Amirkabir Journal of Mechanical Engineering

Amirkabir J. Mech. Eng., 53(11) (2022) 1385-1388
DOI: 10.22060/mej.2021.19340.7004

Network Modeling to Investigate the Effect of Coupling the Transport Phenomena on Water Distribution in Gas Diffusion Layer

H. Gholipour[1], M. J. Kermani[1]* , R. Zamanian[2]*

[1] Department of Mechanical Engineering, Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran
[2] New Technologies Research Center, International Campus, Amirkabir University of Technology, Tehran, Iran

ABSTRACT: The cathode side gas diffusion layer in polymer electrolyte membrane fuel cells discharges out the water generated as a result of the electrochemical reaction through its porous medium. This paper criticizes the generated pore network models for gas diffusion layers assuming uniform injection of liquid water from the catalyst layer. These models lead to a roughly uniform distribution of liquid water saturation in the in-plane direction making no difference between under gas channel and under rib regions which is in contradiction with the in-situ visualizations of gas diffusion layers. It has been attempted in this paper to couple the existing two-phase flow network models to other transport phenomena in the gas diffusion layer and also in other layers. To achieve this, the mentioned model is coupled to network models of oxygen and electron transport at the cathode side and also to a model of electrochemical reaction at the catalyst layer and a proton transport model of the membrane. As the first result of modeling, the distribution of local water generation rate and also the temporal evolution of total water generation rate at catalyst layer are presented, the latter experiencing an approximate 50% reduction from start-up to steady-state. The resulting water saturation distribution is strongly non-uniform, and maximums are observed under the ribs which is a direct result of non-uniform water generation at reaction sites.

Review History:

Received: Dec. 04, 2020
Revised: Jan. 29, 2021
Accepted: Feb. 25, 2021
Available Online: Mar.04, 2021

Keywords:

Pore network model
Gas diffusion layer
Polymer electrolyte membrane fuel cell
Two-phase flow
Coupling.

1- Introduction

1. Introduction

Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells (PEMFCs) are generally recognized as promising alternatives to internal combustion engines. One of the key challenges in PEMFCs is the water management issue which relies on a compromise between flooding of Gas Diffusion Layer (GDL) and dehydration of membrane both of which must be avoided. Cathode side GDL provides a passageway for reactant oxygen, electrons, and the generated water between Cathode Catalyst Layer (CCL) and Gas Channels (GCs) or the current collector ribs.

To simulate liquid water dynamics and two-phase flow in GDL, pore network modeling has proved as a valuable tool which has drawn attention in the last decade [1, 2]. The majority of the developed pore network models for GDL have assumed a uniform injection of liquid water from the catalyst layer into GDL, which is not actually what happens in the PEMFC electrodes. On the other hand, there have been few models in recent years taking advantage of coupled transport phenomena for a better representation of water dynamics in GDL [3, 4], however, the models merely integrate a predetermined water configuration in GDL to other phenomena while ignoring the liquid water invasion process.

*Corresponding author's email: mkermani@aut.ac.ir

In this paper, a network model is proposed for GDL coupling the cathode side transport phenomena directly to the invasion process of water into GDL.

2- Methodology

At the first stage of modeling, a pore network is generated to adequately represent the pore space of real GDL in terms of porosity and permeability. The void space of GDL is represented by quadrilateral pores (ducts) and volumeless nodes. The pore sizes are distributed randomly according to a Weibull probability density function. To address the uncertainties accompanied by the statistical nature of network modeling, a large number of networks are generated and the results of the simulation are presented as averages and standard deviations of the results extracted from these networks.

At the second stage, two-phase water/airflow is simulated within the generated 2D networks. The capillary pressure model developed by Medici and Allen [1] is used. The volume flow rate in a pore is given by the modified Hagen-Poiseuille law as follows:

$$Q_{ij} = \begin{cases} \dfrac{{R_P}^2 A_w}{8\mu_{eff,ij} L}\left(P_i - P_j - P_{c,ij}\right) & , P_i - P_j > P_{c,ij} \\ 0 & , P_i - P_j < P_{c,ij} \end{cases} \quad (1)$$

Copyrights for this article are retained by the author(s) with publishing rights granted to Amirkabir University Press. The content of this article is subject to the terms and conditions of the Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY-NC 4.0) License. For more information, please visit https://www.creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/legalcode.

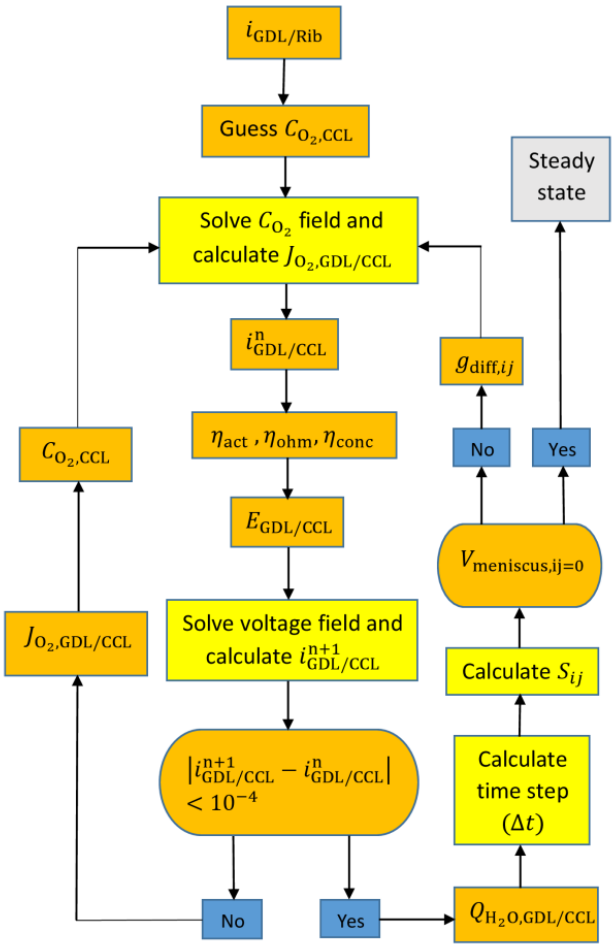


Fig. 1. Coupling algorithm of transport phenomena at the cathode side of the fuel cell

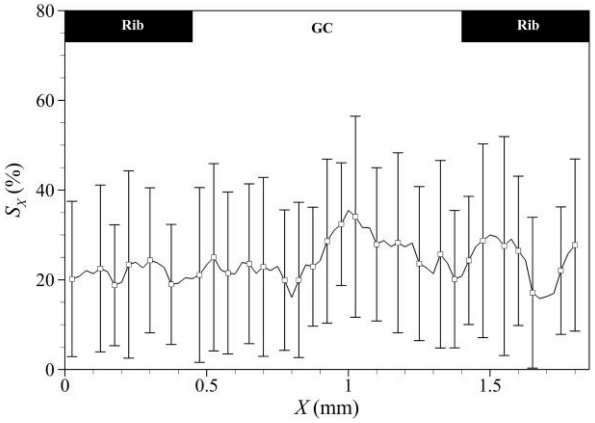


Fig. 2. In-plane saturation profile of liquid water in GDL

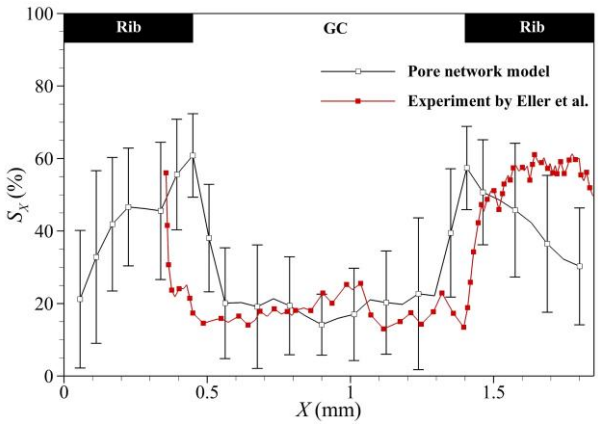


Fig. 3. In-plane saturation profile as a result of the coupled model. The saturation distribution of Eller et al. is also added for comparison [5].

where P_i and P_j are pressures at nodes i and j, $P_{c,ij}$ is the capillary pressure within pore ij, $\mu_{eff,ij}$ is the effective viscosity, R_p is the pore size, A_W is the cross-sectional area for water and L is the pore length. This part is carried out with the same assumption of uniform water injection from the catalyst layer as used in the mentioned references [1, 2].

At a third stage, first of all, the generated networks are upgraded to 3D, then it is attempted to couple the two-phase flow to other transport phenomena in the cathode side. To take the effects of oxygen and electron transport in GDL into account, network models are developed for them as well. The same void space in the generated networks is used for oxygen transport governed by Fick's law of diffusion. The solid walls of the pores are representative of carbon fibers of GDL and are assumed as pathways for electron conduction triggered by electric potential (E). A model of electrochemical reaction for catalyst layer governed by Butler-Volmer equation is used which leads to the determination of activation overvoltage (η_{act}). A proton transport model is used for the polymer membrane which results in the determination of ohmic overvoltage (η_{ohm}). Based on the drop in oxygen concentration (C_{O2}) in the catalyst layer, a theoretical relationship is used for the computation of concentration overvoltage (η_{conc}). The mentioned phenomena are coupled together according to the flowchart of Fig. 1, in which J represents mass flux, V is the meniscus velocity within a pore, and $g_{diff,ij}$ is the diffusive conductance of pore ij.

3- Results and Discussion

The simulations are carried out for a current density of i=0.75 A/cm2 and relative humidity of 100% in gas channels. As the main results of the model, saturation (S) distributions along the in-plane direction of GDL are produced. The non-coupled model which is based on the uniform injection of water as a boundary condition leads to the local saturation distribution depicted in Fig. 2. As spotted, the distribution is roughly uniform and no distinction can be spotted in the under the gas channel and under rib regions. This finding is in contradiction with the in-situ visualizations of GDL water distribution, however, similar models leading to similar results have been used before by the researchers [1, 2].

The in-plane saturation distribution as a result of the mentioned coupled model is portrayed in Fig. 3. As can be observed, water saturation is clearly higher under the

ribs as a result of non-uniform water generation in the catalyst layer which is now an output of the model. Also appended in Fig. 3 is the empirically determined saturation distribution of Eller et al. [5] which has been carried out for the same operating conditions as this paper. As can be seen, the agreement is satisfactory.

4- Conclusion

In the present research, it was attempted to improve the classic pore network models for GDL which had been predicated on the uniform injection of liquid water from the catalyst layer. To achieve this, the two-phase flow model was coupled to network models of oxygen and electron transport within GDL and also to an electrochemical reaction model of CCL and a proton transport model of the membrane. The model actually couples the local water generation rates as a result of the electrochemical reaction directly to the invasion process of water into GDL which renders it a transient model. As a main outcome of the model, water saturation was observed to have its maximum under the ribs while being minimum under gas channels which was in good agreement with experimental imaging of GDLs.

References

[1] E.F. Medici, J.S. Allen, The Effects of Morphological and Wetting Properties of Porous Transport Layers on Water Movement in PEM Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, 157(10) (2010) 1505-1514.

[2] C. Qin, Water Transport in the Gas Diffusion Layer of a Polymer Electrolyte Fuel Cell: Dynamic Pore-Network Modeling, Journal of The Electrochemical Society, 162(9) (2015) F1036-F1046.

[3] M. Aghighi, M.A. Hoeh, W. Lehnert, et al., Simulation of a Full Fuel Cell Membrane Electrode Assembly Using Pore Network Modeling, Journal of The Electrochemical Society, 163(5) (2016) F384-F392.

[4] N. Belgacem, M. Prat, J. Pauchet, Coupled continuum and condensation–evaporation pore network model of the cathode in polymer-electrolyte fuel cell, International Journal of Hydrogen Energy, 42(12) (2017) 8150-8165.

[5] J. Eller, J. Roth, F. Marone, et al., Operando Properties of Gas Diffusion Layers: Saturation and Liquid Permeability, Journal of The Electrochemical Society, 164(2) (2017) F115-F126.

HOW TO CITE THIS ARTICLE

H. Gholipour, M. J. Kermani , R. Zamanian, Network Modeling to Investigate the Effect of Coupling the Transport Phenomena on Water Distribution in Gas Diffusion Layer, Amirkabir J. Mech. Eng., 53(11) (2022) 1385-1388.

DOI: 10.22060/mej.2021.19340.7004

This page intentionally left blank

نشریه مهندسی مکانیک امیرکبیر

نشریه مهندسی مکانیک امیرکبیر، دوره ۵۳، شماره ۱۱، سال ۱۴۰۰، صفحات ۵۵۰۵ تا ۵۵۲۸
DOI: 10.22060/mej.2021.19340.7004

مدلسازی شبکه‌ای جهت بررسی اثر کوپلینگ پدیده‌های انتقال بر توزیع آب در لایه نفوذ گاز

حامد قلی پور[۱]، محمدجعفر کرمانی[۱*]، رحیم زمانیان[۲]

۱- دانشکده مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران
۲- پژوهشکده فن‌آوری‌های نو، پردیس بین الملل، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران

خلاصه: لایه نفوذ گاز سمت کاتد در پیل‌های سوختی غشا پلیمری، آب تولید شده در واکنش را از محیط متخلخل خود به بیرون هدایت می‌کند. این مقاله نگاهی انتقادی به مدل‌های شبکه متخلخل تولید شده برای لایه نفوذ گاز مبتنی بر فرض تزریق یکنواخت آب مایع از لایه کاتالیست به درون لایه نفوذ گاز دارد. این مدل‌ها منجر به توزیع نسبتاً یکنواختی از اشباع آب مایع در راستای درون–صفحه‌ای در لایه نفوذ گاز می‌شوند و هیچ تفاوتی تحت کانال‌های جریان و تحت دنده‌ها مشاهده نمی‌گردد که با مشاهدات آزمایشگاهی مغایرت دارد. در این مقاله سعی شده است که مدل شبکه‌ای جریان دوفازی موجود با دیگر پدیده‌های انتقال در لایه نفوذ گاز و دیگر لایه‌ها کوپل شود. برای این کار، مدل مورد نظر با مدل‌های شبکه‌ای انتقال اکسیژن و الکترون در کاتد و همچنین با مدل واکنش الکتروشیمیایی از لایه کاتالیست و مدل انتقال پروتون در غشا کوپل می‌شود. اولین نتیجه مدل، توزیع نرخ تولید محلی آب در لایه کاتالیست و همچنین تکامل زمانی نرخ کل تولید آب در لایه کاتالیست است که یک کاهش تقریبی ۵۰٪ از شروع به کار پیل تا رسیدن به حالت دایمی تجربه می‌کند. در نتیجه کوپلینگ، توزیع اشباع آب در لایه نفوذ گاز کاملاً غیریکنواخت بوده و شاهد ماکزیمم‌هایی تحت دنده‌ها می‌باشیم که نتیجه مستقیم تولید غیریکنواخت آب مایع در محل‌های انجام واکنش است.

تاریخچه داوری:
دریافت: ۱۳۹۹/۰۹/۱۴
بازنگری: ۱۳۹۹/۱۱/۱۰
پذیرش: ۱۳۹۹/۱۲/۰۷
ارائه آنلاین: ۱۳۹۹/۱۲/۱۴

کلمات کلیدی:
مدل شبکه متخلخل
لایه نفوذ گاز
پیل سوختی غشا پلیمری
جریان دوفازی
کوپلینگ

۱- مقدمه

پیل سوختی غشا پلیمری که با استفاده از واکنش هیدروژن و اکسیژن الکتریسیته تولید می‌کند به عنوان یکی از منابع اصلی تولید توان و جایگزین موتورهای احتراق داخلی برای انواع کاربردهای سیار، ساکن و غیره می‌باشد که علت آن راندمان بالا، آلودگی بسیار پایین و توانایی شروع به کار سریع آن است [۱]. یک پیل غشا پلیمری شامل یک غشا از جنس نفیون در وسط می‌باشد که از دو طرف توسط بخش کاتد و بخش آند محصور شده است؛ هر طرف شامل یک لایه کاتالیست، یک لایه نفوذ گاز[۱] و در انتها صفحات دوقطبی که در آنها کانال‌های جریان تعبیه شده است می‌باشد. پروتون‌های تولید شده در لایه کاتالیست سمت آند از طریق غشا به لایه کاتالیست سمت کاتد منتقل شده که در آنجا با اکسیژن که از کانال‌های جریان سمت کاتد می‌آید و با الکترون‌ها که بعد از عبور از مدار خارجی از دنده‌های جمع کننده جریان[۲] به لایه کاتالیست کاتد[۳] رسیده‌اند واکنش داده و آب و گرما به عنوان تنها محصولات واکنش تولید می‌شوند. این پدیده‌های انتقال برای سمت کاتد به صورت شماتیک در شکل ۱ نشان داده شده‌اند. حضور آب برای کارکرد پیل سوختی غشا پلیمری بسیار ضروری است، زیرا غشای نفیونی بایستی مرطوب باشد تا به نحو مناسبی پروتون‌ها را عبور دهد، ولی هنگامی که آب مایع در سمت کاتد تجمع می‌کند فضاهای خالی محیط متخلخل لایه نفوذ گاز را اشغال کرده و مسیرهای موجود برای انتقال اکسیژن به لایه کاتالیست را کاهش می‌دهد. این وضعیت در چگالی‌های جریان بالا وخیم‌تر شده و می‌تواند منجر به آب گرفتگی[۴] لایه نفوذ گاز و افت شدید در راندمان پیل سوختی شود [۲]. اثرات متناقض حضور آب مایع در پیل سوختی غشا پلیمری نیازمند برقراری توازن حساس و ظریفی بین خشکی غشا و آب‌گرفتگی در لایه نفوذ گاز می‌باشد. تلاش‌هایی جهت بهبود مدیریت آب در پیل سوختی انجام شده است که از بین آنها می‌توان به پوشاندن سطوح لایه نفوذ گاز با

1 Gas Diffusion Layer (GDL)

2 Current collector ribs
3 Cathode Catalyst Layer (CCL)
4 Flooding

* نویسنده عهده‌دار مکاتبات: mkermani@aut.ac.ir

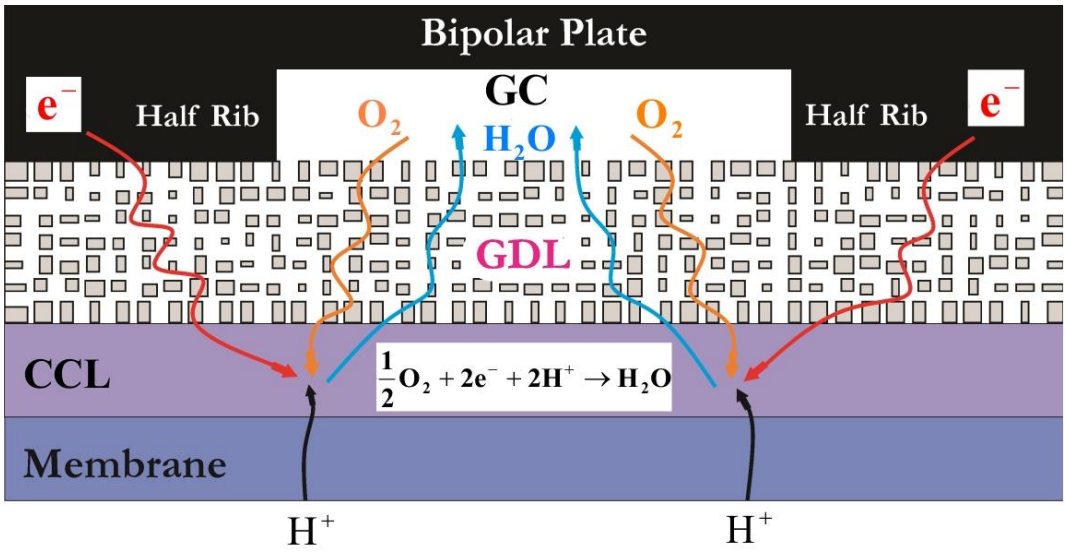
حقوق مؤلفین به نویسندگان و حقوق ناشر به انتشارات دانشگاه امیرکبیر داده شده است. این مقاله تحت لیسانس آفرینندگی مردمی (Creative Commons License) در دسترس شما قرار گرفته است. برای جزئیات این لیسانس، از آدرس https://www.creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/legalcode دیدن فرمائید.

تفلن جهت آب‌گریز کردن محیط [۳]، طراحی مناسب کانال‌های جریان [۴، ۵] و همچنین استفاده از لایه میکرومتخلخل[1] [۶] اشاره کرد.

از آنجا که لایه نفوذ گاز میکروساختار و خواص ترشوندگی پیچیده‌ای دارد بررسی فرآیندهای انتقال در آن به صورت آزمایشگاهی بسیار مشکل است، بنابراین، مطالعات عددی فراوانی برای روشن شدن چگونگی انتقال آب در لایه نفوذ گاز انجام شده است. تعداد زیادی از این مطالعات بر پایه روش محیط پیوسته است که در آن محیط متخلخل به عنوان یک محیط پیوسته فرضی در نظر گرفته شده و کمیت‌ها به صورت متوسط بر روی حجم‌های پایه تعریف می‌شوند [۷]. این روش بر مفهوم جدایی مقیاس طول بین اندازه سیستم و اندازه حجم پایه استوار است. یعنی حجمی که بر روی آن انتگرال‌گیری می‌شود بایستی در مقایسه با اندازه محیط متخلخل کوچک باشد. اگرچه این روش بطور وسیع در مدلسازی‌ها و همچنین در کدهای تجاری مورد استفاده قرار گرفته بکار بردن آن برای لایه نفوذ گاز پیل‌های سوختی مورد سؤال قرار گرفته است [۸ و ۹]. منطق این ایده بر این است که لایه نفوذ گاز بسیار نازک و دارای ضخامتی کمتر از ۱۰ حفره است یعنی چیزی در حدود اندازه یک حجم پایه، بنابراین معیار جدایی مقیاس طول برای لایه نفوذ گاز برقرار نیست. استفاده از روش محیط پیوسته در چنین شرایطی منجر به نتایجی می‌شود که به مقیاس‌ها و ابعاد مورد استفاده وابسته است، از طرف دیگر، این روش قادر به تشخیص ناهمسانگردی‌های ساختاری در لایه نفوذ گاز نمی‌باشد. انتقال آب مایع در لایه نفوذ گاز کاملاً تحت تأثیر نیروهای مویینگی است [۱۰ و ۱۱] و توصیف دقیق این فرآیند توسط مدل‌های محیط پیوسته مشکل است. این پدیده و همچنین تأثیر ریزساختار ناهمسانگرد لایه نفوذ گاز را می‌توان به خوبی به وسیله یک مدل شبکه متخلخل توصیف کرد. به عنوان یک روش مؤثر در طول یک دهه اخیر، این روش توسط برخی از محققین برای مدل کردن جریان دوفازی در لایه نفوذ گاز به کار گرفته شده است [۲۱-۱۰]. تقریباً تمامی این مدل‌های شبکه‌ای بر پایه تزریق آب مایع از لایه کاتالیست به لایه نفوذ گاز استوار هستند. اکثریت مدل‌های اشاره شده از الگوریتم شبه استاتیکی حمله-نفوذ[2] استفاده نموده‌اند که ساده و مؤثر است، اما یک مدل آماری بوده که قادر به مدل کردن رفتار گذرا نمی‌باشد. از طرف دیگر، یک مدل شبکه‌ای دینامیکی می‌تواند اثرات لزجت را نیز در نظر بگیرد اما از نظر محاسباتی سنگین است. برخی از محققین از مدل‌های دینامیکی برای لایه نفوذ گاز استفاده نموده‌اند؛ برای مثال، مدیسی و آلن [۱۵] یک مدل دینامیکی دوبعدی را برای لایه نفوذ گاز با در نظر گرفتن انتقال حرارت و تغییر فاز به کار بردند. لی و همکاران [۱۱] و کین [۱۸ و ۲۱] یک مدل دینامیکی برای لایه نفوذ گاز با در نظر گرفتن جریان فاز ترکننده در گوشه‌های حفره‌ها تولید کردند. تمامی مدل‌های شبکه‌ای اشاره شده بر این فرض استوار بوده‌اند که آب تولیدی در لایه کاتالیست با یک دبی ثابت و یکنواخت و بنابراین به عنوان یک ورودی مدل به لایه نفوذ گاز وارد می‌شود.

فهم دقیق پدیده‌های انتقال نمایش داده شده در شکل ۱ که به همدیگر مرتبط هستند هنوز به صورت یک چالش باقی است و نیاز به مطالعه بیشتر دارد. مکانیزم‌های انتقال و شکل‌گیری آب در لایه‌های نفوذ گاز هنوز به صورت کامل روشن نیست؛ مشاهدات آزمایشگاهی اطلاعات زیادی از چگونگی توزیع آب مایع به دست می‌دهند اما از مکانیزم‌هایی که منجر به این توزیع‌ها می‌شوند خبر نمی‌دهند. برای درک بهتری از مکانیزم‌های انتقال آب در لایه نفوذ گاز با استفاده از مدل‌های شبکه‌ای مناسب است که مدل شبکه‌ای برای جریان دوفازی را با پدیده‌های انتقال دیگری که در پیل سوختی اتفاق می‌افتد کوپل نماییم. برخی مطالعات اخیراً انجام شده‌اند که این نوع از کوپل کردن را در نظر گرفته‌اند [۲۴-۲۲]. برای مثال عقیقی و همکاران [۲۲] یک مدل جامع را تولید کردند که مدل شبکه‌ای لایه نفوذ گاز را با پدیده‌های لایه کاتالیست، غشا و حتی تمامی سمت کاتد کوپل می‌نماید. آن‌ها به وسیله الگوریتم حمله-نفوذ آب مایع را به لایه نفوذ گاز اضافه کرده و آن را به عنوان یک ورودی برای مدل خود در نظر گرفتند. زنیوک و همکاران [۲۳] تلاش برای کوپل کردن یک مدل شبکه‌ای با یک مدل محیط پیوسته انجام دادند. آن‌ها نتیجه گرفتند که مدل کردن خواص مؤثر محلی به وسیله یک مدل شبکه‌ای و خوراندن خروجی‌ها به یک مدل محیط پیوسته نتایج مطلوبی دارد و مؤثر است. بالقاسم و همکاران [۲۴] یک مدل شبکه‌ای را به مدل‌های محیط پیوسته لایه کاتالیست و غشا کوپل نمودند. آن‌ها فرض کردند آب تولیدی در لایه کاتالیست به صورت بخار به لایه نفوذ گاز وارد می‌شود که نرخ آن به عنوان یک خروجی مدل می‌باشد. مدل آنها اثر دما و شرایط رطوبت در کانال‌های جریان را نیز در نظر گرفت که منجر به میعان بخار در زیر دنده‌ها می‌شود، اما مدل آنها محدود به شرایط کاری خاصی است که نمی‌تواند ظهور آب مایع زیر کانال‌های جریان را پیش‌بینی کند. در حقیقت مشاهدات آزمایشگاهی وجود قطرات آب مایع نه تنها تحت دنده‌ها بلکه تحت کانال‌های جریان را نشان داده‌اند [۲۵]، مخصوصاً در چگالی‌های جریان بالا و رطوبت نسبی بالا در کانال‌های جریان. عملاً، این حضور آب مایع در زیر کانال‌های جریان نیز می‌تواند اثرات قابل ملاحظه‌ای بر عملکرد پیل سوختی داشته باشد.

1 Micro-porous layer
2 Invasion-percolation



شکل ۱. شماتیکی از پدیده‌های انتقال و نیم واکنش سمت کاتد تحت یک واحد تکراری از صفحات دوقطبی

Fig. 1. Schematic of the transport phenomena and half reaction of the cathode side under one repeating unit of bipolar plates

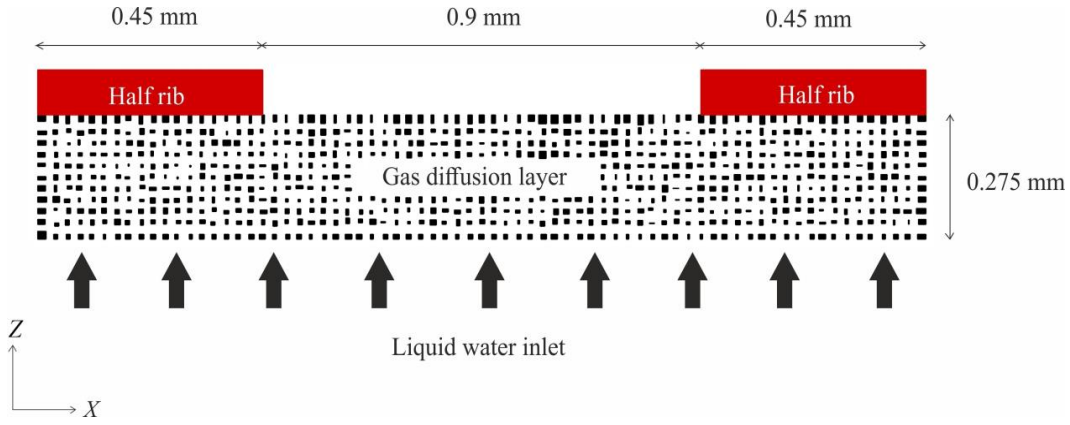
در تحقیق حاضر ابتدا یک مدل شبکه‌ای دینامیکی دوبعدی برای لایه نفوذ گاز سمت کاتد با در نظر گرفتن هجوم یکنواخت آب مایع از لایه کاتالیست تولید می‌شود. با استفاده از این مدل، توزیع اشباع آب مایع در شبکه بدست آمده و نمایش داده می‌شود. سپس مدل تولیدی به سه بعدی ارتقا داده شده و با مدل‌های سه‌بعدی شبکه‌ای انتقال اکسیژن و الکترون در لایه نفوذ گاز کوپل می‌شود. سپس این مدل‌های شبکه‌ای لایه نفوذ گاز با مدل‌های شبه دوبعدی از واکنش الکتروشیمیایی در لایه کاتالیست و انتقال پروتون در غشا کوپل می‌گردند. در انتها توزیع اشباع آب در لایه نفوذ گاز توسط این مدل جدید بدست آمده و صحت سنجی می‌شود.

۲- بخش اول: مدل شبکه‌ای دینامیکی بدون کوپلینگ

در این بخش یک مدل شبکه متخلخل دینامیکی مشابه مدل‌های تولید شده توسط محققین که در مرور تاریخچه به آنها اشاره شد برای جریان دو فازی آب/هوا در لایه نفوذ گاز تولید و توسعه داده می‌شود. مدل تولید شده دوبعدی بوده و آب مایع با یک دبی ثابت متناسب با شرایط کارکرد عادی پیل سوختی و همچنین یکنواخت در کل مرز ورودی وارد لایه نفوذ گاز می‌شود.

۲- ۱- تولید شبکه متخلخل

مفهوم اصلی مدل شبکه متخلخل این است که یک محیط متخلخل پیچیده را به شبکه‌ای ساده‌تر از حفره یا لوله‌ها تبدیل می‌کنند، سپس در بستر این شبکه ساده‌تر هر یک از پدیده‌های انتقال را می‌توان بررسی نمود. بنابراین، در اولین قدم از شبیه‌سازی بایستی شبکه‌ای تولید شود که به قدر کافی نمایشگر ساختار متخلخل لایه‌های نفوذ گاز تجاری باشد. با توجه به اهداف شبیه‌سازی، هر میزانی از جزئیات ساختار متخلخل لایه نفوذ گاز را می‌توان در ساخت شبکه معادل به کار برد. با توجه به اینکه هدف ما بهبود و تولید نمایش بهتری از هندسه لایه نفوذ گاز نیست لذا از یک شبکه ساختاریافته استفاده می‌کنیم که از نظر تخلخل و نفوذپذیری با لایه‌های نفوذ گاز متداول مطابقت داشته باشد. برای این کار شبکه‌ای از حفره‌ها و گره‌ها در نظر می‌گیریم که در آن تمامی گره‌ها در رئوس مربع‌هایی قرار دارند؛ در تمامی قسمت‌های این شبکه دوبعدی ۴ حفره در یک گره ملاقات می‌کنند. حفره‌ها به صورت کانال‌هایی با مقطع مربعی با طول ثابت μm ۲۵= L در نظر گرفته می‌شوند. از اینجا به بعد کلمه "حفره" به معنی کانال مربعی بین دو گره مجاور می‌باشد. اندازه هر حفره با شعاع دایره محاط (R_P) در مقطع مربعی آن مشخص می‌شود که به وسیله آن می‌توان حجم‌های تصادفی به حفره‌ها اختصاص داد. شبکه تولید شده شامل ۷۲ گره در جهت درون–صفحه‌ای X و ۱۲ گره در جهت میان–صفحه‌ای Z است که معادل μm×۲۷۵ μm ۱۸۰۰ به ترتیب در جهات X و Z می‌باشد، همانگونه که



شکل ۲. دامنه شبیه‌سازی مشتمل بر لایه نفوذ گاز تحت یک واحد تکراری از صفحات دوقطبی

Fig. 2. Simulation domain including gas diffusion layer under one repeating unit of bipolar plates

در شکل ۲ نشان داده شده است. همانطور که در شکل می‌بینیم بخشی از لایه نفوذ گاز که تحت یک واحد تکراری یعنی یک کانال جریان و دو نیم‌دنده قرار دارد برای شبیه‌سازی در نظر گرفته می‌شود، آب مایع از پایین وارد شده عرض لایه نفوذ گاز را طی کرده و از بالا خارج می‌شود.

برای اعمال کردن یک توزیع تصادفی برای اندازه حفره‌ها (شعاع حفره) از یک تابع احتمال ویبول[1] از نوع سه پارامتری استفاده می‌شود، به اینصورت که شعاع‌های دایره‌های محاط در مقاطع حفره‌ها مطابق تابع زیر بدست می‌آیند [۲۶]:

$$R_{\mathrm{P}} = \xi + \eta\left[-\ln\left(\frac{1}{1-\lambda}\right)\right]^{\frac{1}{\beta}} \qquad (۱)$$

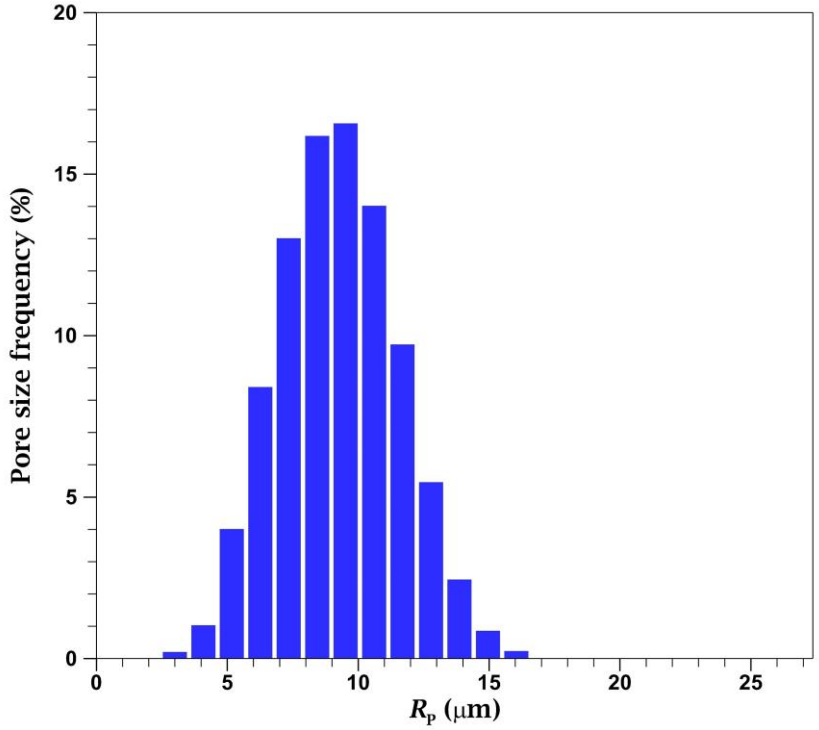
که در آن λ یک عدد تصادفی است که به صورت یکنواخت در بازه (۱،۰) توزیع شده است؛ η، β و ξ به ترتیب پارامترهای مقیاس، شکل و موقعیت در توزیع ویبول هستند. پارامترهای ویبول باید به گونه‌ای انتخاب شوند که اولاً حفره‌های با اندازه متوسط بیشتر تولید شوند، زیرا اگر حفره‌های با اندازه کوچک یا بزرگ در یک ناحیه تجمع کنند می‌توانند به ترتیب باعث مسدود شدن آن بخش از شبکه و یا انتقال و عبور مستقیم آب از شبکه شوند، ثانیاً بایستی تخلخل شبکه تولیدی در محدوده مورد نظر تخلخل لایه‌های نفوذ گاز تجاری قرار گیرد، لذا بعد از سعی و خطای بسیار پارامترهای ویبول برابر با ۳=ξ، ۷= η و ۳=β در نظر گرفته می‌شوند. با توجه به این مقادیر، اندازه حفره‌ها در محدوده (۳ µm,۱۵ µm) قرار می‌گیرند و متوسط اندازه حفره‌ها ۸/۲ µm خواهد بود. فرکانس توزیع اندازه حفره‌ها در شکل ۳ نمایش داده شده است، همانگونه که می‌بینیم حفره‌های با اندازه متوسط احتمال وقوع بیشتری دارند.

۲- ۲- معادلات حاکم

انتقال آب مایع در لایه نفوذ گاز آب‌گریز یک جریان دوفازی است که در آن نیروهای مویینگی غالب بوده و آب محیط را تر نکرده در حالی که هوا سیال ترکننده است. تقریباً مشابه تمامی کارهای گذشته فرض می‌شود که آب تولیدی در لایه کاتالیست به صورت مایع وارد لایه نفوذ گاز شده، هوا را به عقب رانده و از لایه نفوذ گاز عبور می‌کند که فرض معقولی در شرایط کاری چگالی‌های جریان متوسط به بالا و رطوبت نسبی بالا در کانال‌های جریان می‌باشد [۲۷]. با توجه به مقدار آب عبوری از لایه نفوذ گاز در شرایط کارکرد طبیعی پیل سوختی و همچنین لزجت آب و هوا، رژیم جریان با مراجعه به دیاگرام فاز لنورمند و همکاران [۲۸]، رژیم مویینگی خواهد بود، به این معنی که آب در عبور از لایه نفوذ گاز مسیرهای با مقاومت کمتر و حفره‌های بزرگتر را انتخاب می‌کند. در مدل حاضر، گره‌ها حجمی ندارند و تمام حجم فضای خالی شبکه به حفره‌ها اختصاص داده شده و مینیسک[2] آب/هوا در داخل آنها حرکت می‌کند، بنابراین بایستی فشار مویینگی با تغییر موقعیت مینیسک در حفره تغییر کند، بنابراین باید از مدلی استفاده شود که

1 Weibull

2 Meniscus



شکل ۳. فرکانس توزیع اندازه حفره‌ها تولید شده توسط تابع احتمال ویبول

Fig. 3. Distribution frequency of pore sizes generated by Weibull probability function

به نحو مطلوبی تغییرات را لحاظ کند. مدل فشار مویینگی که توسط مدیسی و آلن [۱۲] پیشنهاد شده شرایط لازم را دارد که عبارت است از:

$$P_{c,ij}=\gamma\cos\theta\left[\left(1-\frac{R_p}{2\overline{r_i}}-\frac{R_p}{2\overline{r_j}}\right)\frac{1-\cos(2\pi X_{ij}/L)}{R_p}\right]+\gamma\cos\theta\left[\frac{1+\cos(\pi X_{ij}/L)}{\overline{r_i}}+\frac{1-\cos(\pi X_{ij}/L)}{\overline{r_j}}\right] \quad (۲)$$

که در آن γ کشش سطحی در فصل مشترک دو فاز، θ زاویه تماس مینیسک با دیواره کانال که برای محیط آب گریز لایه نفوذ گاز 110^{o} در نظر گرفته می‌شود، R_p اندازه حفره‌ای که گره‌های i و j را به هم متصل می‌کند و X_{ij} موقعیت مینیسک در حفره است. $\overline{r_i}$ متوسط شعاع چهار حفره‌ای که در گره i تلاقی می‌کنند و $\overline{r_j}$ متوسط شعاع چهار حفره‌ای که در گره j تلاقی می‌کنند هستند. با توجه به رابطه (۲)، فشار ماکزیمم الزاماً در وسط حفره اتفاق نمی‌افتد و بسته به چگونگی توزیع اندازه حفره‌ها در شبکه ممکن است در هر نقطه‌ای در طول حفره رخ دهد. طبیعتاً در حالتی که کانال فقط با یکی از فازها پر شده است و هیچ مینیسکی در کانال وجود ندارد فشار مویینگی صفر خواهد بود.

آب در ورود به حفره، هوا را در اکثر مساحت مقطع به عقب رانده ولی پیوستگی لایه‌ای از هوا در چهار گوشه مقطع مربعی حفظ می‌شود، بنابراین آب از وسط حفره جریان یافته و هوا از گوشه‌ها عبور می‌کند [۲۹]. فرض حفره‌های مربعی به جای استوانه‌ای تأثیر مستقیمی بر روی الگوریتم‌های تولید شده در مدل جهت اختلاط و ادغام توده‌های آب در شبکه دارد؛ یکی از مهمترین نتایج آن این است که بعد از حمله آب، هوای حبس شده در شبکه یافت نمی‌شود که به واقعیت نزدیکتر است. مقطع جریان برای هوا در چهار گوشه حفره مربعی عبارت است از [۱۳]:

$$A_a=\frac{1}{4}R_p^{\,2}(4-\pi) \quad (۳)$$

روابط دقیق‌تری نیز برای این معادله وجود دارد ولی برای اهداف ما در این تحقیق رابطه (۳) کفایت می‌کند. مقطع جریان برای آب به سادگی

بصورت زیر بدست می‌آید:

$$A_{\mathrm{w}} = A_{\mathrm{P}} - A_{\mathrm{a}} \tag{۴}$$

که در آن A_{P} مقطع کل کانال مربعی است. جریان لزج در داخل کانال از معادله هیگن–پوآزی اصلاح شده تبعیت می‌کند؛ معادله کلاسیک هیگن–پوآزی اصلاح می‌شود تا اثرات جریان دوفازی و فشار مویینگی در آن لحاظ شود. بنابراین، دبی حجمی سیال در حفره بین گره‌های i و j عبارت است از [۲۹]:

$$Q_{ij} = \begin{cases} \dfrac{{R_{\mathrm{P}}}^2 A_{\mathrm{w}}}{8\mu_{\mathrm{eff},ij} L}\left(P_i - P_j - P_{\mathrm{c},ij}\right) & , P_i - P_j > P_{\mathrm{c},ij} \\ 0 & , P_i - P_j < P_{\mathrm{c},ij} \end{cases} \tag{۵}$$

که در آن P_i و P_j فشار در گره‌های i و j هستند. همانطور که از رابطه (۵) مشخص است هرگاه افت فشار دو سر حفره از فشار مویینگی حفره بیشتر باشد، مینیسک به سمت جلو حرکت می‌کند در غیر این صورت دبی جریان صفر خواهد بود. به عبارت دیگر، جریان معکوس در نظر گرفته نشده است، یعنی مینیسک یا به جلو حرکت می‌کند یا متوقف است. این یک فرض معقول در کاربردهای پیل سوختی است زیرا آب به صورت بدون وقفه در حال تولید و تزریق به لایه نفوذ گاز است، از طرف دیگر، هندسه منحنی شکل محیط متخلخل در لایه نفوذ گاز واقعی و همچنین زوایای تماس متوسط دلیل دیگری برای بی میلی مینیسک به برگشت به عقب هستند [۳۰]. در حالتی که تنها یک فاز در حفره حضور دارد، $\mathrm{P}_{\mathrm{c,ij}}$ =۰ می‌باشد و $\mu_{\mathrm{eff},ij}$ لزجت آن فاز است. در حالتی که یک مینیسک در حفره حضور دارد لزجت مؤثر ($\mu_{\mathrm{eff},ij}$) متوسط وزنی لزجت دو فاز با توجه به میزان حضور هر فاز در حفره می‌باشد به صورت زیر:

$$\mu_{\mathrm{eff},ij} = \mu_{\mathrm{w}} \frac{X_{ij}}{L} + \mu_{\mathrm{a}}\left(1 - \frac{X_{ij}}{L}\right) \tag{۶}$$

که در آن X_{ij} موقعیت مینیسک در حفره، μ_{w} لزجت آب و μ_{a} لزجت هوا هستند.

با فرض اینکه سیال‌ها تراکم ناپذیر هستند، بقای جرم برای گره i در شبکه به صورت زیر نوشته می‌شود:

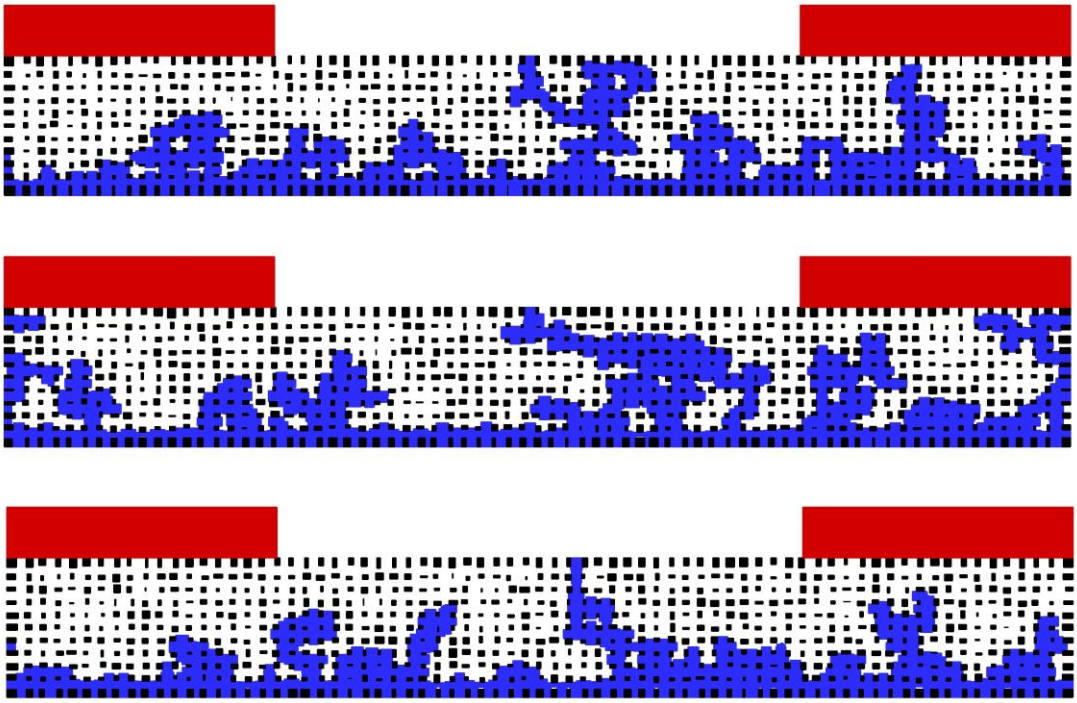
$$\sum_{j=1}^{4} Q_{ij} = 0 \tag{۷}$$

این معادله منجر به یک دستگاه معادلات خطی برای فشارها در گره‌های شبکه می‌شود. دستگاه به وسیله روش گرادیان مزدوج[1] در هر گام زمانی حل می‌شود، دبی‌های حجمی تعیین شده و سپس گام زمانی با توجه به بیشترین سرعت مینیسک در تمامی شبکه تعیین می‌شود. یک گام زمانی متغیر به کار گرفته شده است تا بتوان حرکات کوچک مینیسک را وقتی که به انتهای حفره‌ها نزدیک می‌شود کاملاً حس نمود. موقعیت مینیسک ها در هر پله زمانی با استفاده از روش رانج–کوتای مرتبه دوم به‌روز می‌شود. الگوریتم ادامه می‌یابد تا اینکه حالت دائمی تأیید شود.

۲– ۳– نتایج

برای محاسبه دبی آب تزریقی به لایه نفوذ گاز فرض می‌شود که پیل سوختی در یک چگالی جریان متوسط و ثابت کار می‌کند؛ این چگالی جریان برای مقایسه با نتایج آزمایشگاهی برابر با i =./۷۵ $\mathrm{A/cm^2}$ در نظر گرفته می‌شود. لذا، با توجه به ابعاد لایه نفوذ گاز در شکل ۲ دبی کل ورودی برابر با ۲/۵۸×۱۰$^{-۸}$ mL/s و به ازای هر حفره ورودی برابر با ۳/۵۹×۱۰$^{-۱۰}$ mL/s محاسبه می‌شوند. شرط مرزی در ورودی شبکه یعنی فصل مشترک لایه کاتالیست/لایه نفوذ گاز شرط فشار یکنواخت می‌باشد، یعنی فرض می‌شود که کلیه حفره‌های ورودی به یک مخزن متصل هستند و آب با دبی ثابت به آن مخزن تزریق می‌شود. شرط مرزی در خروجی یعنی کانال جریان، فشار ثابت اتمسفری می‌باشد. در مرزهای کناری شرط مرزی تناوبی[2] خواهیم داشت. با توجه به ماهیت آماری مدلسازی شبکه‌ای، تولید تنها یک شبکه و اتکا به نتایج آن معقول و منطقی به نظر نمی‌رسد، زیرا می‌تواند منجر به نتایج غیر واقعی شود. لذا، برای جلوگیری از عدم قطعیت در نتایج، تعداد ۳۰ شبکه متخلخل متفاوت تولید و نتایج همگی آنها مورد بررسی قرار می‌گیرد، تمامی شبکه‌ها دارای یک الگوی توزیع منطبق بر تابع احتمال تصادفی شکل ۳ بوده ولی توزیع اندازه حفره‌ها متفاوت می‌باشد. شبکه شکل ۲ در حقیقت یکی از این شبکه‌های تولید شده است. در تمامی شبکه‌ها اندازه متوسط حفره‌ها یکسان است و اندازه یکایک حفره‌ها طوری تنظیم می‌شود که تخلخل

1 Conjugate gradient method
2 Periodic



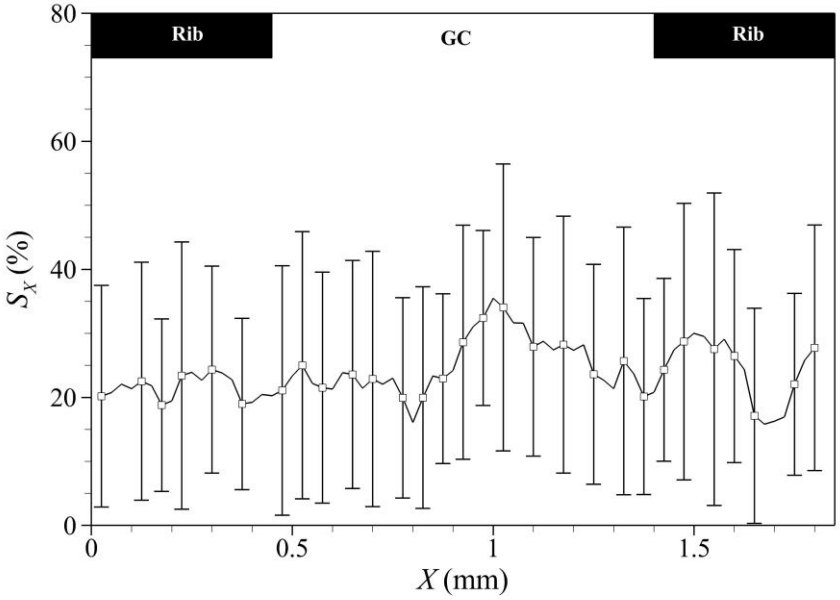
شکل ۴. توزیع آب مایع در حالت دایمی در ۳ شبکه نماینده از ۳۰ شبکه تولید شده. رنگ مشکی نشان دهنده الیاف جامد لایه نفوذ گاز، رنگ سفید نماینده هوا و رنگ آبی نشان دهنده آب موجود در لایه نفوذ گاز می‌باشد.

Fig. 4. Distribution of liquid water at steady state in 3 networks representative of the 30 generated networks. The black color represents solid fibers of gas diffusion layer, the white color represents air, and the blue color represents the water present in gas diffusion layer.

تمامی شبکه‌ها دقیقاً یکسان باشد. تخلخل شبکه‌ها ابتدا محاسبه می‌شوند سپس به گونه‌ای تنظیم می‌شوند که تخلخل برابر با ٪ ۶۹= ε شود؛ این کار با ضرب اندازه تمامی حفره‌های شبکه در یک ضریب مقیاس انجام می‌شود. نتایج شبیه‌سازی‌ها به صورت میانگین داده‌های استخراج شده از شبکه‌ها به همراه انحراف استاندارد ارائه خواهد شد.

توزیع آب مایع در لایه نفوذ گاز در حالت دایمی برای ۳ شبکه به عنوان نماینده از ۳۰ شبکه تولیدی در شکل ۴ نمایش داده شده است. توزیع آب در هر شبکه متفاوت است زیرا توزیع اندازه حفره‌ها متفاوت می‌باشد. آب با دبی ثابتی به شبکه تزریق می‌شود بنابراین در اجبار ورود به شبکه، مینیسک آب/هوا از حفره‌های ورودی که بزرگتر هستند وارد شده و بسیاری از حفره‌های ورودی جریانی از خود عبور نمی‌دهند. آبی که وارد شبکه می‌شود به صورت تصادفی در جهات مختلف حرکت کرده و سعی در پیدا کردن مسیرهای متفاوت و راحت‌تر برای عبور از شبکه دارد؛ در همین حین بسیاری از خوشه (توده) های آب در هم ادغام شده و با هم در ارتباط هستند، بنابراین به محض اینکه آب از شبکه عبور کرده و به کانال جریان می‌رسد جریان آب در بسیاری از توده‌ها متوقف می‌شود، زیرا آب مسیر خود را برای عبور از شبکه پیدا کرده است و به حالت دائمی رسیده‌ایم.

پروفیل توزیع اشباع آب در جهت درون–صفحه ای لایه نفوذ گاز به صورت میانگین و انحراف استاندارد برای تمامی ۳۰ شبکه در شکل ۵ نمایش داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود توزیع اشباع تقریباً یکنواخت است و هیچ تفاوتی بین قسمت تحت کانال جریان و قسمت تحت دنده‌ها مشاهده نمی‌شود. این توزیع بدست آمده در حالت کلی منطبق بر واقعیت نمی‌باشد، البته مدل استفاده شده بسیاری از پارامترهای تاثیرگذار در تولید و انتقال آب را در نظر نگرفته است؛ اگرچه مشابه همین مدل توسط بسیاری از محققین برای تعیین توزیع آب در لایه نفوذ گاز مورد استفاده قرار گرفته است [۱۸–۱۰]. مطابق مشاهدات آزمایشگاهی، تقریباً در تمامی شرایط کاری پیل سوختی تجمع آب تحت دنده‌ها از تحت کانال جریان بیشتر است [۲۵ و ۳۱]، که به علت‌های آن در ادامه اشاره خواهد شد.



شکل ۵. پروفیل توزیع اشباع محلی آب مایع در جهت درون-صفحه ای لایه نفوذ گاز به صورت میانگین و انحراف استاندارد

Fig. 5. Local saturation distribution profile of liquid water along the in-plane direction of gas diffusion layer in terms of average and standard deviations

۳- بخش دوم: کوپل مدل شبکه‌ای جریان دوفازی به دیگر پدیده‌های انتقال

در این بخش، مدل تولید شده در بخش قبل ابتدا به سه‌بعدی ارتقا یافته سپس با مدل‌های شبکه‌ای انتقال اکسیژن و الکترون در لایه نفوذ گاز و همچنین با مدل‌های شبه دوبعدی لایه کاتالیست و غشا کوپل می‌شود.

۳- ۱- تولید شبکه متخلخل

شبکه از همه لحاظ مشابه شبکه تولید شده در بخش قبل ولی سه‌بعدی خواهد بود که در تمامی بخش‌های این شبکه ۶ کانال در یک گره ملاقات می‌کنند. اندازه حفره‌ها در شبکه سه‌بعدی برای جلوگیری از سنگین شدن محاسبات، بزرگ‌تر از شبکه دوبعدی در نظر گرفته می‌شوند، لذا برای اینکه تخلخل شبکه‌های سه‌بعدی تولیدی با شبکه‌های دوبعدی یکسان شود پارامترهای ویبول برای توزیع تصادفی اندازه حفره‌ها بعد از سعی و خطای زیاد به صورت ξ=۵، η=۱۲ و β =۲/۳ در نظر گرفته می‌شوند. با توجه به این مقادیر، اندازه حفره‌ها در محدوده (۳۵ μm ,۵ μm) قرار می‌گیرند و متوسط اندازه حفره‌ها ۱۵/۵ μm خواهد بود؛ فرکانس توزیع اندازه حفره‌ها تقریباً مشابه شکل ۳ می‌باشد. با توجه به این توزیع اندازه حفره‌ها، تخلخل شبکه‌های تولیدی سه بعدی با شبکه‌های دو بعدی قسمت قبل تقریباً برابر شده که بعد از تنظیم همگی ۶۹ ٪ = ε می‌شود.

۳- ۲- معادلات حاکم بر انتقال اکسیژن

می‌دانیم که واکنش‌گر سمت کاتد یعنی اکسیژن از همان مجراهای خالی لایه نفوذ گاز که برای دفع آب تولیدی در نظر گرفته شده است عبور می‌کند. انتقال جرم اجزای گازی در لایه نفوذ گاز غالباً به وسیله نفوذ انجام می‌شود که این فرآیند نفوذ با قانون فیک[1] توصیف می‌شود. همان شبکه سه بعدی که برای انتقال آب تولید شد برای انتقال اکسیژن در نظر گرفته می‌شود. با بیان کردن قانون فیک بر حسب ادبیات شبکه‌ای ، نرخ نفوذ اکسیژن در داخل یک حفره که گره‌های i و j را به هم وصل می‌کند عبارت است از:

$$N_{ij} = g_{\text{diff},ij}(C_i - C_j) \qquad (۸)$$

که در آن C_i و C_j غلظت در گره‌های i و j می‌باشند؛ $g_{\text{diff},ij}$ رسانایی نفوذی حفره ij که برای یک حفره خشک (عاری از آب مایع) عبارت

1 Fick's law

است از:

$$g_{\mathrm{diff},ij} = \frac{A_{\mathrm{P}} D_{\mathrm{O_2/air}}}{L} \qquad (۹)$$

طبیعتاً سطح مقطع موجود برای انتقال اکسیژن در یک حفره خشک، کل مقطع یعنی A_{P} می‌باشد؛ $D_{\mathrm{O_2/air}}$ ضریب نفوذ اکسیژن در هوا است. در حفره‌ای که آب مایع حضور دارد اکسیژن از چهار گوشه مقطع عبور می‌کند، همانطور که در شکل ۶ نمایش داده شده است. یکی از دلایلی که در مدل حاضر مقطع مربعی در نظر گرفته شده این است که نواحی جریان فاز ترکننده در چهار گوشه مقطع برای اکسیژن باز باشد، بنابراین در حفره‌ای که آب مایع وجود دارد رسانایی نفوذی آن برای اکسیژن تابعی از رسانایی نفوذی بخش تر: $g_{\mathrm{wet}} = A_{\mathrm{a}} D_{\mathrm{O_2/air}} / X_{ij}$، و رسانایی نفوذی بخش خشک: $g_{\mathrm{dry}} = A_{\mathrm{P}} D_{\mathrm{O_2/air}} / (L - X_{ij})$ می‌باشد و بصورت زیر محاسبه می‌شود:

$$\frac{1}{g_{\mathrm{diff},ij}} = \frac{1}{g_{\mathrm{wet}}} + \frac{1}{g_{\mathrm{dry}}} \qquad (۱۰)$$

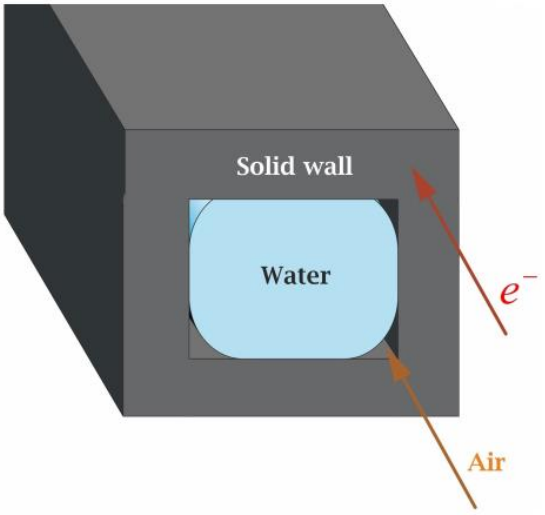
که در آنها X_{ij} موقعیت مینیسک در حفره است. همانطور که می‌توان از معادلات فهمید در مدل حاضر یک حفره حاوی آب مایع هیچگاه کاملاً راه نفوذ اکسیژن را نمی‌بندد، بنابراین وقتی که حفره تا ماکزیمم ظرفیت خود از آب پر می‌شود رسانایی نفوذی آن به مینیمم مقدار خود می‌رسد ولی هیچگاه صفر نمی‌شود. بقای جرم اجزای گازی در گره i عبارت است از:

$$\sum_{j=1}^{6} N_{ij} = 0 \qquad (۱۱)$$

این معادله منجر به یک دستگاه معادلات خطی برای غلظت اکسیژن می‌شود که با اعمال شرایط مرزی مناسب حل می‌شود.

۳- ۳- معادلات حاکم بر انتقال الکترون

در ارتباط با موضوع انتقال الکترون‌ها در لایه نفوذ گاز سمت کاتد، می‌دانیم که الیاف کربن در لایه نفوذ گاز مجراهایی برای هدایت الکترونی هستند که می‌توان با یک مدل شبکه آنها را نیز شبیه‌سازی کرد. بنابراین



شکل ۶. نمایشی از یک حفره پر از آب و اکسیژن که از گوشه‌های مقطع عبور می‌کند و دیواره جامد که جهت انتقال الکترون‌ها استفاده می‌شود.

Fig. 6. Manifestation of a pore (duct) occupied by water and oxygen which passes along the corners of the cross-section and the solid wall which is used for electrons transport.

شبکه‌ای از الیاف جامد برای هدایت الکترون‌ها در نظر گرفته می‌شود. برای رسیدن به این هدف، فرض می‌شود که دیواره‌های کانال‌های مربعی ضخامت دارند، بنابراین دیواره‌های جامد کانال‌ها گذرگاه‌های عبور الکترون‌ها خواهند بود، همانطور که در شکل ۶ نشان داده شده است. اندازه سطح مقطع مربعی خارجی برای تمامی کانال‌ها در شبکه ثابت در نظر گرفته می‌شود، به عبارتی شعاع دایره محاط در مقطع خارجی ثابت و برابر با $38\ \mu\mathrm{m}$ قرار داده می‌شود، بنابراین توزیع تصادفی اندازه حفره‌ها در وسط منجر به یک توزیع تصادفی برای اندازه مقطع دیواره‌های جامد نیز خواهد شد. به راحتی می‌توان فهمید که هرچه حفره بزرگتر باشد مقطع دیواره جامد متناظر کوچکتر خواهد بود و بالعکس. با استفاده از ادبیات مدلسازی شبکه‌ای، جریان الکتریکی عبوری از دیواره‌های جامد حفره‌ای که بین گره‌های i و j قرار دارد بصورت زیر نوشته می‌شود:

$$I = g_{\mathrm{elec},ij}(E_i - E_j) \qquad (۱۲)$$

که در آن E_i و E_j پتانسیل الکتریکی در گره‌های i و j هستند؛ $g_{\mathrm{elec},ij}$ رسانایی الکتریکی دیواره‌های جامد حفره‌ای بین گره‌های i و j

می‌باشد که عبارت است از:

$$g_{\mathrm{elec},ij}=\frac{\sigma_{\mathrm{f}}A_{\mathrm{f}}}{L} \qquad (۱۳)$$

که در آن σ_{f} ضریب هدایت الکتریکی الیاف کربن بوده، A_{f} مساحت سطح مقطع دیواره‌های جامد و L طول دیواره‌های جامد است که با طول حفره متناظر یکسان می‌باشد. بقای بار الکتریکی برای گره i در شبکه بصورت زیر نوشته می‌شود:

$$\sum_{j=1}^{6}I_{ij}=0 \qquad (۱۴)$$

که این معادله منجر به یک دستگاه معادلات خطی برای پتانسیل الکتریکی در هر گره می‌شود و بایستی حل شود.

۳- ۴- معادلات حاکم بر افت ولتاژها

سه افت ولتاژ اصلی در پیل‌های سوختی غشا پلیمری وجود دارند که عبارتند از: افت ولتاژ فعالسازی η_{act}، افت ولتاژ اهمیک η_{ohm} و افت ولتاژ غلظتی η_{conc}. این افت ولتاژها باعث کاهش ولتاژ کاری پیل سوختی می‌شوند، به عبارت دیگر:

$$E=E_0-\eta_{\mathrm{act}}-\eta_{\mathrm{ohm}}-\eta_{\mathrm{conc}} \qquad (۱۵)$$

که در آن E ولتاژ واقعی خروجی پیل و E_0 ولتاژ بازگشت پذیر پیل سوختی است.

افت ولتاژ فعالسازی در سمت کاتد پیل سوختی بسیار شدیدتر است زیرا سینتیک واکنش کاهش اکسیژن در سمت کاتد بسیار پایین در حالی که واکنش اکسید شدن هیدروژن در سمت آند سریع است. بنابراین از سهم نیم واکنش آند در افت ولتاژ معمولاً برای مقاصد طراحی می‌توان صرف نظر نمود. رابطه بین افت ولتاژ فعالسازی و چگالی جریان خروجی توسط رابطه معروف باتلر–ولمر بیان شده که برای سمت کاتد بصورت زیر نوشته می‌شود [۱]:

$$i=i_0\left[\exp\left(\frac{\alpha nF\eta_{\mathrm{act}}}{RT}\right)-\exp\left(\frac{-(1-\alpha)nF\eta_{\mathrm{act}}}{RT}\right)\right] \qquad (۱۶)$$

که در آن R ثابت جهانی گاز، T دمای کاری پیل سوختی، α ضریب انتقال، n تعداد الکترون‌های انتقال یافته به ازای هر مولکول واکنش‌گر، F ثابت فارادی، و i_0 چگالی جریان تبادل است.

افت ولتاژ ناشی از مقاومت‌های الکترونی و پروتونی می‌تواند در بخش‌های مختلفی از پیل سوختی مانند الکترودها، غشای پلیمری، دنده‌ها در صفحات دوقطبی و غیره اتفاق بیافتد. با این وجود، با توجه به هدایت الکتریکی بالای الیاف کربن در لایه نفوذ گاز و گرافیت در صفحات دوقطبی، مقاومت یونی در غشا بخش اعظم افت ولتاژ اهمیک را به خود اختصاص می‌دهد. لذا در این بخش به انتقال پروتون در غشا و محاسبه مقاومت یونی آن می‌پردازیم. بحث مقاومت الکترونی در الیاف کربنی لایه نفوذ گاز در مدل شبکه‌ای تولید شده لحاظ شده است. هدایت پروتونی در غشای نفیونی تابعی قوی از محتوای آب غشا می‌باشد، بنابراین محاسبه ضریب هدایت آن مستلزم تعیین محتوای آب آن است. محتوای آب (λ) که عبارت است از تعداد مولکول‌های آب در هر مکان باردار به صورت زیر محاسبه می‌شود [۱]:

$$\lambda=0.043+17.81a_{\mathrm{w}}-39.85a_{\mathrm{w}}^2+36.0a_{\mathrm{w}}^3 \qquad (۱۷)$$

که در آن $a_{\mathrm{w}}=P_{\mathrm{w}}/P_{\mathrm{sat}}$ فعالیت بخار آب نامیده می‌شود؛ P_{w} فشار جزیی بخار آب و P_{sat} فشار اشباع بخار در دمای کاری پیل سوختی است. در حالتی که آب بصورت مایع باشد $a_{\mathrm{w}}=1$ می‌باشد. سپس ضریب هدایت غشا که بصورت تجربی بدست آمده بصورت زیر فرمول بندی می‌شود [۱]:

$$\sigma(T,\lambda)=(0.005193\lambda-0.00326)\times\exp\left[1268\left(\frac{1}{303}-\frac{1}{T}\right)\right] \qquad (۱۸)$$

که در آن T دمای کاری پیل سوختی است. ضریب هدایت غشا می‌تواند نقطه به نقطه متفاوت باشد زیرا محتوای آب متفاوت است، بنابراین مقاومت یونی کل غشا را می‌توان بصورت زیر بدست آورد [۱]:

$$R_{\mathrm{m}}=\int_0^{t_{\mathrm{m}}}\frac{\mathrm{d}z}{\sigma(\lambda(z))} \qquad (۱۹)$$

که در آن t_{m} ضخامت غشا و z راستای ضخامت غشا می‌باشد، و در نهایت افت ولتاژ اهمیک در اثر مقاومت یونی غشا بصورت زیر محاسبه می‌گردد [۱]:

$$\eta_{ohm}=iR_m \qquad (۲۰)$$

رابطه تئوریک برای افت ولتاژ غلظتی در نتیجه افت غلظت اکسیژن در لایه کاتالیست به صورت زیر بیان می‌شود [۱]:

$$\eta_{\mathrm{conc}}=\left(\frac{RT}{nF}\right)\left(1+\frac{1}{\alpha}\right)\ln\frac{C_{\mathrm{O_2,GC}}}{C_{\mathrm{O_2,CCL}}} \qquad (۲۱)$$

که در آن $C_{\mathrm{O_2,GC}}$ غلظت اکسیژن در کانال جریان سمت کاتد (مرز لایه نفوذ گاز و کانال جریان) و $C_{\mathrm{O_2,CCL}}$ غلظت اکسیژن در لایه کاتالیست سمت کاتد می‌باشند.

۳- ۵- تولید مدل و چگونگی کوپلینگ

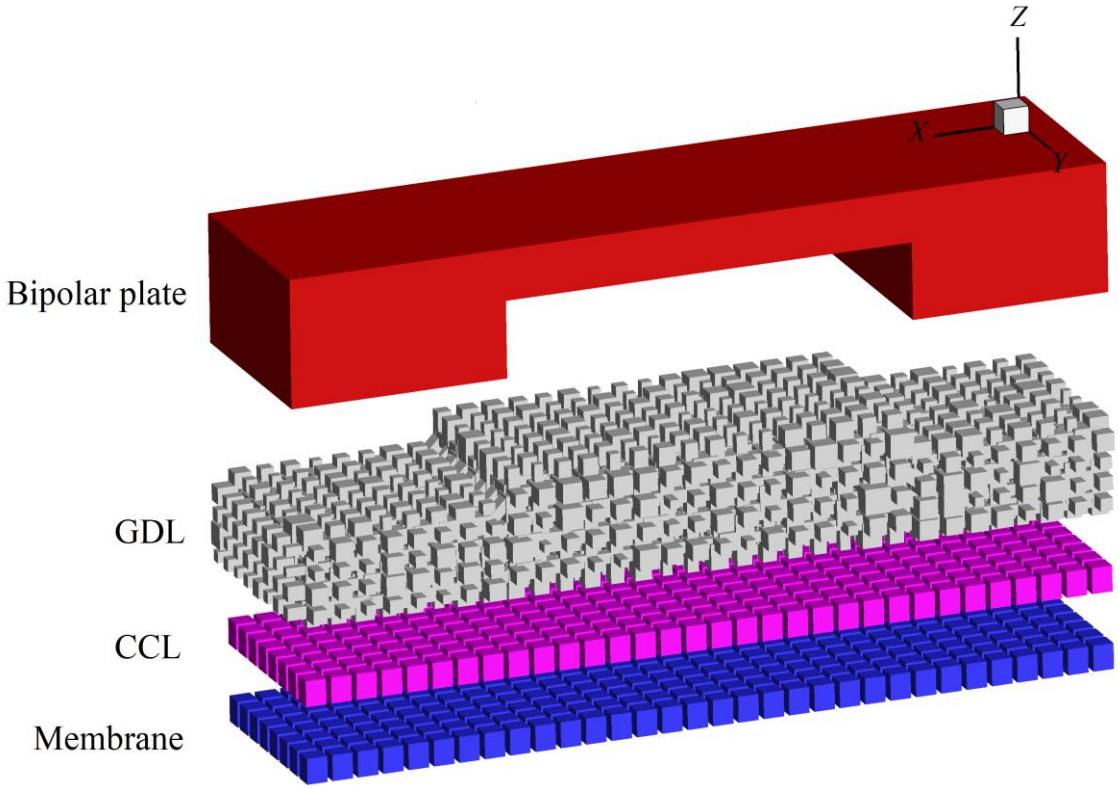
دامنه شبیه‌سازی تحت یک واحد تکراری از صفحات دوقطبی در شکل ۷ نشان داده شده است. شبکه تولید شده برای لایه نفوذ گاز شامل ۳۲ گره در جهت درون–صفحه‌ای X، ۸ گره در جهت درون–صفحه‌ای Y و ۶ گره در جهت میان–صفحه‌ای Z است که معادل $۴۵۰\mu\mathrm{m}\times۲۸۱\mu\mathrm{m}\times۱۸۰۰\mu\mathrm{m}$ به ترتیب در جهات X، Y و Z می‌باشد، با این حساب شبکه شامل ۳۸۴۰ حفره با احتساب حفره‌های ورودی و خروجی است. طول تمامی حفره‌ها ثابت و برابر $\mathrm{L}=۵۶/۲۵\ \mu\mathrm{m}$ می‌باشد. تعداد حفره‌ها در هر راستا به علت حجم بالای محاسباتی کمتر از حالت دوبعدی در نظر گرفته شده ولی ابعاد حفره‌ها طوری در نظر گرفته شده‌اند که ابعاد شبکه متخلخل سه‌بعدی در جهت درون–صفحه‌ای و میان–صفحه‌ای با شبکه دوبعدی تولید شده در بخش قبل برابر باشد. همانگونه که در شکل ۷ می‌بینیم لایه کاتالیست و غشا به صورت دو لایه جداگانه شبیه‌سازی می‌شوند که هر کدام گسسته سازی شده و از سلول‌های مجزایی تشکیل شده‌اند. هر سلول در لایه کاتالیست نماینده حجم مجزایی است که در آن واکنش کاهش اکسیژن اتفاق افتاده و معادله باتلر–ولمر (رابطه (۱۶)) در آن حل می‌شود. به طور کاملاً مشابه، درون هر یک از سلول‌های غشا، انتقال پروتون اتفاق می‌افتد و معادلات مربوط به تعیین مقاومت پروتونی غشا (روابط (۱۷) تا (۲۰)) در آنها حل می‌شوند. هر سلول در این دو لایه به حفره و دیواره جامد مجاور مربوطه در ورودی لایه نفوذ گاز در شبکه متخلخل و شبکه دیواره‌های جامد مرتبط می‌شود. در نتیجه، نرخ مصرف اکسیژن، نرخ تولید جریان الکتریکی و نرخ تولید آب میدان‌های دو بعدی در سلول‌های لایه کاتالیست هستند که به وسیله رابطه فارادی به صورت زیر به یکدیگر مرتبط می‌شوند:

$$i=4FJ_{\mathrm{O_2}} \qquad (۲۲)$$

$$Q_{\mathrm{H_2O}}=\frac{M_{\mathrm{H_2O}}i}{2F\rho_{\mathrm{w}}} \qquad (۲۳)$$

که در آنها $J_{\mathrm{O_2}}$ شار اکسیژن است که به یک سلول لایه کاتالیست می‌رسد؛ $Q_{\mathrm{H_2O}}$ دبی حجمی تولیدی آب در هر سلول لایه کاتالیست است؛ $M_{\mathrm{H_2O}}$ جرم مولکولی آب و ρ_{w} چگالی آب مایع در دمای کاری پیل سوختی می‌باشد. همان دبی پیش‌بینی شده به وسیله رابطه (۲۳) به عنوان دبی ورودی به لایه نفوذ گاز در نظر گرفته می‌شود؛ علت این فرض این است که کشش الکترو–اوسموتیک و نفوذ به عقب آب در غشا تقریباً همدیگر را خنثی می‌کنند و از طرف دیگر، سمت آند در این مقاله مدلسازی نشده است.

شبکه متخلخل تولید شده برای انتقال آب و همچنین شبکه دیواره‌های جامد همسانگرد هستند، اما ساختار لایه نفوذ گاز واقعی از لحاظ فضاهای خالی و الیاف کربن ناهمسانگرد می‌باشد و خواص ناهمسانگردی در ارتباط با نفوذ گاز و هدایت الکتریکی از خود نمایان می‌کند [۳۲]. از طرف دیگر، لایه‌ها و اجزای مختلف پیل سوختی با یک فشار بالا روی هم مونتاژ می‌شوند. این فشار باعث می‌گردد که لایه نفوذ گاز تحت فشار نایکنواختی تحت کانال‌های جریان و دنده‌ها قرار داشته باشد که باعث تاثیرات قابل ملاحظه‌ای بر روی نفوذ گاز و هدایت الکتریکی در نواحی مختلف شبکه می‌شود [۳۳]. لذا، برای اعمال اثر ناهمسانگردی شبکه و فشار غیریکنواخت بر پدیده‌های انتقال، ضرایب اصلاحی برای طول و قطر حفره‌ها، همچنین رسانایی نفوذی و الکتریکی از منابع استخراج شده و در جدول ۱ آورده شده است. یک فشار ۲۰ ٪ برای لایه نفوذ گاز تحت دنده‌ها در نظر گرفته شده و بر شبکه اعمال می‌شود که در شبکه متخلخل شکل ۷ قابل مشاهده است؛ لذا در نتیجه فشار، طول حفره‌ها در جهت میان–صفحه‌ای زیر دنده‌ها برابر



شکل ۷. دامنه شبیه‌سازی مشتمل بر لایه نفوذ گاز، لایه کاتالایست و غشای پلیمری تحت یک واحد تکراری از صفحات دوقطبی

Fig. 7. Simulation domain including gas diffusion layer, catalyst layer and polymer membrane under one repeating unit of bipolar plates

جدول ۱. ضرایب تصحیح مورد استفاده برای در نظر گرفتن اثر ناهمسانگردی شبکه و فشار غیریکنواخت بر روی لایه نفوذ گاز

Table 1. Correction factors used for implementing the impacts of network anisotropy and non-uniform compression on gas diffusion layer

	تحت کانال جریان		تحت دنده	
	درون-صفحه ای	میان-صفحه ای	درون-صفحه ای	میان-صفحه ای
طول حفره	----	----	----	۰/۸۰
قطر حفره	----	----	۰/۹۵	۱/۰۵
رسانایی نفوذی	۱/۴۱[۳۲ و ۳۴]	۰/۷۰	۰/۹۸[۳۳ و ۳۴]	۰/۴۹
رسانایی الکتریکی	۳/۱۶[۳۲ و ۳۴]	۰/۳۱۶	۷/۹۰[۳۳ و ۳۴]	۳/۱۶

جدول ۲. پارامترهای کاری پیل سوختی مورد استفاده در مدل

Table 2. Operating parameters of the fuel cell utilized in the model

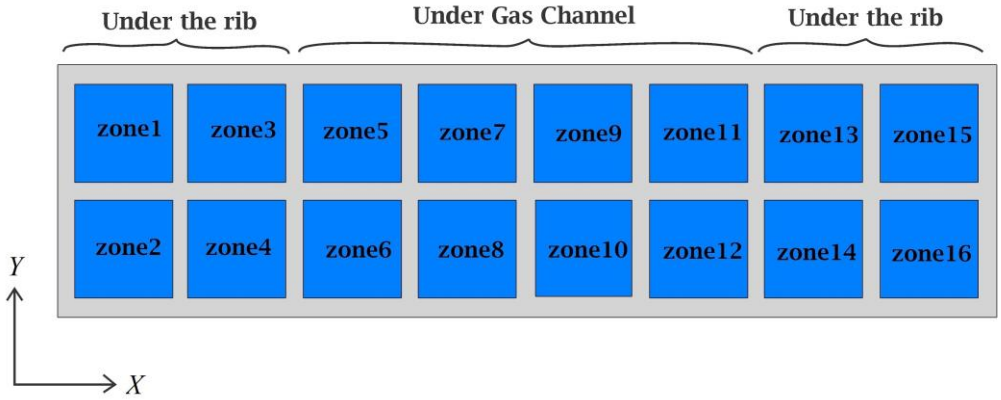
پارامتر	مقدار	واحد	پارامتر	مقدار	واحد
فشار مطلق در کانال جریان	۱۰۱/۳۲۵	kPa	هدایت الکتریکی الیاف کربن	۶۱۰۰۰	S/m
دمای کاری	۳۵۳	K	چگالی جریان تبادل	۳×۱۰^{-۹}	$A/cm^۲$
کشش سطحی	۰/۰۶۲۷	N/m	ضخامت غشا	۰/۱۲۵	mm
لزجت دینامیکی آب	$۳/۵۲\times۱۰^{-۴}$	Pa.s	رطوبت نسبی در کانال جریان	۱۰۰	%
لزجت دینامیکی هوا	$۲/۰۹\times۱۰^{-۵}$	Pa.s	غلظت اکسیژن در کانال جریان	۳/۸۳	$mol/m^۳$
چگالی آب	۹۷۲	$kg/m^۳$	جرم مولی آب	۱۸/۰۱۵	g/mol
زاویه تماس آب	۱۱۰	°	ثابت فارادی	۹۶۴۸۵	C/mol
ضریب نفوذ اکسیژن در هوا	$۲/۷۰\times۱۰^{-۵}$	$m^۲/s$	ولتاژ بازگشت پذیر ترمودینامیکی	۱/۲۲۹	V
ضریب انتقال سمت کاتد	۰/۵		ثابت گازها	۸/۳۱۴	J/mol.K

با $L=۴۵\ \mu m$ خواهد شد.

شرایط مرزی مورد استفاده در حل معادلات حاکم بر انتقال اکسیژن، بار الکتریکی و آب مایع در اینجا شرح داده می‌شوند. شرط مرزی غلظت مولی ثابت برای اکسیژن در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/کانال جریان اعمال می‌شود. با فرض اینکه هوا یک مخلوط گاز ایده آل است، غلظت اکسیژن در کانال جریان را می‌توان از دمای کاری پیل و رطوبت نسبی در کانال جریان سمت کاتد با کمک روابط متداول موجود برای هوای مرطوب به دست آورد که نتایج آن در جدول ۲ نمایش داده شده است. برای اکسیژن در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/لایه کاتالیست نیز شرط مرزی دیریکله استفاده می‌شود. در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/دنده، شار صفر برای اکسیژن به عنوان شرط مرزی اعمال می‌شود. در ارتباط با انتقال بار الکتریکی، شار یکنواختی از الکترون‌ها یا چگالی جریان یکنواخت در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/دنده اعمال می‌شود،در حالی که یک شار صفر در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/کانال جریان اعمال خواهد شد. در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/ لایه کاتالیست، شرط مرزی ولتاژ ثابت اعمال می‌شود که خود یک خروجی مدل است.

برای جریان دوفازی شرط مرزی فشار ثابت (اتمسفری) در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/کانال جریان در نظر گرفته می‌شود. در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/لایه کاتالیست، یک روش متداول استفاده از شرط مرزی فشار یکنواخت می‌باشد، اما این نوع از شرط مرزی قادر به تشخیص اثر تغییرات محلی در نرخ تولید آب در لایه کاتالیست بر توزیع آب مایع در لایه نفوذ گاز نخواهد بود. از طرف دیگر، استفاده از یک شرط مرزی دبی مشخص که به معنی وصل کردن هر حفره ورودی به یک مخزن مجزا می‌باشد منجر به تزریق آب از تمامی حفره‌های ورودی شده و به همان تعداد توده‌های مجزای آب تولید می‌کند که منجر به اشباع آب بسیار بالا و غیر واقعی در لایه نفوذ گاز می‌شود. پیل‌های سوختی معمولاً دارای یک لایه میکرومتخلخل بین لایه نفوذ گاز و لایه کاتالیست می‌باشند که یک نقش کلیدی در جلوگیری از آب‌گرفتگی در پیل سوختی دارد. این باور عمومی وجود دارد که لایه میکرومتخلخل تعداد نقاط دسترسی آب مایع را به داخل لایه نفوذ گاز به وسیله ترکیب مسیرهای آب از لایه کاتالیست محدود می‌کند و بدین وسیله تعداد توده‌های آب مجزا در لایه نفوذ گاز را محدود کرده و در نهایت منجر به اشباع آب کمتر خواهد شد. لایه میکرومتخلخل به صورت مستقیم در مدل ما در نظر گرفته نشده است اما برای اینکه بتوان اثر لایه میکرومتخلخل را به نحوی در نظر گرفت تصمیم بر آن شد که یک شرط مرزی که حد وسطی بین دو حالت ذکر شده بالا می‌باشد اعمال شود؛ اگر بخواهیم دقیق‌تر بگوییم، تعداد مشخصی از حفره‌های ورودی به نام یک ناحیه[1] به یک مخزن وصل می‌شوند. هر ناحیه مجموعه‌ای از حفره‌های ورودی به هم متصل است که

1 Zone



شکل ۸. شماتیک نواحی تعریف شده که هر یک شامل ۱۶ حفره ورودی آب مایع به درون لایه نفوذ گاز هستند.

Fig. 8. Schematic of the defined inlet zones each accommodating 16 inlet pores of liquid water into gas diffusion layer

چهار گره در جهات درون صفحه X و Y را پوشش داده و یک منطقه مربعی مشتمل بر ۱۶ حفره را تشکیل می‌دهد. هر ناحیه با توجه به ارتباط داخلی بین حفره‌ها، اجازه تزریق آب از یک یا نهایتاً دو عدد از بزرگترین حفره‌ها را به داخل لایه نفوذ گاز می‌دهد و بنابراین می‌توان گفت که حضور لایه میکرومتخلخل را شبیه‌سازی می‌کند. تمامی ناحیه‌های تعریف شده در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/لایه کاتالیست به صورت شماتیک در شکل ۸ نمایش داده شده‌اند. برای سطوح جانبی لایه نفوذ گاز، شرط‌های مرزی پریودیک در نظر گرفته می‌شوند.

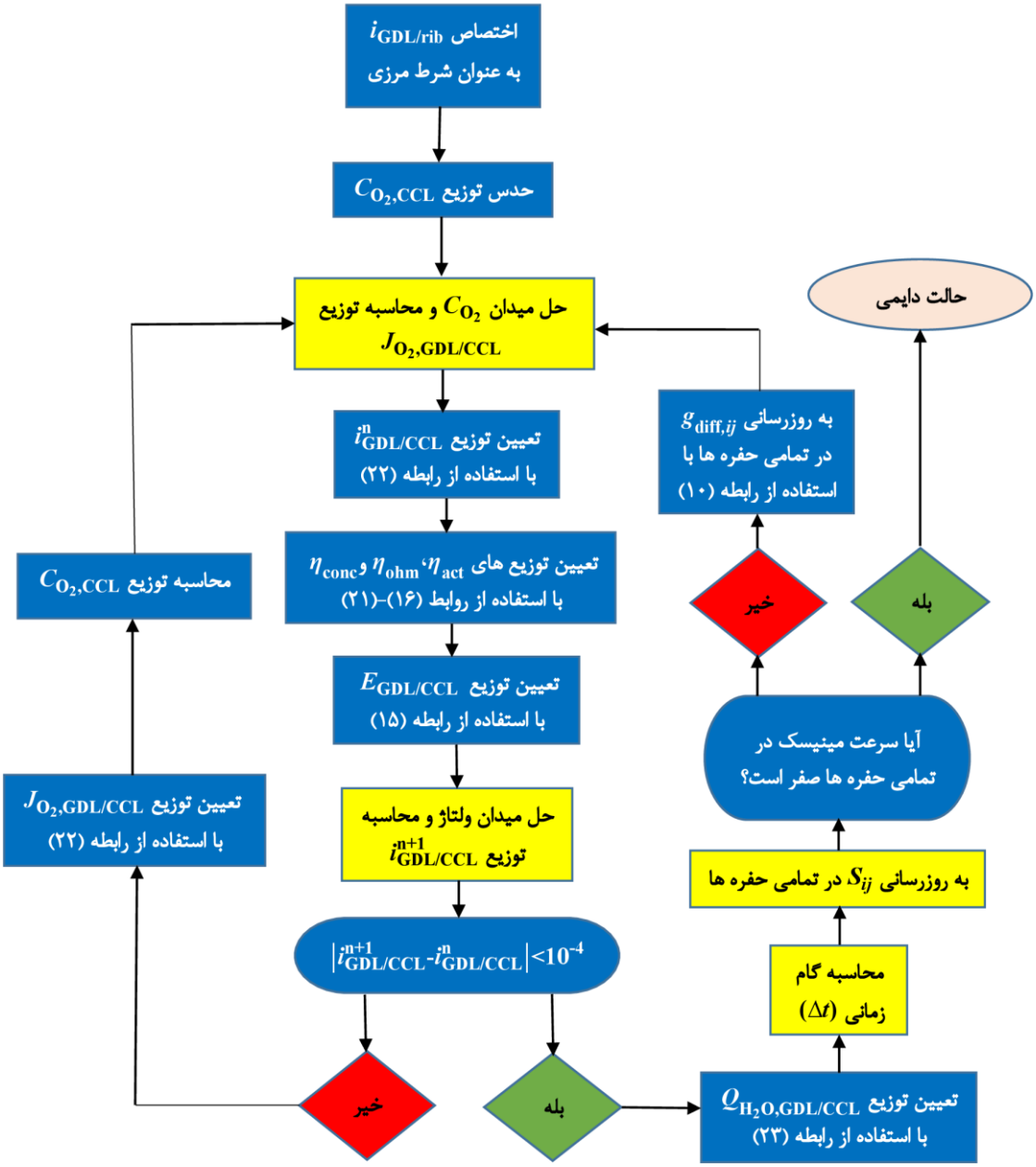
روش کوپلینگ بین انتقال آب، اکسیژن، بار الکتریکی و همچنین پدیده‌ها در لایه کاتالیست و غشای پلیمری در شکل ۹ نمایش داده شده است. در شروع الگوریتم و ابتدای تکرارها، توزیع چگالی جریان، نرخ تولید آب و غلظت اکسیژن در لایه کاتالیست یکنواخت هستند اما در طول تکرارها تا همگرایی این توزیع‌های ذکر شده غیر یکنواخت شده که در حقیقت خروجی‌های مدل می‌باشند و به عنوان ورودی به شبیه‌ساز جریان دوفازی داده می‌شوند. معیار حالت دائمی که در فلوچارت نشان داده شده وقتی برقرار می‌شود که تمامی مینیسک‌ها در شبکه در حالت سکون باشند، زیرا آب مسیر خود برای عبور از لایه نفوذ گاز را پیدا کرده است.

برای شبیه‌سازی، یک کد عددی در فرترن ۹۵ بدون دخالت هیچ نرم افزار تجاری نوشته شده است. زمان اجرای کد برای یک شبکه بر روی یک هسته از یک سیستم با پردازش مرکزی ۳/۲۰ GHz core i-۵ ۴۴۶۰ و حافظه ۸ GB (RAM) در محدوده ۳۰ الی ۸۰ ساعت (بسته به مقدار اشباع نهایی در حالت دائمی) می‌باشد.

۳- ۶- نتایج و بحث

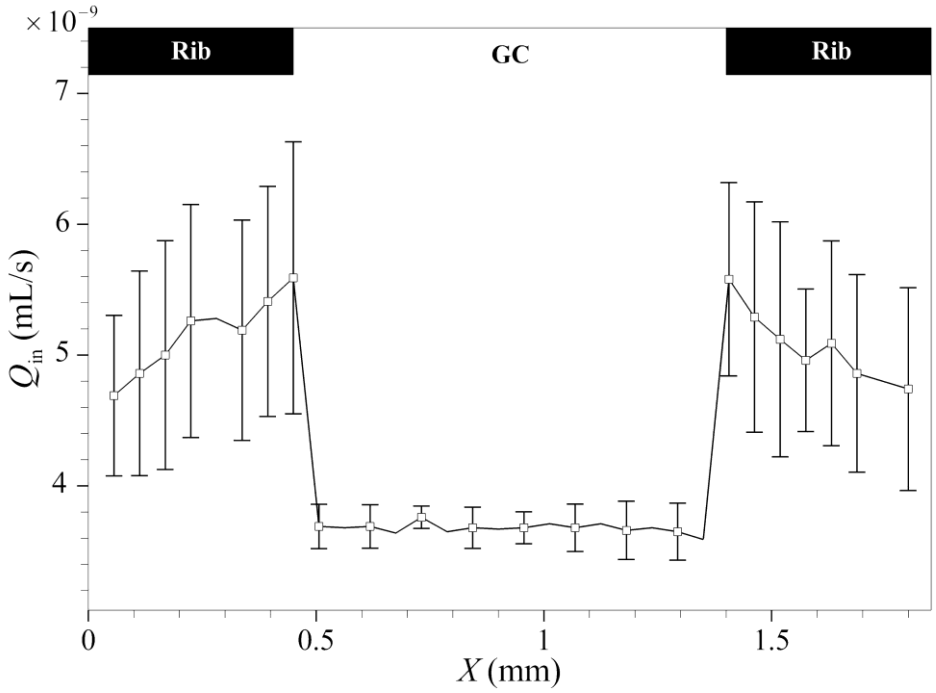
تعداد ۳۰ شبکه متخلخل متفاوت تولید می‌شوند که تخلخل همگی آنها بر روی ۶۹ ٪ =ε تنظیم شده است. تمامی شبیه‌سازی‌ها برای چگالی جریان i =./۷۵ A/cm^2 انجام می‌شود که به عنوان یک شرط مرزی یکنواخت به فصل مشترک لایه نفوذ گاز/دنده داده می‌شود (اولین گام در الگوریتم کوپلینگ). پارامترهای اصلی طراحی و مقادیر خواص مورد استفاده در مدل در جدول ۲ آورده شده‌اند.

شبیه‌سازی‌ها منجر به پروفیل توزیع نرخ تولید میانگین آب (در اولین گام زمانی که حفره‌های شبکه خالی از آب مایع هستند) در طول جهت درون-صفحه‌ای X در لایه کاتالیست می‌شوند که در شکل ۱۰ نشان داده شده است. دو ماکزیمم در ناحیه زیر نیم‌دنده‌ها مشاهده می‌شود که با یک افت ناگهانی در ناحیه زیر کانال جریان همراه است. با نگاهی به جدول ۱ می‌توان فهمید که رسانایی الکتریکی شبکه در جهت میان-صفحه‌ای در زیر دنده‌ها در نتیجه فشار، یک مرتبه بزرگی نسبت به زیر کانال بیشتر است، در نتیجه انتقال قوی‌تر الکترون در زیر دنده‌ها بر انتقال بهتر اکسیژن در زیر کانال جریان غلبه می‌کند و منجر به نرخ‌های واکنش بالاتر در ناحیه زیر دنده‌ها می‌شود. موقعیت دقیق ماکزیمم‌ها در زیر مرزهای کانال جریان و نیم‌دنده‌ها اتفاق می‌افتد که در حقیقت نقاط تلاقی انتقال سریع الکترونی و انتقال بهتر



شکل ۹. الگوریتم کوپلینگ پدیده‌های انتقال در سمت کاتد پیل سوختی.

Fig. 9. Coupling algorithm of transport phenomena at cathode side of the fuel cell



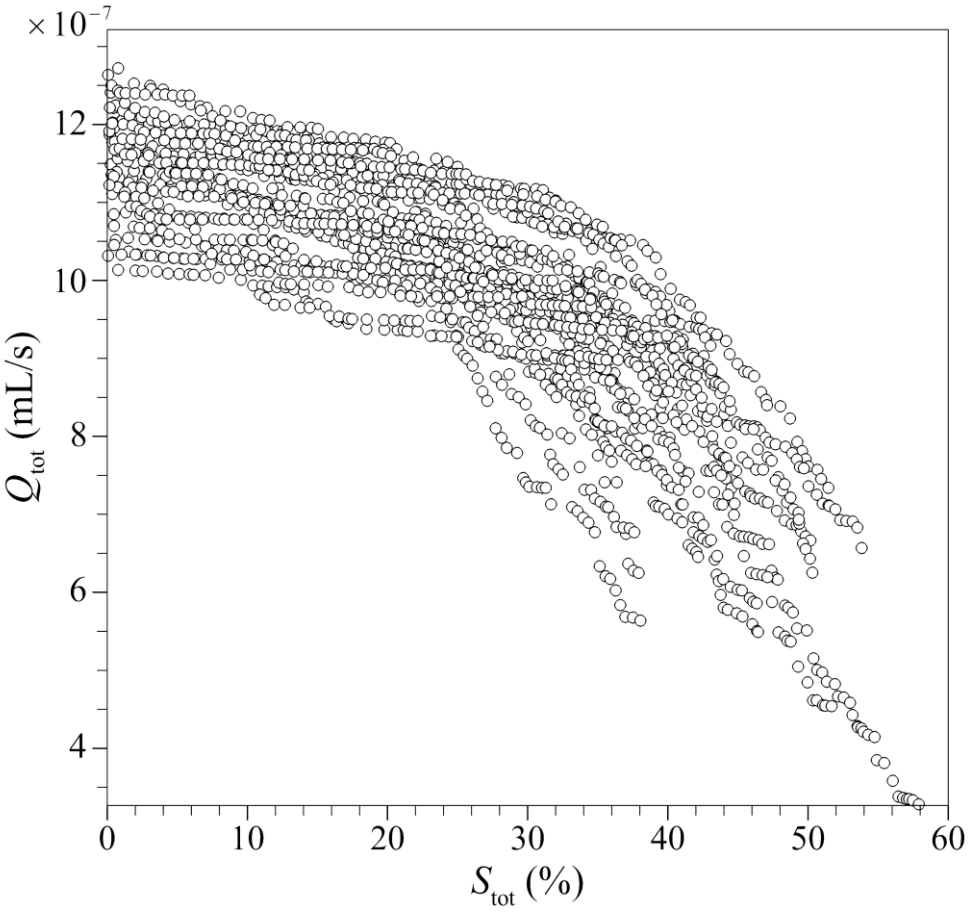
شکل ۱۰. توزیع نرخ تولید متوسط آب در لایه کاتالیست در راستای درون-صفحه‌ای X وقتی که لایه نفوذ گاز خالی از آب است. Qin در ابتدا به عنوان متوسط دبی حفره‌های ورودی در راستای درون-صفحه ای Y در یک X خاص در یکی از شبکه‌های تولید شده تعریف می‌شود، در حالی که محور عرض‌ها در نمودار در حقیقت متوسط Qin های تعریف شده برای تمامی ۳۰ شبکه می‌باشد.

Fig. 10. Distribution of average water generation rate at catalyst layer along the in-plane X direction when gas diffusion layer is devoid of water. Qin is at first defined as the average of the flow rates of the inlet pores along the in-plane Y direction at a specified X in one of the generated networks, whereas the ordinate is actually the average of the defined Qins of all the 30 networks.

اکسیژن می‌باشد. عملاً، توزیع نمایش داده شده در شکل ۱۰ شار ورودی آب مایع است که در اولین گام زمانی به شبیه‌ساز جریان دوفازی داده می‌شود. این توزیع در گام زمانی بعدی متفاوت خواهد بود زیرا اثر متقابل تجمع آب مایع در حفره‌ها و دشوار شدن انتقال اکسیژن به محل‌های انجام واکنش منجر به نرخ واکنش پایین‌تر و تولید آب کمتری خواهد شد.

تکامل زمانی نرخ کل تولید آب مایع نسبت به اشباع میانگین کل (S_{tot}) برای تمامی شبکه‌ها در شکل ۱۱ رسم شده است. نمودار شکل ۱۰ و شکل ۱۱ عملاً به ترتیب روند کلی توزیع و تکامل نرخ نیم‌واکنش کاهش اکسیژن را نیز نشان می‌دهند. از شکل ۱۱ می‌توان فهمید که نرخ تولید آب تقریباً به صورت خطی تا اشباع‌های میانی در محدوده ۳۰٪ کاهش می‌یابد سپس شیب نمودار تغییر کرده و افت در نرخ تولید آب شدت می‌یابد که علت آن را می‌توان به این صورت توضیح داد. از روی شکل ۱۰ می‌دانیم که ماکزیمم نرخ تولید آب در مرزهای کانال جریان و نیم‌دنده‌ها اتفاق می‌افتد که منطبق بر نواحی ۳، ۴، ۱۳ و ۱۴ در شکل ۸ می‌باشد، بنابراین نرخ رشد توده‌های آب در این نواحی بالاترین بوده و نسبت به نواحی دیگر در یک زمان واحد از اشباع‌های بالاتری برخوردار هستند.

بعد از اشباع کل ۳۰٪، توده‌های آب در نواحی ذکر شده بخشی از دسترسی اکسیژن به نواحی ۱، ۲، ۱۵ و ۱۶ در شکل ۸ را که در دورترین فاصله از کانال جریان قرار داشته و خود اشباع‌های محلی پایین‌تری دارند مسدود می‌کنند. بنابراین نواحی با اشباع‌های پایین وجود دارد که در آنها نرخ واکنش توسط توده‌های آب در نواحی دیگر کاهش می‌یابد و منجر به افت مضاعفی در نرخ واکنش و نرخ تولید آب می‌گردد. با نگاهی به شکل مشخص است که دسته منحنی‌ها با افزایش اشباع کل به تدریج کمتر می‌شوند به این معنی که برخی از منحنی‌ها در اشباع‌های کمتر پایان می‌یابند؛ انتهای هر منحنی نمایشگر اشباع در حالت دائمی می‌باشد. در وخیم‌ترین حالت که شبکه با اشباع حالت دائمی ۵۸٪ می‌باشد، نرخ تولید آب ۷۰ ٪ کاهش پیدا



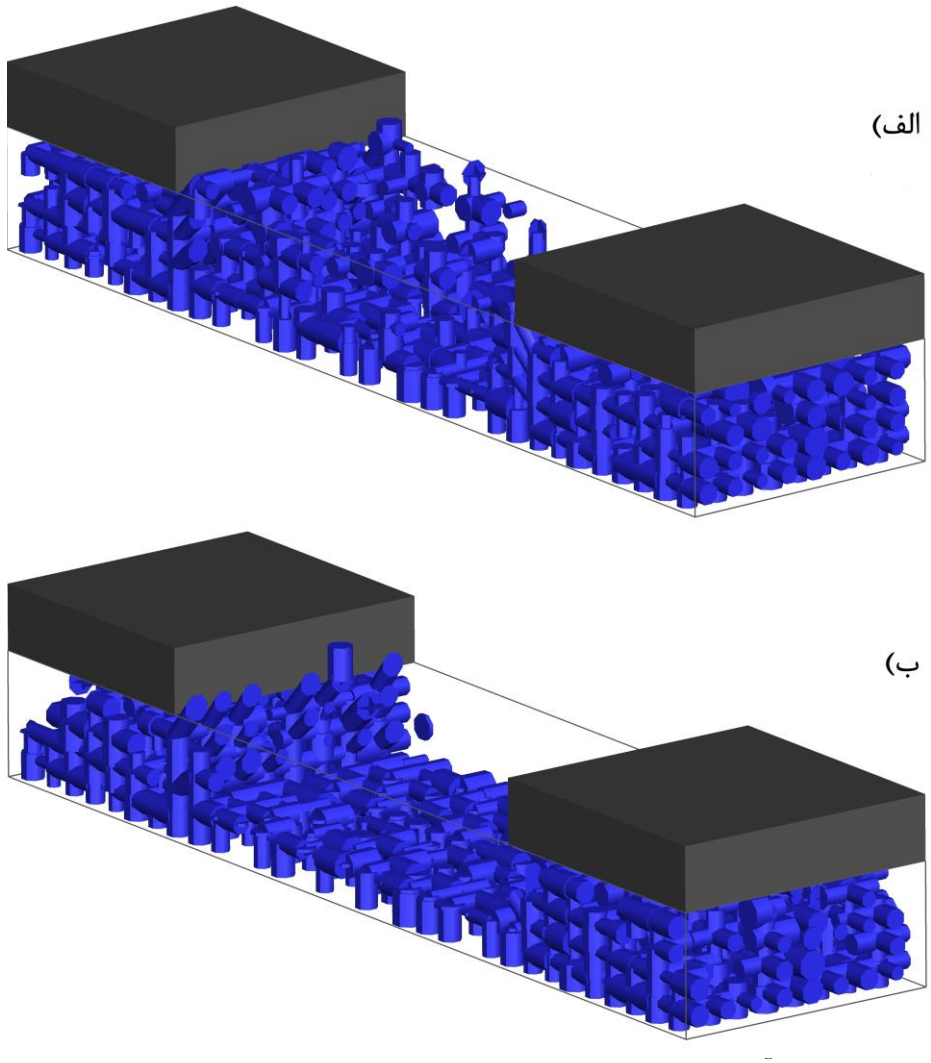
شکل ۱۱. تکامل نرخ کل تولید آب در سلول‌های لایه کاتالیست نسبت به اشباع کل که برای ۳۰ شبکه تولیدی نمایش داده شده است.

Fig. 11. Evolution of the total water generation rate at catalyst layer cells versus the total saturation portrayed for all the 30 networks

می‌کند؛ چگالی جریان تولیدی نیز افت ۷۰٪ دارد که نزدیک به آب‌گرفتگی کامل لایه نفوذ گاز است. این یافته‌های عددی نشان می‌دهند که ریزساختار شبکه می‌تواند اثرات قابل ملاحظه‌ای بر آب‌گرفتگی محلی و کلی لایه نفوذ گاز داشته باشد.

پروفیل توزیع در شکل ۱۰ با گذشت زمان تکامل پیدا کرده و در هر گام زمانی به عنوان شارهای ورودی به شبیه‌ساز جریان دو فازی داده می‌شوند. توزیع آب مایع در حالت دائمی برای دو شبکه از ۳۰ شبکه تولیدی انتخاب شده و در شکل ۱۲ نمایش داده شده‌اند. تجمع آب در نواحی زیر دنده‌ها مشخصاً بالاتر است، زیرا بر پایه الگوی تزریق آب شکل ۱۰، توده‌های آب در زیر دنده‌ها سریع‌تر رشد می‌کنند و پس از برخورد به دنده‌ها و تلاش برای پیدا کردن مسیر خروجی، اختلاط توده‌های آب بیشتر می‌شود. همانطور که از شکل ۱۲الف مشخص است، حالت دائمی با تشکیل چهار مسیر خروجی از لایه نفوذ گاز شکل گرفته است. در شکل ۱۲ب، یک حالت خاص اتفاق افتاده است که در آن تمامی توده‌های آب در هر سمت با هم ادغام شده و در نهایت دو مسیر خروجی شکل گرفته است. همانطور که در شکل می‌بینیم، آب در زیر دنده‌ها در حال ساخت گذرگاه‌های جدید برای رسیدن به ناحیه غیر فشرده زیر کانال جریان است.

به منظور نمایش توزیع اشباع آب مایع برای تمامی شبکه‌های تولید شده، پروفیل توزیع اشباع محلی برای هر شبکه در جهت درون–صفحه‌ای X یعنی S_X محاسبه شده است و همگی آنها در شکل ۱۳ نشان داده شده‌اند. اشباع آب زیر دنده‌ها در مقایسه با مقادیر اشباع زیر کانال جریان مشخصاً بالاتر است. این پدیده به نرخ بالاتر واکنش زیر دنده‌ها در اوایل تا اواسط شروع به کار پیل (در اواخر دوره گذرای شروع به کار پیل نرخ واکنش زیر دنده‌ها به دلیل تجمع آب از نرخ واکنش زیر کانال جریان کمتر می‌شود)

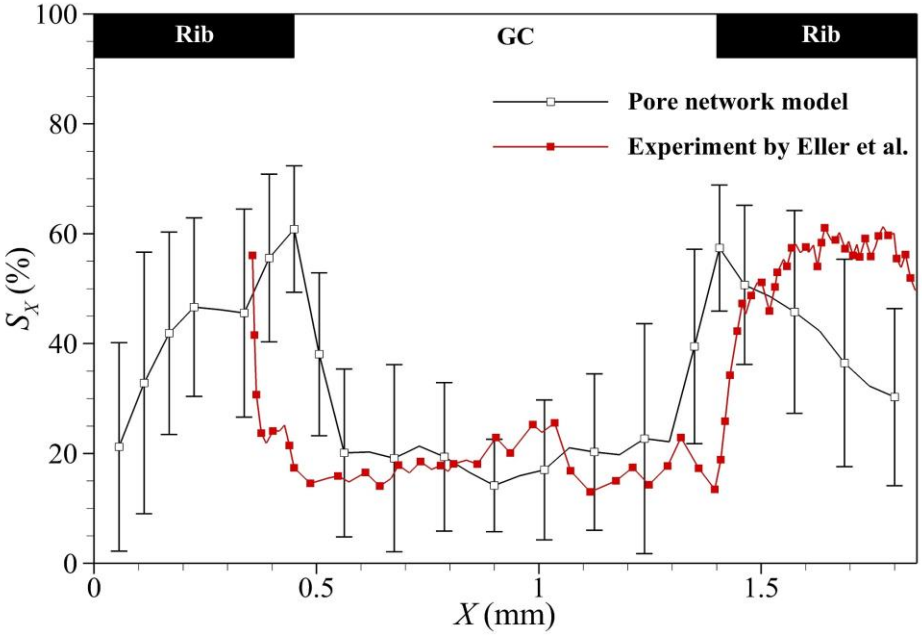


شکل ۱۲. نمای سه بعدی از توزیع آب تحت یک واحد تکراری برای دو شبکه به عنوان نماینده از ۳۰ شبکه تولیدی. استوانه‌های آبی رنگ نمایشگر آب مایع در حفره‌ها هستند.

Fig. 12. 3D Illustration of water distribution under one repeating unit in 2 networks representative of the 30 generated networks. The blue cylinders represent liquid water in the pores.

و همچنین الزام آب زیر دنده‌ها برای ساخت مسیرهای اضافی به سمت کانال جریان نسبت داده می‌شود. نمودار این‌گونه می‌گوید که اشباع زیر دنده‌ها به مقدار مینیممی در دو انتهای دامنه شبیه‌سازی کاهش می‌یابد (دورترین نقطه‌ها از کانال جریان)؛ این واقعیت از قبل انتظار می‌رود، زیرا اکسیژن برای رسیدن به آن مناطق طولانی‌ترین مسیر را طی می‌کند و از طرف دیگر نفوذ اکسیژن در زمان‌های پایانی تکامل اشباع، به وسیله توده‌های بزرگ آب زیر دنده‌ها دشوار می‌شود و لذا توده‌ها در آن نواحی (نواحی ۱، ۲، ۱۵ و ۱۶ در شکل ۸) به اندازه توده‌های زیر دنده‌ای مجاور رشد نمی‌کنند. این نتیجه از نظر کیفی تطابق خوبی با مشاهدات آزمایشگاهی آب مایع در پیل‌های سوختی غشا پلیمری در چگالی‌های جریان متوسط و شرایط کاملاً اشباع در کانال‌های جریان دارد؛ برای مثال، به شکل ۴ در مرجع [۲۵] مراجعه کنید. در شکل ۱۳، همچنین پروفیل توزیع اشباع در لایه نفوذ گاز سمت کاتد که نتیجه کار الر و همکاران [۳۱] با استفاده از عکس‌برداری اشعه ایکس می‌باشد نیز آورده شده است که برای همان شرایط کاری مدل حاضر انجام شده است (i=۰/۷۵ A/cm^2 & RH=۱۰۰٪). همانگونه که مشاهده می‌شود، تطابق با مدل حاضر نسبتاً رضایتبخش است.

تعدادی از مقالات هستند [۳۵-۳۷] که پیل سوختی را با استفاده از کدهای تجاری بر پایه مدل‌های دوفازی محیط پیوسته شبیه سازی نموده‌اند



شکل ۱۳. توزیع اشباع محلی آب مایع در راستای درون-صفحه‌ای X به صورت میانگین و انحراف استاندارد. همچنین پروفیل توزیع اشباع الر و همکاران برای مقایسه آورده شده است (حالت A۱۳).

Fig. 13. Local saturation distribution of liquid water along the in-plane X direction in terms of average and standard deviations. Saturation profile of Eller et al. is also added for comparison (case A13).

و شرایط کاری در نظر گرفته شده در آنها به شرایط کاری مدل حاضر نزدیک است. برای مثال به شکل ۴ در مرجع [۳۶] و شکل ۹ در مرجع [۳۷] مراجعه کنید که توزیع اشباع آب در لایه نفوذ گاز کاتد را در قالب کانتور نمایش داده‌اند، با نگاهی به این شکل‌ها، مقادیر اشباع آب در هر ناحیه در مقایسه با پروفیل شکل ۱۳ مشخصاً بسیار کمتر است. یک دلیل این اختلاف زیاد این است که توصیف دقیق رژیم مویینگی حاکم با توجه به ریزساختار لایه نفوذ گاز با استفاده از این مدل‌ها مشکل است، از طرف دیگر این مدل‌ها قادر به تشخیص ناهمسانگردی‌های ساختاری و انتقالی محیط متخلخل که تأثیر چشمگیری بر چگونگی انتقال و توزیع آب دارد نیستند؛ همچنین معیار جدایی مقیاس طول که این مدل‌ها بر آن استوار هستند در مورد لایه نفوذ گاز برقرار نیست. مدل حاضر قادر نیست که تمامی مکانیزم‌های پیچیده تشکیل و انتقال آب که در لایه نفوذ گاز نقش بازی می‌کنند را در خود جای دهد، ولی در نتیجه کوپلینگ، مدل قادر است توزیع اشباع در زیر دنده‌ها و کانال جریان را به نحوی سازگار با مشاهدات آزمایشگاهی تولید کند.

۴- نتیجه گیری

جهت بهبود بخشیدن به عملکرد پیل سوختی و برداشتن موانع بر سر راه تجاری سازی آنها، فهم درستی از فرآیندهای انتقال در محیط‌های متخلخل آن نیاز است. در مقاله حاضر، مدل‌های شبکه متخلخل تولید شده توسط محققین در گذشته جهت شبیه‌سازی جریان دوفازی در لایه نفوذ گاز مورد بررسی قرار گرفت و مشاهده شد که این مدل‌ها منجر به توزیع آب یکنواختی در راستای درون-صفحه‌ای می‌شوند که بایستی به آن با دید تردید نگاه کرد. در ادامه، مدل کلاسیک موجود با مدل‌های شبکه‌ای از انتقال اکسیژن و الکترون در لایه نفوذ گاز سمت کاتد و همچنین با مدل‌هایی از لایه کاتالیست و غشا کوپل شد. در نتیجه کوپلینگ، نرخ تولید آب به صورت محلی از سلول به سلول در لایه کاتالیست متفاوت است بنابراین نرخ ورود آب در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/لایه کاتالیست نیز در جاهای مختلف متفاوت می‌باشد. در نتیجه این توزیع غیر یکنواخت، نرخ رشد توده‌های آب مایع در نواحی تحت کانال جریان و تحت دنده‌ها متفاوت می‌باشد که منجر

به تجمع بیشتر آب در نواحی زیر دنده‌ها در حالت دائمی شد که با نتایج مشاهدات آزمایشگاهی تطابق خوبی دارد. در پرتو این واقعیت، می‌توان گفت که کوپلینگ اثر قابل ملاحظه‌ای بر توزیع اشباع آب مایع در حالت دائمی در مقایسه با مدل‌هایی که تزریق یکنواختی از آب در فصل مشترک لایه نفوذ گاز/لایه کاتالیست در نظر می‌گیرند دارد.

از الگوریتم کوپلینگ می‌توان فهمید که مقادیر اشباع آب محلی در حفره‌ها بین هر دو گام زمانی متوالی متفاوت می‌باشند، بنابراین در هر گام زمانی جدید، اشباع‌های به روز شده در حفره‌ها منجر به دسترسی کمتر اکسیژن به لایه کاتالیست و تولید محلی آب کمتر خواهد شد. به عبارت دیگر، نرخ محلی و همچنین کلی تولید آب به طور پیوسته در حال کاهش هستند، اما نرخ محلی این کاهش با توجه به تعداد حفره‌های مجاور اشباع از آب متفاوت می‌باشد. اثر متقابل دسترسی اکسیژن به لایه کاتالیست و تولید آب (هر یک علت دیگری می‌باشد) در هر گام زمانی توسط مدل تشخیص داده شده که به نحوی شروع به کار پیل سوختی و تکامل زمانی چگالی جریان، غلظت واکنش‌گر در لایه کاتالیست و نرخ تولید آب تا رسیدن به حالت دائمی را شبیه‌سازی می‌کند. تقریباً در تمامی مدل‌های استاندارد شبکه متخلخل برای لایه نفوذ گاز، ابتدا آب به لایه نفوذ گاز هجوم می‌برد تا یک توزیع دایمی از آن بدست آید، سپس انتقال و نفوذ واکنش‌گرها حول این توزیع آب مورد بررسی قرار می‌گیرد. اما در تحقیق حاضر سعی شده است که نرخ تولید آب ناشی از واکنش الکتروشیمیایی به فرآیند هجوم آب مایع به لایه نفوذ گاز کوپل شود، به عبارت دیگر هر ناحیه‌ای در لایه کاتالیست که در آن نرخ واکنش بیشتر باشد تزریق آب بیشتری به داخل لایه نفوذ گاز خواهد داشت. این نوآوری مدل حاضر می‌باشد. مدل حاضر قابلیت ارتقا و بهبود دارد. یکی از کارهایی که می‌توان انجام داد این است که اثر انتقال حرارت را نیز در نظر گرفته و یک مدل تغییر فازی را با مدل موجود کوپل نماییم. از طرف دیگر می‌دانیم که در کانال‌های جریان نیز جریان دوفازی برقرار است، بنابراین می‌توان یک مدل جریان دوفازی در کانال‌های جریان را نیز با مدل موجود ادغام کرده و نتایج را مشاهده نمود.

۵- فهرست علائم

علائم انگلیسی

a	فعالیت آب
A	سطح مقطع کانال (حفره)، m^2
C	غلظت، mol/m^3
D	ضریب نفوذ، m^2/s
E	پتانسیل الکتریکی (ولتاژ)، V
F	ثابت فارادی، C/mol
g_{diff}	رسانایی نفوذی، m^3/s
g_{elec}	رسانایی الکتریکی، S
i	چگالی جریان، A/cm^2
I	جریان الکتریکی، A
J	شار اجزای گازی، mol/s
L	طول حفره، µm
M	جرم مولی، g/mol
n	تعداد الکترون‌ها
N	نرخ نفوذ اکسیژن، mol/s
P	فشار، kPa
Q	دبی حجمی، mL/s
R	ثابت جهانی گاز، J/mol.K
R_m	مقاومت یونی غشا، Ω
R_P	شعاع (اندازه حفره)، µm
RH	رطوبت نسبی، %
S	اشباع آب، %
t	زمان، s
T	دمای کاری، K
t_m	ضخامت غشا، mm
X_{ij}	موقعیت مینیسک در حفره، µm

علائم یونانی

α	ضریب انتقال
β	ضریب شکل در توزیع ویبول
γ	کشش سطحی، N/m
ε	تخلخل، %
η	ضریب مقیاس در توزیع ویبول
η_{act}	افت ولتاژ فعالسازی، V
η_{conc}	افت ولتاژ غلظتی، V
η_{ohm}	افت ولتاژ اهمیک، V
θ	زاویه تماس، ^{o}
λ	محتوای آب
μ	لزجت دینامیکی، Pa.s
ξ	ضریب موقعیت در توزیع ویبول
ρ	چگالی، kg/m^3

σ	هدایت الکتریکی، S/m

زیرنویس‌ها

a	هوا
air	هوا
c	موییینگی
CCL	لایه کاتالیست کاتد
dry	خشک
eff	مؤثر
f	الیاف کربن
GC	کانال جریان
GDL	لایه نفوذ گاز
GDL/CCL	فصل مشترک GDL و CCL
GDL/rib	فصل مشترک GDL و rib
H_2O	آب
i	گره *i*
j	گره *j*
ij	حفره *ij*
O_2	اکسیژن
P	حفره (کانال)
rib	دنده
w	آب مایع
wet	تر

منابع

[1] R. O'Hayre, S.-W. Cha, W. Colella, F.B. Prinz, Fuel Cell Fundamentals, 3rd Edition, John Wiley & Sons Inc 2016.

[2] H. Li, Y. Tang, Z. Wang, Z. Shi, S. Wu, D. Song, J. Zhang, K. Fatih, J. Zhang, H. Wang, Z. Liu, R. Abouatallah, A. Mazza, A review of water flooding issues in the proton exchange membrane fuel cell, Journal of Power Sources, 178(1) (2008) 103-117.

[3] G.-G. Park, Y.-J. Sohn, T.-H. Yang, Y.-G. Yoon, W.-Y. Lee, C.-S. Kim, Effect of PTFE contents in the gas diffusion media on the performance of PEMFC, Journal of Power Sources, 131(1) (2004) 182-187.

[4] H. Heidary, M.J. Kermani, Performance enhancement of fuel cells using bipolar plate duct indentations, International Journal of Hydrogen Energy, 38(13) (2013) 5485-5496.

[5] A. Ghanbarian, M.J. Kermani, J. Scholta, M. Abdollahzadeh, Polymer electrolyte membrane fuel cell flow field design criteria – Application to parallel serpentine flow patterns, Energy Conversion and Management, 166 (2018) 281-296.

[6] Z. Qi, A. Kaufman, Improvement of water management by a microporous sublayer for PEM fuel cells, Journal of Power Sources, 109(1) (2002) 38-46.

[7] A.Z. Weber, R.L. Borup, R.M. Darling, et al., A Critical Review of Modeling Transport Phenomena in Polymer-Electrolyte Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, 161(12) (2014) F1254-F1299.

[8] A.H. Tavangarrad, B. Mohebbi, S.M. Hassanizadeh, R. Rosati, J. Claussen, B. Blümich, Continuum-Scale Modeling of Liquid Redistribution in a Stack of Thin Hydrophilic Fibrous Layers, Transport in Porous Media, 122(1) (2018) 203-219.

[9] M. Rebai, M. Prat, Scale effect and two-phase flow in a thin hydrophobic porous layer. Application to water transport in gas diffusion layers of proton exchange membrane fuel cells, Journal of Power Sources, 192(2) (2009) 534-543.

[10] P.K. Sinha, C.-Y. Wang, Pore-network modeling of liquid water transport in gas diffusion layer of a polymer electrolyte fuel cell, Electrochimica Acta, 52(28) (2007) 7936-7945.

[11] K.-J. Lee, J.H. Nam, C.-J. Kim, Pore-network analysis of two-phase water transport in gas diffusion layers of polymer electrolyte membrane fuel cells, Electrochimica Acta, 54(4) (2009) 1166-1176.

[12] E.F. Medici, J.S. Allen, The Effects of Morphological and Wetting Properties of Porous Transport Layers on Water Movement in PEM Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, 157(10) (2010) 1505-1514.

[13] K.-J. Lee, J.H. Nam, C.-J. Kim, Steady saturation distribution in hydrophobic gas-diffusion layers of polymer electrolyte membrane fuel cells: A pore-network study, Journal of Power Sources, 195(1) (2010) 130-141.

[14] R. Wu, Q. Liao, X. Zhu, H. Wang, Impacts of the mixed wettability on liquid water and reactant gas transport through the gas diffusion layer of proton exchange membrane fuel cells, International Journal of Heat and Mass Transfer, 55(9) (2012) 2581-2589.

and condensation–evaporation pore network model of the cathode in polymer-electrolyte fuel cell, International Journal of Hydrogen Energy, 42(12) (2017) 8150-8165.

[25] P. Deevanhxay, T. Sasabe, S. Tsushima, et al., Investigation of water accumulation and discharge behaviors with variation of current density in PEMFC by high-resolution soft X-ray radiography, International Journal of Hydrogen Energy, 36(17) (2011) 10901-10907.

[26] H. Rinne, The Weibull Distribution, A Handbook, CRC Press, 2009.

[27] D.A. Caulk, D.R. Baker, Heat and Water Transport in Hydrophobic Diffusion Media of PEM Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, 157(8) (2010) B1237-B1244.

[28] R. Lenormand, E. Touboul, C. Zarcone, Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, Journal of Fluid Mechanics, 189 (1988) 165-187.

[29] M. Singh, K.K. Mohanty, Dynamic modeling of drainage through three-dimensional porous materials, Chemical Engineering Science, 58(1) (2003) 1-18.

[30] T.G. Tranter, J.T. Gostick, A.D. Burns, et al., Capillary Hysteresis in Neutrally Wettable Fibrous Media: A Pore Network Study of a Fuel Cell Electrode, Transport in Porous Media, 121(3) (2018) 597-620.

[31] J. Eller, J. Roth, F. Marone, et al., Operando Properties of Gas Diffusion Layers: Saturation and Liquid Permeability, Journal of The Electrochemical Society, 164(2) (2017) F115-F126.

[32] L. Holzer, O. Pecho, J. Schumacher, et al., Microstructure-property relationships in a gas diffusion layer (GDL) for Polymer Electrolyte Fuel Cells, Part I: effect of compression and anisotropy of dry GDL, Electrochimica Acta, 227 (2017) 419-434.

[33] I. Nitta, T. Hottinen, O. Himanen, et al., Inhomogeneous compression of PEMFC gas diffusion layer: Part I. Experimental, Journal of Power Sources, 171(1) (2007) 26-36.

[15] E.F. Médici, J.S. Allen, Evaporation, two phase flow, and thermal transport in porous media with application to low-temperature fuel cells, International Journal of Heat and Mass Transfer, 65 (2013) 779-788.

[16] K.-J. Lee, J.H. Kang, J.H. Nam, Liquid water distribution in hydrophobic gas-diffusion layers with interconnect rib geometry: An invasion-percolation pore network analysis, International Journal of Hydrogen Energy, 39(12) (2014) 6646-6656.

[17] M. Fazeli, J. Hinebaugh, A. Bazylak, Investigating Inlet Condition Effects on PEMFC GDL Liquid Water Transport through Pore Network Modeling, Journal of The Electrochemical Society, 162(7) (2015) F661-F668.

[18] C. Qin, Water Transport in the Gas Diffusion Layer of a Polymer Electrolyte Fuel Cell: Dynamic Pore-Network Modeling, Journal of The Electrochemical Society, 162(9) (2015) F1036-F1046.

[19] M. Fazeli, J. Hinebaugh, Z. Fishman, et al., Pore network modeling to explore the effects of compression on multiphase transport in polymer electrolyte membrane fuel cell gas diffusion layers, Journal of Power Sources, 335 (2016) 162-171.

[20] P. Carrere, M. Prat, Liquid water in cathode gas diffusion layers of PEM fuel cells: Identification of various pore filling regimes from pore network simulations, International Journal of Heat and Mass Transfer, 129 (2019) 1043-1056.

[21] C.-Z. Qin, B. Guo, M. Celia, et al., Dynamic pore-network modeling of air-water flow through thin porous layers, Chemical Engineering Science, 202 (2019) 194-207.

[22] M. Aghighi, M.A. Hoeh, W. Lehnert, et al., Simulation of a Full Fuel Cell Membrane Electrode Assembly Using Pore Network Modeling, Journal of The Electrochemical Society, 163(5) (2016) F384-F392.

[23] I.V. Zenyuk, E. Medici, J. Allen, et al., Coupling continuum and pore-network models for polymer-electrolyte fuel cells, International Journal of Hydrogen Energy, 40(46) (2015) 16831-16845.

[24] N. Belgacem, M. Prat, J. Pauchet, Coupled continuum

[34] J. Becker, R. Flückiger, M. Reum, et al., Determination of Material Properties of Gas Diffusion Layers: Experiments and Simulations Using Phase Contrast Tomographic Microscopy, Journal of The Electrochemical Society, 156(10) (2009) B1175-B1181.

[35] C. Qin, D. Rensink, S. Fell, et al., Two-phase flow modeling for the cathode side of a polymer electrolyte fuel cell, Journal of Power Sources, 197 (2012) 136-144.

[36] Y. Wang, C.-Y. Wang, A Nonisothermal, Two-Phase Model for Polymer Electrolyte Fuel Cells, Journal of The Electrochemical Society, 153(6) (2006) A1193.

[37] L. Xing, X. Liu, T. Alaje, R. Kumar, M. Mamlouk, K. Scott, A two-phase flow and non-isothermal agglomerate model for a proton exchange membrane (PEM) fuel cell, Energy, 73 (2014) 618-634.

چگونه به این مقاله ارجاع دهیم

H. Gholipoura, M. J. Kermania, R. Zamanian, Network Modeling to Investigate the Effect of Coupling the Transport Phenomena on Water Distribution in Gas Diffusion Layer, Amirkabir J. Mech Eng., 53(11) (2022) 5505-5528.

DOI: 10.22060/mej.2021.19340.7004

این صفحه عمداً خالی است