بررسی تجربی و آشکارسازی انتقال آب در لایه انتشار گاز پیل سوختی غشای پلیمری

مهران افرا	دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران
محسن نظرى*	دانشیار، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران
محمدحسن كيهانى	استاد، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران

### چکیدہ

در پیل سوختی غشای پلیمری در حال کارکرد، گرما و آب بهعنوان محصول جانبی تولید میشود. آب تولیدشده باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری میشود. بنابراین، باید با اعمال روش هایی، آب تولیدشده را خارج و از تراوش آن در پیل سوختی غشای پلیمری جلوگیری شود. در این تحقیق با یک مدل آزمایشگاهی واقعی، با انتخاب یک لایه انتشار گاز شفاف به آشکارسازی ساختار انتقال آب در پیل سوختی غشای پلیمری پرداخته و حرکت و مکانیزم انگشتزنی در لایه انتشار گاز موردمطالعه قرار گرفته است. همچنین برای اولین بار تأثیر اضافه کردن لایه متخلخل میکرو بر تراوش آب در لایه انتشار گاز ساختار پدیده انگشتی بررسی شده است. نتایج بدست آمده نشان میدهد که رژیم جریان دو فاز، انگشتی موئینگی است و نیروی ایجاد کننده انگشتیها، نیروی موئینگی است. علاوه بر این مشاهده شد که جریان عرضی روی لایه کاتالیزور باعث افزایش تراوش آب و اختلال در انتقال آب در لایه انتشار گاز می شود و از این مرین باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری میشود.

**واژههای کلیدی:** پیل سوختی غشای پلیمری، لایه انتشار گاز، انگشتی موئینگی ، انتقال آب، لایه متخلخل میکرو.

## Experimental Investigation and Visualization of Water Transport in Gas-Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell

M. Afra M. Nazari M. H. kayhani Department of Mechanical Engineering, Shahrood University of Technology, Shahrood, Iran Department of Mechanical Engineering, Shahrood University of Technology, Shahrood, Iran Department of Mechanical Engineering, Shahrood University of Technology, Shahrood, Iran

#### Abstract

مجله مهندسي مكانيك، شماره پياپي 8. جلد 6. شماره 1. بهار، 1391، صفحه

۲۷-۶۷ – پژوهشی

OOI: 10.22034/jmeut.2020.9743-

In Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell (PEMFC), heat and water are generated as a side-production. The accumulated water leads to a decrease in PEMFCs efficiency; therefore, water has to be removed and flooding has to be prevented. In this study, by an experimental model and implementation of transparent Gas-Diffusion Layer (GDL), water transport in PEMFC is visualized and the fingering mechanisms in GDL are studied. The effect of added Micro Porous Layer (MPL) on water flooding in GDL has been also examined. Results show the characteristics of the two-phase regime in GDL are similar to the capillary fingering. Moreover; the fingers inside the GDL are generated by the capillary forces. In addition, it is observed that lateral flow on the Catalyst Layer (CL) leads to an increase in water flooding in GDL in which PEMFC efficiency is decreased.

Keywords: Polymer electrolyte membrane fuel cell, Gas-diffusion layer, Capillary fingering, Water transport, Micro porous layer.

### ۱– مقدمه

غشای پلیمری انجامشده است. بررسیهای صورت گرفته میتواند شامل شبیه سازی های عددی وبررسی های تجربی باشد. شبیه سازی عددی و بررسی های تجربی پیل سوختی غشای مبادله پروتون، راهی برای پیش بینی عملکرد سلول و وسیله ای برای مطالعه انتقال در لایه های مختلف این نوع پیل سوختی محسوب میشود. در بررسی های صورت گرفته فرضیات مختلفی شامل حالت پایا و گذرا، یک بعدی و چند بعدی، تک فاز و دو فاز و ماکروسکوپی و میکروسکوپی مشاهده می شود [۱].

### ۱-۱- پیشینه پژوهش

در بررسیهای عددی مدلها تکفاز و دوفاز در نظر گرفته میشوند. در مدل جریان تکفاز فرض بر این است که گاز در پیل سوختی یک گاز ایده آل است. در جریان تک فاز اثر حضور آب مایع در سلول در نظر گرفته نمیشود و رطوبت ورودی باید به گونهای باشد که چگالش اتفاق نیفتد[۲]. فولر و نیومن[۳] یک مدل شبه دوبعدی ریاضی برای بررسی مدیریت آب، گرما و سوخت در پیل سوختی غشای پیلهای سوختی غشای پلیمری اولین بار توسط جنرال الکتریک در امریکا برای استفاده توسط ناسا دروسایل نقلیه فضایی دارای سرنشین استفاده شد. در پیل سوختی غشای پلیمری در حین انجام واکنشهای الکتروشیمیایی برای تولید انرژی الکتریکی، گرما و آب بهعنوان محصول جانبی در لایههای پیل سوختی غشای پلیمری میشود. که آب تولیدی باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری میشود. نابراین باید با اعمال روشهایی، آب تولیدشده را حذف و از تراوش<sup>۱</sup> آن در پیل سوختی غشای پلیمری جلوگیری کنیم. با بهبود مدیریت آب چشمگیری بهبود بخشید و به توسعه و گسترش آنها بهعنوان یک منبع تولید انرژی تجدید پذیر و پاک، کمک کرد. در دو دهه گذشته، تحقیقات زیادی پیرامون موضوع مدیریت آب در پیلهای سوختی

<sup>1</sup> Flooding

<sup>&</sup>lt;sup>®</sup> نویسنده مکاتبه کننده، آدرس پست الکترونیکی: nazari\_me@yahoo.com تاریخ دریافت: ۹۵/۱۰/۲۱ تاریخ پذیرش: ۹۶/۰۳/۲۴

پلیمری، بیانکردند. مدل از قسمتهای جداگانه الکترود<sup>۱</sup> غشا با فرض یکلایه انتشار گاز <sup>۲</sup>بسیار نازک در نظر گرفتهشده بود و از وجود فاز مایع صرفنظر شده بود.

بررسی انتقال آب، میتواند بهصورت دوفاز هم باشد. پدیده آبگرفتگی یک پدیده معروف و مهم در نحوهی عملکرد پیل سوختی غشای مبادله پروتون است. بنابراین درک انتقال دو فاز در کاتد پیل سوختی غشای پلیمری و تأثیر آنها بر کارکرد پیل سوختی ضروری است[1]. در سال ۲۰۰۰ هی و همکارانش[۴] یک مدل دوبعدی دوفازی برای بررسی اثرات آب مایع و اثر انتقال آن روی عملکرد کاتد پیل سوختی ارائهدادند، که در آن انتقال آب مایع از لایه انتشار گاز کاملاً آبگریز توسط نیروی موئینگی<sup>۳</sup> انجام میشود. در این بررسی لایه کاتالیزور<sup>†</sup> بهصورت یک شرط مرزی اعمال شده بود. بنابراین تولید آب در مرز مشترک لایه کاتالیزور و لایه انتشار گاز انجاممی شود. چن و همکارانش[۵] به بررسی انتقال با گرادیان تخلخل<sup>۵</sup> مختلف در لایه انتشار گاز کاتد پیل سوختی غشای پلیمری پرداختند. آنها این گرادیان تخلخل را با اضافه کردن لایه متخلخل میکرو با درصد تخلخل متفاوت بر روى لايه كاتاليزور ايجاد كردند. نتايج آنها نشان داد كه اختلاف در تخلخل باعث بهبود نرخ حذف آب مايع مى شود. همچنين انتقال اکسیژن به لایه انتشار گاز تسهیل پیدا می کند.

روشهای مقیاس حفره<sup>2</sup> دیدگاه میکروسکوپی از انتقال آب در لایه انتشار گاز به ما میدهد و میتوان از این روشها بهعنوان یک ابزار مکمل برای مطالعات آزمایشگاهی استفاده کرد. روش شبکه حفره و روش شبکه بولتزمن ۲ دو تا از این روشها (روشهای مقیاس حفره) هستند [۶]. سینها و وانگ<sup>۸</sup> [۷]در سال ۲۰۰۷ با استفاده از روش شبکه حفره رفتار حرکتی انتقال آب مایع و تراوش را در لایه انتشار گاز و همچنین نیز پوشش آب مایع در مرز مشترک لایه انتشار گاز-کانال را موردبررسی قراردادند. آنها به این موضوع پی بردند که کنترل انتقال آب در لایه پخش گاز توسط نیروی موئینگی صورت می گیرد. همچنین آنها بیان کردند که حرکت آب مایع در لایه انتشار گاز به شکل خوشههای متصل بههم انجام می پذیرد و این جریان به تدریج شروع به نفوذ در مسیرهایی با کمترین مقاومت میکند. لیو و همکارانش [۸] در سال ۲۰۱۳ با استفاده از روش شبکه بولتزمن به بررسی جریان آب مایع در یک محیط متخلخل به صورت دوفازی و دوبعدی پرداختند. در این مدلسازی اثر عدد موئینگی، نسبت گرانروی، زاویه تماس سطح و عدد باند ۲۰ بررسی شده است. آن ها بیان کردند که در نسبت های گرانروی پایین، الگوی انگشتی<sup>۱۱</sup> نازک است و فضای کمی از حفرهها را اشغال می کند و با افزایش این نسبت الگوهای انگشتی تقریباً بیشتر فضای حفرہ را اشغال می کند.

برای بررسی اثربخش و مفید بودن طرحهای مدیریت آب روشهایی که قادر به آشکار کردن، توزیع و انتقال آب در پیل سوختی غشای پلیمری میباشند میتوانند به کار گرفته شوند. این تکنیکهای آشکارسازی خود به دو صورت نابهجا<sup>۱۲</sup> و درجا<sup>۱۳</sup> صورت می گیرد. که عمدتاً شامل روشهای مشاهده مستقیم<sup>۱٬</sup>، عکسبرداری نوترونی<sup>۱۵</sup> و فلورسانس میکروسکوپی<sup>۱۶</sup> میباشند. در میان این تکنیک ها روش مشاهده مستقیم نوری به دلیل فراهم آوردن اطلاعات با جزییات بالا در مورد پدیده انتقال آب درکانال گاز<sup>۱۷</sup>، لایه انتشار گاز و لایه کاتالیزور مزیت وبرتری نسبت به سایر روشها دارد [۹]. یانگ و همکارانش [۱۰] با بررسی پیل سوختی شفاف، مشاهده کردند که آب خارجشده از لایه انتشار گاز به صورت قطره های مجزا با قطرهای متفاوت بوده و در محل-هایخاصی از سطح لایه انتشار گاز قرارگرفتهاند. همچنین لیستر و همکارانش [۱۱] از روش جدید فلوئورسانس میکروسکوپی<sup>۱۸</sup> برای دیدن رفتارجریان آب و توزیع آن در لایه انتشار گاز استفاده کردند. آنها بیان كردند كه انتقال آب بر اساس فرضيه كلى پذيرفتهشده شاخه زدن صورت نمی گیرد. مشاهدات فیزیکی آنها نشان داد که آب از طریق یک درخت موئینگی همگرا ( درخت وارونه<sup>۱۱</sup> )که در تحقیقات قبلى[١٢] نشان دادهشده است انتقال پيدا نمى كند. سينها و همکارانش[۱۳] با استفاده از پرتونگاری با اشعه ایکس<sup>۲۰</sup> توزیع آب در لایه انتشار گاز را در هنگام خارج شدن آب بررسی کردند و نشان دادند که توزیع آب در لایه انتشار گاز به صورت غیریکنواخت و به صورت انگشتیهای بینظم است. اخیراً جایوو همکارانش[۱۴] با استفاده از تکنیک آشکارسازی میکروسکوپ هم کانون'' و اسکن لیزری رفتار وانتقال آب مایع در لایه انتشار گاز را بررسی کردند. آنها برای آشکارسازی آب رنگ دار شدهای را در چندین لایه انتشار گاز مختلف پمپ کردند و این پدیده را بررسی کردند. نتایج آنها نشان داد که جریان آب در لایه انتشار گاز نا پایا است.

اکثر تحقیقات صورت گرفته تاکنون به بررسی کلی تراوش آب در لایه انتشار گاز پیل سوختی غشای پلیمری پرداختهاند، خصوصاً در کارهای آزمایشگاهی، به دلیل تیره بودن و پیچیدگی ساختار لایه انتشار گاز، امکان تجزیهوتحلیل انگشتیها وجود ندارد. این تحقیق با استفاده از یک مدل آزمایشگاهی واقعی، با انتخاب یکلایه انتشار گاز شفاف، به آشکارسازی انتقال آب در لایه انتشار گاز مدل پیل سوختی غشای پلیمری ساختهشده پرداختهاست، و نحوهی حرکت و مکانیزم انگشت زنی سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز بررسی شدهاست. ضمنا انگشت زنی سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز بررسی شدهاست. ضمنا ارثرات اضافه شدن لایه متخلخل میکرو در تغییر ساختار انگشتی ها برای اولین بار ارائه خواهد شد.

- 14 Direct visualization
- 15 Neutron imaging
- 16 Fluorescence microscopy
- 17 Gas Chanel
- 18 Fuorescence microscopy
- 19 Upside-down tree
- 20 X-ray micro-tomography
- 21 Confocal microscope

- 1 Electrode
- 2 Gas Diffusion Layer
- 3 Capillary forces
- 4 Catalyst Layer
- 5 Porosity
- 6 Pore scale model
- 7 Lattice Boltzmann method (LBM)
- 8 Wang
- 9 Coverge
- 10 Bond number
- 11 Finger

<sup>12</sup> Ex Situ

<sup>13</sup> In Situ

# ۲- تجهیزات و روش آزمایشگاهی

مطالعه حاضر ازجمله روشهای آشکارسازی مستقیم با تکنیک آشکارسازی نابهجا است. دراین مطالعه از یک مدل، برای ایجاد شرایطی مشابه با لایههای پیل سوختی غشای پلیمری استفاده شدهاست. شکل۱ طرحواره مدل مورداستفاده در آزمایش را نشان میدهد.



شکل ۱- طرحواره مدل ساختهشده و لایههای مورد استفاده

برای بررسی تراوش آب در پیل سوختی غشای پلیمری به روش آشکارسازی مستقیم، نیاز به یک سلول شفاف برای نمایش این پدیده داریم. در این مطالعه از یک سلول شیشهای به طول ۳۰ سانتیمتر، عرض ۳۰ سانتیمتر و ارتفاع ۱۵ سانتیمتر استفاده شدهاست. برای ورود جریان ته این سلول به قطر ۵ میلیمتر سوراخ شدهاست. در پیل سوختی غشای پلیمری واقعی سیال جابهجاشونده با سرعت ۱/۹ میکرومتر بر ثانیه وارد محیط متخلخل می شود، این سرعت در تعیین عدد موئینگی نقش دارد. با توجه به این که دبی تزریقی سیال نفوذگر در این آزمایش ۴۰ میلی لیتر بر ساعت است، سطح مقطع مدل مخزن باید به گونه ای در نظر گرفته شود که سرعت ایجادشده نزدیک به سرعت نفوذ در پیل سوختی واقعی باشد. بنابراین نیاز به ایجاد یک سطح مقطع دایرهای به قطر ۱۰ سانتیمتر هستیم تا این شرط سرعت ارضا شود. ابعاد سلول ساختهشده به گونهای انتخاب شده است که با توجه به سرعت تزریق سیال نفوذگر، زمان لازم برای بررسی انگشتیها قبل از رسیدن آنها به دیوارهی سلول را داشته باشیم. شکل ۲ سلول شیشهای و مخزن ساخته شده را نشان میدهد.



شکل ۲- سلول شیشهای شفاف و مخزن

برای مدل کردن لایه کاتالیزور و ایجاد جریان یکنواخت سیال نفوذگر، ورودی به لایه انتشار گاز، از الیاف شیشهای بافتهشده حصیری<sup>۱</sup> استفاده شدهاست. این لایه در ته سلول بهطوری که مخزن را کاملاً

بپوشاند قرار گرفتهاست. برای مدلسازی لایه متخلخل میکرو (در آزمایش دوم) از دانههای شیشهای استفاده شدهاست. همچنین نیز برای مدلسازی لایه انتشار گاز نیاز به یکلایهی شفاف است که بتواند تغییراتی حرکتی را نمایان کند، بدین منظور برای این لایه، از دانههای هیدرو ژلی<sup>۲</sup> استفاده شدهاست. وقتی این دانهها درون آب قرار میگیرند صدها برابر وزن خود آب را جذب کرده، از آب اشباعشده و آبگریز میشوند و آمادهی قرار گرفتن در سلول شیشهای هستند. بهمنظور ثابت نگاهداشتن دانههای هیدروژلی که در آب، خنثی و شناور<sup>۲</sup> هستند. از یک درپوش خاص استفاده شدهاست.

این درپوش به گونهای ساخته شده که بتواند انگشتیهایی که به بالا رسیدهاند را به بیرون از محیط انتشار گاز منتقل کند. همچنین مشابه با کانال گاز در پیل سوختی غشای پلیمری امکان تشکیل قطره بر روی سطح این لایه فراهم شدهاست. پارامترهای هندسی و سایر مشخصات لایههای مورداستفاده در این آزمایش در جدول ۱ ارائه شده است.

### ۲-۱- سیال نفوذگر

در این تحقیق از آب بهعنوان سیال جابه جاشده (زمینه) استفاده شدهاست، درحالی که در پیل سوختی غشای پلیمری واقعی هوا بهعنوان سیال جابهجاشده است. و از یک سیال، بهعنوان سیال نفوذگر (جابهجاشونده) استفاده شدهاست، درحالی که در پیل سوختی غشای پلیمری در شرایط واقعی کارکرد، آب بهعنوان سیال جابهجاشونده است. سیال نفوذگر خود باید به گونهای ساخته شود که شرایطی مشابه با پیل سوختی واقعی را ایجاد کند، اینتشابه با رعایت کردن نسبت اعداد بیبعد ایجاد میشود، اعداد بیبعد در این آزمایش به ترتیب عدد موئینگی<sup>†</sup>، عدد باند و نسبت گرانروی<sup>۵</sup> است. پس هدف ساخت سیالی است که، مرتبه بزرگی این اعداد را ارضا کند. و از طرفی این سیال با آب مخلوط نشدنی<sup>5</sup> باشد و دو فاز مجزا از هم را ایجاد کند. عدد موئینگی در پیل سوختی واقعی بسیار کوچک و در مرتبه بزرگی<sup>8–10</sup> است، که ناشیاز سرعت بسیار پایین نفوذ در لایه کاتالیزور ما عدد  $(V_{inv} = 1.9 \mu m/s)$  است. این نکته بیان شود که در آزمایش ما عدد موئینگی از مرتبه بزرگی <sup>7–10</sup> است، که یکمرتبه بزرگتر از عدد موئینگی در پیل سوختی واقعی است، اما بهاندازهی کافی کوچک است که اثرات موئینگی غالب باشد. برای ارضا عدد باند و کم کردن اثرات گرانشی چگالی سیال نفوذگر باید با چگالی آب برابر باشد (در این آزمایش اختلاف چگالی یک واحد فرض شده است). یکی از چالشهای اصلی این آزمایش ساختن سیالی با چگالی یکسان با چگالی آب بود. شرایط انجام آزمایش، اعداد بی بعد و خواص سیال در جدول ۲ ارائه شده

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Woven glass fiber mat

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Hydrogel beads

<sup>3</sup> Neutrally buoyant

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Capillary number

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Viscosity ratio <sup>6</sup> Iimiscible

<sup>&</sup>lt;sup>o</sup> limiscit

جدول ۱- پارامترهای هندسی و لایههای متخلخل مورداستفاده در آزمایش

مدل شده بهعنوان	ضخامت	قطر حفرات(mm)	سایز ذرات(mm)	تخلخل	ساختار	لايه
لايه كاتاليزور	۵(mm)	-	(الف) ۰/۱	(الف) ۲/۰	استوانهای	الیاف شیشهای حصیری
لایه انتشار گاز	Y(cm)	4/44 <sup>(2)</sup>	۱.	•/۴ <sup>(ب)</sup>	كروى	دانەھاي ھيدرو ژلي
لايه متخلخل ميكرو	۱(cm)	۱/۳۳ <sup>(چ)</sup>	٣	•/۴ <sup>(ب)</sup>	كروى	دانههای شیشهای

(الف) با توجه به خصوصيات الياف حصيرى بافتهشده.

(ب) مقادیر فرض شده برای چیدمان تصادفی[۱۵].

(ج) از رابطه  $dp = (2\epsilon d)/(3(1-\epsilon))$  تخمین زده شده است (۱۵].

برای ساخت سیال نفوذگر از دو ماده با چگالیهای متفاوت استفاده شدهاست، یکی سنگینتر و یکی سبکتر از آب که با ترکیب کردن آنها به چگالی موردنظر دست پیدا کنیم. در این آزمایش، از تتراکلرید کربن و روغن برای ساخت سیال استفاده شدهاست. پس باید درصد حجمی مواد سازنده سیال را به گونهای بدست بیاوریم، که درنهایت سیال ساختهشده همچگالی با آب باشد. یافتن این درصدهای حجی یکی از سختترین قسمتهای انجام این آزمایش بوده است. برای چک کردن این که آیا سیال ساختهشده با چگالی آب برابر است یا نه؟ قطراتی از سیال ساخته شده را، درون ظرف آب توسط سرنگ تزریق كرده و نتيجه را دنبال كرده، اگر قطرات درون آب معلق و ساكن قرار می گرفتند، تقریباً می توان این نتیجه را گرفت که سیال ساخته شده درست ساخته شده است. در غیر این صورت اگر قطرات به بالا و یا پاین حرکت کنند سیال ساخته شده چگالی موردنظر را ندارد و برای انجام آزمایش مناسب نیست. همچنین در انتها علاوه بر چک کردن چگالی بهروش چشمی چگالی سیال را با استفاده از پیکنومتر ٔ با دقت بالا محاسبه میکنیم. درنهایت با اندکی تغییر در مقادیر نظری موفق به ساخت سیال موردنظر شدیم. از آنجاکه هر دو مواد سازنده سیال بی رنگ هستند برای نمایان شدن سیال نفوذگر در محیط آشکارسازی، این مخلوط را با یک رنگ ٔ خاص رنگ دار شدهاست.

در این تحقیق ۸۰ میلی لیتر سیال نفوذگر با دبی ۴۰ میلی لیتر بر ساعت به مدت ۲ ساعت در مدل با لایه متخلخل میکرو و بدون آن تزریق شده و رفتار دینامیکی سیال در لایه انتشار گاز بررسی شدهاست. لایههای مورد نظر را همان طور که در طرحواره نشان داده شده است روی هم قرار داده و پس ازآن سلول را از آب پر کرده و آزمایش را آغاز و شروع به عکس برداری از این پدیده می کنیم.

# ۳- نتایج و بحث

این قسمت به بررسی و تحلیل نتایج حاصل از آزمایشها پرداخته شدهاست. در ابتدا لازم است به بررسی کلی رژیم جریان دو فاز پرداخته شود. با توجه به خصوصیات فیزیکی سیال نفوذگر و اعداد بی بعد بدست آمده از روی آنها، با استفاده از نمودار ارائهشده توسط لنورمند و همکارانش [۱۶]رژیم جریان سیال را مشخص میکنیم.



شکل ۳-رژیم جریان دو فاز [۱۶].

با توجه به شکل ۳ محل نقطه قرمزرنگ نوع رژیم جریان را مشخص میکند که در ناحیه انگشتی موئینگی قرار داریم. پس رژیم جریان دوفازی، انگشتی موئینگی است. در لایه انتشار گاز پیشروی سیال نفوذگر ترجیحاً از حفرهها کوچک به سمت حفرهها با گلوگاههای بزرگترصورت میگیرد، در فرآیند ایجاد انگشتی، نیروی اصلی عامل حرکت نیروی موئینگی است[۸].

# ۳-۱- مدل لایه انتشار گاز بدون لایه متخلخل میکرو

شکل ۴ توزیع سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز، مدل پیل سوختی غشای پلیمری را نشان میدهد. تعداد بسیار زیادی انگشتیهای کوچک سیال نفوذگر از روی سطح لایه کاتالیزور تشکیل میشوند. انگشتیهای کوچک با تزریق سیال رشد کرده و به انگشتیهای بزرگتر تبدیل میشوند، بعضی انگشتیها هم هستند که در همان مراحل ابتدایی آزمایش متوقفشده و رشد نمیکنند. با توجه به شکل ۴ مشاهده میشود که تعداد انگشتیهای بیرون آمده از روی لایه کاتالیزور آنقدر زیاد است که تقریباً روی تمام سطح لایه کاتالیزور توسط سیال نفوذگر پوشیده شده است، و تا ارتفاع ۱ سانتیمتر از سطح لایه کاتالیزور انگشتیها قابل تشخیص نیستند.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Pycnometer

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Dye

جدول ۲- خواص سیال، شرایط آزمایشگاهی، شرایط کارکرد پیل واقعی، اعداد بیبعد				
 پیل سوختی واقعی در دمای (°۲۰(C	آزمایش در دمای (۲۵(C°	پارامترها		
آب مايع	مخلوط رنگی روغن و تتراکلرید کربن	سيال نفوذگر خيس نشونده		
 $VV/A (kg/m^3)$	۱۰۲۷ (kg/m <sup>3</sup> )	چگالی		
۰/۰۰۰۴۰۴ (pa.s)	• /• ۳۳ <sup>(الف)</sup> (pa.s)	لزجت ديناميكي		
هواى اشباع	آب مایع	سيال جابهجاشده(زمينه)خيس شونده		
۰/۹۱۴ (kg/m³)	۱۰۲۵ (kg/m <sup>3</sup> )	چگالی		
•/•••• ١٧۶ (pa.s)	•/•• \ (pa.s)	لزجت ديناميكي		
		خصوصيات بين سطحى		
 •/•۶۴ (N/m)	$\cdot / \cdot \Delta \mathcal{F}^{(z)}(N/m)$	کشش سطحی		
۱۲۰°	۱۸۰ <sup>٥(ی)</sup>	زاويه تماس		
۱/۹ (µm/s)	۱/۴۲ (µm/s)	سرعت نفوذ		
۲۰ (μm)	۴/۴۴ (mm)	قطر متوسط حفره		
		پارامترهای بدون بعد		
۲/۴×۱۰-۸	۸/۳۶×۱۰ <sup>-۲</sup>	عدد موئينگى (Ca=μ <sub>inv</sub> V <sub>inv</sub> /σcos9)		
۲۳	٣٣			

(الف) لزجت محاسبه شده توسط دستگاه ( BROOKFIELD DV-E/LV ) در أزمايشگاه سراميک و مواد دانشگاه صنعتي شاهرود.

(ب) محاسبه شده از رابطه σ = σ<sub>inv</sub> + σ<sub>def</sub> - 2Ø (*N/m*) با فرض σ.σ = ۵<sup>[۱۱]</sup>. کشش سطحی آب در دمای ۲۵ ° ۲۵ برابر با σ = σ<sub>inv</sub> + σ<sub>def</sub> - 2Ø (*ν*<sub>0inv</sub> σ<sub>def</sub>). کشش سطحی سیال نفوذگر نسبت به هوا برابر است با σ<sub>inv</sub> = 0.034(*N/m*) اندازه گیری شده در آزمایشگاه آشکارسازی، دانشگاه صنعتی شاهرود.

۳/۴۵×۱۰<sup>-۳(۵)</sup>

(ج) این مقدار بر اساس فیلم نازکی از آب که بین هیدرو ژل و سیال خیس نشونده وجود دارد فرض شده است.

(د) محاسبهشده با فرض این که اختلاف چگالی( $\Delta
ho=1 {
m kg/m^3})$  باشد.

نسبت لزجت (M=µ<sub>inv</sub>/µ<sub>def</sub>)

 $(Bo=\Delta \rho g d_p^2 / \sigma \cos \theta)$ عدد باند (Bo= $\Delta \rho g d_p^2 / \sigma \cos \theta$ 

انگشتیهای که تقریباً به ارتفاع بیشتر از یک سانتیمتر از روی لایه کاتالیزور بالاآمدهاند همان انگشتیهای ثانویه میباشند. این انگشتیها در شکل ۴ شمارهگذاری شدهاند. انگشتیها در تمامی جهات شروع به رشد و حرکت میکنند، حتی درجهت های وارونه به سمت پایین[۶۲]. انگشتیهای ایجادشده در جهت وارونه (رو به پایین) صورت میگیرد انگشتیهای ایجادشده در جهت وارونه (رو به پایین) صورت میگیرد دیگر از ویژگیهای رژیم انگشتی موئینگی انتخاب کردن مسیرهایی با حفرههای بزرگتر توسط سیال نفوذگر است که این پدیده در این پژوهش مشاهدهشده است. مشاهدات آزمایشگاهی نشان داد که سیال نفوذگر از طریق در لایه انتشار گاز، مشابه با تصاویر در شکل ۴ است.

### ۳-۲- مکانیزم انگشتزنی

(الف) توقف رشد، در مرحله ظهور و پیدایش انگشتیها: سیال نفوذگر پس از عبور از لایه کاتالیزور وارد لایه انتشار گاز میشود. در ابتدای حضور سیال نفوذگر بهصورت قطرات بسیار کوچک در لایه انتشار گاز حضور پیدا میکند. اما تعداد بسیار زیادی از این انگشتیها در همان مرحلهی اولیه پیدایش در لایه انتشار گاز متوقفشده. تعداد بسیار زیادی از محلها درروی لایه کاتالیزور وجود دارد که سیال تزریقشده از آن محلها وارد لایه انتشار گاز میشوند، در این آزمایش تعداد این محلها آنقدر زیاد است که روی سطح لایه کاتالیزور بهطور کامل پوشانده میشود و مانند فیلمی از سیال نفوذگر روی لایه کاتالیزور قرار میگیرد. اما تعداد بسیار زیادی از این انگشتیها در همان مرحله اول انگشت زنی متوقفشده و به انگشتیهای ثانویه تبدیل

نمی شوند، و از تجزیه و تحلیل آن ها صرف نظر می کنیم. این انگشتی ها باعث افزایش تراوش آب و باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می شوند.

۵/۹×۱۰-۵

(ب) توقف رشد در مرحلهی ایجاد انگشتی ثانویه: انگشتیهای ثانویه پس از گذشت مدتزمانی از حضورشان در لایه انتشار گاز، متوقفشده و دیگر به رشد خود ادامه نمی دهند. در این آزمایش انگشتی شماره ۱ پس از ۱۵ میلی لیتر، انگشتی شماره ۲ پس از ۳۵ و انگشتی شماره ۳ پس از ۵۵ میلی لیتر تزریق متوقف میشود. و درنهایت انگشتیهای شماره ۴ پس از ۵۵ میلی لیتر تزریق متوقف و تا انتهای آزمایش تا ۸۰ میلی لیتر تزریق ساختار این انگشتیها ثابت و بدون حرکت باقی می ماند. شکل ۴ این رفتار انگشتیها را نشان می دهد. انگشتی متوقفشده در فرآیند انتقال سیال نفوذگر به کانال گاز شرکت نمی کند و سیال نفوذگر دیگر این مسیر را برای حرکت انتخاب نمی کند و این انگشتی فقط باعث افزایش تراوش آب در لایه انتشار گاز می شود، و به این صورت تأثیر منفی در عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می گذارد.

مهران افرا، محسن نظري و محمدحسن كيهان



(ی) ۵۰ میلیلیتر تزریق

(ه) ۲۵ میلیلیتر تزریق



(ک) ۵۵ میلیلیتر تزریق



(ل) ۶۰ میلیلیتر تزریق



(م) ۶۵ میلیلیتر تزریق



(ن) ۷۰ میلیلیتر تزریق



(س) ۷۵ میلیلیتر تزریق



(ع) ۸۰ میلیلیتر تزریق شکل ۴- تصاویر گرفتهشده از رشد سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز مدلمشابه، سیر رشد انگشتیها از زمان شروع تا پایان آزمایش را نشان میدهد.

(ج) پیوند انگشتیها: پیوند انگشتیها وقتی اتفاق میافتد که دو انگشتی باهم برخورد کرده و پیوند برقرار کرده و به یک انگشتی تبدیل میشوند. انگشتی شماره ۶ و ۷ باهم پیوند برقرار میکنند و انگشتی A را تشکیل میدهند. شکل ۴ (ی) لحظهی برقراری پیوند و شکل ۴ (ک) بعد از پیوند را نشان میدهد. پیکانها محل برقراری پیوند را نشان میدهند. در این آزمایش پیوند دیگری بین انگشتیها مشاهدهشده است. اما به دلیل این که این پیوند، در نواحی پایینی لایه انتشار گاز، در ناحیهای که فیلمی از سیال نفوذگر بر روی لایه کاتالیزور است، صورت گرفته است. قادر به آشکارسازی و نمایش آن نیستیم.

(د) حرکت وارونه انگشتیها: انگشتیهای ایجادشده و شاخههای آن، در جهت رو به بالا و جهتهای جانبی (عرضی) در حال حرکت هستند. اما گاهی اوقات این شاخهها در جهتی متفاوت و روبه پایین به سمت لایه پایینی حرکت میکنند، که در این مطالعه منظور از لایه پایینی لایه کاتالیزور است. در این آزمایش چندین انگشتی حرکت وارونه انجام میدهند که به ترتیب ذکر میشوند. حرکت در جهت وارونه یکی از ویژگیهای رژیم جریان انگشتی موئینگی است[۱۶].

دوشاخه از انگشتی شماره ۱ وارونه شدهاند، یکی از شاخههای انگشتی ۴ وارونه شده و اندکی بعد از انتخاب این جهت جریان این شاخه از انگشتی متوقف میشود و باعث توقف کل انگشتی میشود و همچنین دریکی از شاخههای انگشتی شماره ۸ جریان وارونه مشاهدهشده است. شکل ۵ این جریانهای وارونه را به ترتیب بیان شده در بالا نشان میدهد.





(الف)
 (ب)
 (ب) شکل ۵- جریان وارونه در لایه انتشار گاز مدل مشابه
 (الف) انگستی ۱ (ب) انگشتی ۶ (ج) انگستی ۸

(ه) تقسیم شدن جریان: انگشتیهای ثانویه که در حال رشد در لایه انتشار گاز هستند ممکن است در بعضی از آنها از قسمت

دوشاخه تقسیم شده است.

سرشاخهی انگشتی جریان به دو یا چند قسمت تقسیم شود. شکل ۶ (الف) تقسیم جریان در انگشتی شماره ۴ و شکل ۶ (ب) تقسیم جریان

در انگشتی شماره ۹ را نشان میدهد. درهر دوانگشتی جریان به

(الف) شکل ۶– تقسیم جریان در لایه انتشار گاز مدل آزمایشگاهی (الف) انگشتی ۴ (ب) انگشتی ۹

(و) رسیدن انگشتیها به کانال گاز: در بین انگشتیهای ثانویه بعضی از انگشتیها هستند که خود را به کانال گاز میرسانند، که به آنها انگشتیهای مؤثر گفته میشود. این انگشتیهای مؤثر هستند، که نقش اصلی در انتقال آب از لایه انتشار گاز به کانال گاز را بر عهدهدارند و هرچه تعداد آنها بیشتر باشد تأثیر مثبت بر عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری دارند. همانطور که در شکل ۴ نشان دادهشده است، انگشتیهای شماره ۸و ۹ به کانال گاز رسیدهاند. مسیر حرکت انگشتی شماره ۹ در شکل ۴ (ن) و انگشتی شماره ۸ در شکل ۴ (ع) نشان دادهشده است. انگشتی که خود را به کانال گاز رسانده است، تا انتهای آزمایش ساختار و شکل مسیرش ثابت باقی میماند. ممکن است در مرحلهای از آزمایش، سیال نفوذگر پیوستگی خود در مسیر را از دست دهد وكاملا از هم جدا شود( این حالت معمولاً در لحظه برخود اولیه نوک انگشتی با کانال ایجاد می شود.) اما در ادامه ی آزمایش، سیال نفوذگری که وارد این انگشتی در لایه انتشار گاز می شود، دوباره همین مسیر را برای حرکت انتخاب کرده و از همین مسیر خود را به کانال گاز می رساند.

در این آزمایش، تقریباً از تمام سطح روی لایه کاتالیزور سیال نفوذگر وارد لایه انتشار گاز میشود به گونهای که فیلمی از سیال نفوذگر تقریباً به ضخامت یک سانتیمتر روی سطح قرار می گیرد. در این حالت سیال نفوذگر در جهت عرضی روی لایه کاتالیزور به سمت دیوارهها حرکت می کند. شکل ۴ (ح و ط ) جهت جریانهای عرضی بر روی مرز مشترک لایه کاتالیزور و لایه انتشار گاز را نشان می دهد. حرکت عرضی سیال نفوذگر روی لایهی کاتالیزور باعث افزایش تراوش آب در لایه انتشار گاز میشود و مانع از حرکت مستقیم و روبه بالا انگشتیها می شود. با توجه به این موارد جریان عرضی بر روی لایهی کاتالیزور باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می شود.

## ۳-۳- مدل لایه انتشار گاز همراه با لایه متخلخل میکرو

این قسمت به بررسی تراوش آب در لایه انتشار گازی که لایه

میانی بهعنوان لایه متخلخل میکرو به آن اضافه شده است، پرداخته شده است. در این آزمایش روی لایه کاتالیزور به ضخامت ۱ سانتی متر با دانه های شیشه ای پوشانده شده است. ضخامت لایه انتشار گاز ۶ سانتی متر است. بیان این نکته لازم است که ضخامت کل لایه های پیل در مجموع برابر با ۷ سانتی متر و ثابت است. مشخصات این دانه ها در جدول ۱ ارائه شده است. مشابه آزمایش قبل در این آزمایش ۸۰ میلی لیتر سیال نفوذگر با دبی ۴۰ میلی لیتر بر ساعت، به مدت ۲ ساعت تزریق شده است.



(الف) ۲۰ میلیلیتر تزریق



(ب) ۵۰ میلیلیتر تزریق



ج) ۸۰ میلیلیتر تزریق شکل ۷ - تصاویر گرفتهشده از رشد سیال نفوذگر در مدل مشابه لایه انتشار گاز همراه با لایه متخلخل میکرو

همان طور که مشاهده میکنید با توجه به شکل ۷ انگشتیهای سیال نفوذگر در محلهای خاصی از روی سطح لایه متخلخل میکرو تشکیل میشوند. این انگشتیهای باگذشت زمان و تزریق سیال رشد کرده و به انگشتیهای بزرگتر تبدیل میشوند. میتوان گفت تمام انگشتیهایی که وارد لایه انتشار گاز شدهاند از سطح مقطع دایرهای به قطر ۱۰ سانتیمتر در مرز مشتر کلایه انتشار گاز و لایه متخلخل میکرو ایجادشدهاند. که بیانگر این موضوع است که انگشتیها کمترین میزان پراکندگی و گستردگی را در لایه کاتالیزور و لایه متخلخل میکرو داشتهاند و تمام انگشتیها تقریباً بهطور مستقیم وارد لایه انتشار گازمیشوند. مکانیزم انگشت زنی در این آزمایش مشابه آزمایش قبل است. و در این آزمایش نیز توقف انگشتیها، جریان وارونه، پیوند

انگشتیها، تقسیم جریان و رسیدن انگشتیها به کانال گاز مشاهده شده است.

## ۳–۴– مقایسه آزمایش اول و دوم

این قسمت به مقایسه دو آزمایش با یکدیگر پرداخته است. مشاهدات تجربی نشان میدهد که رشد انگشتیها سازگاری خوبی با نمودار جریان دو فاز ارائهشده توسط لنورمند دارد. از ویژگیهای اصلی ارائهشده برای رژیم جریان انگشتی مویینگی، وجود انگشتیهای وارونه است که این ویژگی در هر دو آزمایش ما نیز مشاهدهشده است، که صحتى بر مدل ساخته شده و نتايج بدست آمده از آن است. با مقايسه تصاویر در شکل ۴ و شکل ۷ کاملاً مشخص است که پراکندگی و گستردگی سیال نفوذگر با افزودن لایه متخلخل میانی کاهش یافته است و تراوش سیال نفوذگر در آزمایش دوم از آزمایش اول کمتر است. همچنین حجم سیال موجود در لایه انتشار گاز با افزودن لایه متخلخل ميكرو كاهش يافته است.

همانطور که بیان شد در آزمایش اول فیلمی از سیال نفوذگر روی سطح لایه کاتالیزور قرارمی گیرد. اما در آزمایش دوم، در حالتی که لایه متخلخل میانی داریم، سیال نفوذگر در محلهای خاصی، در مرز مشترک بین لایه متخلخل میکرو و لایه انتشار گاز شروع به پیدایش در لایه انتشار گاز میکند، بهگونهای که این محلها کاملاً از هم جدا و قابل تشخیص هستند. با مقایسه هردو آزمایش می توان این نتیجه را گرفت که لایه متخلخل میکرو مانع تشکیل جریانهای عرضی بر روی لایه کاتالیزور می شود و انگشتیها را در مسیرهای مستقیم (رو به بالا) وارد لایه انتشار گاز میکند. و از این طریق مانع تراوش آب در لایه متخلخل میکرو میشود و باعث بهبود عملکرد پیل سوختی میشود.

علاوه بر این مسافتی که توسط سیال نفوذگر، برای خارج شدن از لایه انتشار گاز و رسیدن به کانال گاز، باید پیموده شود ( با توجه به این که ضخامت کل در هر دو آزمایش ثابت و برابر ۷ سانتیمتر است) کاهش پیداکرده است. نتیجهای که از این مقایسه گرفته می شود این است که افزودن لایه متخلخل میکرو باعث کاهش تراوش آب در لایه انتشار گاز و افزایش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می شود.

## ۴- نتىجەگىرى

برای بررسی انتقال آب، در لایه انتشار گاز آبگریز، پیل سوختی غشای پلیمری از یک مدل مشابه آزمایشگاهی،که نقش لایههای پیل سوختی را برای ما ایفا میکند استفاده شد. و همچنین از یک سیال (همچگالی با آب) بهعنوان سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز مدل ساخته شده استفاده شد. با کنترل اعداد بی بعد موئینگی ، باند و نسبت گرانروی رژیم جریان دو فاز در این مطالعه، رژیم جریان انگشتی موئینگی است، که این رژیم مشابه با رژیم دوفازی موجود در پیل سوختی غشای پلیمری در شرایط کارکرد واقعی است. مشاهدات آزمایشگاهی نشان داد که عامل اصلی حرکت انگشتیها، نیروی موئینگی است. جریان وارونه که خود از نشانههای رژیم انگشتی موئینگی است و توقف انگشتیها هر دو تأثیر منفی بر عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری دارند. علاوه بر این میتوان گفت که انگشتیهایی که به کانال گاز میرسند، نقش اصلی در انتقال و حذف آب مایع از لایه انتشار گاز به کانال گاز را بر عهدهدارند. همچنین

مشاهدات و بررسیها نشان داد که افزودن لایه متخلخل میکرو باعث کاهش تراوش آب و افزایش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری مىشود.

### ۵- نمادها

Т	دما (°C)
$\mathbf{V}_{\mathrm{inv}}$	سرعت نفوذ (m/s)
3	تخلخل
d	سایز ذرات(mm)
$d_p$	قطر حفره
ρ	چگالی(Kg/m³)
$\mu_{\rm inv}$	گرانروی دینامیکی سیال نفوذگر (Pa.s)
$\mu_{\text{def}}$	گرانروی دینامیکی زمینه(Pa.s)
σ	کشش سطحی(N/m)
θ	زاويه تماس
Ca	عدد موئینگی
Bo	عدد باند

نسبت گرانروی М

### ۶- مراجع

[1] Das P., Transport phenomena in cathode catalyst layer of PEM fuel cells, 2010.

- [2] Khan M., Yuan J. and Sundén B., Numerical simulation of multi-scale transport processes and reactions in pem fuel cells using two-phase models, Institutionen för kraftteknik, Tekniska högskolan i värme-och Lund,2009.
- [3] Fuller T. F. and Newman J., Water and thermal management in solid-polymer-electrolyte fuel cells, Journal of the Electrochemical Society, Vol. 140, pp. 1218-1225,1993.
- [4] He W., Yi J. S. and Van Nguyen T., Two-phase flow model of the cathode of PEM fuel cells using interdigitated flow fields, AIChE Journal, vol. 46, pp.2064 -2053, 2000.
- [5] Chen F., Chang M.-H. and Hsieh P.-T., Two-phase transport in the cathode gas diffusion layer of PEM fuel cell with a gradient in porosity, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 33, pp.2525-2529, 2008.
- [6] Hao L. and Cheng P., Lattice Boltzmann simulations of water transport in gas diffusion layer of a polymer electrolyte membrane fuel cell, Journal of Power Sources, Vol. 195, pp. 3881-3870, 2010.
- [7] Sinha P. K. and Wang C.-Ŷ., Pore-network modeling of liquid water transport in gas diffusion layer of a polymer electrolyte fuel cell, Electrochimica Acta, Vol. 52, pp.7945-7936, 2007.
- [8] Liu H., Valocchi A. J., Kang Q. and Werth C., Pore-scale simulations of gas displacing liquid in a homogeneous pore network using the lattice Boltzmann method, Transport in porous media, Vol. 99, pp.580-555, 2013.
- [9] Ji M. and Wei Z., A review of water management in polymer electrolyte membrane fuel cells, Energies, vol. 2, pp.1106-1057, 2009.
- [10] Yang X., Zhang F., Lubawy A. and Wang C., Visualization of liquid water transport in a PEFC" Electrochemical and Solid-State Letters, Vol. 7, pp. A408-A411, 2004..
- [11] Litster S., Sinton D. and Djilali N., Ex situ visualization of liquid water transport in PEM fuel cell gas diffusion layers, Journal of Power Sources, Vol. 154, pp. 95-105, 2006.

- [12] Pasaogullari U. and Wang C., Liquid water transport in gas diffusion layer of polymer electrolyte fuel cells, *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 151, pp. A399-A406, 2004.
- [13] Sinha P. K., Halleck P. and Wang C.-Y., Quantification of liquid water saturation in a PEM fuel cell diffusion medium using X-ray microtomography, *Electrochemical and Solid-State Letters*, Vol. 9, pp. A344-A348, 2006.
- [14] Gao B., Steenhuis T. S., Zevi Y., Parlange J.-Y., Carter R. N. and Trabold T. A., Visualization of unstable water flow in a fuel cell gas diffusion layer, *Journal of Power Sources*, Vol. 190, pp.493-498, 2009.
- [15] Kaviany M., Principles of Heat Transfer in Porous Media, Second Edition. ed. New York, NY: Springer New York, 1995.
- [16] Lenormand R., Touboul E. and Zarcone C., Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *Journal of fluid mechanics*, Vol. 189, pp.165-187, 1988.
- [17] Ghosh P., Associate Professor Department of Chemical Engineering IIT Guwahati, Guwahati–781039 India 2009.