

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO

POSGRADO EN INGENIERIA

AREA ENERGIA

PROPUESTA DE PROYECTO DE INVESTIGACION

PARA TESIS DOCTORAL

Tema:

*"DISEÑO Y SIMULACION DE UNA CELDA DE COMBUSTIBLE TIPO
PEM MEDIANTE TECNICAS DE CFD"*

PRESENTA:

Ing. Juan Manuel Sierra Grajeda

Director de Tesis: Dr. Sebastian Joseph Pathiyamattom

4 de Diciembre del 2006

1. INTRODUCCIÓN

Los combustibles fósiles como el carbón, el petróleo y el gas natural son las principales fuentes de energía de las cuales dependemos en gran medida. Sin embargo, en los últimos años se ha visto de una manera más clara el agotamiento de estos recursos, principalmente el petróleo. Así también es evidente que la producción, transporte y consumo de estos combustibles ha provocado fuertes problemas ambientales y políticos en muchos países durante la última década. Por ello ha surgido la necesidad de reemplazar nuestra economía actual de combustibles fósiles por una economía de un combustible limpio; tal como lo es *"el hidrógeno"*, el cual además de ser mucho más eficiente que otros energéticos, de ser usado en las celdas de combustible reduciría grandemente los problemas de contaminación que se tienen en la actualidad.

Las celdas de combustible *"un componente dominante en la economía del hidrógeno"* generan electricidad a partir de una reacción electroquímica, combinan hidrógeno y oxígeno sin ninguna combustión. Una de sus características más relevantes es que no se agotan ni requieren carga y producirán energía en forma de electricidad y calor mientras se le provea combustible. Tales características la han convertido en una de las mejores alternativas para reemplazar a los motores de combustión interna en el sector transporte y en algunas aplicaciones portátiles.

Aún existen desafíos claves en la transición hacia una economía de hidrógeno. La necesidad de una infraestructura para la producción y distribución necesita ser estabilizada, así como el desarrollo de sistemas económicos para el almacenamiento de hidrógeno. De igual manera las celdas de combustible necesitan tener una larga vida útil, ser económicas y de gran potencia como los actuales motores de combustión interna.

Las nuevas mejoras y beneficios costo-efectivos de los diseños actuales de celdas de combustible requieren de avances rápidos, incluyendo los modelos computacionales ya que el acercamiento experimental de tipo prueba y error es de cierta forma lento y costoso. El desarrollo de nuevos modelos de celdas de combustible requiere del esfuerzo de diversos grupos de científicos e ingenieros para entender los aspectos físicos y químicos involucrados en su funcionamiento; el desarrollo de algoritmos para la modelación, la optimización de diseños y lo experimental para validar resultados.

Hoy en día los métodos computacionales que existen para el modelado de las celdas de combustible ha mejorado lo suficiente como para poder predecir y estudiar todos los procesos y fenómenos que ocurren en estos dispositivos. Su gran precisión junto con los modelos matemáticos está impulsando rápidamente al desarrollo de nuevos diseños de celdas.

2. PROBLEMÁTICA ACTUAL EN EL DESARROLLO DE LAS CELDAS DE COMBUSTIBLE

Los principales obstáculos para el desarrollo y comercialización de las celdas de combustible son la falta de infraestructura y sus costos de producción. Sin embargo, para superar esto es necesario el desarrollo de nuevas técnicas de fabricación y la optimización de sus componentes, lo cual se logrará sólo hasta que se tenga un conocimiento claro de los fundamentos físicos y químicos de todos los procesos involucrados en su funcionamiento.

Algunos de los elementos clave que incluyen estos procesos, son: el transporte de masa, de especies y de energía en medios porosos, reacciones electroquímicas en las superficies de los electrodos, transporte de agua en la membrana, formación y transporte de agua líquida en el cátodo. En ellos se manejan muchas variables que influyen directamente en el desempeño de la PEMFC "*Proton Exchange Membrana Fuel Cell*" (Fig. 1) y sus limitaciones se ven reflejadas en la densidad de corriente que puede ser obtenida; siendo este último parámetro uno de los de mayor importancia para la selección de la celda o método de construcción, el cual puede ser utilizado comercialmente.

Muchos estudios han sido realizados para conocer la influencia de estas variables pero se ha hecho de una manera muy concreta, ya sea por la falta de infraestructura o la falta de recursos necesarios para la evaluación de estos parámetros.

En la última década se han elaborado una gran variedad de modelos de la celda de combustible tipo PEM, desde modelos uni y bi-dimensionales hasta los modelos bifásicos en 3D [1] - [8]. Pero a pesar del rápido progreso en la elaboración de estos modelos no ha habido un gran avance y eficiente en cuanto a la validación con los resultados reales; debido principalmente a la falta de datos experimentales detallados para la distribución local de especies y la densidad de corriente en la celda.

Sin embargo, hay que saber que la mayor parte de las validaciones de estos modelos han sido realizadas enfocándose al funcionamiento general de la celda, mediante las curvas I-V. Por lo que muchas publicaciones han mostrado buena aproximación entre las curvas simuladas y las obtenidas experimentalmente [17] - [19].

Todo esto ha sido de gran ayuda para entender el desempeño de la celda pero no es suficiente para validar un modelo computacional, particularmente para los modelos 3D puesto que una gran cantidad de parámetros y procesos se encuentran involucrados en su funcionamiento.

3. ANTECEDENTES

Modelos Uni-dimensionales

Dentro de los primeros trabajos realizados para llevar a cabo la modelación de la celda PEM y que sirvieron de base para los modelos 2D y 3D podemos encontrar los siguientes.

El trabajo de Springer et al. [3] el cual fue uno de los primeros en donde se reportó un modelo completo en estado estacionario, uni-dimensional e isotérmico de una celda de combustible tipo PEM utilizando las características de la membrana de Nafion 117. El modelo fue elaborado en dirección perpendicular al ensamble membrana/electrodos, siendo similar al modelo de los difusores de gas de Bernardi y Verbrugge [10]. Springer et al. consideraron un modelo uni-dimensional en el cual los canales de flujo formaban parte del modelo. También, emplearon coeficientes de difusión de agua, coeficientes de arrastre osmótico y conductividades en la membrana, las cuales fueron medidas experimentalmente en función del contenido de agua. Además aplicaron condiciones de equilibrio entre las interfaces membrana/electrodo y con este modelo se podía predecir un incremento en la resistencia de la membrana con un aumento en la densidad de corriente de la celda, mostrando así las ventajas de las membranas delgadas. Su trabajo dio las bases para el modelado numérico de este electrolito.

Bernardi y Verbrugge [11] también desarrollaron un modelo matemático completo uni-dimensional de una celda. Su modelo se diseñó en dirección perpendicular al EME y se tomaron en cuenta los efectos de transporte de masa (gases reactantes y vapor de agua) en los difusores de gas. Así también, la membrana se consideró hidratada, utilizando las constantes de transporte. Sus predicciones fueron comparadas con los datos experimentales.

Modelos Bi-dimensionales

Uno de los principales avances para poder realizar simulaciones de las celdas de combustible fue el desarrollo de modelos en 2-D. Y en base a los primeros modelos, los investigadores tuvieron que seguir con las ecuaciones fundamentales y las características físicas de los componentes para mejorar los modelos y hacerlos más reales. Se utilizaron diferentes técnicas, incluyendo las de CFD para llevar a cabo la simulación en 2-D [12] - [17]. Estos modelos consideraban principalmente las dimensiones en dirección a los canales de flujo y en dirección perpendicular a la membrana.

Fuller y Newmann [12] fueron los que desarrollaron un modelo bi-dimensional de un ensamble membrana/electrodos para estudiar la distribución de agua, distribución térmica y consumo de combustible en la celda. Así mismo, estudiaron la distribución de temperatura e hidratación de la membrana a lo largo de los canales de flujo. Su modelo incluía el transporte de agua en los difusores y consideraba un flujo cerrado en los canales del plato bipolar. Demostraron que el equilibrio de absorción del agua entre la fase gaseosa y el electrolito dependía de la temperatura, de la distribución de agua y de la distribución de calor. Concluyeron que la remoción de calor es un parámetro crítico para el funcionamiento de celda.

Nguyen y White [13] desarrollaron un modelo para el control de agua y calor en la PEMFC y también estudiaron la eficiencia de diferentes diseños para la humidificación. Ellos desarrollaron cuatro modelos diferentes de humidificación para prevenir la deshidratación de la membrana en el lado del ánodo. Su modelo bi-dimensional de transferencia de calor y transporte de agua consideraba variaciones en la temperatura y condiciones de hidratación de la membrana a lo largo de los canales de flujo. Sin embargo, no incluyeron los difusores de gas para el transporte de agua. Los resultados de su modelo mostraron que a altas densidades de corriente las pérdidas por resistencia óhmica en la membrana justificaban las pérdidas de voltaje en la celda y que la difusión de agua desde el cátodo a la membrana no era suficiente como para mantenerla hidratada. Propusieron también, que para reducir las pérdidas óhmicas el hidrógeno debe estar humidificado y lo mismo para cuando se use aire en lugar de oxígeno.

West y Fuller [14] realizaron un análisis bi-dimensional para estudiar el efecto del espesor de los difusores y el tamaño de los bordes en los canales de flujo en el funcionamiento de la celda, los cuales restringen el acceso del combustible y oxidante a las capa catalizadoras. Ellos demostraron que el desempeño de la celda se ve afectado por el bloqueo parcial de los poros de la capa catalizadora. Sin embargo, hay que tener en cuenta que en su trabajo sólo se consideró el potencial de media celda para una corriente determinada.

Yi y Nguyen [15] modificaron estos modelos [13] para incluir la fase líquida y gaseosa en los canales de flujo del ánodo y del cátodo. Incluyeron el transporte de agua convectivo por medio de gradientes de presión a través de la membrana, la distribución de temperatura en la parte sólida de los canales, la remoción de calor por convección natural y el intercambio de calor en sentido del flujo y a contra flujo. De nuevo sus resultados revelaron que el desempeño de la celda puede ser mejorado por medio de la humidificación del gas en el ánodo y que la remoción de calor es necesaria para prevenir las altas temperaturas que provocan una deshidratación local en la membrana.

Posteriormente, Yi y Nguyen [16] analizaron la hidrodinámica bi-dimensional en el cátodo de la celda, utilizando un distribuidor de gas interdigitado. Utilizaron un modelo de transporte multi-componente en estado estacionario y su modelo mostraba los patrones de flujo bi-dimensionales en la sección transversal y la distribución de los gases en el electrodo poroso. Su modelo fue utilizado para predecir la densidad de corriente generada en la interfase membrana/electrodo en función de diferentes condiciones de operación y parámetros de diseño. Sus resultados mostraron que con una condición de flujo forzado creada por el uso del distribuidor interdigitado el factor de difusión jugaba un papel muy importante para el transporte de oxígeno hacia la superficie catalizadora, aun con difusores de gas muy delgados. Sin embargo, en este modelo no se tomó con mucha importancia el ancho de los canales y las secciones bloqueadas del difusor de gas. Este modelo provee una predicción razonable de la distribución axial de agua; pero sobreestima la no-uniformidad de distribución de corriente a la entrada de la celda.

Kazim et al. [17] desarrollaron un modelo matemático bi-dimensional de la PEMFC para ver la superioridad del distribuidor de flujo interdigitado sobre los diseños convencionales y lo comparó con trabajos previamente realizados por [15]. Sin embargo, su modelo sólo fue para el lado del cátodo, despreciando así el sobrepotencial local del ánodo y el transporte de agua a través de la membrana (un efecto muy importante). Sus resultados mostraron que la densidad de corriente en la celda para un distribuidor de flujo interdigitado es cerca de tres veces más que la de una celda de combustible con un distribuidor convencional. Así también, mostró que esta configuración puede duplicar la densidad de potencia máxima de la celda. Sus resultados no fueron comparables con los de [16] puesto que estos últimos despreciaron el transporte de agua.

Kulikovsky et al. [18] hicieron una simulación bi-dimensional en la parte del cátodo de la PEMFC y también estudiaron la influencia de los efectos 2D en el desempeño de este electrodo. Su modelo se basó en las ecuaciones de continuidad para la concentración de los gases y la ecuación de Poisson para los potenciales de la membrana y la fase sólida (carbón), acoplada a la relación de Tafel para la cinética de la reacción. Sus resultados mostraron que para una conductividad baja en el carbón, se formaba una "zona inactiva" en la capa activa frente a los canales y donde además la velocidad de reacción es muy lenta. Y concluyeron que el catalizador puede ser removido de esta zona sin pérdidas significantes en el desempeño de la celda. En resumen, estos resultados demostraron la posibilidad de reducir considerablemente la cantidad de catalizador en el electrodo.

Las técnicas de CFD han sido utilizadas en algunos modelos 2D de la PEMFC y en general esta técnica, maneja el concepto de las ecuaciones de Navier-Stokes, la ecuación

de transporte de especies y la de energía, aplicadas a las reacciones electroquímicas que ocurren en la celda. Aunque los modelos 2D dan predicciones más reales y mejores sobre el entendimiento de la PEMFC que los de 1D, se desprecian los efectos de longitud y ancho de los canales de flujo. Así también, con los modelos en 2D no se pueden simular las celdas experimentales que utilizan configuraciones de canales complejas. Además de que tampoco se pueden validar adecuadamente con los resultados experimentales. Esto nos lleva a tener ciertas limitaciones cuando usamos estos modelos.

Modelos Tri-dimensionales

Recientemente se han desarrollado modelos 3D de la PEMFC usando las técnicas de CFD. Este código nos permite predecir: la densidad de corriente local, la distribución de agua en los difusores, la distribución de temperatura y muchas variables electroquímicas dentro de la celda. Esta información ha servido para el entendimiento de todos los aspectos que involucran la físico-química de la celda de combustible PEM. Esta técnica de CFD nos permite utilizar diferentes configuraciones de flujo en los platos bipolares; ayudando así, a la creación de nuevos diseños de configuraciones de canales.

Por ejemplo; Dutta et al. [19] desarrollaron el primer modelo tri-dimensional de un canal de la PEMFC usando un software comercial CFD y sus propias sub-rutinas, las cuales modificaron las ecuaciones electroquímicas hechas por Fuller y Newman [12] y Yi y Nguyen [15]. Dutta et al. elaboraron un modelo numérico monofásico e isotérmico que incluía una solución completa 3D de las ecuaciones de Navier-Stokes para el flujo en un canal. El procedimiento de solución para este flujo fue basado en el algoritmo SIMPLE. Y este trabajo permitió considerar el efecto del ancho de canal en la distribución de velocidad. Después, demostraron que bajo ciertas condiciones, el transporte de masa hacia la membrana era dominado por la presión y los gradientes de concentración, en lugar de la pura difusión. También, su modelo incluyó el área oculta del difusor de los bordes del plato bipolar.

Shimpalee et al. y Dutta et al. [20] adaptaron sus modelos anteriores de CFD a un diseño real de una celda PEM con un área activa de 10 cm^{-2} . Sus predicciones fueron comparadas con datos experimentales y fue el primer modelo completo de una PEMFC que utilizó los beneficios de las técnicas de CFD. La geometría del modelo consistía de 20 canales arreglados en forma de serpentin (ánodo y cátodo), utilizaba un ensamble membrana/electrodos e incluía los sobrepotenciales para la reacción del hidrógeno y del oxígeno. También, estudiaron el efecto de la permeabilidad de los difusores de gas en el transporte de masa y mostraron el efecto de la humedad sobre la densidad de corriente de la celda.

Um y Yang [21] también aplicaron las técnicas de CFD para crear un modelo 3D de una PEMFC. Su modelo incluía canales en el ánodo y cátodo, los difusores de gas, las capas catalizadoras y la membrana. Sin embargo, su modelo de celda isotérmico y monofásico sólo utilizó canales rectos con diferente configuración y alrededor de 1.8 cm^2 de área activa. Mostraron que la fuerza de convección creada por el campo de flujo interdigitado mejoraba el transporte de masa de oxígeno y la eliminación de agua en la zona de reacción. De esta manera, mejoraba el desempeño de la celda en comparación con las configuraciones convencionales.

Posteriormente Zhou y Liu [22] mostraron su modelo 3D para una PEMFC, también desarrollado por medio de las técnicas de CFD para acoplar las ecuaciones gobernantes de transporte de masa y las ecuaciones cinéticas. Su modelo incluía la ecuación de la energía para monitorear la distribución de temperatura en el interior de la celda. Sin embargo, su modelo fue simulado para un canal recto con aproximadamente 1.6 cm^2 de área activa. Este trabajo confirmó que los modelos 3D son necesarios para el diseño y desarrollo de celdas de combustible.

Shimpalee et al. [23] utilizaron su modelo anterior de canales rectos [20] de 10 cm^2 de área activa con 20 canales en forma de serpentin para revelar que la evaporación y condensación de agua producida por el cambio de temperatura en la membrana, alteraba la densidad de corriente local. De nuevo, su modelo no incluía la tensión de superficie y el ángulo de contacto de las gotas de agua. De esta manera no existía el efecto hidrofóbico e hidrofílico en ambos lados del EME. En particular, la temperatura que se alcanzaba en el interior de la celda provocaba la deshidratación de la membrana y disminuía la velocidad de reacción, resultando de esta manera en una disminución del desempeño de la celda.

Las técnicas de Dinámica de Fluidos Computacional (CFD) han sido usadas en la investigación para ayudar exitosamente al desarrollo de modelos de celdas de combustible PEM. Facilitando la elaboración de geometrías complejas para las monoceldas PEM con diferentes configuraciones de canales, las cuales han sido simuladas utilizando códigos que asocian aspectos electroquímicos a las ecuaciones de flujo de fluidos, como las ecuaciones de Navier-Stokes, las de transporte de especies y las de energía. Estas predicciones han sido de gran utilidad para el entendimiento y optimización de los diseños de PEMFC's. El siguiente paso para el desarrollo de modelos de celdas de combustible PEM podría ser la simulación en estado transitorio con cargas variables, incluyendo los stacks, la elaboración de diseños alternativos de la celda, configuraciones de canales y componentes mejorados.

4. JUSTIFICACIÓN

En los últimos años se han elaborado una gran variedad de modelos matemáticos complejos para simular los procesos que se llevan a cabo en la celda de combustible pero la mayoría de ellos sólo se ha enfocado a problemas muy específicos de los componentes y de sus propios diseños.

Los estudios más detallados sobre la influencia de la presión, temperatura, concentración y humedad en la celda se han limitado a modelos 3D de un solo canal [24, 25]. La importancia de hacerlo para un modelo de la celda completa nos llevaría a tener resultados más reales y cercanos a lo experimental. Lo cual es necesario para el diseño y desarrollo de estos sistemas.

El primer estudio que se realizará en este proyecto incluye un análisis de CFD de las variables mencionadas anteriormente para la celda experimental *Electrochem (EFC05-01SP)*. Con lo que se conocerá el impacto que tiene la variación de estos parámetros en su desempeño, ya que regularmente se trabaja a las mismas condiciones de operación cuando se realizan las pruebas de los ensambles. Los resultados del modelo servirán como referencia para la elaboración de otros diseños y pruebas experimentales.

El análisis dimensional en los canales del plato bipolar es de gran importancia para la elaboración de nuevas configuraciones, los trabajos reportados sobre este tema han sido escasos y los que se han realizado sólo se enfocaron al diseño de serpentín simple [26, 27]. Este trabajo se extenderá al diseño en espiral y al interdigitado, además de la modificación de curvatura en los canales.

Los estudios sobre las configuraciones de canales han sido variados y para muchos diseños, pero generalmente han sido para configuraciones sencillas [6, 7, 28]. En este proyecto se realizarán simulaciones para configuraciones complejas que incluyen el doble o triple de canales, basadas en los diseños básicos. Además, se realizará un análisis sobre el impacto que tiene el reemplazo de estos canales por una malla metálica, con lo que se pretende mejorar la difusión de gases sobre las capas catalíticas y favorecer la conductividad eléctrica en los materiales. También se desarrollará un diseño tubular de una celda PEM, para evaluar su desempeño y compararlo con los diseños actuales. Se espera que la geometría favorezca la distribución de los reactantes e incremente la eficiencia de la celda. Estos diseños aun no han sido estudiados detalladamente para la tipo PEM.

El estudio paramétrico en los componentes de la celda será una parte complementaria de este proyecto. El análisis para el tipo de material en los platos bipolares estará enfocado

a la transferencia de calor (conducción y convección) y a la conductividad eléctrica. Este tipo de estudios se ha limitado a estudios 1D y a estudios experimentales [29, 30, 31]. Para los difusores de gas el análisis será realizado en las configuraciones complejas y para complementar los resultados obtenidos anteriormente [32] los cuales fueron realizados para un sólo compartimiento y para el difusor del ánodo. La propuesta que se tiene para los electrodos también es nueva y se realizará un análisis para determinar la cantidad de catalizador que debe utilizarse para cada diseño, además de saber como influye en la densidad de corriente de la celda. El estudio sobre la membrana será realizado para todas las configuraciones de canales y las variantes del difusor.

La construcción de las celdas experimentales basadas en los modelos computacionales es de vital importancia para la validación de los resultados. Esta última parte del proyecto será para demostrar las ventajas de la modelación y simulación completa en 3D de la celda de combustible tipo PEM con las técnicas de CFD.

5. ASPECTOS TEÓRICOS

Importancia de los Fenómenos de Transporte en la PEMFC

Dentro de la celda de combustible tipo PEM se llevan a cabo diferentes procesos que influyen considerablemente en su desempeño y dos de estos son: el transporte de masa y la transferencia de calor, acoplados a las reacciones electroquímicas. Estos procesos a su vez, tienen un fuerte impacto en dos aspectos operacionales de la celda: a) La distribución de agua y de calor, y b) las limitaciones de transporte de masa [29, 33]. La eficiencia con que se llevan a cabo estos procesos depende directamente de los componentes que la conforman y de las condiciones de operación en las que trabaja la celda.

La distribución adecuada de agua en el interior de la celda garantiza que la membrana quede completamente hidratada y mantenga una buena conductividad iónica, lo cual se ve reflejado en la densidad de corriente que puede ser obtenida; por otro lado, una mala distribución de agua provoca en el lado del cátodo la obstrucción de poros del difusor por medio de gotas de agua y estas traen como consecuencia el bloqueo del gas para que fluya desde los canales del plato bipolar hasta las zonas catalíticas del electrodo.

El control adecuado de la temperatura, tanto en los gases reactantes como en su interior es muy importante, puesto que favorece la difusión de los gases y la conductividad de los materiales. Pero de igual manera, una mala distribución de temperatura provocará la deshidratación de la membrana y como consecuencia su ruptura, requiriendo así de la remoción de calor antes

de que esto suceda. Los pequeños gradientes de temperatura entre el stack de celdas de combustible y el medio ambiente hacen que el control térmico sea una dificultad en estos sistemas.

A continuación se muestra en la siguiente figura los procesos de transporte de masa, de transferencia de calor y electroquímicos que ocurren en la celda, donde:

P = presión	C = concentración	δ = espesor del difusor
T = temperatura	k = permeabilidad	ϵ = porosidad
H = humedad relativa	α = arrastre osmótico	λ = contenido de agua

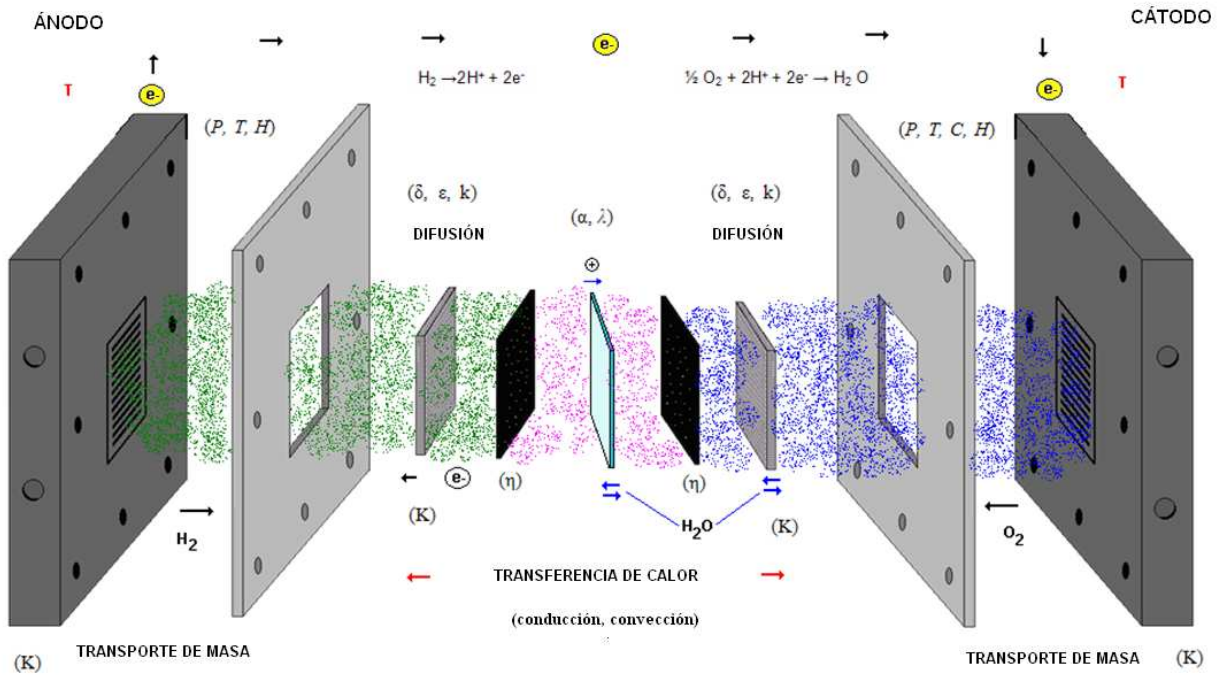


Figura 1: Transporte de masa en la celda y variables involucradas en el proceso.

Variables de Operación en la PEMFC

Como se vio en la (fig. 1) el funcionamiento de las celdas de combustible como muchos otros sistemas es afectado por las variables de operación de (presión, temperatura, composición de los gases, consumo de los reactantes, etc); así como algunos factores (impurezas, vida útil de los materiales, etc) que influyen de manera considerable en el potencial ideal de la celda y en la magnitud de los sobrepotenciales por activación, por resistencia óhmica y por concentración que ocurren en ella. Es por esto que muchos estudios están enfocados a la evaluación de estos parámetros que sirven para optimizar las condiciones de operación de estos dispositivos.

A continuación se da una breve descripción del efecto que existe entre estas variables de operación y el desempeño de la celda:

Efecto de la Presión y de la Temperatura

Un incremento en la presión de operación tiene muchos efectos que benefician el desempeño de la celda, puesto que la presión parcial de los reactantes, la solubilidad del gas y la velocidad de transferencia de masa son mayores. Así también, la presión afecta a la densidad de corriente de intercambio (por la presión del oxígeno) y al potencial de equilibrio.

La temperatura también juega un papel muy importante en el desempeño de la celda ya que influye en variables tales como: el grado de hidratación de la membrana, su conductividad (permitiendo una mayor difusividad de protones) y su resistencia mecánica; la presión parcial de los gases y su difusión; la densidad de corriente de intercambio (favoreciendo la cinética de la reacción) y el potencial estándar (por la alta difusividad del hidrógeno) [24, 33].

Efecto de la Humedad y Concentración de los Gases

Otros de los factores que influyen en el funcionamiento de la celda son la humedad y la concentración de los gases. En la literatura [25] se ha reportado que conforme el nivel de humedad se incrementa en los gases de entrada, la densidad de corriente aumenta. Esto se debe a que la cantidad de corriente obtenida está fuertemente relacionada con el nivel de hidratación de la membrana. Si el nivel de humedad es mayor, la membrana estará mejor hidratada y esto nos llevará a tener un mejor desempeño de la celda. Sin embargo, esto es cierto sólo si el electrodo no se encuentra con exceso de agua líquida en su interior, lo cual actúa como barrera para que los gases lleguen hasta las capas catalizadoras donde se lleva a cabo la reacción electroquímica.

En cuanto a la concentración de los gases, sabemos que en el lado del cátodo se utiliza comúnmente aire como oxidante en lugar de oxígeno ya que el primero no necesita ser procesado y lo tenemos totalmente disponible. Sin embargo, la concentración de oxígeno en el aire, el cuál es el principal oxidante, es baja. De esta manera el desempeño de la celda se verá afectado a menos que se aplique la suficiente presión en la entrada del gas como para que la concentración de oxígeno aumente, alcanzando así la capa catalizadora. Esto es por lo que la densidad de corriente en la celda se encuentra en función de la concentración de oxígeno.

Parámetros Importantes que Determinan el Funcionamiento de la Celda

Efecto de la Configuración y Dimensiones de los Canales en los Platos bipolares

En muchas aplicaciones de celdas de combustible es importante considerar la geometría de la celda, de tal forma que se pueda obtener la máxima cantidad de corriente de una celda que sea lo más pequeña posible. Esto reducirá su tamaño, especialmente el de los stacks haciendo que los diseños sean más atractivos. De esta manera se tienen que hacer ciertas consideraciones respecto a la relación que debe haber entre los canales de flujo y los bordes en el plato bipolar con una determinada área de la celda. Así también, la forma en que los gases deben ser distribuidos sobre los difusores para tener un máximo aprovechamiento de flujo en la celda, lo cual varía en cada diseño. Se han realizado varios estudios para las configuraciones de canales como los publicados por Xiangou Li [35] y R. G. Reddy, [26] el primero haciendo un análisis para seis tipos de configuraciones (pin-type, parallel, serpentine, integrated, interdigitated y el diseño metal sheets) con algunas variantes y el segundo utilizando la simulación para estudiar tres configuraciones generales (rectangular, triangular, hemisférica) además de un estudio detallado de las dimensiones entre los bordes y canales de flujo.

Particularmente los requerimientos de los platos bipolares, respecto a las características físico-químicas son: distribución uniforme de los gases reactantes sobre la superficie de los electrodos para minimizar el sobrepotencial por concentración; alta conductividad eléctrica; alta resistencia mecánica para la integración del stack; impermeabilidad a los gases para una operación segura; resistencia a la corrosión por el entorno de la celda, materiales de bajo costo y métodos económicos para su fabricación. [31, 35]

Hidratación de la Membrana

Como se mencionó anteriormente el contenido de agua en la membrana es indispensable para el buen desempeño de la celda, este se determina por medio del balance entre la producción de agua y los tres procesos de transporte de agua: el arrastre electro-osmótico, asociado con la migración de protones a través de la membrana desde el ánodo hasta el cátodo; la difusión de agua que hay desde el cátodo, por la reacción electroquímica que ocurre en este electrodo y la difusión de agua por la alimentación de los gases. De los trabajos reportados actualmente, podemos mencionar el de Kah Wai Lum [25] donde realizó un análisis de la interacción entre el coeficiente de arrastre osmótico y el coeficiente de difusión, utilizando diferentes humedades relativas en el flujo de oxígeno. Así también se observó el efecto que tiene en la conductividad de la membrana. Una conductividad alta resultará en un incremento en la densidad de corriente local de la celda.

El transporte de masa en los difusores de gas también tiene gran influencia en el desempeño de la celda y es uno de los menos estudiados. En el cátodo, el agua se acumula debido a la permeabilidad electro-osmótica de la membrana y a la reducción electroquímica de oxígeno. Si la humidificación de la membrana es baja, se incrementa su resistencia óhmica y por otro lado la presencia de agua líquida disminuye la capacidad de difusión de moléculas de oxígeno desde el difusor hacia los sitios reactivos de la capa catalítica. [36, 37]. En general, podemos decir que existen cinco fenómenos diferentes limitan el transporte de oxígeno a través del difusor de gas del lado del cátodo: a) La difusión en bulto para la fase gaseosa, b) la difusión de Knudsen, c) la convección, d) la condensación capilar del agua en poros pequeños y e) el transporte de agua líquida.

En resumen, las funciones específicas de los difusores son:

- Permeabilidad a los gases reactantes: Los difusores deben proporcionar libre acceso al hidrógeno y al oxígeno desde los canales de los platos bipolares hasta las capas catalizadoras.
- Permeabilidad al producto: Los difusores deben proporcionar el camino para la remoción de agua líquida desde las capas catalizadoras hacia los canales del plato bipolar.
- Conductividad Electrónica: Deben facilitar la conducción eléctrica entre los platos bipolares y las capas catalizadoras, incluyendo la conductividad en plano con las regiones adyacentes a los canales de flujo.
- Conductividad Térmica: Tienen que ofrecer suficiente capacidad térmica para intercambiar calor desde el ensamble membrana/electrodos hasta los platos bipolares donde se encuentran los canales de refrigeración.
- Resistencia Mecánica: Deben ofrecer el soporte mecánico del ensamble membrana/electrodos en caso de que exista una diferencia de presión entre los gases reactivos y a su vez debe existir un buen contacto con las capas catalizadoras.

Actualmente los que más se acercan a esto son: el papel carbón Toray y la tela de carbón. Sin embargo, aun tenemos muchas opciones para poder utilizar otro material como difusor de gas o en su defecto mejorar las propiedades de los difusores usados actualmente, con nuevas técnicas de fabricación.

6. OBJETIVO GENERAL

Realizar un estudio de dinámica de fluidos computacional para el análisis de los fenómenos de transporte de masa, de transferencia de calor y electroquímicos que se llevan a cabo en la celda de combustible tipo PEM y así determinar una serie de parámetros que sirvan para optimizar el diseño actual de las celdas.

Objetivos Específicos

1. Realizar un análisis de las variables termodinámicas (presión, temperatura, concentración de gases, humedad) para conocer el impacto que tienen en el desempeño de la celda de combustible tipo PEM.
2. Realizar un análisis dimensional en los canales de flujo del plato bipolar para conocer su influencia en la distribución de gas sobre los difusores.
3. Evaluar las configuraciones de canales complejas de los platos bipolares, basadas en los diseños de serpentín, espiral, paralelo, interdigitado, pin-type y geometrías alternas, así como el uso de un medio poroso metálico como distribuidor de flujo.
4. Realizar un estudio paramétrico en los platos bipolares (material), difusores de gas (espesor, porosidad, permeabilidad), electrodos (relación área catalítica/superficie) y membrana (contenido de agua y arrastre osmótico).
5. Construir las celdas experimentales basadas en el estudio realizado de dinámica de fluidos y validar los resultados.

Alcance

- El análisis de las variables termodinámicas será realizado sólo para el diseño de la celda de combustible *Electrochem* (EFC05-01SP).
- El análisis dimensional en los canales del plato bipolar será particularmente para el diseño de serpentín simple, espiral e interdigitado; y será enfocado solamente a la profundidad, ancho y curvatura de los canales.
- La evaluación de las diferentes configuraciones de canales se realizará hasta para cuatro variantes por cada diseño, así como 3 para las geometrías alternas y un análisis paramétrico de porosidad y espesor para el medio poroso metálico.
- El estudio paramétrico en los platos bipolares incluirá cinco materiales distintos, en los difusores de gas se realizará el análisis para cinco variaciones sus propiedades, en

los electrodos un análisis para un máximo de diez relaciones entre el catalizador y la superficie del electrodo, y para la membrana un análisis del contenido de agua y el arrastre osmótico para todos los modelos.

- La construcción de las celdas experimentales se realizará tomando como referencia los mejores resultados del análisis computacional. A estas celdas se les haran las respectivas pruebas experimentales y los resultados seran comparados con los de la simulación para que de esta manera se puedan validar los diseños computacionales.

7. METODOLOGÍA

1. Se diseñará un modelo computacional de la celda de combustible tipo PEM basado en las características de la celda experimental *Electrochem* (EFC05-01SP) para estudiar el efecto de la presión, temperatura, humedad y concentración de los gases sobre su desempeño. Los resultados de la simulación serán validados con los datos experimentales mediante las curvas I-V. Para realizarlo, se llevaran a cabo de 10 a 12 simulaciones en las cuales cada una de ellas representará un punto de la curva I-V y de esta manera validarla con la experimental. El objetivo de este análisis es encontrar las condiciones óptimas de operación de la celda. Los valores óptimos encontrados se utilizarán para simular los diseños subsecuentes.

Por otra parte, la geometría y la malla del modelo se realizarán en el preprocesador Gambit y posteriormente se llevará a cabo un análisis de malla en Fluent mediante una comparación de resultados entre cada modelo; el más adecuado será tomado como referencia para los otros diseños ya que se cuenta con los datos reales y con la celda experimental

2. El siguiente paso consiste en realizar un análisis de las dimensiones (variación del ancho, profundidad y curvatura) de los canales para el modelo de serpentín, espiral e interdigitado; para conocer su influencia en la distribución de flujo sobre el difusor de gas y el efecto que tiene en la densidad de corriente de la celda, ya que una ampliación de los canales disminuye el área de contacto entre el difusor y el plato bipolar, lo cual es importante para la conducción de electrones. El uso de secciones curvas en lugar de las rectangulares también será analizado. Un trabajo similar fue realizado por R. G. Reddy and Atul Kumar [26] para sus diseños.

3. Se evaluarán las diferentes configuraciones de canales complejas para el plato bipolar en base a los diseños de: serpentín, espiral, paralelo, interdigitado y pin-type [35]. Por cada uno se construirán de 3 a 4 variantes que serán evaluadas en base al consumo de reactantes y a la densidad de corriente obtenida.

Durante esta etapa también se pretende estudiar otro sistema de distribución de flujo, como el reemplazo de los canales por una malla o medio poroso metálico, así como cambiar el tipo de geometría de la celda (diseños tubulares). Los resultados serán comparados con los de la celda *Electrochem* y con los de la literatura.

4. Se realizará un estudio paramétrico en los componentes de la celda. Para los platos bipolares: el tipo de material (grafito, aluminio, níquel, acero y cobre); para los difusores de gas: sus características con cinco variaciones (espesor, porosidad y permeabilidad); para los electrodos: la relación (área catalítica/ superficie del electrodo) utilizando diez relaciones; y para la membrana (el coeficiente de arrastre osmótico y el contenido de agua) para todos los modelos. Así también se llevará a cabo un análisis en el difusor del lado del cátodo para conocer la influencia de estos parámetros en el contenido de agua (inundación).
5. Aquí se llevará a cabo la construcción de las celdas experimentales basadas en el diseño óptimo encontrado en la simulación. La configuración de canales en los platos bipolares será elaborada mediante control numérico y en la fabricación del ensamble membrana/electrodos se utilizará la técnica de "*painting*" para la preparación de la tinta catalítica seguida del método de "*hot pressing*" para formar el ensamble [38]. El análisis de este diseño será evaluado en el equipo de pruebas de celdas de combustible.

8. INFRAESTRUCTURA PARA EL DESARROLLO DEL PROYECTO

Se cuenta con el equipo y software necesario para realizar el análisis de dinámica de fluidos computacional (CFD) y todos los estudios electroquímicos para la celda de combustible.

- Licencia del software (Fluent 6.2.16 y Gambit 2.3).
- Módulo para cómputo en paralelo (8 procesadores).
- Servidor Pentium IV Xeon con dos procesadores duales de 3.6 Ghz y 2 Gb en RAM.
- 3 Estaciones de prueba para celdas de combustible.
- 2 Celdas experimentales Electrochem (EFC05-01SP).
- 1 Stack de celdas de combustible tipo PEM (100 W)
- Potenciostato

9. CRONOGRAMA DE ACTIVIDADES

SEMESTRE						
Actividad	1	2	3	4	5	6
Revisión Bibliográfica	X	X	X	X	X	X
Etapas 1	X	X				
Etapas 2		X				
Etapas 3		X	X			
Etapas 4			X	X		
Etapas 5			X	X	X	
Escritura de la Tesis	X	X	X	X	X	X

10. COMITÉ TUTORAL Y SU PARTICIPACIÓN EN EL PROYECTO

COMITÉ TUTORAL					
Actividad	Dr. S. Joseph	Dr. S. Gamboa	Dr. M. Miranda	Dr. A. Álvarez	Dr. F. Sierra
R. Bibliográfica	X	X	X	X	X
Etapas 1	X	X	X	X	X
Etapas 2	X			X	X
Etapas 3	X	X			X
Etapas 4	X		X	X	X
Etapas 5		X	X	X	

Bibliografía

- [1] **Y.M. Ferng, Y. C. Tzang**, *Analytical and Experimental Investigations of a PEMFC*, Int. J. of Hydrogen Energy. (2003)
- [2] **D. Singh, D. M. Lu, N. Djilali**, *A two-dimensional Analysis of Mass Transport in PEMFC*, Int. J. of Eng. Science, 37 pp 431-452 (1999).
- [3] **T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld**, *PEMFC Model*, J. Electrochem Soc. 138 (8) 2334 - 2342
- [4] **J.H. Nam, M. Kaviani**, *Effective diffusivity and water-saturation distribution in single- and two-layer PEMFC diffusion medium*, Int. J. of Heat and Mass Transfer 46, pp 4595-4611,(2003).
- [5] **M. Grujicic, K. M. Chittajallu**, *Design and Optimization of PEMFC's*, App. Surface Science 227 (2004) 56 -72.
- [6] **M. Hu, A. Gu, M. Wang, X. Zhu**, *3D two phase flow mathematical model for PEM fuel cell: Part 1. Model Development*, Energy Conversion Managament, 45 (2004) 1861 - 1882.
- [7] **B.R. Siversten, N. Djilali**, *CFD-Based Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel cells*, J. of Power Sources. 141 (2005) 65-78.
- [8] **S. Dutta, S. Shimpalee, J.W. Van Zee**, *Numerical Prediction of Mass-Exchange Between Cathode and Anode Channels in a PEMFC*, Int. J. Heat and Mass Transfer, 44 (2001) 2029 - 2042.
- [9] **T. E. Springer, T. A. Zawodzinski, S. Gottesfeld**, *Polymer Electrolyte Fuel Cell Model*, J- Electrochem. Soc., 138, 2334-2342, (1991).
- [10] **D. M. Bernardi, M. W. Verbrugge**, *Mathematical Model of a Gas Diffusion Electrode Bonded to a Polymer Electrolyte*, AIChE J. 33, 1151 - 1163, (1992).
- [11] **Bernardi, D. M., Verbrugge, M. W.**, *A Mathematical Model for the Solid Polymer Electrolyte Fuel Cell*, J. Electrochem. Soc., 139, 2477 - 2491, (1992).
- [12] **T. Fuller, Newman**, *Water and Thermal Management in PEMFC's*, J. Electrochem. Soc., 140, 1218-1225, (1993).

- [13] **T. Nguyen, R. White**, *A Water and Heat Management for PEMFC's*, *J. Electrochem. Soc.*, 140, 2178-2186, (1993).
- [14] **West, A. and Fuller, T.**, *Influence of rib spacing in proton-exchange-membrane electrode assemblies*, *J. of Applied Electrochemistry*, 26, pp. 557-565, (1996).
- [15] **J. Yi, T. Nguyen**, *An Along-the Channel Model for PEMFC's*, *J. Electrochem. Soc.*, 145, 1149-1159, (1998).
- [16] **J. Yi, Y. Nguyen**, *Multicomponent Transport in Porous Electrodes of PEMFC's using the Interdigitated Gas Distributors*, *J. of Electrochem. Soc.*, 146, pp. 38-45, (1999).
- [17] **A. Kazim, H. Liu, P. Forges**, *Modeling of performance of PEM fuel cells with conventional and interdigitated flow fields*, *J. of App. Electrochem.*, 29, pp. 1409-1416, (1999).
- [18] **A. Kulikovsky, J. Divisek, A. Kornyshev**, *Modeling the cathode compartment of polymer electrolyte fuel cells: Dead and active reaction zones*, *J. of Electrochem. Soc.*, 146, 3981-3991. (1999).
- [19] **S. Dutta, S. Shimpalee, J. W. Van Zee**, *Three-Dimensional Numerical Simulation of Straight Channel PEMFC's*, *J. of App. Electrochem*, 30, 135-146, (2000).
- [20] **S. Shimpalee, S. Dutta**, *Numerical prediction of mass-exchange between cathode and anode channels in a PEMFC*, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*. 44/11, 2029-2042, (2001).
- [21] **S. Um, C. Y. Wang**, *Three dimensional analysis of transport and reaction in proton exchange membrane fuel cells*, "Proc. of ASME IMECE, Orlando, FL., 1, 19. (2000).
- [22] **T. Zhou, H. Liu**, *3-D model of PEMFC's*, "Proc. of ASME IMECE, Orlando, FL., 1, 43. (2000).
- [23] **S. Shimpalee, S. Dutta and J. W. Van Zee** *Numerical Prediction of Local Temperature and Current Density in a PEM fuel cell*, Proc. of ASME IMECE, Orlando, FL., 1, 1. (2000).
- [24] **T. Berning, N. Djilali**, *Three-dimensional Computational Analysis of Transport Phenomena in a PEMFC - a Parametric Study*, *J. Power Sources*, 124 (2003) 440-452.
- [25] **K. W. Lum, J.J. McGuirk**, *Three-Dimensional Model of a Complete Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell - Model Formulation, validation and Parametric Studies*, *J. of Power Sources*. 143 (2005) 103-124.
- [26] **R. G. Reddy, A. Kumar**, *Effect of Channel Dimensions and Shape in the Flow-Field distributor on the Performance on the PEMFC's*, *J. of Power Sources*. 113, 11 - 18 (2003).
- [27] **S. W. Cha, R. O'Hayre, S. J. Lee**, *Geometric Scale Effect of Flow Channels on Performance of Fuel Cells*, *J. Electrochem. Soc.*, 151 (2004) A1856-A1864.

- [28] **N. P. Siegel**, *Development and Validation of Computational Model for a PEMFC*, Faculty of Virginia Polytechnic Institute and State University, Doctor of Philosophy in Mechanical Eng. Thesis, December 2003.
- [29] **N. Djilali, D. M. Lu**, *Influence of Heat and Mass Transfer on Gas and Water Transport in FC's*, Int. J. Thermal Science, 41 pp 29-40 (2002).
- [30] **S. Didierjean, J. Ramousse, J. Deseure**, *Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell*, J. Power Sources, 145, 2 , 416-427, (2005).
- [31] **M. H. Oh, Y. S. Yoon, S. G. Park**, *The Electrical and Physical Properties of Alternative Material Bipolar Plate for PEMFC system*, J. Electrochemical Acta, 50 (2004) 777-780.
- [32] **J. M. Sierra**, *Diseño y Simulación de los Difusores de Gas para una Celda de Combustible tipo PEM*, Tesis Lic. UAEM, (2005)
- [33] **P. Costamagna**, *Transport Phenomena in Polymeric Membrane Fuel Cells*, Chem. Eng. Science, (2001).
- [34] **J. Larminie, A. Dicks**, *Fuel Cell System Explained*, John Wiley and Sons, LTD (200)
- [35] **X. Li, I. Sabir**, *Review of Bipolar Plates in PEMFC: Flow-Field Designs*, Int. J. of Hydrogen Energy, 30 (2005) 359-371.
- [36] **B. Thoben, A. Siebke**, *Influence of Different GDL's on the Water Management on the PEFC Cathode*, J. New Materials for Electrochemical Systems, 7 13-20 (2004).
- [37] **J. Benziger, J. Nehlsen, D. Blackwell**, *Water Flow in the GDL's of PEMFC's*, J. Membrane Science, 261 (2005) 98 - 106.
- [38] **E. Valenzuela**, *Estudio de la Interfase Electrodo/Electrolito de una Celda de Combustible Tipo PEM Mediante Espectroscopia de Impedancia Electroquímica*, Tesis Doctoral, UNAM (2004).