

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

مهران افرا

محسن نظری*

محمدحسن کیهانی

دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران

دانشیار، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران

استاد، گروه مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی شاهرود، شاهرود، ایران

چکیده

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 روش‌هایی، 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 مورد مطالعه قرار گرفته است. همچنین برای اولین بار تأثیر اضافه کردن لایه متخلخل میکرو بر تراوش آب در لایه انتشار گاز و ساختار پدیده انگشتی بررسی شده است. نتایج بدست آمده نشان می‌دهد که رژیم جریان دو فاز، انگشتی موئینی است و نیروی ایجاد کننده انگشتی‌ها، نیروی موئینی 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 می‌شود و از این طریق باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می‌شود.

واژه‌های کلیدی: پیل سوختی غشای پلیمری، لایه انتشار گاز، انگشتی موئینی، 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

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.

غشای پلیمری انجام شده است. بررسی‌های صورت گرفته می‌تواند شامل شبیه‌سازی‌های عددی و بررسی‌های تجربی باشد. شبیه‌سازی عددی و بررسی‌های تجربی پیل سوختی غشای مبادله پروتون، راهی برای پیش‌بینی عملکرد سلول و وسیله‌ای برای مطالعه انتقال در لایه‌های مختلف این نوع پیل سوختی محسوب می‌شود. در بررسی‌های صورت گرفته فرضیات مختلفی شامل حالت پایا و گذرا، یک‌بعدی و چندبعدی، تک فاز و دو فاز و ماکروسکوپی و میکروسکوپی مشاهده می‌شود [۱].

۱-۱- پیشینه پژوهش

در بررسی‌های عددی مدل‌ها تک‌فاز و دو فاز 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 به‌گونه‌ای باشد که چگالش اتفاق نیفتد [۲]. فولر و نیومن [۳] یک مدل شبه دو بعدی ریاضی برای بررسی مدیریت آب، گرما و سوخت در پیل سوختی غشای

۱- مقدمه

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 تولید می‌شود، که آب تولیدی باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می‌شود. بنابراین باید با اعمال روش‌هایی، آب تولیدشده را حذف و از تراوش آن در پیل سوختی غشای پلیمری جلوگیری کنیم. با بهبود مدیریت آب در پیل‌های سوختی غشای پلیمری می‌توان عملکرد آن‌ها را به‌طور 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

1 Flooding

* نویسنده مکاتبه کننده، آدرس پست الکترونیکی: nazari_me@yahoo.com

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 ناهجا^{۱۲} و درجا^{۱۳} صورت می‌گیرد. که عمدتاً شامل روش‌های مشاهده مستقیم^{۱۴}، عکس‌برداری نوترونی^{۱۵} و فلورسانس میکروسکوپی^{۱۶} می‌باشند. در میان این تکنیک‌ها روش مشاهده مستقیم نوری به دلیل فراهم آوردن اطلاعات با جزئیات بالا در مورد پدیده انتقال آب در کانال‌های^{۱۷}، لایه انتشار گاز و لایه کاتالیزور مزیت و برتری نسبت به سایر روش‌ها دارد [۹]. پانگ و همکارانش [۱۰] با بررسی پیل سوختی شفاف، مشاهده کردند که آب خارج‌شده از لایه انتشار گاز به‌صورت قطره‌های مجزا با قطرهای متفاوت بوده و در محل‌های خاصی از سطح لایه انتشار گاز قرار گرفته‌اند. همچنین لیستر و همکارانش [۱۱] از روش جدید فلورسانس میکروسکوپی^{۱۸} برای دیدن رفتار جریان آب و توزیع آن در لایه انتشار گاز استفاده کردند. آن‌ها بیان کردند که انتقال آب بر اساس فرضیه کلی پذیرفته‌شده شاخه زدن صورت نمی‌گیرد. مشاهدات فیزیکی آن‌ها نشان داد که آب از طریق یک درخت موئینگی همگرا (درخت وارونه^{۱۹}) که در تحقیقات قبلی [۱۲] نشان داده‌شده است انتقال پیدا نمی‌کند. سینها و همکارانش [۱۳] با استفاده از پرتو نگاری با اشعه ایکس^{۲۰} توزیع آب در لایه انتشار گاز را در هنگام خارج شدن آب بررسی کردند و نشان دادند که توزیع آب در لایه انتشار گاز به‌صورت غیریکنواخت و به‌صورت انگشتی‌های بی‌نظم است. اخیراً جایو و همکارانش [۱۴] با استفاده از تکنیک آشکارسازی میکروسکوپ هم کانون^{۲۱} و اسکن لیزری رفتار و انتقال 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 تجزیه و تحلیل انگشتی‌ها وجود ندارد. این تحقیق با استفاده از یک مدل آزمایشگاهی واقعی، با انتخاب یک لایه انتشار گاز شفاف، به آشکارسازی انتقال آب در لایه انتشار گاز مدل پیل سوختی غشای پلیمری ساخته‌شده پرداخته‌است، و نحوه حرکت و مکانیزم انگشت زنی سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز بررسی شده‌است. ضمناً اثرات اضافه شدن لایه متخلخل میکرو در تغییر ساختار انگشتی‌ها برای اولین بار ارائه خواهد شد.

پلیمری، بیان کردند. مدل از قسمت‌های جداگانه الکترو^۱ غشا با فرض یک لایه انتشار گاز بسیار نازک در نظر گرفته شده 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 نحوه 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 [۱]. 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 ارائه دادند، که در آن انتقال آب مایع از لایه انتشار گاز کاملاً آب‌گریز توسط نیروی موئینگی^۲ انجام می‌شود. در این بررسی لایه کاتالیزور^۳ به‌صورت یک شرط مرزی اعمال شده بود. بنابراین تولید آب در مرز مشترک لایه کاتالیزور و لایه انتشار گاز انجام می‌شود. چن و همکارانش [۵] به بررسی انتقال با گرادیان تخلخل^۵ 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 روی لایه کاتالیزور ایجاد کردند. نتایج آن‌ها نشان داد که اختلاف در تخلخل باعث بهبود نرخ حذف آب مایع می‌شود. همچنین انتقال اکسیژن به لایه انتشار گاز تسهیل پیدا می‌کند.

روش‌های مقیاس حفره^۶ 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^۷ دو تا از این روش‌ها (روش‌های مقیاس حفره) هستند [۶]. سینها و وانگ^۸ [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^۹ آب مایع در مرز مشترک لایه انتشار گاز-کانال را مورد بررسی قرار دادند. آن‌ها به این موضوع پی بردند که کنترل انتقال آب در لایه پخش گاز توسط نیروی موئینگی صورت می‌گیرد. همچنین آن‌ها بیان کردند که حرکت آب مایع در لایه انتشار گاز به شکل خوشه‌های متصل به هم انجام می‌پذیرد و این جریان به‌تدریج 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 به‌صورت دوفازی و دوبعدی پرداختند. در این مدل‌سازی اثر عدد موئینگی، نسبت گرانیوی، زاویه تماس سطح و عدد باند^{۱۰} بررسی شده است. آن‌ها بیان کردند که در نسبت‌های گرانیوی پایین، الگوی انگشتی^{۱۱} نازک است و فضای کمی از حفره‌ها را اشغال می‌کند و با افزایش این نسبت الگوهای انگشتی تقریباً بیشتر فضای حفره را اشغال می‌کند.

12 Ex Situ
13 In Situ
14 Direct visualization
15 Neutron imaging
16 Fluorescence microscopy
17 Gas Chanel
18 Fluorescence 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

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 یک لایه‌ی شفاف است که بتواند تغییراتی حرکتی را نمایان کند، بدین منظور برای این لایه، از دانه‌های هیدرو ژلی^۲ استفاده شده‌است. وقتی این دانه‌ها درون آب قرار می‌گیرند صدها برابر وزن خود آب را جذب کرده، از آب اشباع شده و آب‌گریز می‌شوند و آماده‌ی قرار گرفتن در سلول شیشه‌ای هستند. به‌منظور ثابت نگاه‌داشتن دانه‌های هیدروژلی که در آب، خنثی و شناور^۳ هستند، از یک درپوش خاص استفاده شده‌است.

این درپوش به‌گونه‌ای 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 مورد استفاده در این آزمایش در جدول ۱ ارائه شده است.

۲-۱- سیال نفوذگر

در این تحقیق از آب به‌عنوان سیال جابه‌جاشده (زمینه) استفاده شده‌است، درحالی‌که در پیل سوختی غشای پلیمری واقعی هوا به‌عنوان سیال جابه‌جاشده است. و از یک سیال، به‌عنوان سیال نفوذگر (جابه‌جاشونده) استفاده شده‌است، درحالی‌که در پیل سوختی غشای پلیمری در شرایط واقعی کارکرد، آب به‌عنوان سیال جابه‌جاشونده است. سیال نفوذگر خود باید به‌گونه‌ای ساخته شود که شرایطی مشابه با پیل سوختی واقعی را ایجاد کند، این تشابه با رعایت کردن نسبت اعداد بی‌بعد ایجاد می‌شود، اعداد بی‌بعد در این آزمایش به ترتیب عدد موئینگی^۴، عدد باند و نسبت گرانشی^۵ است. پس هدف ساخت سیالی است که، مرتبه بزرگی این اعداد را ارضا کند. و از طرفی این سیال با آب مخلوط نشدنی^۶ باشد و دو فاز مجزا از هم را ایجاد کند. عدد موئینگی در پیل سوختی واقعی بسیار کوچک و در مرتبه بزرگی 10^{-8} است، که ناشی از سرعت بسیار پایین نفوذ در لایه کاتالیزور است ($V_{inv} = 1.9 \mu m/s$). این نکته بیان شود که در آزمایش ما عدد موئینگی از مرتبه بزرگی 10^{-7} است، که یک مرتبه 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 بی‌بعد و خواص سیال در جدول ۲ ارائه شده است.

۲- تجهیزات و روش آزمایشگاهی

مطالعه حاضر از جمله روش‌های آشکارسازی مستقیم با تکنیک آشکارسازی ناهجا است. در این مطالعه از یک مدل، برای ایجاد شرایطی مشابه با لایه‌های پیل سوختی غشای پلیمری استفاده شده‌است. شکل ۱ طرحواره مدل مورد استفاده در آزمایش را نشان می‌دهد.



شکل ۱- طرحواره مدل ساخته شده 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 می‌شود، این سرعت در تعیین عدد موئینگی نقش دارد. با توجه به این‌که دبی تزریقی سیال نفوذگر در این آزمایش ۴۰ میلی‌لیتر بر ساعت است، سطح مقطع مدل مخزن باید به‌گونه‌ای در نظر گرفته شود که سرعت ایجاد شده 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 ساخته شده به‌گونه‌ای 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 بافته شده حصیری^۱ استفاده شده‌است. این لایه در ته سلول به‌طوری که مخزن را کاملاً

² Hydrogel beads
³ Neutrally buoyant
⁴ Capillary number
⁵ Viscosity ratio
⁶ Imiscible

¹ Woven glass fiber mat

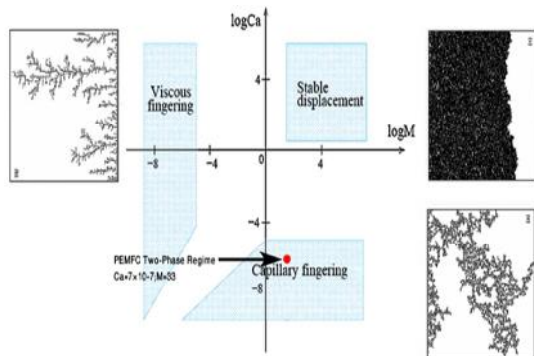
جدول ۱- پارامترهای هندسی و لایه‌های متخلخل مورد استفاده در آزمایش

مدل شده به عنوان	ضخامت	قطر حفرات (mm)	سایز ذرات (mm)	تخلخل	ساختار	لایه
لایه کاتالیزور	Δ(mm)	-	۰/۱ (الف)	۰/۷ (الف)	استوانه‌ای	الیاف شیشه‌ای حصیری
لایه انتشار گاز	γ(cm)	۴/۴۴ (ج)	۱۰	۰/۴ (ب)	کروی	دانه‌های هیدرو زلی
لایه متخلخل میکرو	۱(cm)	۱/۳۳ (ج)	۳	۰/۴ (ب)	کروی	دانه‌های شیشه‌ای

(الف) با توجه به خصوصیات الیاف حصیری بافته شده.

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

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



شکل ۳- رژیم جریان دو فاز [۱۶].

با توجه به شکل ۳ محل نقطه قرمز رنگ نوع رژیم جریان را مشخص می‌کند که در ناحیه انگشتی موئینی قرار داریم. پس رژیم جریان دوفازی، انگشتی موئینی است. در لایه انتشار گاز پیشروی سیال نفوذگر ترجیحاً از حفره‌ها کوچک به سمت حفره‌ها با گلوگاه‌های بزرگ‌تر صورت می‌گیرد، در فرآیند ایجاد انگشتی، نیروی اصلی عامل حرکت نیروی موئینی 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 متوقف شده و رشد نمی‌کنند. با توجه به شکل ۴ مشاهده می‌شود که تعداد انگشتی‌های بیرون آمده از روی لایه کاتالیزور آن قدر 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.

برای ساخت سیال نفوذگر از دو ماده با چگالی‌های متفاوت استفاده شده است، یکی سنگین‌تر و یکی سبک‌تر از آب که با ترکیب کردن آن‌ها به چگالی مورد نظر دست پیدا کنیم. در این آزمایش، از تتراکلرید کربن و روغن برای ساخت سیال استفاده شده است. پس باید درصد حجمی مواد سازنده سیال را به گونه‌ای بدست بیاوریم، که در نهایت سیال ساخته شده هم‌چگالی با آب باشد. یافتن این درصدهای حجی یکی از سخت‌ترین قسمت‌های انجام این آزمایش بوده است. برای چک کردن این‌که آیا سیال ساخته شده با چگالی آب برابر است یا نه؟ قطراتی از سیال ساخته شده را، درون ظرف آب توسط سرنگ تزریق کرده و نتیجه را دنبال کرده، اگر قطرات درون آب معلق و ساکن قرار می‌گرفتند، تقریباً می‌توان این نتیجه را گرفت که سیال ساخته شده درست ساخته شده است. در غیر این صورت اگر قطرات به بالا و یا پایین حرکت کنند سیال ساخته شده چگالی مورد نظر را ندارد و برای انجام آزمایش مناسب نیست. همچنین در انتها علاوه بر چک کردن چگالی به روش چشمی چگالی سیال را با استفاده از پیکنومتر^۱ با دقت بالا محاسبه می‌کنیم. در نهایت با اندکی تغییر در مقادیر نظری موفق به ساخت سیال مورد نظر شدیم. از آنجاکه هر دو مواد سازنده سیال بی‌رنگ هستند برای نمایان شدن سیال نفوذگر در محیط آشکارسازی، این مخلوط را با یک رنگ^۲ خاص رنگ دار شده است.

در این تحقیق ۸۰ میلی‌لیتر سیال نفوذگر با دبی ۴۰ میلی‌لیتر 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 شده است. لایه‌های مورد نظر را همان‌طور که در طرحواره نشان داده شده است روی هم قرار داده و پس‌از آن سلول را از آب پر کرده و آزمایش را آغاز و شروع به عکس برداری از این پدیده می‌کنیم.

۳- نتایج و بحث

این قسمت به بررسی و تحلیل نتایج حاصل از آزمایش‌ها پرداخته شده است. 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 ارائه شده توسط لنورمند و همکارانش [۱۶] رژیم جریان سیال را مشخص می‌کنیم.

^۱ Pycnometer

^۲ Dye

جدول ۲- خواص سیال، شرایط آزمایشگاهی، شرایط کارکرد پیل واقعی، اعداد بی بعد

پارامترها	آزمایش در دمای ۲۵(C°)	پیل سوختی واقعی در دمای ۷۰(C°)
سیال نفوذگر خیس نشونده	مخلوط رنگی روغن و تتراکلرید کربن	آب مایع
چگالی	۱۰۲۷ (kg/m ³)	۹۷۷/۸ (kg/m ³)
لزجت دینامیکی	۰/۰۳۳ ^(الف) (pa.s)	۰/۰۰۰۴۰۴ (pa.s)
سیال جابه جاشده(زمینه) خیس نشونده	آب مایع	هوای اشباع
چگالی	۱۰۲۵ (kg/m ³)	۰/۹۱۴ (kg/m ³)
لزجت دینامیکی	۰/۰۰۱ (pa.s)	۰/۰۰۰۰۱۷۶ (pa.s)
خصوصیات بین سطحی		
کشش سطحی	۰/۰۵۶ ^(ب) (N/m)	۰/۰۶۴ (N/m)
زاویه تماس	۱۸۰ ^(ب)	۱۲۰ ^(ب)
سرعت نفوذ	۱/۴۲ (μm/s)	۱/۹ (μm/s)
قطر متوسط حفره	۴/۴۴ (mm)	۲۰ (μm)
پارامترهای بدون بعد		
عدد موئینگی (Ca=μ _{inv} V _{inv} /σcosθ)	۸/۳۶×۱۰ ^{-۷}	۲/۴×۱۰ ^{-۸}
نسبت لزجت (M=μ _{inv} /μ _{def})	۳۳	۲۳
عدد باند (Bo=Δpgd _p ² /σcosθ)	۳/۴۵×۱۰ ^{-۳(د)}	۵/۹×۱۰ ^{-۵}

(الف) لزجت محاسبه شده توسط دستگاه (BROOKFIELD DV-E/LV) در آزمایشگاه سرامیک و مواد دانشگاه صنعتی شاهرود.
 (ب) محاسبه شده از رابطه $\sigma = \sigma_{inv} + \sigma_{def} - 2\theta\sqrt{\sigma_{inv}\sigma_{def}}$ با فرض $\theta = 0.5$ [۱۷]. کشش سطحی آب در دمای ۲۵ °C برابر با $\sigma_{def} = 0.072(N/m)$ کشش سطحی سیال نفوذگر نسبت به هوا برابر است با $\sigma_{inv} = 0.034(N/m)$ اندازه گیری شده در آزمایشگاه آشکارسازی، دانشگاه صنعتی شاهرود.
 (ج) این مقدار بر اساس فیلم نازکی از آب که بین هیدرو ژل و سیال خیس نشونده وجود دارد فرض شده است.
 (د) محاسبه شده با فرض این که اختلاف چگالی $(\Delta\rho = 1kg/m^3)$ باشد.

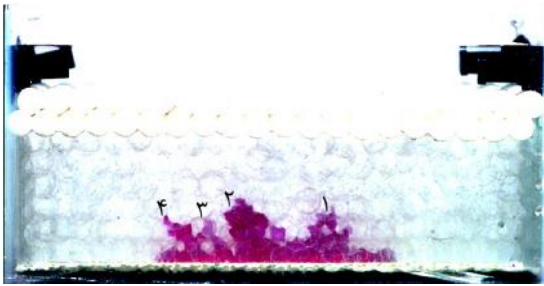
نمی شوند، و از تجزیه و تحلیل آن ها صرف نظر می کنیم. این انگشتی ها باعث افزایش تراوش آب و باعث کاهش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می شوند.

(ب) توقف رشد در مرحله ایجاد انگشتی ثانویه:
 انگشتی های ثانویه پس از گذشت مدت زمانی از حضورشان در لایه انتشار گاز، متوقف شده 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 ۲۵ میلی لیتر تزریق متوقف می شود. و در نهایت انگشتی های شماره ۴ پس از ۵۵ میلی لیتر تزریق متوقف و تا انتهای آزمایش تا ۸۰ میلی لیتر تزریق ساختار این انگشتی ها ثابت و بدون حرکت باقی می ماند. شکل ۴ این رفتار انگشتی ها را نشان می دهد. انگشتی متوقف شده 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.

انگشتی های که تقریباً به ارتفاع بیشتر از یک سانتی متر از روی لایه کاتالیزور بالآمده اند همان انگشتی های ثانویه می باشند. این انگشتی ها در شکل ۴ شماره گذاری شده اند. انگشتی ها در تمامی جهات شروع به رشد و حرکت می کنند، حتی در جهت های وارونه به سمت پایین [۱۶]. نتایج آزمایش های تجربی ما نشان می دهد که پیشروی بعضی از انگشتی های ایجاد شده در جهت وارونه (رو به پایین) صورت می گیرد که خود بیانگر یکی از ویژگی های رژیم انگشتی موئینگی است. یکی دیگر از ویژگی های رژیم انگشتی موئینگی انتخاب کردن مسیرهایی با حفره های بزرگ تر توسط سیال نفوذگر است که این پدیده در این پژوهش مشاهده شده است. مشاهدات آزمایشگاهی نشان داد که سیال نفوذگر از طریق درخت موئینگی همگرا انتقال پیدا نمی کند و توزیع سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز، مشابه با تصاویر در شکل ۴ است.

۳-۲- مکانیزم انگشت زنی

(الف) توقف رشد، در مرحله ظهور و پیدایش انگشتی ها:
 سیال نفوذگر پس از عبور از لایه کاتالیزور وارد لایه انتشار گاز می شود. در ابتدای حضور سیال نفوذگر به صورت قطرات بسیار کوچک در لایه انتشار گاز حضور پیدا می کند. اما تعداد بسیار زیادی از این انگشتی ها در همان مرحله اولیه پیدایش در لایه انتشار گاز متوقف شده. تعداد بسیار زیادی از محل ها در روی لایه کاتالیزور وجود دارد که سیال تزریق شده از آن محل ها وارد لایه انتشار گاز می شوند، در این آزمایش تعداد این محل ها آن قدر زیاد است که روی سطح لایه کاتالیزور به طور کامل پوشانده می شود و مانند فیلمی از سیال نفوذگر روی لایه کاتالیزور قرار می گیرد. اما تعداد بسیار زیادی از این انگشتی ها در همان مرحله اول انگشت زنی متوقف شده و به انگشتی های ثانویه تبدیل



(و) ۲۰ میلی لیتر تزریق



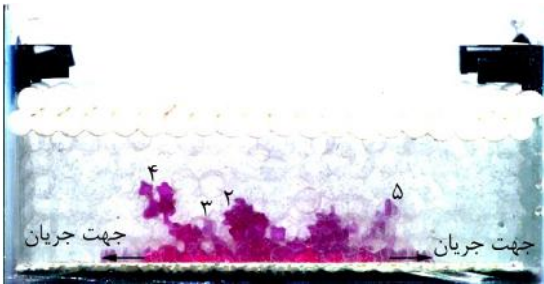
(الف) ۵ میلی لیتر تزریق



(ز) ۳۵ میلی لیتر تزریق



(ب) ۱۰ میلی لیتر تزریق



(ح) ۴۰ میلی لیتر تزریق



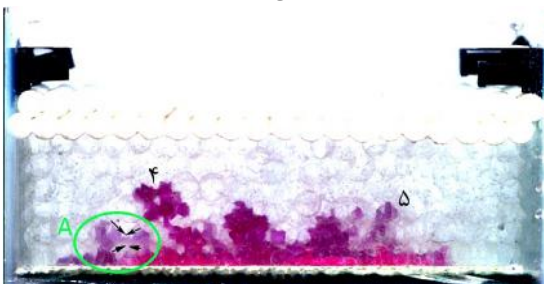
(ج) ۱۵ میلی لیتر تزریق



(ط) ۴۵ میلی لیتر تزریق



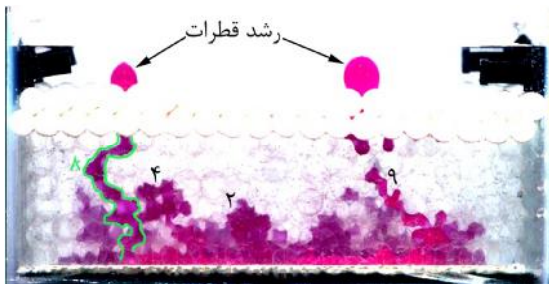
(د) ۲۰ میلی لیتر تزریق



(ی) ۵۰ میلی لیتر تزریق



(ه) ۲۵ میلی لیتر تزریق



(ع) ۸۰ میلی لیتر تزریق

شکل ۴- تصاویر گرفته شده از رشد سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز مدل مشابه، سیر رشد انگشتی‌ها از زمان شروع تا پایان آزمایش را نشان می‌دهد.

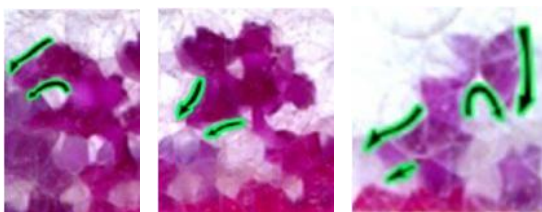
(ج) پیوند انگشتی‌ها: پیوند انگشتی‌ها وقتی اتفاق می‌افتد که دو

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 مشاهده شده است. اما به دلیل این‌که 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 ایجاد شده 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 موتینگ است [۱۶].

دو شاخه 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 در یکی از شاخه‌های انگشتی شماره ۸ جریان وارونه مشاهده شده است. شکل ۵ این جریان‌های وارونه را به ترتیب بیان شده در بالا نشان می‌دهد.

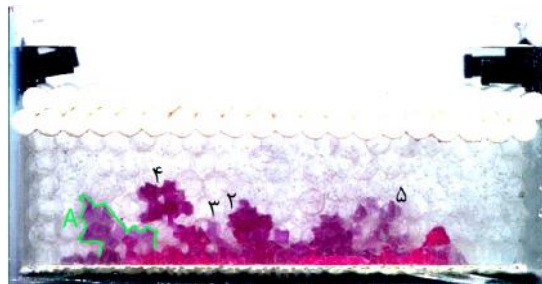


(الف) (ب) (ج)

شکل ۵- جریان وارونه در لایه انتشار گاز مدل مشابه (الف) انگشتی ۱ (ب) انگشتی ۴ (ج) انگشتی ۸

(ه) تقسیم شدن جریان: انگشتی‌های ثانویه که در حال رشد در

لایه انتشار گاز هستند ممکن است در بعضی از آن‌ها از قسمت



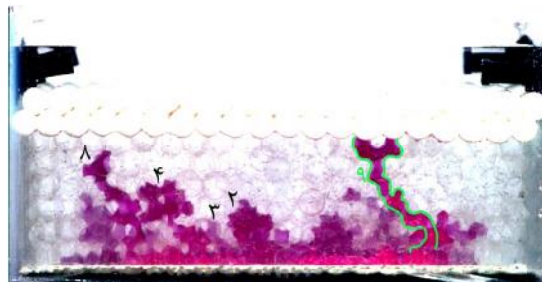
(ک) ۵۵ میلی لیتر تزریق



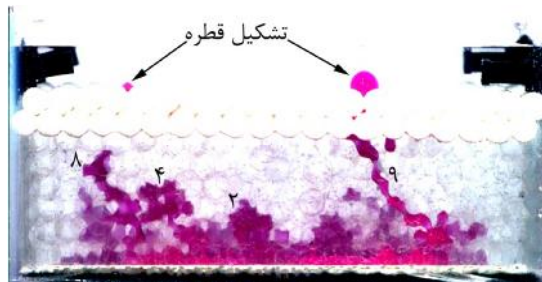
(ل) ۶۰ میلی لیتر تزریق



(م) ۶۵ میلی لیتر تزریق



(ن) ۷۰ میلی لیتر تزریق



(س) ۷۵ میلی لیتر تزریق

میانی به عنوان 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 میلی لیتر تزریق



(ب) ۵۰ میلی لیتر تزریق

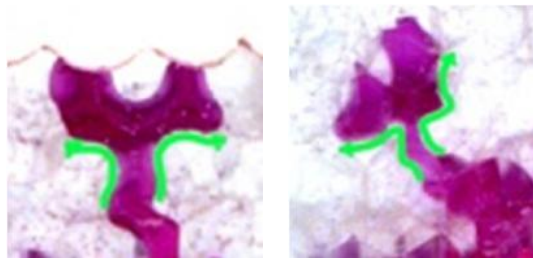


(ج) ۸۰ میلی لیتر تزریق

شکل ۷ - تصاویر گرفته شده از رشد سیال نفوذگر در مدل مشابه لایه انتشار گاز همراه با لایه متخلخل میکرو

همان طور که مشاهده می کنید با توجه به شکل ۷ انگشتی های سیال نفوذگر در محل های خاصی از روی سطح لایه متخلخل میکرو تشکیل می شوند. این انگشتی های باگذشت زمان و تزریق سیال رشد کرده و به انگشتی های بزرگ تر تبدیل می شوند. می توان گفت تمام انگشتی هایی که وارد لایه انتشار گاز شده اند از سطح مقطع دایره ای به قطر ۱۰ سانتی متر در مرز مشترک لایه انتشار گاز و لایه متخلخل میکرو ایجاد شده اند. که بیانگر این موضوع است که انگشتی ها کمترین میزان پراکندگی و گستردگی را در لایه کاتالیزور و لایه متخلخل میکرو داشته اند و تمام انگشتی ها تقریباً به طور مستقیم وارد لایه انتشار گازی می شوند. مکانیزم انگشت زنی در این آزمایش مشابه آزمایش قبل است. و در این آزمایش نیز توقف انگشتی ها، جریان وارونه، پیوند

سرخاخی 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 می دهد. در هر دو انگشتی جریان به دو شاخه تقسیم شده است.



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

(و) رسیدن انگشتی ها به کانال گاز: در بین انگشتی های ثانویه بعضی از انگشتی ها هستند که خود را به کانال گاز می رسانند، که به آن ها انگشتی های مؤثر گفته می شود. این انگشتی های مؤثر هستند، که نقش اصلی در انتقال آب از لایه انتشار گاز به کانال گاز را بر عهده دارند و هرچه تعداد آن ها بیشتر باشد تأثیر مثبت بر عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری دارند. همان طور که در شکل ۴ نشان داده شده است، انگشتی های شماره ۸ و ۹ به کانال گاز رسیده اند. مسیر حرکت انگشتی شماره ۹ در شکل ۴ (ز) و انگشتی شماره ۸ در شکل ۴ (ع) نشان داده شده است. انگشتی که خود را به کانال گاز رسانده است، تا انتهای آزمایش ساختار و شکل مسیری ثابت باقی می ماند. ممکن است در مرحله ای از آزمایش، سیال نفوذگر پیوستگی خود در مسیر را از دست دهد و کاملاً از هم جدا شود (این حالت معمولاً در لحظه برخورد اولیه نوک^۱ 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 می شود به گونه ای که فیلمی از سیال نفوذگر تقریباً به ضخامت یک سانتی متر روی سطح قرار می گیرد. در این حالت سیال نفوذگر در جهت عرضی روی لایه کاتالیزور به سمت دیواره ها حرکت می کند. شکل ۴ (ح و ط) جهت جریان های عرضی بر روی مرز مشترک لایه کاتالیزور و لایه انتشار گاز را نشان می دهد. حرکت عرضی سیال نفوذگر روی لایه کاتالیزور باعث افزایش تراوش آب در لایه انتشار گاز می شود و مانع از حرکت مستقیم و روبه بالا انگشتی ها می شود. با توجه به این موارد جریان عرضی بر روی لایه 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

^۱ Tip

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

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 ارائه شده توسط لنورمند دارد. از ویژگی‌های اصلی ارائه شده برای رژیم جریان انگشتی مویبینگی، وجود انگشتی‌های وارونه است که این ویژگی در هر دو آزمایش ما نیز مشاهده شده است، که صحتی بر مدل ساخته شده و نتایج بدست آمده از آن است. با مقایسه 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 میکرو کاهش یافته است.

همان‌طور که بیان شد در آزمایش اول فیلمی از سیال نفوذگر روی سطح لایه کاتالیزور قرار می‌گیرد. 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، به گونه‌ای که این محل‌ها کاملاً از هم جدا و قابل تشخیص هستند. با مقایسه هر دو آزمایش می‌توان این نتیجه را گرفت که لایه متخلخل میکرو مانع تشکیل جریان‌های عرضی بر روی لایه کاتالیزور می‌شود 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 این‌که ضخامت کل در هر دو آزمایش ثابت و برابر ۷ سانتی‌متر است) کاهش پیدا کرده است. نتیجه‌ای که از این مقایسه گرفته می‌شود این است که افزودن لایه متخلخل میکرو باعث کاهش تراوش آب در لایه انتشار گاز و افزایش عملکرد پیل سوختی غشای پلیمری می‌شود.

۴- نتیجه‌گیری

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) به عنوان سیال نفوذگر در لایه انتشار گاز مدل ساخته شده استفاده شد. با کنترل اعداد بی‌بعد مویبینگی، باند و نسبت گرانروی رژیم جریان دو فاز در این مطالعه، رژیم جریان انگشتی مویبینگی 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 مویبینگی است. جریان وارونه که خود از نشانه‌های رژیم انگشتی مویبینگی 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

۵- نمادها

T	دما (°C)
V_{inv}	سرعت نفوذ (m/s)
ϵ	تخلخل
d	سایز ذرات (mm)
d_p	قطر حفره
ρ	چگالی (Kg/m ³)
μ_{inv}	گرانروی دینامیکی سیال نفوذگر (Pa.s)
μ_{def}	گرانروی دینامیکی زمینه (Pa.s)
σ	کشش سطحی (N/m)
θ	زاویه تماس
Ca	عدد مویبینگی
Bo	عدد باند
M	نسبت گرانروی

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 värme-och kraftteknik, Tekniska högskolan i 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.-Y., 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.