yakıt pillerinde yakıt olarak hidrojen kullanılır ve hidrojen hücreye anot tarafından gönderilir. Anot elektrodunda platin katalizör varlığında protonlar ile serbest elektronlar ayrışır. Burada ayrışan elektronlar elektrik akımını oluştururken protonlar ise polimer elektrot membranı geçerek katot tarafına geçer. Dış çevrimden gelen ayrışan elektronlar, protonlar ve havadaki oksijen katot kutbunda saf su ve ısı üretmek üzere birleşmektedirler. Teorik bakımdan bir yakıt hücresi 1,23 V, gerçekte ise yaklaşık 1 V civarında elektrik potansiyeli üretir [1].

Yakıt hücresi performansına birçok faktör etki etmektedir. Bu faktörlerin etkilerinin incelendiği çalışmalar yapılmıştır. İki hücreli bir PEM yakıt pili yığınının analizinin sayısal olarak yapıldığı bir çalışmada PEM yakıt pillerinden elde edilen gücün hücre sayısına göre değişimi incelenmiştir. Bu çalışmada hücre sayısı ile birlikte elde edilen gücün arttığı ancak hücre sayısı ile beraber kayıpların da artmasından dolayı bu artışın doğru orantılı olmayacağı sonucuna ulaşılmıştır [4].

PEM yakıt hücresi ile ilgili yapılan başka bir çalışmada, akış kanalı tasarımının PEM yakıt hücresi performansına etkileri incelenmiştir. Bu çalışmada PEM yakıt pili için dairesel 3'lü ve 4'lü serpantin, karesel dörtlü serpantin, geniş kavisli karesel dörtlü serpantin ve karesel paralel akış olmak üzere beş farklı akış kanalı tasarımına sahip plakalar imal edilerek değişen basınç değerlerinde performans testleri yapılmıştır. Bu çalışma ile çoklu serpantin akış plakası tasarımının olumlu verdiği gözlemlenmiştir [1].

Yakıt pili ile ilgili Bilgili ve Sivrioğlu, PEM yakıt pilinin değişik membran elektrot çifti kalınlıklarında ve farklı çalışma basıncı koşullarında üç boyutlu sayısal analizini inceleyen bir çalışma yapmıştır. Bu çalışmada iki farklı kalınlıkta hazırlanan MEÇ (Membran Elektrot Çifti) ile 150kPa, 200kPa, 300kPa ve 400kPa çalışma basınçlarında analizler yapılmıştır. Çalışma basınçlarının artmasıyla beraber akım yoğunluklarındaki değerlerin de arttığı gözlemlenmiştir [5].

Kahraman ve arkadaşları, hücre sıkıştırma basıncının PEM yakıt pili performansı üzerine etkisinin incelendiği bir çalışma yapmışlardır. Anot ve katot taraflarında saf hidrojen ve oksijenin kullanıldığı bu çalışmada 5 cm² aktif alana sahip tek hücreli bir yakıt pilinden yararlanılmıştır. Çalışma sonucunda, 12 Nm sıkıştırma torkuna kadar performansın arttığı, dirençsel kayıp bölgesindeki gerilim artışının kütle transfer kayıp bölgesindeki artışa kıyasla daha fazla olduğu görülmüştür [8].

PEM yakıt hücresindeki suyun olması gerekenden düşük veya yüksek olması hücre performansını olumsuz etkilemektedir. PEM yakıt pilindeki su yönetimin önemi üzerine yapılmış bir çalışmada yakıt hücrelerinde hava stokiyometrik oran ve bağıl neminin hücre performansına etkisi incelenmiştir. Bu araştırma neticesinde PEM yakıt hücresinde su yönetiminin verimli hale getirilebilmesi için membranın yeteri kadar nemlendirilmesi ve suyun kanallardan hızlıca uzaklaştırılması sağlanarak su birikme ve taşmalarının engellenmesi gerektiği sonucuna ulaşılmıştır [14].

Havadan yani saf olmayan oksijen ile yakıt pili beslendiğinde genel olarak katot stokiyometrik oranı 2 olarak gerçekleşir. Polak ve arkadaşları katot tarafının saf oksijen ile beslendiğinde katot stokiyometrik oranının saf oksijen kullanılmadığı haline göre nasıl değişeceği üzerine deneysel bir çalışma yürütmüşlerdir. Çalışma sonucunda katot tarafında saf oksijen kullanılmasıyla, yığın verimliliği aynı kalmak koşuluyla, katot stokiyometrik oranı 1,25 değerine düşmüştür [11].

PEM yakıt hücresi ile ilgili yapılan başka bir çalışmada farklı kanal genişliğinin PEM yakıt hücresi performansına etkisi incelenmiştir. Hücre genişliği ve kanal yüksekliğinin sabit tutulduğu bu çalışmada sadece kanal genişliği değiştirilmiştir. Yapılan analizler sonucunda kanal genişliği arttıkça akım yoğunluğunun azaldığı sonucuna varılmıştır [6].

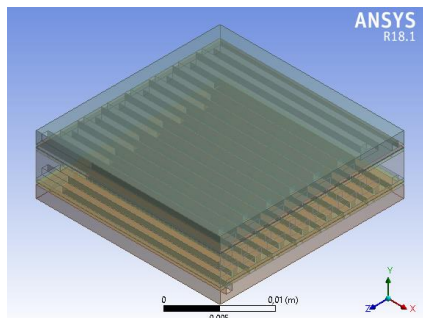
Yakıt hücrelerinin çalışmasına etki eden faktörler ile ilgili bir literatür taraması yapıldığında yakıt hücresi yığın performansına stokiyometrik oranın etkisinin incelendiği farklı çalışmalara ulaşılmıştır [10,17-21]. Bu çalışmalarda sadece katot stokiyometrisinin etkisini dikkate alan [17], geri basınçlandırma ve anot stokiyometrisini inceleyen [18], hava stokiyometrisini yani katot stokiyometrisi dikkate alan [19], yük değişimi esnasındaki stokiyometri değişimini inceleyen [20], PEM yakıt hücresi çalışma koşullarının (akım yoğunluğu, çalışma sıcaklığı, katot stokiyometrisi, vb.) ısı ve su oluşumu üzerine etkilerini inceleyen çalışmalara ulaşılmıştır. Bu çalışmada ise iki hücreli PEM yakıt hücresi yığını performansına stokiyometri oranının etkisi literatürdeki çalışmalardan farklı olarak hem anot hemde katot stokiyometrisinin eş zamanlı olarak değiştirilmesi ile sayısal olarak incelenmiştir. Çalışma sonucu elde edilen polarizasyon eğrileri, güç-akım yoğunluğu eğrileri, sıcaklık dağılımları ve kütle kesri dağılımları gösterilmiş ve yorumlar yapılmıştır.

2. MATERYAL ve METOT (MATERIAL and METHOD)

Literatürde tek bir PEM yakıt hücresinin (single PEM fuel cell) modellenmesine ait oldukça fazla sayıda çalışma bulunmaktadır. Bunun yanısıra çok hücreli yakıt hücresi yığınlarının modellenmesine ait çalışmalarda son yıllarda artmıştır. Bu çalışmada iki hücreli PEM yakıt hücresi yığın modeli belirli çalışma koşullarında sayısal olarak HAD programı kullanılarak analiz edilmiştir. Öncelikle çalışmanın karşılaştırılabilmesi için Bilgili ve arkadaşlarının yaptığı 3 boyutlu model geometrisi [4] temel alınmıştır.

2.1. PEM Yakıt Hücre Yığını Modeli (PEM Fuel Cell Stack Model)

Bu çalışmamızın amacı PEM yakıt hücresi yığını performansına stokiyometrik oranın etkisinin incelenmesi olduğu için tasarım kısmında Bilgili ve arkadaşlarının [4] ilgili makalesindeki iki hücreli PEM yakıt hücresi yığın tasarımına bağlı kalınarak sayısal analizler gerçekleştirilmiştir.



Şekil 1. İki hücreli PEM yakıt hücresi yığınının 3 boyutlu görüntüsü [4]

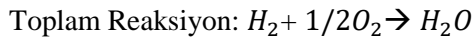
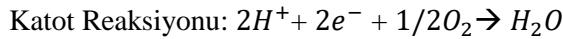
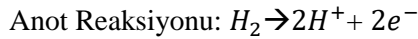
Şekil 1'de genel görüntüsü verilen iki hücreli PEM yakıt hücresi yığının geometrik boyutları ve özellikleri Tablo 1'de verilmiştir.

Tablo 1. Yakıt hücresinin geometrik özellikleri [4]

FİZİKSEL BOYUTLAR	1S SERPANTİN	BİRİM
Kanal Derinliği	0,75	mm
Kanal Genişliği	0,75	mm
Akış Kanalı Kesit Alanı	0,5625e-06	mm ²
Yakıt Pili Aktif Alanı	0,00054	mm ²
Difüzyon Tabakası Kalınlığı	0,325	mm
Katalizör Tabakası Kalınlığı	0,015	mm
Membran Kalınlığı	0,05	mm

2.2. Yakıt Pili Yığın Hesaplamaları (Calculations of Fuel Cell Stack)

PEM yakıt pillerinde anot ve katot kutuplarında birbirlerinden bağımsız olarak reaksiyonlar gerçekleşir. Anot kutbuna gönderilen hidrojen elektronların ayrılması neticesinde protonlar oluşur. Oluşan bu protonlar geçirgen zardan; elektronlar ise ayrı bir devreden katoda ulaşır. Katoda gönderilen havada bulunan oksijen molekülleri ile katot tarafından gelen proton ve elektronların reaksiyonu ile devre tamamlanır. Açığa ise su çıkar. PEM yakıt pilinin anot kutbunda ve katot kutuplarında şu reaksiyonlar gerçekleşir:



PEM yakıt pillerindeki güç hesaplamaları temelde yakıt pilinin voltaj (V) ve akım (I) değerlerine bağlıdır. Her bir hücredeki ortalama potansiyel ile toplam hücre sayısının çarpımı yığının ortalama potansiyelini verir. Elde edilen bu değer ile akımın çarpılması sonucunda ise güç meydana gelir. Basit olarak elde edilen güç denklemi şu şekildedir [2]:

$$W = V_{\text{hücre}} \times n_{\text{hücre}} \times I \quad 1$$

Akım yoğunluğu değeri (i) [A/cm²] akımın yakıt pili aktif alanına bölünmesi sonucu elde edilir. Çalışma da analizler 343 K ve ortam basıncı 1 atm değerlerine göre yapılmıştır. Hesaplamalarda hücre sayısı ($n_{\text{hücre}}$) 2 olarak alınmış ve yakıt pili aktif alanı (A) 5,4 cm² olarak belirlenmiştir. Anot ve katot giriş debisi hesabı aşağıdaki Eş.(2) ve Eş.(4) kullanılarak hesaplanmıştır.

$$\dot{n}_{H_2} = n_{\text{hücre}} \left(\lambda_a \frac{i \cdot A}{n_e \cdot F} \right) \quad 2$$

Eş.(2)'deki \dot{n}_{H_2} anot tarafı için mol debisini ifade ederken $n_{\text{hücre}}$ ise yakıt pili yığınındaki hücre sayısını gösterir. λ_a reaktan gazların stokiyometrik oranıdır ve sağlanan reaktif akışının harcanan reaktif akışına olan oranını ifade eder. Anot ve katot stokiyometrik oranlarının matematiksel gösterimi Eş.(3)'de verilmiştir. Anot ve katot tarafı için bu değer 1,5, 2,0, 2,5, 3,0, 3,5 olarak alınmıştır.

$$\lambda_a = \frac{\dot{n}_{H_2, \text{sağlanan}}}{\dot{n}_{H_2, \text{harcanan}}} ; \lambda_c = \frac{\dot{n}_{O_2, \text{sağlanan}}}{\dot{n}_{O_2, \text{harcanan}}} \quad 3$$

Ayrıca n_e ilgili türün her bir molü için transfer edilen elektron sayısını ifade eder. Eş.2 için ilgili tür hidrojen olduğu için $n_e=2$ eq/mol olarak alınmıştır. Faraday sabiti (F) ise 96485 C/mol olarak hesaba katılmıştır.

Eş.(2) ile bulunan mol debisi, molekül ağırlığı ile çarpılarak kütle debisi (\dot{m}_{H_2}) hesaplanır.

$$\dot{m}_{H_2} = \dot{n} \times M \quad 4$$

Bu aşamadan sonra anot giriş tarafındaki nem de hesaplanarak toplam kütle debisi bulunur. Kütle kesri (m_{fi}) için $H_2=0,3$ ve $H_2O=0,7$ olarak alınmıştır.

$$m_{fi} = \frac{\dot{m}_{H_2}}{\dot{m}_{H_2O} + \dot{m}_{H_2}} \quad 5$$

Eş.(5) denkleminde bulunan \dot{m}_{H_2O} değeri ile Eş.(3)'den bulunan hidrojen kütle debisi toplanarak toplam anot giriş kütle debisi bulunur.

Katot giriş debisi hesaplanırken saf oksijen alınmamıştır. Bu yüzden havada oksijen miktarı %21 olduğundan dolayı bu değer hesaba katılmıştır. Ayrıca katot giriş tarafı için nemlendirme yapılmamıştır.

Yukarıdaki eşitlikler ile anot ve katot stokiometrik oranları için eş zamanlı olarak ("1,5", "2", "2,5", "3", "3,5") değerleri alınarak gerekli hesaplamalar yapılmıştır. Bu hesaplar neticesinde bulunan anot ve katot tarafındaki gaz giriş debileri Tablo 2'de verilmiştir.

Tablo 2. Farklı stokiometrik oranlarda giriş kütle debileri

Anot Stokiometrik Oran	1,5	2	2,5	3	3,5
Katot Stokiometrik Oran	1,5	2	2,5	3	3,5
Anode Mass Flow Inlet (kg/s)	5,6413e-07	7,521e-07	9,4e-07	1,13e-06	1,32e-06
Cathode Mass Flow Inlet (kg/s)	6,395e-06	8,527e-06	1,06e-05	1,28e-05	1,49e-05

Sayısal analizde kullanılan elektrokimyasal parametreler ve aldıkları değerler birimleri ile birlikte Tablo 3'de sırayla verilmiştir.

Tablo 3. Sayısal analizde kullanılan elektrokimyasal parametreler

PARAMETRELER	DEĞER	BİRİM
Anot Referansı Akım Yoğunluğu	1,0	A.cm ⁻²
Anot Referansı Mol Derişimi	1	kmol.m ⁻³
Anot Derişiminin Değeri	0,5	-
Anot Aktarım Katsayısı	1	-
Katot Referansı Akım Yoğunluğu	1,0	A.cm ⁻²
Katot Referansı Mol Derişimi	1,0	kmol.m ⁻³
Katot Derişiminin Değeri	1	-
Katot Aktarım Katsayısı	1	-
Açık Devre Voltajı	0,977	V
GDL Isıl İletkenliği	1,6	W(m.K) ⁻¹
Katalizör Tabakası Isıl İletkenliği	2	W(m.K) ⁻¹
Bipolar Plakanın Isıl İletkenliği	20	W(m.K) ⁻¹
GDL Elektriksel İletkenliği	2500	(ohm.m) ⁻¹
Katalizör Tabakası Elektriksel İletkenliği	2500	(ohm.m) ⁻¹
Bipolar Plakanın Isıl İletkenliği	22000	(ohm.m) ⁻¹
GDL Gözenekliliği	0,75	-
Katalizör Tabakası Gözenekliliği	0,5	-
Temas Açısı Anot/Katot	165	°
Temas Direnci	5e-07	ohm.m ²
Membran Eşdeğer Ağırlık	1100	kg.kmol ⁻¹

Analizler beş farklı stokiometrik oran için altı farklı voltaj değeri (0.8V, 1.0V, 1.2V, 1.4V, 1.6V, 1.8V) ile ANSYS Fluent programı kullanılarak yapılmıştır. Sayısal analiz için kullanılan denklemler aşağıda verilmiştir.

Kütlenin korunumu kanunundan gaz difüzyon katmanındaki ve kanallardaki süreklilik denklemi Eş.(6)'de verilmiştir.

$$\nabla(\rho\epsilon\mu) = S_m \quad 6$$

Eş.(6)'de verilen S_m yakıt pilindeki anot tarafındaki elektrokimyasal reaksiyonlar boyunca meydana gelen üretim ve tüketimi gösterirken ϵ elektrottaki gözeneklilik katsayısını, ρ gaz karışımının yoğunluğunu ve μ ise akışkanın hız vektörünü ifade etmektedir.

Eş.(7)'de ise momentumun korunumu denklemi verilmektedir. Bu denklemdeki p basıncı, μ ise viskoziteyi göstermektedir. S_u ise gözenekli orama bağlı bir kaynak terimini temsil etmektedir.

$$\nabla.(\epsilon\rho\mu u) = -\epsilon\nabla p + (\epsilon\mu_{eff}\nabla u) + S_u \quad 7$$

Enerji denklemi Eş.(8)'deki ifade ile gösterilmiştir. Burada ki λ_{eff} efektif iletkenliğini, C_p izobarik ısıyı, S_h ise enerji kaynağı terimini ifade eder.

$$\nabla.(\lambda_{eff}\nabla T) = \nabla.(\epsilon\rho C_p u T) + S_h \quad 8$$

Türlerin korunumu ise

$$\frac{\partial(\epsilon C_k)}{\partial t} + \nabla(\epsilon \vec{v} C_i) = \nabla(D_i \nabla C_i) + S_i \quad 9$$

şeklinde ifade edilir. Buradaki C_i i türünün yoğunluğunu, D_i i türünün difüzyon katsayısını gösterirken S_i ise türlere ait kaynak terimini ifade eder.

Elektronlar için yükün korunumu eşitliği,

$$\nabla.(\sigma_s^{eff}\nabla\phi_s) = S_e \quad 10$$

şeklinde ifade edilirken protonlar için yükün korunumu eşitliği ise

$$\nabla.(\sigma_m^{eff}\nabla\phi_m) = S_i \quad 11$$

ile ifade edilir. Buradaki ϕ_s katı faz potansiyelini, ϕ_m membran potansiyelini, σ_s^{eff} efektif elektrik iletkenliğini, σ_m^{eff} ise membranın iyonik iletkenliğini gösterir. Bu denklemler tasarımı yapılan iki hücreli PEM yakıt hücresi yığını için stokiyometrik oranın performansına etkisinin incelenmesi için kullanılmıştır. Her bir katman için çözülen denklemler ve kaynak terimlerinin eşitliklerine detaylı olarak [3]'den ulaşılabilir.

3. BULGULAR ve TARTIŞMA (OBSERVATIONS and DISCUSSIONS)

Beş farklı stokiyometrik oran değeri için altı ayrı voltaj değerlerinde ANSYS Fluent programı kullanılarak sayısal analizler gerçekleştirilmiştir. Stokiyometrik oran, anot ve katot tarafında aynı olacak şekilde alınmıştır. Örneğin ilk yapılan analizde anot ve katot tarafı stokiyometrik oranı 1,5 alınarak belirli bir voltajdaki akım yoğunluğu değeri bulunmuştur. Değişen stokiyometrik oranlarda ve voltaj değerlerinde elde edilen akım yoğunluğu değerleri Tablo 4'de detaylı olarak gösterilmektedir.

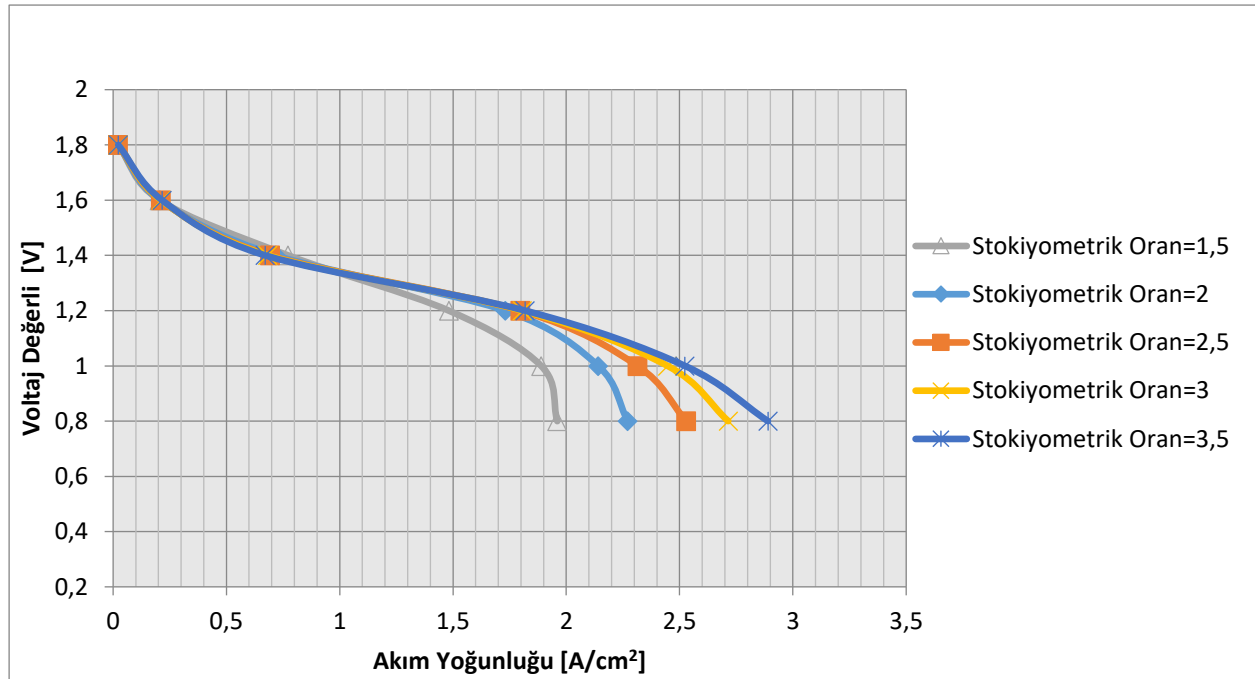
Tablo 4. Farklı stokiyometrik oranlarda ve voltajlarda elde edilen akım yoğunluğu değerleri

Stokiyometrik Oran=1,5		Stokiyometrik Oran=2		Stokiyometrik Oran=2,5	
Volt	Akım Yoğunluğu (A/cm ²)	Volt	Akım Yoğunluğu (A/cm ²)	Volt	Akım Yoğunluğu (A/cm ²)
1,8	0,022	1,8	0,022	1,8	0,022
1,6	0,205	1,6	0,206	1,6	0,210
1,4	0,772	1,4	0,718	1,4	0,692
1,2	1,482	1,2	1,731	1,2	1,798
1	1,890	1	2,141	1	2,314
0,8	1,960	0,8	2,271	0,8	2,530

Tablo 4 . Farklı stokiyometrik oranlarda ve voltajlarda elde edilen akım yoğunluğu değerleri (Devam)

Stokiyometrik Oran=3		Stokiyometrik Oran=3,5	
Volt	Akım Yoğunluğu (A/cm ²)	Volt	Akım Yoğunluğu (A/cm ²)
1,8	0,022	1,8	0,023
1,6	0,212	1,6	0,216
1,4	0,683	1,4	0,671
1,2	1,806	1,2	1,819
1	2,447	1	2,524
0,8	2,715	0,8	2,890

Bu sonuçlar neticesinde her bir stokiyometrik oranda elde edilen akım yoğunluğu değerleri kullanılarak Şekil 2’de görülen polarizasyon eğrileri elde edilmiştir.

**Şekil 2 . Farklı stokiyometrik oranlarda iki hücreli yakıt pili yığı için polarizasyon eğrileri**

Yapılan analizler neticesinde elde edilen polarizasyon eğrilerine göre farklı stokiyometrik oranlarda elde edilen akım yoğunluğu değerlerinin 1,8 V ile 1,4 V arasında birbirlerine benzer şekilde olduğu, 1 V ile 0,8 V arasında ise belirgin şekilde farklılık gösterdiği gözlemlenmiştir. Bununla birlikte voltaj değerleri düşüktükçe her bir stokiyometrik orandaki akım yoğunluğu değerlerinde artış meydana geldiği görülmüş, en fazla akım yoğunluğu değerlerine ise 0,8 V’da ulaşılmıştır. 0,8 V değeri için yapılan analizlerde elde edilen akım yoğunluğu değerleri, stokiyometrik oran 1,5 için 1,96 A/cm², stokiyometrik oran 2 için 2,27 A/cm² ve stokiyometrik oran 2,5 için 2,53 A/cm² şeklinde elde edilmiştir. Aynı voltaj değerinde akım yoğunluğu stokiyometrik oran 3 için 2,72 A/cm², stokiyometrik oran 3,5 için 2,89 A/cm² olarak hesaplanmıştır. Stokiyometrik oranlar arası akım yoğunluğu değerlerinin en fazla farklılık gösterdiği 0,8 V değerindeki akım yoğunluğu artışı stokiyometrik oran 1,5 - 2 arasında %15,85, stokiyometrik oran 2 - 2,5 arasında %11,38 şeklinde gerçekleşmiştir. Aynı voltaj değerinde stokiyometrik oran 2,5 - 3 arasında %7,32 oranında artış görülürken stokiyometrik oran 3-3,5 arasında % 6,45 şeklinde artış gerçekleşmiştir.

Şekil 2’de net bir biçimde görüldüğü gibi akım yoğunluğu değerleri 1,2V değeri ve daha düşük voltaj değerleri için stokiyometrik oran arttıkça artmakta, fakat artış miktarı stokiyometri artışına bağlı olarak yavaşlamaktadır. Buradan polarizasyon eğrisinde yüksek akım yoğunluğu bölgesinde, artan stokiyometrik oran değerleri için akım yoğunluğundaki artışın azaldığı söylenebilir.

Tablo 5. Farklı stokiyometrik oranlarda değişen voltaj değerlerine göre elde edilen güç değerleri

Stokiyometrik Oran=1,5	Güç	Stokiyometrik Oran=2	Güç	Stokiyometrik Oran=2,5	Güç
0,8V	8,47	0,8V	9,81	0,8V	10,93
1V	10,20	1V	11,56	1V	12,50
1,2V	9,60	1,2V	11,22	1,2V	11,65
1,4V	5,84	1,4V	5,43	1,4V	5,24
1,6V	1,77	1,6V	1,78	1,6V	1,82
1,8V	0,21	1,8V	0,21	1,8V	0,21

Tablo 5. Farklı stokiyometrik oranlarda değişen voltaj değerlerine göre elde edilen güç değerleri (Devam)

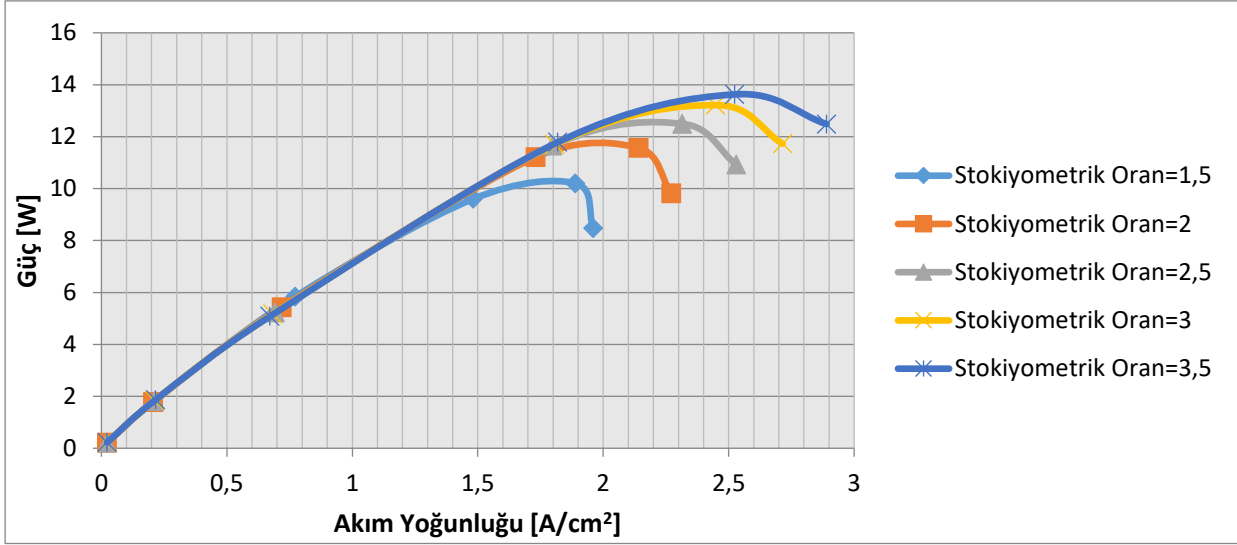
Stokiyometrik Oran=3	Güç	Stokiyometrik Oran=3,5	Güç
0,8 V	11,73	0,8V	12,49
1V	13,21	1V	13,63
1,2V	11,70	1,2V	11,79
1,4V	5,17	1,4V	5,08
1,6V	1,83	1,6V	1,87
1,8V	0,22	1,8V	0,22

Her bir stokiyometrik oran için 0,8 V'dan 1,8 V'a kadar farklı potansiyel değerlerinde analizler yapılarak elde edilen akım yoğunluğu değerleri ile Eş.(1) kullanılarak güç değerleri sayısal olarak hesaplanmıştır. Stokiyometrik oranların her biri ayrı ayrı incelendiğinde en yüksek güç noktalarının analiz yapılan değerler arasından 1 V değerinde olduğu görülmüştür (Tablo 5).

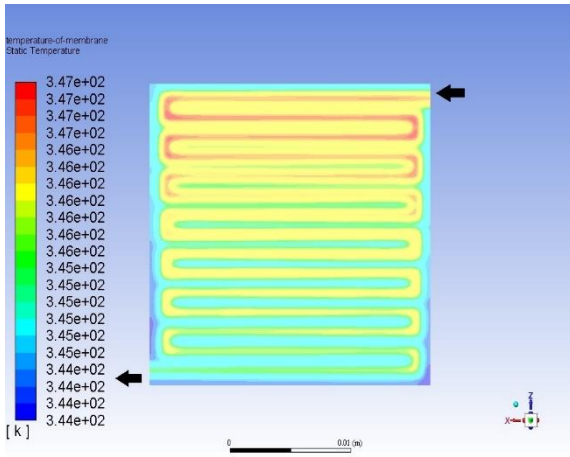
Tablo 5'deki veriler doğrultusunda her bir stokiyometrik oran için güç-akım yoğunluğu eğrileri Şekil 3'de gösterildiği gibi elde edilmiştir.

Her bir stokiyometri değeri için elde edilen eğrilerde Şekil 3'de görüldüğü üzere güç eğrileri bir maksimum tepe değerine ulaşmakta ve sonrasında düşüşe geçmektedir. Stokiyometrik oran 1,5 için yapılan analizde tepe noktası 1,89 A/cm² değerinde görülmüştür. Tepe noktası değeri stokiyometrik oran 2 için 2,14 A/cm², stokiyometrik oran 2,5 için 2,31 A/cm², stokiyometrik oran 3 için 2,44 A/cm² ve stokiyometrik oran 3,5 için ise 2,52 A/cm² şeklinde gözlemlenmiştir. Her bir stokiyometrik oranda elde edilen güç miktarları karşılaştırıldığında ulaşılan tepe noktaları arasındaki artış oranı stokiyometrik oran 1,5-2 arasında %13,34, stokiyometrik oran 2-2,5 arasında %8,09, stokiyometrik oran 2,5-3 arasında %5,75 ve stokiyometrik oran 3-3,5 arasında ise %3,14 olarak gerçekleşmiştir. Burada elde edilen sonuçlardan görüldüğü gibi stokiyometrik oranın artmasıyla beraber güç değerlerinin de arttığı, fakat bu artışın doğru orantılı olarak gerçekleşmediği, güç değerlerinin artış oranında azalma meydana geldiği görülmüştür.

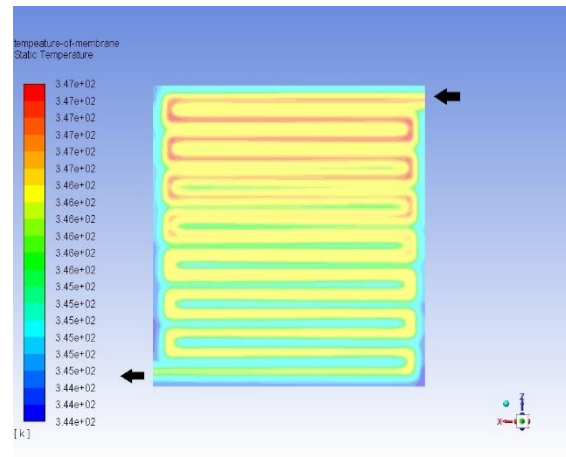
Yapılan analizler sonucunda membran sıcaklık dağılımı, anot ve katot kütle kesir oranlarının dağılımları da elde edilmiştir. Her bir stokiyometrik oran için elde edilen güç miktarına en fazla 1 V potansiyel farkı değerinde ulaşıldığı için aşağıda bu volt değerindeki sıcaklık, anot kesri ve katot kesri dağılımlarına yer verilmiştir (Şekil 4, Şekil 5 ve Şekil 6).



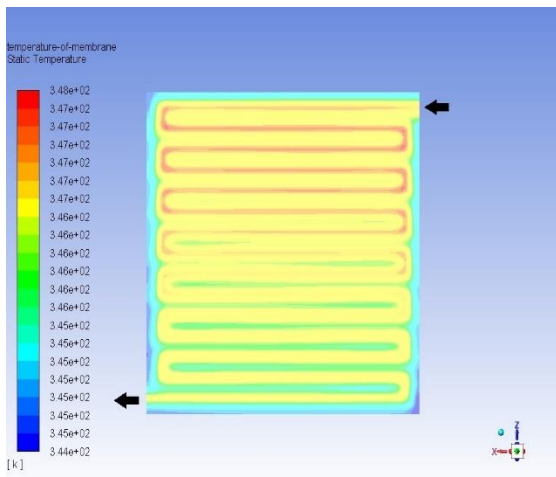
Şekil 3. Farklı stokiyometrik oranlarda elde edilen güç- akım yoğunluğu eğrileri



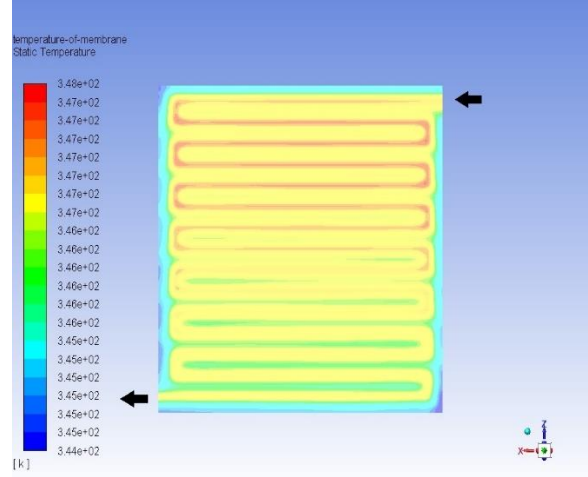
(a)



(b)



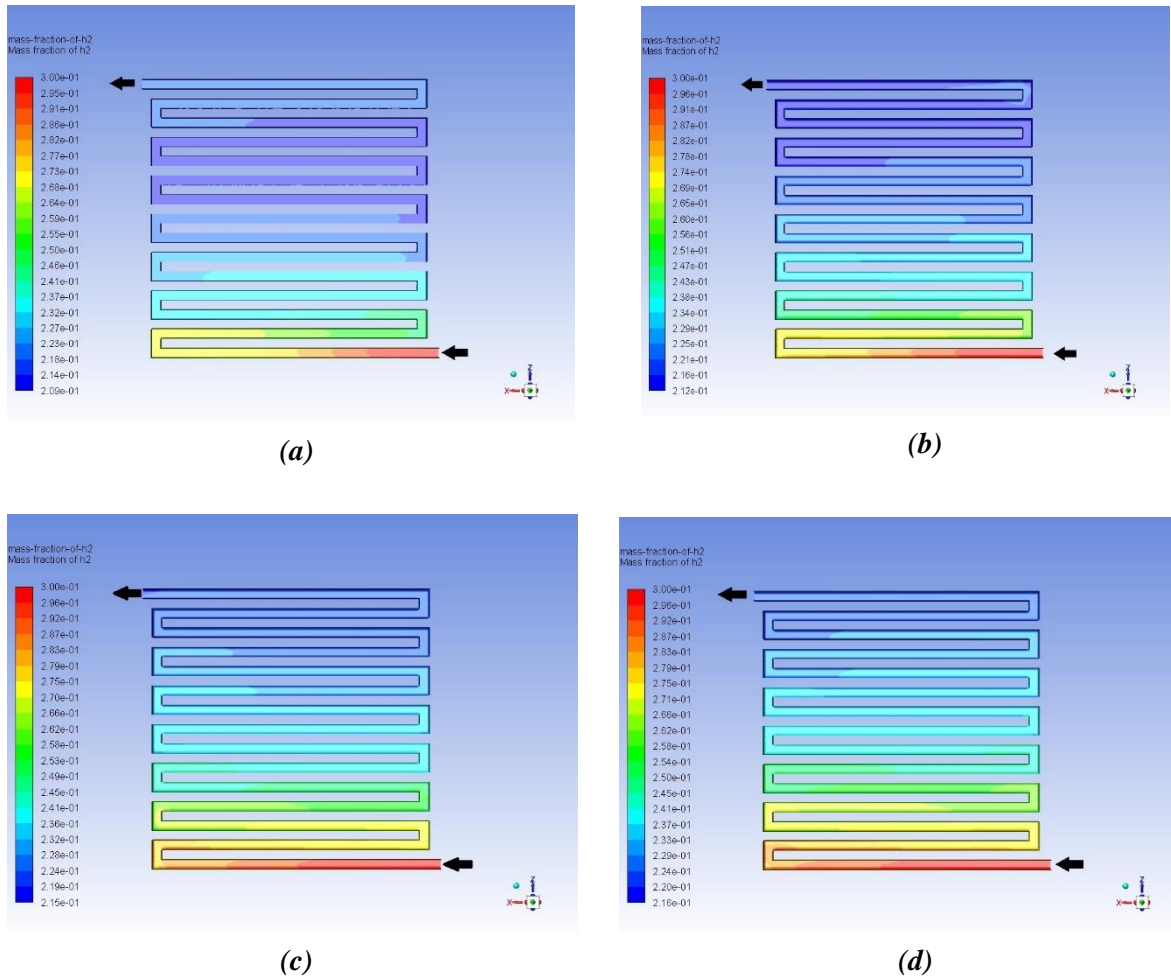
(c)



(d)

Şekil 4. Membran tabakası sıcaklık dağılımları (a) Stokiyometrik oran 1,5 (b) Stokiyometrik oran 2 (c) Stokiyometrik oran 3 (d) Stokiyometrik oran 3,5

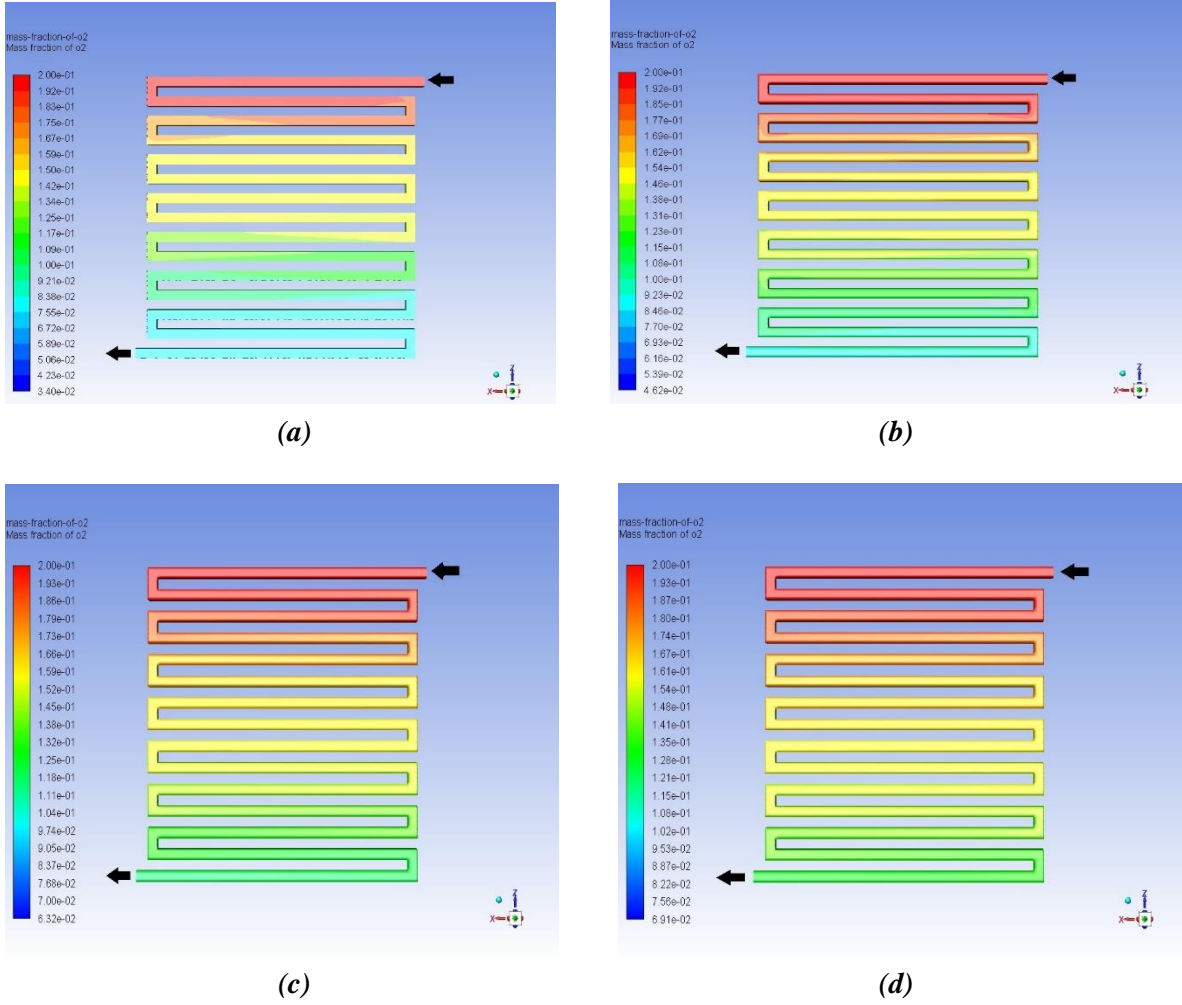
Yakıt hücreleri için değişen koşullardaki sıcaklık analizleri yakıt hücrelerinin çalışma performansı açısından önemlidir. Yan ve arkadaşları'nın PEM Yakıt hücresinin çeşitli çalışma koşulları altındaki durumunu inceledikleri çalışmaya göre yakıt pilinin çalışma sıcaklığının gaz difüzyon ve katalizör tabakalarındaki su transferi ve membran iletkenliği üzerindeki etkisi nedeniyle yakıt hücresi performansını önemli ölçüde etkilediği bulunmuştur [15]. Her bir stokiyometrik oran için Şekil 4. (a), (b), (c), (d) ayrı ayrı incelendiğinde her birindeki maksimum minimum sıcaklık farkının en fazla 5°C olduğu gözlemlenmiştir. Ayrıca sözü edilen şekiller bir bütün olarak incelendiğinde stokiyometrik oran arttıkça sıcaklık değerlerinin de arttığı fakat bu artışın yalnızca 1-2°C ile sınırlı kaldığı görülmektedir. Buradan yola çıkarak stokiyometrik oranın PEM yakıt hücresi çalışma sıcaklığına fazla bir etkisinin olmadığı sonucuna varılabilir. Bununla birlikte aynı voltaj değerlerinde stokiyometrik oran arttıkça sıcaklık dağılımları daha homojen hale gelmektedir. Bunun sebebi ise konvektif ısı transferinin artmasından dolayı gerçekleştiği düşünülmektedir.



Şekil 5. Gaz akış kanalı içersisinde anot kütle kesri dağılımları (a) Stokiyometrik oran 1,5 (b) Stokiyometrik oran 2 (c) Stokiyometrik oran 3 (d) Stokiyometrik oran 3,5

Analizler neticesinde elde edilen anot kütle kesri dağılımları Şekil 5’de gösterilmiştir. Bu dağılımlara bakıldığında her bir yakıt hücresinin giriş kütle kesri oranı 0,3 olarak gerçekleşmiştir. Stokiyometrik oran 1,5 için çıkış anot kütle kesri 0,209 olarak gerçekleşirken, bu oran stokiyometrik oran 2 için 0,211, stokiyometrik oran 3 için 0,215, stokiyometrik oran 3,5 için ise 0,216 şeklinde gerçekleşmiştir. Bu veriler doğrultusunda çıkış kütle kesrinin stokiyometrik oran arttıkça artış gösterdiği gözlemlenmiştir. Ayrıca dağılımlar incelendiğinde stokiyometrik oranın artmasıyla beraber kanal boyuncaki kütle kesri oranlarının daha da homojen hale geldiği sonucu elde edilmiştir. Kütle kesri oranının kanallar boyunca artış göstermesi

daha fazla reaksiyonun gerçekleşmesine ve bununla birlikte yakıt hücresi performansının daha da artmasına neden olmaktadır.



Şekil 6. Gaz akış kanalı içerisinde katot kütle kesri dağılımları (a) Stokiyometrik oran 1,5 (b) Stokiyometrik oran 2 (c) Stokiyometrik oran 3 (d) Stokiyometrik oran 3,5

1V değeri için elde edilen katot kütle kesri dağılımları Şekil 6'da gösterilmiştir. Artan stokiyometrik oranlar ile beraber 1V değeri için yapılan analizlerde, katot kütle kesri dağılımı incelendiğinde her bir yakıt hücresindeki giriş kütle kesri 0,2 olarak gerçekleşmiştir. Çıkış katot kütle kesri değerleri stokiyometrik oran 1,5 için 0,034, stokiyometrik oran 2 için 0,046, stokiyometrik oran 3 için 0,063 ve stokiyometrik oran 3,5 için ise 0,069 olarak elde edilmiştir. Anot kütle kesrine benzer olarak katot kütle kesri oranı da stokiyometrik oran arttıkça artış göstermiş ve kanallardaki katot kesri dağılımı daha homojen bir hale geldiği görülmektedir.

4. SONUÇLAR (RESULTS)

Bu çalışmada belirlenen anot ve katot stokiyometrik oranlarında PEM yakıt hücresi yığını performansına etkisi sayısal olarak incelenmiştir. Analizler neticesinde yüksek akım yoğunluğu bölgesinde, artan stokiyometrik oran değerleri için akım yoğunluğunda da artış olmuştur. Bu artışın oranı, stokiyometrik oranlar arttıkça azalmıştır. Stokiyometrik oranların her biri ayrı ayrı incelendiğinde en yüksek güç noktalarının analiz yapılan potansiyel farkı değerleri arasından 1 V değerinde olduğu görülmüştür.

Değişen voltaj değerlerinde stokiyometrik oranın artmasıyla beraber sıcaklık artışının gerçekleştiği fakat bu artışın 1-2°C olduğu görülmüştür. Bununla birlikte stokiyometrik oranın artmasıyla sıcaklık dağılımının daha homojen bir hale geldiği sonucuna ulaşılmıştır. Anot ve katot kütle kesirlerinin ise artan stokiyometrik oran ile birlikte arttığı ve dağılımlarının yakıt hücresi geneline daha homojen olarak yayıldığı sonucu elde edilmiştir.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

- [1] Çelik, S. (2018). Akış Kanalı Tasarımının PEM Yakıt Pili Performansına Etkilerinin İncelenmesi. Niğde Ömer Halis Demir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi, 7(1), 407-416.
- [2] Barbir, F. (2005). Introduction. PEM Fuel Cells Theory and Practice, Elsevier Academic Press, London, 17-30.
- [3] Bilgili M., Bosomoui M., Tsotridis G. (2015). Gas flow field with obstacle for PEM fuel cells at different operating conditions. International Journal of Hydrogen Energy, 40(5), 2303-2311.
- [4] Arıç T., Bilgili, M., Ozsunar A.K. (2019). İki Hücreli PEM Yakıt Pili Yığının Sayısal Analizi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi Part C: Tasarım ve Teknoloji, 7 (4), 999-1011.
- [5] Bilgili M. ve Sivrioğlu M. (2016). PEM Yakıt Pili Değişik Membran Elektrot Çifti Kalınlıklarında ve Farklı Çalışma Basıncı Koşullarında Üç Boyutlu Sayısal Analizi, Gazi Üniversitesi Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi, 31 (1).
- [6] Eker Kahveci, E. ve Taymaz, İ. (2013). Akış Kanalı Genişliğinin PEM Tipi Yakıt Hücresi Performansına Etkisinin İncelenmesi. Sakarya University Journal of Science, 17 (2), 195-200.
- [7] J. Zhang, J. Wu, H. Zhang. (2013). PEM Fuel Cell Testing and Diagnosis, Elsevier.
- [8] Kahraman, H., Çevik, I., Coşman, S. (2014). Sıkıştırma Basıncının PEM Yakıt Pili Performansına Etkisi. 2. Uluslararası Mühendislik ve Bilim Alanında Yenilikçi Teknolojiler Sempozyumu, Karabük, 1008-1015.
- [9] Mahreni, Mohamad, A. B., Khadum, A. A. H., Daud, W. R. W. (2011). Nanocomposite electrolyte for PEMFC Application. Advances in Nanocomposites: Synthesis, Characterization and Industrial Applications, 263.
- [10] Santarelli, M. G., Torchio, M. F., Calı, M., Giarretto, V. (2007). Experimental analysis of cathode flow stoichiometry on the electrical performance of a PEMFC stack. International journal of hydrogen energy, 32(6), 710-716.
- [11] Polak, A., Grzeczka, G., Pilat, T., (2017). Influence of cathode stoichiometry on operating of PEM fuel cell' stack supplied with pure oxygen. Journal of marine engineering&technology, 16(4), 283-290
- [12] Sedighizadeh, M., Rezazadeh, A., Khoddam, M., Zarean, N. (2011). Parameter optimization for a PEMFC model with particle swarm optimization. International Journal of Engineering and Applied Sciences, 3(1), 102-108.
- [13] Şenol, R., Üçgül, İ., Acar, M. (2006). Yakıt Pili Teknolojisindeki Gelişmeler Ve Taşıtlara Uygulanabilirliğinin İncelenmesi. Mühendis ve Makina, 47(563), 37-50.
- [14] Taner, T., Eroğlu, L. (2008). Geleceğin Enerjisi Proton Değişimli Membran Yakıt Pili Su Yönetiminin Önemi, VII. Ulusal Temiz Enerji Sempozyumu, UTES'2008, İstanbul, 735-741.
- [15] Yan, Q., Toghiani, H., Causey, H. (2006). Steady state and dynamic performance of proton exchange membrane fuel cells (PEMFCs) under various operating conditions and load changes. Journal of Power Sources, 161(1), 492-502.

- [16] Yılmaz, A., Ünvar, S., Ekmen, M., Aydın, S.(2017). Yakıt Pili Teknolojisi. *Technological Applied Sciences*, 12 (4), 185-192.
- [17] Adam Polak, Grzegorz Grzeczka & Tomasz Piłat (2017) Influence of cathode stoichiometry on operation of PEM fuel cells' stack supplied with pure oxygen, *Journal of Marine Engineering & Technology*, 16:4, 283-290, DOI: 10.1080/20464177.2017.1381061
- [18] Tatyana V. Reshetenkoa, Guido Bender, Keith Bethune, Richard Rocheleau (2011), Systematic study of back pressure and anode stoichiometry effects on spatial PEMFC performance distribution, *Electrochimica Acta*, 56, 8700– 8710
- [19] Bosung Kim, Dowon Cha, Yongchan Kim (2015) The effects of air stoichiometry and air excess ratio on the transient response of a PEMFC under load change conditions, *Applied Energy*, 138, 143–149
- [20] Sunhoe Kim, S. Shimpalee, J.W. Van Zee (2004) The effect of stoichiometry on dynamic behavior of a proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) during load change, *Journal of Power Sources*, 135, 110–121
- [21] Zirong Yang, Qing Du, Zhiwei Jia, Chunguang Yang, Kui Jiao, (2019) Effects of operating conditions on water and heat management by a transient multi-dimensional PEMFC system model, *Energy*, 183, 462-476