

**T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**PEM ELEKTROLİZÖRÜN SAYISAL MODELLEMESİ VE
DENEYSEL DOĞRULANMASI**

DOKTORA TEZİ

Safiye Nur ÖZDEMİR

Makina Mühendisliği Anabilim Dalı

Enerji Bilim Dalı

ARALIK 2023

**T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**PEM ELEKTROLİZÖRÜN SAYISAL MODELLEMESİ VE
DENEYSEL DOĞRULANMASI**

DOKTORA TEZİ

Safiye Nur ÖZDEMİR

Makina Mühendisliği Anabilim Dalı

Enerji Bilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. İmdat TAYMAZ

ARALIK 2023

Safiye Nur ÖZDEMİR tarafından hazırlanan “PEM elektrolizörün sayısal modellemesi ve deneysel doğrulanması” adlı tez çalışması 18.12.2023 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Makina Mühendisliği Anabilim Dalı **Enerji** Bilim Dalı’nda Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.

Tez Jürisi

Jüri Başkanı :	Prof. Dr. İmdat TAYMAZ Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Prof. Dr. Hüseyin PEHLİVAN Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Doç. Dr. Ünal UYSAL Sakarya Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Prof. Dr. Cenk ÇELİK Kocaeli Üniversitesi	
Jüri Üyesi :	Doç. Dr. Erman ASLAN Kocaeli Üniversitesi	



ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ

Sakarya Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Lisansüstü Eğitim-Öğretim Yönetmeliğine ve Yükseköğretim Kurumları Bilimsel Araştırma ve Yayın Etiği Yönergesine uygun olarak hazırlamış olduğum “PEM ELEKTROLİZÖRÜN SAYISAL MODELLEMESİ VE DENEYSEL DOĞRULANMASI” başlıklı tezin bana ait, özgün bir çalışma olduğunu; çalışmamın tüm aşamalarında yukarıda belirtilen yönetmelik ve yönergeye uygun davrandığımı, tezin içerdiği yenilik ve sonuçları başka bir yerden almadığımı, tezde kullandığım eserleri usulüne göre kaynak olarak gösterdiğimi, bu tezi başka bir bilim kuruluna akademik amaç ve unvan almak amacıyla vermediğimi ve 20.04.2016 tarihli Resmi Gazete’de yayımlanan Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliğinin 9/2 ve 22/2 maddeleri gereğince Sakarya Üniversitesi’nin abonesi olduğu intihal yazılım programı kullanılarak Enstitü tarafından belirlenmiş ölçütlere uygun rapor alındığını, çalışmamla ilgili yaptığım bu beyana aykırı bir durumun ortaya çıkması halinde doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi beyan ederim.

(18/12/2023).

Safiye Nur ÖZDEMİR





Başta canım annem ve babam olmak üzere tüm aileme



TEŞEKKÜR

Yüksek lisans ve doktora tez hazırlama sürecinde bana her daim destek olan, ilgisini ve tecrübesini hiçbir zaman esirgemeyen danışman hocam sayın Prof. Dr. İmdat TAYMAZ'a teşekkür eder, saygılarımı ve hürmetlerimi sunarım.

Doktora tez sürecinde bilgi, birikim ve tecrübelerini asla esirgemeyen tez izleme komite jürileri sayın Prof. Dr. Cenk Çelik ve sayın Doç Dr. Ünal Uysal hocalarıma minnet ve şükranlarımı sunuyorum.

Bu tez, TÜBİTAK MAM Enerji Enstitüsü Yakıt Pili Laboratuvarının imkanlarından faydalanarak hazırlanmıştır, bu imkanlara ulaşmama olanak sağlayan, her konuda bilgi ve tecrübesini sunan, karşılaştığım tüm sorunlara çözüm bulan, enstitü müdür yardımcısı sayın Doç. Dr. Fehmi Akgün hocama çok teşekkür ederim.

TÜBİTAK MAM Enerji Enstitüsü'nde baş uzman araştırmacı Dr. Emin OKUMUŞ hocamın yürütücülüğünde proje kodu 5212A01, 'PEM Tipi Elektrolizör Geliştirilmesi' başlıklı projede misafir araştırmacı olarak çalışmama olanak sağlayan ve tezimin oluşturulmasında oldukça büyük bir katkı sağlayan sayın Dr. Emin Okumuş'a sonsuz teşekkür ederim.

Projeyi fonlayan, projede çalışmama izin veren, doktora tez sürecimde deneysel çalışmalarımı sorunsuz destekleyen Türkiye Enerji, Nükleer, Maden Araştırma Kurumu'na (TENMAK) çok teşekkür ederim.

Güçlü duruşuyla her zaman örnek alacağım, azim ve çalışmaya sonsuz önem veren, tezimi yönlendiren, yakıt pilleri konusunda muazzam bilgi ve tecrübeye sahip olan, bilgi, tecrübesini ve merhametini asla esirgemeyen kıdemli baş uzman araştırmacı sayın Doç. Dr. Fatmagül Boyacı San'a çok teşekkür ederim. Tübitak MAM Enerji Enstitüsü diğer tüm çalışanlarının bana göstermiş oldukları tüm ilgi, destek için ayrıca teşekkürü bir borç bilirim.

Her koşulda yanımda olan desteklerini ve dualarını bir gün olsun eksik etmeyen canım annem Kezban ÖZDEMİR, canım babam Ali ÖZDEMİR, kardeşlerim Nurdan ÖZDEMİR, Erdem ÖZDEMİR ve canım yeğenim Ela ÖZDEMİR'e sonsuz teşekkür ederim.

Safiye Nur ÖZDEMİR



İÇİNDEKİLER

Sayfa

ETİK İLKE VE KURALLARA UYGUNLUK BEYANNAMESİ	v
TEŞEKKÜR	ix
İÇİNDEKİLER	xi
KISALTMALAR	xiii
SİMGELER	xv
TABLO LİSTESİ	xvii
ŞEKİL LİSTESİ	xix
ÖZET	xxiii
SUMMARY	xxvii
1. GİRİŞ	1
1.1. Hidrojen	3
1.2. Hidrojen Kullanım Alanları	5
1.3. Hidrojen Üretim Yöntemleri	7
1.3.1. Fosil yakıtlardan hidrojen üretimi	7
1.3.1.1. Buhar-metan reformasyonu	8
1.3.1.2. Kısmi oksidasyon	9
1.3.1.3. Ototermal reformasyon	9
1.3.2. Yenilenebilir kaynaklardan hidrojen üretimi	10
1.3.2.1. Biyokütle işlemi	10
1.3.2.2. Suyun ayrıştırılması	10
1.4. Elektrolizörler	11
1.4.1. Alkali Elektrolizörler (AEL)	12
1.4.2. PEM elektrolizörler (PEMEL)	13
1.4.3. Katı oksit elektrolizörler (KOEL)	15
1.5. PEM Elektrolizör Hücre Bileşenleri	17
1.5.1. Membran elektrot ünitesi	17
1.5.2. Akım toplayıcılar	19
1.5.3. Bipolar plakalar	20
1.5.4. Titanyum plaka ve titanyum mesh grubu	21
1.5.5. Uç plakalar	22
1.6. PEM Elektrolizörün Çalışma Prensibi	22
1.7. Hidrojenin Depolanması	23
2. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	27
2.1. Tez Çalışmasının Ana Hatları ve Literatüre Katkısı	34
3. PEM ELEKTROLİZÖRÜN ANOT BİPOLAR PLAKASINDAKİ ÇİFT FAZLI AKIŞIN MODELLENMESİ	37
3.1. PEM Elektroliz Hücresinin Termodinamiği	37
3.2. Elektrokimyasal Denklemler	39
3.2.1. Anot denklemleri	39
3.2.2. Katot denklemleri	40
3.2.3. Membran denklemleri	42

3.2.4. PEM elektrolizör voltaj hesabı.....	44
3.3. Polarizasyon Eğrisi.....	45
3.3.1. Aktivasyon kayıplar	46
3.3.2. Ohmik kayıplar.....	46
3.3.3. Konsantrasyon kayıplar.....	46
3.4. PEM Elektroliz Hücresinin Bipolar Plakasındaki Sıvı Akışının Deneysel Olarak İncelenmesi.....	47
3.5. PEM Elektroliz Hücresinin Bipolar Plakasındaki Sıvı-Gaz Akışının Sayısal Olarak İncelenmesi.....	49
3.5.1. Problem tanımı ve sayısal uygulama.....	49
3.5.2. Korunum denklemleri ve sınır koşulları.....	49
3.5.3. Mesh bağımsızlık çalışması ve modelin doğrulanması.....	51
3.5.4. Sayısal çalışma için elde edilen sonuçlar	54
4. PEM ELEKTROLİZÖRÜN ÇALIŞMA PERFORMANSININ DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ.....	67
4.1. Çalışmanın Amacı	67
4.2. Deney Sistemi.....	67
4.3. PEM Elektroliz Hücresi İçin Deneysel Sonuçlar	69
4.4. PEM Elektrolizörün Taguchi Yöntemiyle Optimizasyonu	73
4.4.1. Taguchi yöntemi.....	73
4.4.2. ANOVA analizi.....	77
4.4.3. Pareto diyagramı	78
4.4.4. Etkileşim (interaction) diyagramı.....	79
4.4.5. Regresyon analizi	81
4.5. PEM Elektrolizörün Yanıt Yüzeyi Yöntemiyle (RSM) Optimizasyonu	87
4.5.1. Deney tasarım yöntemi.....	87
4.5.2. PEM elektrolizörün istatistiksel analizi	90
4.5.3. PEM elektrolizör sistemi için çalışma koşullarının optimizasyonu	99
5. PEM ELEKTROLİZÖRÜN MEKANİK DAVRANIŞININ SONLU ELEMANLAR YÖNTEMİ KULLANILARAK MODELLENMESİ VE DENEYSEL DOĞRULANMASI.....	105
5.1. Deneysel Yaklaşım.....	105
5.1.1. ANOVA sonuçları.....	106
5.1.2. Model denklemleri	108
5.1.3. Regresyon model validasyonu	110
5.1.4. Yüzey grafikleri.....	111
5.1.5. Optimizasyon sonuçları.....	114
5.2. Sayısal Yaklaşım	117
5.2.1. Model geometrisi ve mesh yapısı.....	117
5.2.2. Katı cisimler mekaniğinde kullanılan korunum denklemleri.....	120
5.2.3. Sınır koşulları	120
5.2.4. Simülasyon sonuçları	121
6. SONUÇLAR, TARTIŞMA VE ÖNERİLER.....	127
KAYNAKLAR.....	131
ÖZGEÇMİŞ.....	143

KISALTMALAR

AAS	: Amine-based solvent (Amin-özücü)
AEL	: Alkali elektrolizör
AID	: Alt ısııl değır
ANOVA	: Analysis of variance (Varyans analizi)
ARGE	: Araştırma-geliştirme
ATR	: Autothermal reforming (Otothermal reformasyon)
CCD	: Central composite design (Merkezi kompozit tasarım)
CCM	: Catalyst-coated membrane (Katalizör kaplı membran)
CL	: Catalyst layer (Katalizör tabaka)
CV	: Coefficient of variation (Varyasyon katsayısı)
DC	: Direct current (Doğru akım)
DF	: Serbestlik derecesi
DOE	: Design of experiments (Deney tasarımı)
FEM	: Finite element method (Sonlu elemanlar yöntemi)
GDL	: Gas diffusion layer (Gaz difüzyon tabakası)
HAD	: Hesaplamalı akışkanlar dinamiğı
KOEL	: Katı oksit elektrolizör
KSC	: Kennedy Space Center (Kennedy Uzay Merkezi)
MAM	: Marmara Araştırma Merkezi
MEÜ	: Membran elektrot ünitesi
MS	: Kareler ortalaması
N	: Gürültü
OER	: Oxygen evolution reaction (Oksijen oluşum reaksiyonu)
PEMEL	: Polimer elektrolit membranlı elektrolizör
PEMYP	: Polimer elektrolit membranlı yakıt pili
POX	: Partial oxidation (Kısmi oksidasyon)
PSA	: Pressure swing adsorption (Basınç salınımlı adsorpsiyon)
RES	: Renewable energy sources (Yenilenebilir enerji kaynakları)
RON	: Research octane number (Araştırma oktan sayısı)
RSM	: Response surface method (Yanıt yüzeyi yöntemi)

S	: Sinyal
SMR	: Steam methane reforming (Buhar-metan reformasyonu)
SS	: Karelerin toplamı
TENMAK	: Türkiye Enerji, Nükleer, Maden Araştırma Kurumu
TÜBİTAK	: Türkiye Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Kurumu
ÜİD	: Üst ısı değeri



SİMGELER

a_0	: Sabit katsayı
Adj	: Düzeltilmiş
a_i	: Doğrusal katsayı
a_{ij}	: İkinci dereceden etkileşim katsayısı
C	: Teğetsel sürtünme katsayısı
D	: Cıvatanın nominal çapı [mm]
D_d	: Oksijen kabarcığı çapı [mm]
e	: Deneysel hata
F	: Eksenel kuvvet [N]
G	: Kesme modülü [MPa]
H_{ch}	: Kanal yüksekliği [mm]
L_{ch}	: Elektrot kanal uzunluğu [mm]
L_{in-out}	: Giriş/çıkış kanal uzunluğu [mm]
$\dot{m}$	: Kütleli debi [mg/s]
N_{ch}	: Kanal sayısı
$Pred$	: Tahmini
Q	: Hacimsel debi [ml/dk]
R^2	: Kararlılık indeksi
R_{in}	: Giriş manifoldunun yarıçapı [mm]
T	: Tork [Nm]
W_{ch}	: Kanal genişliği [mm]
X	: Deneysel değişken
y	: Deneysel yanıt
θ	: Dönme açısı [°]
λ	: Lame sabiti
ρ	: Yoğunluk [kg/m ³]
σ	: Normal gerilme [MPa]
τ	: Kayma gerilmesi [MPa]



TABLO LİSTESİ

Sayfa

Tablo 1.1. Hidrojenin genel özellikleri [25].	4
Tablo 1.2. Hidrojen renk kodları, üretim teknolojileri, maliyetleri ve karbondioksit emisyonları [28].	5
Tablo 1.3. Hidrokarbon reformasyon teknolojilerinin karşılaştırılması.	8
Tablo 1.4. Tipik PEM elektrolizör çalışma koşulları.	15
Tablo 3.1. Hidrojen gazının teknik özellikleri.	39
Tablo 3.1. PEM elektroliz hücre simülasyonlarında kullanılan tasarım ve işletme parametreleri.	51
Tablo 3.2. 14 kanallı anot akış tasarımı için ağ bağımsızlık çalışması.	52
Tablo 4.1. Üç parametrelili L9 ortogonal dizisi ve deneysel tasarımın S/N oranları.	74
Tablo 4.2. S/N oranları için yanıt tablosu.	75
Tablo 4.3. Hidrojen akış hızı için varyans analizinin (ANOVA) sonuçları.	78
Tablo 4.4. Akım için varyans analizinin (ANOVA) sonuçları.	78
Tablo 4.5. Akım ve hidrojen akış hızı için Taguchi yöntemiyle tahmin edilen değerler.	82
Tablo 4.6. Akım ve hidrojen akış hızı için regresyon analizi sonuçları.	83
Tablo 4.7. Akım ve hidrojen akış hızı için CCD'nin deneysel planı.	89
Tablo 4.8. Akım uyum özeti.	91
Tablo 4.9. Hidrojen akış hızı uyum özeti.	91
Tablo 4.10. Akım için ANOVA sonuçları.	92
Tablo 4.11. Hidrojen akış hızı için ANOVA sonuçları.	93
Tablo 4.12. Optimizasyon çalışması için işletme parametrelerinin sınır değerleri ve önemi.	99
Tablo 4.13. Optimizasyon sonuçları.	100
Table 5.1. Deneysel verilerin merkezi kompozit tasarımı.	106
Tablo 5.2. Akım için ANOVA sonuçları.	107
Tablo 5.3. Hidrojen akış hızı için ANOVA sonuçları.	108
Tablo 5.3. Regresyon modellerinin istatistiksel sonuçları.	109
Tablo 5.4. Optimizasyon sonuçları.	115
Tablo 5.5. Boyutsal özellikler.	118
Tablo 5.6. Yapısal özellikler.	118
Tablo 5.7. Mesh bağımsızlık testi.	119



ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 1.1. Hidrojen enerjisinin uygulama alanları.	6
Şekil 1.2. Hidrojen üretim yöntemleri.	7
Şekil 1.3. Basitleştirilmiş buhar-metan reformasyon işlem şeması.	9
Şekil 1.4. Alkali elektrolizörün şematik gösterimi.	13
Şekil 1.5. PEM elektrolizörün şematik gösterimi.	15
Şekil 1.6. Katı oksit elektrolizörün şematik gösterimi.	16
Şekil 1.7. (a) Tipik PEM su elektrolizörünün genel görünümü (b) PEM hücre yığını (c) Hücre bileşenleri; 1-Bipolar plaka, 2-Anot akım toplayıcı, 3-MEÜ, 4- Katot akım toplayıcı [50].	17
Şekil 1.8. Tez çalışmasında kullanılan membran elektrot ünitesi.	18
Şekil 1.9. Tez çalışmasında kullanılan akım toplayıcı plaka.	19
Şekil 1.10. Tez çalışmasında kullanılan serpantin akış tasarımlı bipolar plaka.	21
Şekil 1.11. Tez çalışmasında kullanılan titanyum mesh plakalar.	22
Şekil 1.12. PEM elektroliz hücresinin çalışma prensibi.	23
Şekil 1.13. Tip 4 yüksek basınçlı hidrojen tankının bileşenleri [56].	24
Şekil 1.14. Sıvı hidrojen tankı [57].	25
Şekil 3.1. Tipik bir PEM elektrolizörün polarizasyon eğrisi.	46
Şekil 3.2. İğne (a) ve paralel tip (b) akış plaka tasarımları.	47
Şekil 3.3. 3B yazıcıdan çıkan ürünler.	48
Şekil 3.4. Suyun iğne ve paralel akış tip plakalardaki dağılımları.	48
Şekil 3.5. Geleneksel akış tasarımı için mesh yapısı.	52
Şekil 3.6. 3B simülasyon modelinin literatürdeki sayısal çalışma ile doğrulanması.	53
Şekil 3.7. 3B simülasyon modelinin literatürdeki deneysel çalışma ile doğrulanması.	54
Şekil 3.8. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında oksijen gaz kabarcıklarının farklı kanal sayılarına göre dağılımı.	55
Şekil 3.9. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında basıncın farklı kanal sayılarına göre dağılımı.	56
Şekil 3.10. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında basıncın farklı kanal sayılarına göre dağılımı.	56
Şekil 3.11. Farklı oksijen akış hızlarında paralel akış alanına sahip PEMEL'deki oksijen konsantrasyonu dağılımı.	57
Şekil 3.12. PEM elektroliz hücresinin anot paralel akış tasarımında farklı oksijen akış hızlarına karşı basınç kayıpları.	58
Şekil 3.13. PEM elektrolizörün anot akış alan plakasındaki çift fazlı akışın kütle ortalama hız dağılımı, (a) $N_{kanal}=4$, (b) $N_{kanal}=6$, (c) $N_{kanal}=8$ ve (d) $N_{kanal}=10$	59

Şekil 3.14. PEM elektrolizörün anot akış alan tasarımındaki oksijen hacim kesrinin dağılımları, (a) $N_{kanal}=4$, (b) $N_{kanal}=6$, (c) $N_{kanal}=8$, (d) $N_{kanal}=10$, (e) $N_{kanal}=12$ ve (f) $N_{kanal}=14$.	61
Şekil 3.15. 293.15 K sıcaklıkta, 100 kPa basınçta $t=0$ s, $t=0.5$ s, $t=1$ s ve $t=1.5$ s simülasyon süresinde bir anot akış alanındaki çift fazlı akış hızı profillerinin (m/s) 2B konturları.	63
Şekil 3.16. 293.15 K sıcaklıkta, 100 kPa basınçta $t=0$ s, $t=0.25$ s, $t=0.5$ s ve $t=0.75$ s simülasyon süresinde anot bölgesindeki statik basıncın (Pa) 2B konturları.	64
Şekil 4.1. DeneySEL PEM elektroliz hücresi.	67
Şekil 4.2. PEM elektrolizör test sistemi.	68
Şekil 4.3. Saf su kalem tip iletkenlik ölçer.	69
Şekil 4.4. Sıcaklığın, 16.5 ml/dk (a), 23.0 ml/dk (b) ve 30.6 ml/dk (c) su akış hızında PEM elektroliz hücresinin polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisi.	70
Şekil 4.5. Hidrojen akış hızının, 16.5 ml/dk (a), 23.0 ml/dk (b) ve 30.6 ml/dk (c) su akış hızında PEM elektroliz hücresinin polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisi.	71
Şekil 4.6. 16.5 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.	72
Şekil 4.7. 23 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.	73
Şekil 4.8. 30.6 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.	73
Şekil 4.9. Kontrol faktörlerin S/N oranları için (a) akım (A) ve (b) hidrojen akış hızı (ml/dk) grafikleri.	76
Şekil 4.10. Taguchi tasarımına göre girdi faktörlerinin Pareto grafikleri: (a) akım (A), (b) hidrojen akış hızı (ml/dk).	79
Şekil 4.11. Akım (A) ve hidrojen akış hızı (ml/dk) için etkileşim grafikleri.	80
Şekil 4.12. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kalıntıların normal olasılık grafikleri.	84
Şekil 4.13. Kontrol faktörlerinin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkilerini gösteren kontur grafikleri.	85
Şekil 4.14. Akım ve hidrojen akış hızının deneylere göre dağılımı.	90
Şekil 4.15. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için deneysel ve tahmini veriler.	94
Şekil 4.16. Pompa hızı ve sıcaklığın akım üzerindeki etkisi.	95
Şekil 4.17. Hücre voltajı ve sıcaklığın akım üzerindeki etkisi.	96
Şekil 4.18. Hücre voltajı ve pompa hızının akım üzerindeki etkisi.	96
Şekil 4.19. Pompa hızı ve sıcaklığın hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi.	97
Şekil 4.20. Hücre voltajı ve sıcaklığın hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi.	97
Şekil 4.21. Hücre voltajı ve pompa hızının hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi.	98
Şekil 4.22. Pompa hızı ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.	101
Şekil 4.23. Hücre voltajı ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.	101
Şekil 4.24. Hücre voltajı ve pompa hızının bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.	103
Şekil 4.25. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için pertürbasyon grafiği.	104
Şekil 5.1. DeneySEL ve tahmini değerlerin karşılaştırılması (a) akım (A), (b) hidrojen akış hızı (ml/dk).	110
Şekil 5.2. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kaldıraç grafikleri.	111
Şekil 5.3. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kalıntı grafikleri.	111

Şekil 5.4. 80°C çalışma sıcaklığında hücre voltajı, pompa hızı ve sıkıştırma torkunun bir fonksiyonu olarak 3 boyutlu akım grafikleri.	113
Şekil 5.5. 80°C çalışma sıcaklığında hücre voltajı, pompa hızı ve sıkıştırma torkunun bir fonksiyonu olarak 3 boyutlu hidrojen akış hızı grafikleri.	114
Şekil 5.6. Yanıt fonksiyonlarının optimizasyonu için istenirlik grafikleri.	116
Şekil 5.7. Deneysel PEM elektrolizörün detaylı görünümü.	117
Şekil 5.8. Tüm simülasyon modelinin mesh yapısı (a), x-y düzlem kesiti (b), x-z düzlem kesiti (c), grafit bipolar plakanın mesh geometrisi (d).	119
Şekil 5.9. MEÜ'de 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) farklı sıkıştırma torklarında üretilen von Mises gerilmelerinin sayısal ve deneysel karşılaştırılması.	121
Şekil 5.10. Torkmetre ile PEM elektrolizör hücresine sıkıştırma torkunun uygulanması.	122
Şekil 5.11. Anot uç plakasının ve tüm PEM elektrolizörün farklı sıkıştırma torkları altında gerilme (MPa) ve toplam deformasyon (mm) dağılımları sırasıyla (a,b) 3 Nm, (c,d) 6.5 Nm ve (e,f) 10 Nm.	123
Şekil 5.12. Anot cam elyaf conta üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkıştırma torklarındaki 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) simülasyon sonuçları.	124
Şekil 5.13. Anot akım toplayıcı plaka üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkıştırma torklarındaki 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) simülasyon sonuçları.	124
Şekil 5.14. Katot bipolar plaka ve anot titanyum fiber felt üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkma torklarındaki 3 Nm (a,b), 6.5 Nm (c,d) ve 10 Nm (e,f) simülasyon sonuçları.	125



PEM ELEKTROLİZÖRÜN SAYISAL MODELLEMESİ VE DENEYSEL DOĞRULANMASI

ÖZET

Sera gazlarının zararlı çevresel etkilerinin azaltılması ve küresel ısınmayla mücadelede, geleneksel fosil yakıtlardan sürdürülebilir-temiz yakıtlara geçiş oldukça elzem bir hale gelmiştir. Dünyada bol miktarda bulunan ve enerji içeriği yüksek olan hidrojen, yenilenebilir enerji kaynaklarından üretildiğinde sürdürülebilir ve çevre dostu bir yakıt olarak nitelendiriliyor. Bu bağlamda taşımacılık, sanayi, enerji, havacılık ve uzay gibi birçok sektörde gelecek vaad ettiği söylenebilir.

Yenilenebilir enerjiye geçişle birlikte suyun elektrolizini gerçekleştiren elektrolizörlere olan talep önemli ölçüde artmıştır. Suyun elektrolizi, sudan geçen bir elektrik akımı vasıtası ile suyun oksijen ve hidrojen gazına ayrışması işlemidir. Su elektrolizörleri saf sudan en az %99.9 saflıkta hidrojen üretmek için yaygın olarak kullanılan elektrokimyasal cihazlardır. Elektrolizörler kullanılan elektrolit çeşidine göre sınıflandırılmaktadır (katı veya sıvı elektrolit). Sıvı elektrolit yaygın olarak alkali elektrolizörlerde, katı elektrolit ise genellikle PEM elektrolizörlerde ve katı-oksit elektrolizörlerde kullanılmaktadır.

Mevcut teknolojiler arasında Polimer Elektrolit Membranlı (PEM) elektroliz hücreleri, diğer elektroliz hücresi türlerine kıyasla yüksek akım yoğunluklarında çalışabilme ve daha düşük özgül enerji tüketimi ile bilinmektedir. Ancak PEM elektrolizörünün performansından tam olarak yararlanmak için dayanıklılığını, güvenilirliğini ve çalışma koşullarını iyileştirmek önemlidir. PEM elektroliz hücre performansı, elektroliz hücresi tasarımı ve montajı, çalışma koşulları ve bipolar plaka tasarımı gibi birçok faktöre bağlıdır.

Mevcut tez çalışması, maksimum akım ve hidrojen üretim hızı için sistemin performansını etkileyen PEM elektrolizörün kritik çalışma koşullarını bulmaya odaklanmaktadır. Bu tez 3 ana bölümden oluşmaktadır: Comsol Multiphysics kullanarak elektroliz hücresinin anot bipolar plakasındaki karmaşık yapıdaki çift fazlı akışın modellenmesi ve literatürdeki referans bir çalışma ile doğrulanması, deneysel elektroliz hücresinin performans testleri, Taguchi ve yanıt yüzeyi yöntemi (RSM) ile elektrolizörün optimum çalışma koşullarının belirlenmesi, ANSYS Mechanical’da sonlu elemanlar yöntemini kullanarak deneysel hücrenin mekanik davranışının incelenmesi ve son olarak simülasyon sonuçlarının deneysel sonuçlarla doğrulanması.

Tezin ilk bölümünde, PEM elektrolizörünün anot bipolar plakasının üç boyutlu, kararsız sayısal modeli geliştirilmiş, literatürden paralel akış alanına sahip bir PEM elektrolizörün deneysel sonuçlarıyla doğrulanmış, akış kanallarındaki çift fazlı akış karakterize edilmiş, son olarak giriş ve çıkış manifoldları arasındaki kanalların sayıları değiştirilerek basınç, hız ve oksijen gaz kabarcıklarının dağılımları simüle edilmiştir. Sayısal sonuçlar, kanal sayısı $N=4$ 'ten $N=14$ 'e arttığında basınç düşüşünün azaldığını ve oksijen gazı fraksiyonunun arttığını göstermiştir. Anot bipolar plakada giriş ve çıkış

manifoldlarındaki hızın merkez bölgeye kıyasla daha yüksek olduğu gözlenmiş ve akış hızı dağılımının üniform olmadığı ortaya çıkmıştır.

PEM elektroliz hücrelerinin performansı, çalışma ve tasarım koşullarının optimize edilmesiyle önemli ölçüde artırılabilir. Çalışmanın deneysel kısmında öncelikle 9 cm² aktif alana sahip PEM elektrolizör hücresi toplanmış, hücre performansını önemli ölçüde etkileyen şartlandırma işlemi tamamlandıktan sonra 40-80°C sıcaklık aralığında performans testleri gerçekleştirilmiş ve sonuçlar kaydedilmiştir. PEM elektrolizör hücre performansını iyileştirmek ve çalışma koşullarının optimum kombinasyonunu belirleyebilmek için deney sistemine Taguchi yöntemi uygulanmıştır. Taguchi yöntemi deney süresini ve maliyetlerini önemli ölçüde azaltan mükemmel bir optimizasyon aracıdır. Sıcaklık, su akış hızı ve hücre voltajı deney sisteminin bağımsız değişkenleri, akım ve hidrojen akış hızı ise bağımlı değişkenleridir. Deneysel sonuçlar, maksimum hücre performansının 80°C sıcaklıkta, 16.5 ml/dk su debisinde ve 2.4 V hücre voltajında elde edildiğini göstermektedir. Optimum çalışma koşullarında hidrojenin alt ve üst ısı değerlerine göre hesaplanan verim değerleri sırasıyla %59.6 ve %70.4'tür. Optimizasyon sonuçlarının üç boyutlu yüzey ve pertürbasyon grafikleriyle görselleştirilmesi farklı bir optimizasyon aracı ile gerçekleştirilmiştir. Benzer şekilde kontrol faktörlerinin performans üzerindeki etkilerini ve optimum seviyelerini analiz etmek için Design-Expert 13 (deneme sürümü) yazılımı kullanılmış, yanıt yüzey yöntemi (RSM) ile optimize edilmiştir. RSM sonuçları hücre voltajı, sıcaklık ve hücre voltajı-sıcaklık arasındaki etkileşimin PEM elektrolizör hücre performansını önemli ölçüde etkilediğini göstermektedir.

PEM elektroliz hücresinin ömrünü etkileyen temel sorunlardan biri de MEÜ ve gaz difüzyon tabakasının (GDL) mekanik bozulmasıdır. Elektrolizör hücre bileşenlerinde meydana gelen herhangi bir hasar kütle transferi sürecini ve ardından hücre performansını olumsuz yönde etkileyecektir. Sıkıştırma kuvveti arttıkça hücre performansı artar ancak optimum değeri aştığında GDL geçirgenliği azalır ve hücre performansı düşebilir. Bu tezde PEM elektrolizör montajı için kullanılan sıkıştırma torkunun hücre bileşenleri üzerindeki etkisi analiz edilmiştir. Hücre performansını önemli ölçüde etkileyebilecek olan su akış hızı, sıkıştırma torku ve hücre voltajı deneysel sistemin girdi faktörleri olarak tanımlanmış, RSM ile optimize edilmiştir. İstatistiksel sonuçlar, su akış hızının hidrojen akış hızı üzerinde önemli bir faktör olduğunu ve hücre voltajı, tork ve hücre voltajı-tork etkileşiminin akımı önemli ölçüde etkilediğini gösterdi. Tüm performans testleri 80°C sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. Optimizasyon sonuçlarından PEM elektrolizörünün maksimum akım ve hidrojen akış hızları sırasıyla 23.821 A ve 189.972 ml/dk olarak elde edilmiştir.

Deneysel PEM elektrolizörün üç boyutlu model geometrisi SpaceClaim yazılımında geliştirilmiş, her bir bileşenin malzeme özellikleri programa tanımlanmıştır. Modelin mesh yapısı hex-dominant mesh yöntemiyle ANSYS Mechanical Mesh'te oluşturulmuş, daha sonra sayısal analiz için matematiksel model ANSYS Mechanical'a aktarılmıştır. PEM elektrolizör anot uç plakasına 3, 6.5 ve 10 Nm'lik üç farklı sıkıştırma torku uygulanmış, MEÜ üzerinde üretilen von Mises gerilme ve deformasyonlar sonlu elemanlar yöntemiyle (FEM) sayısal olarak analiz edilmiştir. PEM elektrolizör kalbi olarak nitelendirilen MEÜ yerine basınç ölçüm filmleri yerleştirilmiş, üç farklı sıkıştırma torkunda test edilmişlerdir. Son olarak, sayısal ve deneysel sonuçlar birbirleriyle karşılaştırılmış, sonuçların birbiriyle uyumlu olduğu görülmüştür. Basınç ölçüm filmlerin merkezinde kırmızı yoğunluğun oldukça az olduğu, bipolar plaka kanal tasarımının da daha az görünür olduğu gözlemlenmiştir. Bu durum basınç ölçüm filminin merkezinde basınç değerlerinin oldukça düşük bir

seviyede olduđuna iřaret etmektedir. Sıkıřtırma torkları sırasıyla 3, 6.5 ve 10 Nm olduđunda, MEÜ üzerinde üretilen maksimum gerilme deđerleri sırasıyla 34.891, 75.597 ve 116.3 MPa’dır.





NUMERICAL MODELING AND EXPERIMENTAL VALIDATION OF PEM ELECTROLYZER

SUMMARY

The transition from conventional fossil fuels to sustainable-clean fuels has become essential in minimizing the harmful environmental effects of greenhouse gases and in the fight against global warming. Hydrogen, abundant globally and with a high energy content, is characterized as a sustainable and environmentally friendly fuel when produced from renewable energy sources (RES). In this context, it can be said that hydrogen is promising in many sectors, such as transportation, industry, energy, aviation, and space.

With the transition to renewable energy, the demand for electrolyzers that perform water electrolysis has increased significantly. Electrolysis of water is splitting water into oxygen and hydrogen gas through an electric current passing through the water. Water electrolyzers are electrochemical devices commonly used to generate hydrogen with a purity of at least 99.9% from pure water. Electrolyzers are classified according to the type of electrolyte used (solid or liquid). Liquid electrolyte is commonly employed in alkaline electrolyzers, while solid electrolyte is generally used in PEM electrolyzers and solid-oxide electrolyzers.

Among the available technologies, Polymer Electrolyte Membrane (PEM) electrolyzers are known for their ability to operate at high current densities and lower specific energy consumption compared to other types of electrolysis cells. However, to benefit from the full advantage of the performance of the PEM electrolyzer, it is critical to improve its durability, reliability, and operational conditions. PEM electrolysis cell performance depends on many factors, such as electrolysis cell design and assembly, operating conditions, and bipolar plate design.

The present thesis focuses on finding the critical operating conditions of the PEM electrolyzer that affect the system's performance for maximum current and hydrogen production rate. This thesis consists of 3 main parts: Modeling the complex two-phase flow in the anode bipolar plate of the electrolysis cell using Comsol Multiphysics and validating it with a reference study in the literature, performance tests of experimental electrolysis cell, determination of the optimum operational conditions of the electrolyzer by Taguchi and Response Surface Methodology (RSM), investigation of the mechanical behavior of the experimental cell using the finite element method in ANSYS Mechanical and, finally, validation of the simulation results with the experimental results.

In the first part of the thesis, a three-dimensional, unstable numerical model of the anode bipolar plate of the PEM electrolyzer has been developed, validated with the experimental results of a PEM electrolyzer with parallel flow field from the literature, two-phase flow in the flow channels has been characterized, and finally, by changing the number of channels between the inlet and outlet manifolds, pressure, velocity, and the distributions of oxygen gas bubbles were simulated. Numerical results show that

when the number of channels increased from $N=4$ to $N=14$, the pressure drop decreased, and the oxygen gas fraction increased. It was observed that the velocity in the inlet and outlet manifolds of the anode bipolar plate was higher than in the central region, and it was revealed that the flow velocity distribution was not uniform.

The performance of PEM electrolysis cells can be significantly increased by optimizing operating and design conditions. In the experimental part of the study, firstly, the PEM electrolyzer cell with a 9 cm^2 active area was collected; after the conditioning process, which significantly affects the cell performance, performance tests were carried out in the temperature range of $40\text{--}80^\circ\text{C}$, and the results were recorded. The Taguchi method was applied to the experimental system to improve the PEM electrolyzer cell performance and determine the optimum operational conditions. The Taguchi method is an excellent optimization tool, significantly reducing experimentation time and costs. Temperature, water flow rate, and cell voltage are independent variables of the experimental system, while current and hydrogen flow rate are the dependent variables. Experimental results show the maximum cell performance at a temperature of 80°C , water flow rate of 16.5 ml/min , and cell voltage of 2.4 V . The efficiency values calculated based on hydrogen's lower and upper heating values under optimum operating conditions are 59.6% and 70.4% , respectively. The optimization results were visualized with three-dimensional surface and perturbation plots with a different optimization tool. Similarly, Design-Expert 13 (trial version) software was used to analyze the effects of control factors on performance and their optimum levels, and they were optimized by the RSM tool. RSM results show that the cell voltage, temperature, and interaction between the cell voltage and temperature significantly affect PEM electrolyzer cell performance.

Mechanical degradation of the MEU and the gas diffusion layer (GDL) is one of the main problems affecting the lifespan of the PEM electrolysis cell. Any structural damage to the electrolyzer cell components will adversely affect the mass transfer process and cell performance. As the clamping force increases, cell performance increases, but when it exceeds the optimum value, GDL permeability decreases, and cell performance may decrease. This thesis analyzes the effect of the clamping torque used for the PEM electrolyzer assembly on the cell components. Water flow rate, clamping torque, and cell voltage, which can significantly affect cell performance, were defined as input factors of the experimental system and optimized with RSM. Statistical results show that the water flow rate is an essential factor in the hydrogen flow rate, and the cell voltage, torque, and cell voltage-torque interaction significantly affect the current. All performance tests have been performed at a temperature of 80°C . From the optimization results, the maximum current and hydrogen flow rates of the PEM electrolyzer were obtained as 23.821 A and 189.972 ml/min , respectively.

The three-dimensional model geometry of the experimental PEM electrolyzer was developed in SpaceClaim software, and the material properties of each component were defined in the program. The mesh structure of the model was created in ANSYS Mechanical Mesh with the hex-dominant mesh method; then, the mathematical model was transferred to ANSYS Mechanical for numerical analysis. Three different clamping torques of 3 , 6.5 , and 10 Nm were applied to the PEM electrolyzer anode endplate, and the von Mises stresses and deformations generated on the MEU were numerically analyzed using the finite element method (FEM). Pressure-sensitive films were placed instead of the MEU, described as the PEM electrolyzer heart, and tested at three different values of clamping torques. Finally, numerical and experimental results were compared with each other, and it was seen that the results agreed with

each other. The red intensity in the center of the pressure-sensitive films has been observed to be relatively low, and the bipolar plate channel design is less visible. This indicates that the pressure values are lower in the center of the pressure-sensitive film. When the clamping torques are 3, 6.5, and 10 Nm, respectively, the maximum stress values produced on the MEU are 34.891, 75.597, and 116.3 MPa, respectively.





1. GİRİŞ

Günümüzde enerji kaynaklarının büyük bir çoğunluğu fosil yakıt kaynaklarından karşılanmaktadır. Teknolojik gelişmeler, dünya nüfusunun hızlı artışı ve sanayileşme, tüketilen enerji miktarının artmasına neden olmaktadır. Küresel ekolojik güç sorunları ve artan enerji ihtiyacı, yenilenebilir enerji kaynaklarının (RES) kullanımını zorunlu kılmaktadır [1-3]. Bu bakımdan temiz ve verimli bir enerji taşıyıcısı olan hidrojen, dünyanın enerji ihtiyacı ve sera gazı emisyonlarının en aza indirilmesi için ideal bir adaydır. Son yıllarda hidrojenin sessiz ve çevre dostu çalışması, yüksek kalorifik değeri ve yüksek enerji verimi gibi diğer yakıt türlerine göre cazip avantajları bulunmaktadır [4,5]. Bu özellikler hidrojeni enerji santralleri, yakıt pilli elektrikli araçlar ve pistonlu içten yanmalı motorlar için üstün bir enerji taşıyıcısı haline getirir. Hidrojen gazı elektroliz, termokimyasal su ayrıştırma ve fotoelektroliz kullanılarak üretilir [6]. Günümüzde hidrojen üretim teknolojisi oldukça gelişmiştir ve ticari olarak mevcuttur. Suyun elektrolizi, sürdürülebilir enerji kaynağı kullanarak hidrojen üretiminin en işlevsel yöntemidir. Yeşil hidrojen üreticisi olarak bilinen PEM elektrolizörleri sıfır emisyonlu, verimli ve daha yüksek performanslı hidrojen üretimi için idealdir. PEM su elektrolizörleri, membran olarak ince, katı iyon iletken bir polimer kullanır ve suyu elektrikle hidrojen ve oksijen gazlarına ayırır. Elektrotlar arasından akımın geçmesiyle katot elektrotunda hidrojen gazı, anot elektrotunda ise oksijen gazı üretilir [7]. PEM elektrolizörlerinin yüksek akım yoğunluklarında güvenli bir şekilde çalışabilmesi, alkali elektrolizörlere göre önemli bir avantajdır. PEM elektrolizörde kostik membran kullanılmaz ve daha yüksek verime (%70-80), yüksek saflıkta hidrojen üretimine ve kompakt sistem tasarımına sahiptir [8,9]. En kritik dezavantaj, PEM elektrolizörünün imalatında yüksek maliyetli perflorlu membranların ve katalizörlerin kullanılmasıdır. PEM elektrolizör sistemi hidroelektrik, fotovoltaik panel, rüzgar gibi yenilenebilir bir enerji kaynağı ile entegre edilmiş ekonomik bir sistem değildir. Bilim insanları, sistem performansını iyileştirmeye yönelik çalışmalar yapılması halinde sistem maliyetinin 2030 yılına kadar azaltılabileceğini öngörüyorlar [10]. Yüksek performans elde etmek için elektrolizör bileşenleri değiştirilebilse de, çalışma parametreleri şüphesiz değiştirilebilir. Sonuç olarak, PEM elektrolizörün

alıřma sıcaklıęı, su akıř hızı, sıkıřtırma torku, hcre voltajı ve alıřma basıncı gibi parametrelerin kesinlikle deęiřtirilmesi ve optimize edilmesi gerekir. Bu parametrelerden sıkıřtırma torku, elektrolizr hcresi performansını ve bileřenlerinin yapısal davranıřını nemli lde etkiler. Sıkıřtırma torkunun belli bir seviyenin altında olması sızdırmazlık sorununa neden olabilir. Elektrolizr hcresinin gvenli alıřmasının ilk řartı gaz/su sızdırmazlıęıdır. Sıkıřtırma torkunun belirli bir seviyenin zerinde olması, gaz difzyon katmanlarının gzeneklilik ve geirgenlik yapısına zarar vererek hcre performansını olumsuz ynde etkileyebilir [11-13]. Sıkıřtırma torkunun elektroliz hcresinin yapısal zelliklerine gre optimize edilmesi gerekmektedir. Optimum montaj yk, yksek temas direncini azaltır ve suyun elektroliz hcresinin anot tarafında homojen bir řekilde daęıtılmasını saęlar. Dięer bir parametre olan su akıř hızı, PEM elektrolizrn operasyonel sreleri iin kritik bir neme sahiptir. Su akıř hızı arttıka elektrokimyasal reaksiyonlar nedeniyle oksijen kabarcıklarının oluřum hızı artar [14]. Bir sre sonra oksijen kabarcıkları PEM elektrolizrn anot tarafında birikerek suyun tařınımını engeller ve daha yksek oranda ktle tařınım kayıplarına neden olur. Elektrolizr soęutmasının ve elektrokimyasal reaksiyonun srdrlebilirlięi iin su akıř hızının belirli bir sınırın zerinde olması gerekir. Tez kapsamında incelenecek proses parametrelerinden bir dięeri hcre voltajıdır. Hcre voltajı, elektrolizr hcresinin ařırı voltajı ile tersinir hcre voltajının toplamına eřittir. Membranın iyon tařınım direnci ve katalizr aktivitesi esas olarak ařırı voltajı etkiler. Daha yksek akım yoęunluklarında hcrenin alıřma voltajı veya g tketimi artacaktır [15]. PEM elektrolizrn elektrokimyasal performansını etkileyen bir dięer proses/alıřma parametresi ise sıcaklıktır. Sıcaklık arttıka membran iletkenlięi artar, bu da elektrokimyasal reaksiyon kinetięini ve hcre performansını arttırır. Yksek sıcaklıklar altında alıřan PEM elektrolizrlerin zamanla membran ve katalizrlerinde bozulmalar meydana gelecek, bu da PEM elektrolizr verimini olumsuz etkileyecektir [16]. Bu yzden optimum sıcaklık deęerlerinde alıřmak nemlidir. Tez kapsamında elektrolizr performans testlerinin yapıldıęı test dzeneęi yksek basınlarda alıřmaya uygun olmadıęından tm deneyler 1 bar basınta gerekleřtirilmiřtir. Tezin ilk blmnde PEM elektrolizrn anot bipolar plakasındaki ift fazlı akıř olayı detaylıca incelenmiřtir. Literatrde bu konuyla ilgili ok az alıřma bulunmaktadır. zellikle ncelikli olarak geliřtirilen modeller tek fazlı, karar durum (steady state) rejimindedir. Tezin ilk blm, kararsız (unsteady) kořullarda hesaplamalı akıřkanlar dinamięi ile analiz edilen bir PEM

elektrolizörün üç boyutlu anot akış alanındaki iki fazlı akış olgusunu sunmaktadır. Geleneksel paralel akış alanı plakasındaki kanal sayısı artırılarak basınç düşüşleri, hız dağılımları ve oksijen gaz dağılımları incelenmiştir. PEM yakıt pilleri yapısal olarak PEM elektrolizörlerine benzer ancak çalışma süreçleri tamamen farklıdır. PEM yakıt pilleriyle karşılaştırıldığında literatürde PEM elektrolizörleri üzerine yapılan çalışma sayısı oldukça azdır. PEM elektrolizör çalışmalarının çoğu, yüksek verimli bir PEM elektroliz sisteminde uygun katalizörün geliştirilmesine dayanmaktadır [17-20]. Literatürde çalışma parametrelerinin elektrolizör performansı üzerindeki etkisini optimizasyon yaklaşımıyla inceleyen ve farklı sıkıştırma torklarında membranda oluşan mekanik gerilim ve deformasyonların sonlu eleman yöntemiyle (FEM) analizlerini araştıran bir çalışmaya rastlanılmamıştır. Yakıt pilinde anot ve katot bileşenleri aynı olduğundan simetrik sınır koşulundan faydalanılabilir ve gerçek bir yakıt pilinin yarısı daha az elemanla simüle edilebilir. Ancak mevcut bir elektrolizör hücresinin yapısı simetrik olmadığından tam bir model simülasyonu daha karmaşık olacak ve dolayısıyla hesaplama yükü ve simülasyon süresi artacaktır. Öte yandan sayısal modelin tamamından elde edilen sonuçlar çok daha hassas ve doğru olacaktır. Bu tez çalışmasında su akış hızı, sıcaklık, hücre voltajı ve sıkıştırma torku dikkate alınarak çalışma parametrelerinin PEM elektrolizör performansı üzerindeki etkisi deneysel olarak araştırılmıştır. Maksimum hücre performansına ulaşmak için optimum çalışma koşulları belirlenmiş ve önerilen sistemi değerlendirmek ve optimize etmek için Taguchi ve Yanıt Yüzey (RSM) metodolojileri uygulanmıştır. Ayrıca deney hücresinin model geometrisi SpaceClaim'de geliştirilmiş, sonlu eleman yöntemiyle tüm analizleri ANSYS Mechanical'da yapılmış ve her bir bileşenin mekanik davranışları simüle edilmiştir. Tezin son aşamasında, 9 cm² aktif alana sahip tek bir hücreden oluşan PEM elektrolizörün elektrokimyasal performans optimizasyon sonuçları ve mekanik simülasyonu sunulmuş ve tartışılmıştır. Bu tezin sonuçları, yüksek hücre performansına sahip verimli bir PEM elektrolizör hücresi veya yığını tasarlamak veya üretmek isteyen PEM elektrolizör üreticileri, mühendisleri ve akademisyenlerin ilgisini çekecek ve yol gösterecektir.

1.1. Hidrojen

Periyodik tablonun ilk sırasında bulunan, bir elektron ve bir protondan oluşan hidrojen (H₂) doğada en bol bulunan renksiz, kokusuz, yanıcı, 1.00794 g/mol'lük atomik kütlesi ile en hafif ve en basit elementtir [21,22]. Hidrojenin fiziksel özellikleri Tablo 1.1'de

verilmiştir. Yıllık yaklaşık olarak 87 milyon ton hidrojen, yenilenebilir (örn. Su ve biyokütle) ve yenilenemez (örn. Kömür ve doğal gaz) enerji kaynaklar da dahil olmak üzere çeşitli hammadde kaynaklarından üretilmektedir [23,24].

Tablo 1.1. Hidrojenin genel özellikleri [25].

Özellik	Değer
Hidrojenin sembolü	H
Toksidite	Zehirli olmayan
Atom numarası	1
Atomik kütlesi	1.008 g/mol
Faz	Gaz
Yoğunluk	Gaz: 0.089 g/l, Sıvı: 0.07 g/cm ³
İyonlaşma enerjisi	13.5989 eV
Erime ve kaynama noktası	-259.14°C, -252.87°C
Alt ısııl değeri (AID)	118.8 MJ/kg
Adyabatik alev sıcaklığı	2107°C
Havada tutuşabilirlik aralığı	% 4-75
Laminer alev hızı	3.06 m/s
Alevlenme noktası	-253°C
Kendiliğinden tutuşma sıcaklığı	585°C
Araştırma oktan sayısı (RON)	>130
300 K’de ısııl iletkenliği	0.182 W/mK
Havada difüzyon katsayısı	0.61 cm ² /s

Küresel olarak hidrojenin büyük bir çoğunluğu fosil yakıt hammadde kaynaklarından üretilmektedir. Günümüzde hidrojenin yaklaşık dörtte üçü doğal gazdan buhar-metan reformasyonu yöntemiyle elde edilmektedir. Tablo 1.2’de gösterildiği gibi hidrojen; kullanılan enerji kaynağı, çevresel faktörler ve hidrojen üretim yöntemine bağlı olarak sırasıyla mavi, gri, kahverengi, siyah ve yeşil gibi farklı renk kodlarında sınıflandırılabilir. Mavi hidrojen doğal gazın buhar reformasyonundan üretilmektedir, işlem sonucunda ürün olarak hidrojen (H₂) ve karbondioksit (CO₂) gazları ortaya çıkmaktadır. Üretilen karbondioksit gazının büyük bir oranı (%85-95) endüstriyel

karbon yakalama ve depolama teknikleri kullanılarak genellikle yer altında depolanır [26]. Gri hidrojen üretimi mavi hidrojen üretim işlemine oldukça benzerdir, ancak üretilen karbondioksit gazı tutulmaz, doğrudan atmosfere salınır [27]. Günümüzde oldukça yaygın olarak kullanılan kahverengi hidrojen, linyit kömürünün gazlaştırma işleminden üretilmektedir, ancak her ton hidrojen üretimi başına yaklaşık 10-12 ton karbondioksit salınımı söz konusudur. Siyah hidrojen, kömürün gazlaştırma işleminden sonra elde edilir, işlem sonucunda ürün olarak hidrojen özel membranlar veya hidrojen absorblayıcı vasıtasıyla diğer gazlardan ayrıştırılmaktadır ve kalan gazlar atmosfere salınmaktadır. Yeşil hidrojen, suyun elektroliz işleminden sonra elde edilir, ürün olarak hidrojen ve oksijen gazları oluştuğundan sıfır karbon emisyonlu işlem olarak tanımlayabiliriz.

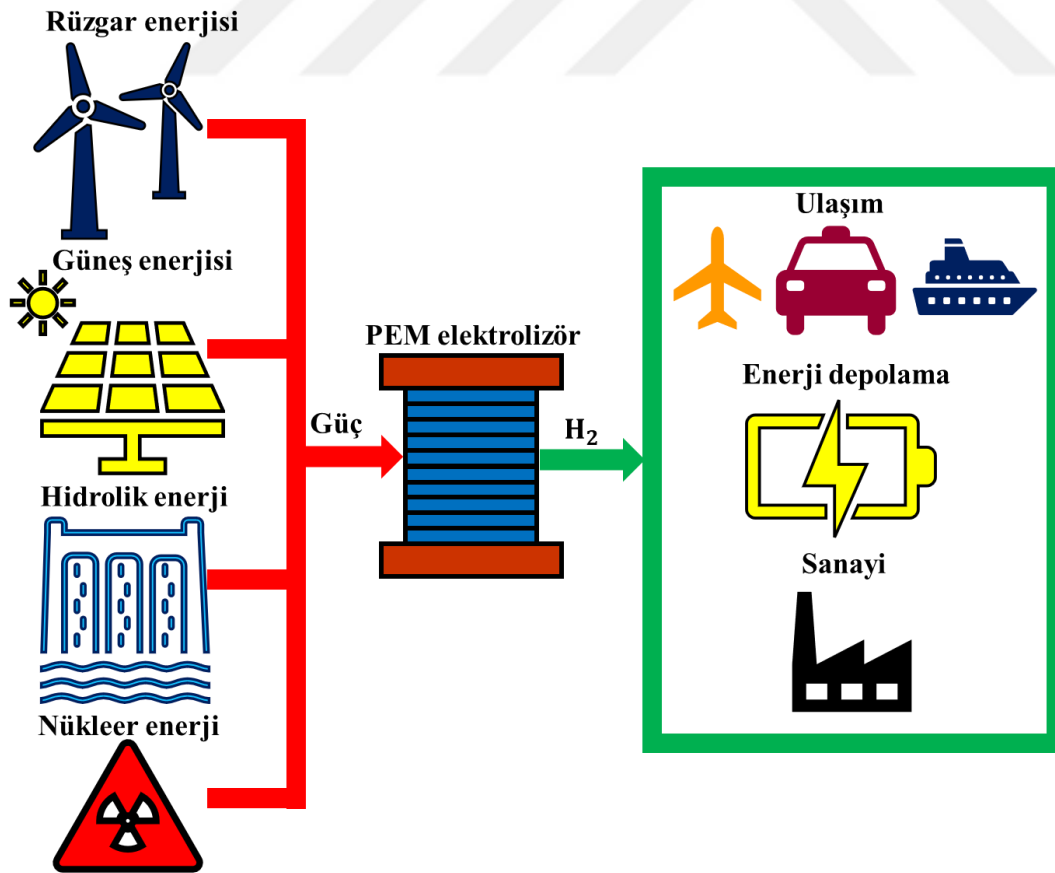
Tablo 1.2. Hidrojen renk kodları, üretim teknolojileri, maliyetleri ve karbondioksit emisyonları [28].

Hidrojen rengi	Üretim Teknolojisi	Kaynak	Ürünler	Maliyet (\$ kg/H ₂)	Karbondioksit emisyonlar
Mavi	Buhar reformasyonu+karbon yakalama	Doğal gaz	H ₂ +CO ₂	1.5-2.9	Düşük
Gri	Buhar reformasyonu	Doğal gaz	H ₂ +CO ₂	1-2.1	Orta
Kahverengi	Gazlaştırma	Linyit kömürü	H ₂ +CO ₂	1.2-2.1	Yüksek
Siyah	Gazlaştırma	Siyah kömür	H ₂ +CO ₂	1.2-2.1	Yüksek
Yeşil	Elektroliz	Su	H ₂ +O ₂	3.6-5.8	En düşük

1.2. Hidrojen Kullanım Alanları

Hammadde olarak hidrojenin başlıca kullanım alanları ulaşım, havacılık, kimya, gıda endüstrileri, petrol rafinerileri, cam işleme, gübre üretimi, ilaç sektörü, yarı iletken üretimi ve enerji santrallerinde soğutucu akışkan gibi kullanım amacına göre çeşitlilik göstermektedir [29]. Günümüzde hidrojen, fosil yakıtların kullanıldığı hemen hemen her uygulamada alternatif bir yakıt olarak kullanılabilir. Bununla birlikte hidrojenin yaygın ve pratik kullanımı üreticiden tüketiciye kadar sürdürülebilir dağıtım, akaryakıt

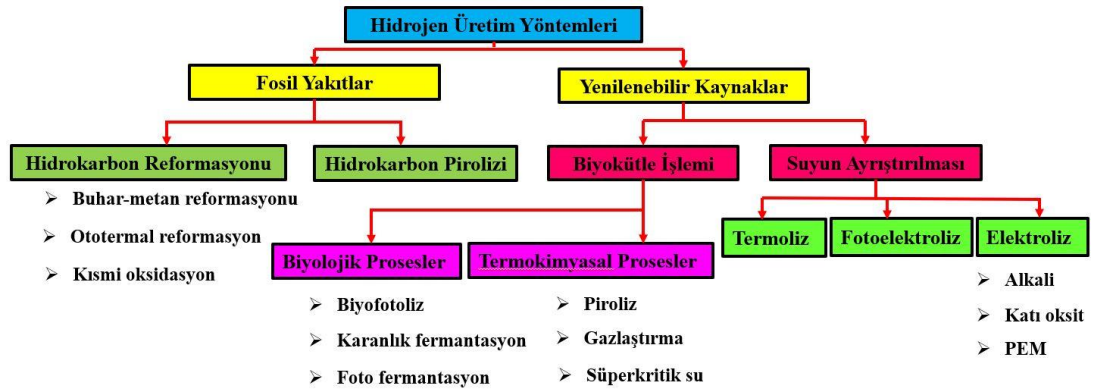
istasyonları, daha fazla destek tesisi ve daha birçok yeni kavram ve teknolojiyi kesinlikle getirecektir [30]. Hidrojen yakıt pilli araçların rekabet gücü yakıt pil maliyetlerine ve yakıt ikmal istasyonlarına bağlıdır. Ulaşım sektöründe hidrojen özellikle yakıt pillerinde yaygın olarak kullanılmaktadır. Fosil yakıt rezervlerinin sınırlı olması, çevreye yaydıkları karbon emisyonlar her geçen gün insan ve çevre sağlığını olumsuz yönde etkilemektedir. Oldukça zararlı ve tehlikeli bu emisyonlardan kurtulmanın tek yolu elektrikli motorları kullanmaktır. Elektrik motoru ile çalıştırılan tüm araçlar çevre dostudur ve genellikle elektriğini yakıt pillerinden ve bataryadan karşılamaktadır [31]. Hidrojen dışındaki tüm yakıtlar yanma reaksiyonuyla farklı enerji formlarına dönüştürülür. Ancak elektrokimyasal reaksiyonlar hidrojeni doğrudan istenen enerji formuna (elektrik enerjisi) dönüştürebilir. Ayrıca hidrojenin yüksek kullanım verimliliği, temiz ve güvenilir yapısı onu özellikle ulaşım sektöründe vazgeçilmez ve cazip bir yakıt haline getirecektir [32]. Ayrıca binalarda doğal gaz şebekelerinde ve gaz türbin soğutmasında kullanım alanları mevcuttur. Nükleer ve yenilenebilir enerji kaynakları dikkate alınarak hidrojen enerjisinin çeşitli uygulama alanlarının şematik gösterimi Şekil 1.1’de verilmektedir.



Şekil 1.1. Hidrojen enerjisinin uygulama alanları.

1.3. Hidrojen Üretim Yöntemleri

Hidrojen, çeşitli birincil enerji kaynaklarından ve farklı üretim teknolojilerinden elde edilmektedir. Küresel hidrojen üretiminin yaklaşık %95'i kömür, doğal gaz ve petrol gibi yenilenemeyen enerji kaynaklarından gelmektedir. Hidrokarbon esaslı yakıtlardan hidrojen üretimi ile atmosfere salınan karbondioksit gazı artacak ve sera etkisine neden olacaktır. Güneş enerjisi, rüzgar ve biyokütle yoluyla üretilen hidrojen, kademeli olarak fosil yakıtların yerini alacak en iyi adaydır [33]. Hidrojen üretmek için fosil yakıtlar yerine biyokütle kullanmak, atmosfere salınan net CO₂ miktarını azaltır çünkü biyokütle gazlaştırıldığında yayılan CO₂ daha önce emilir ve büyüyen bitkilerde fotosentez yoluyla sabitlenir. Hidrojen, içten yanmalı bir motorda doğrudan yakıt olarak kullanılabilir ve hızlı yanma hızı, toksik olmaması ve uygun yüksek oktan sayısı gibi olağanüstü özelliklere sahiptir ve bu da onu ulaşım yakıtı için makul bir aday yapar [34]. Günümüzün hidrojen üretim yöntemlerine genel bir bakış Şekil 1.2'de sunulmaktadır. Benzin, amonyak ve metanol gibi içeriğinde bir miktar hidrojen bulunduran yakıtlar yakıt işleme teknolojileriyle hidrojen açısından zengin bir akışa dönüştürülebilir. Günümüzde metanın işlenmesiyle hidrojen üretimi ticarileşmiş ve yaygın hale gelmiştir.



Şekil 1.2. Hidrojen üretim yöntemleri.

1.3.1. Fosil yakıtlardan hidrojen üretimi

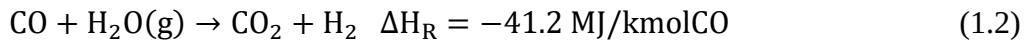
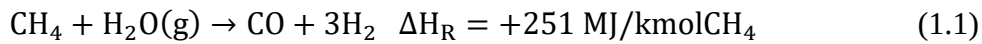
Hidrokarbon esaslı yakıtlardan hidrojen üretimi için üç temel yöntem vardır. Bu yöntemler buhar-metan reformasyonu (SMR), kısmi oksidasyon (POX) ve ototermal reformasyon (ATR) şeklinde sınıflandırılabilir. Tablo 1.3'de bu yöntemlerin avantaj ve dezavantajları özetlenmiştir.

Tablo 1.3. Hidrokarbon reformasyon teknolojilerinin karşılaştırılması.

Teknoloji	Avantajları	Dezavantajları
Buhar-metan reformasyonu	Oldukça geniş endüstriyel deneyim Oksijen gerektirmez Düşük işlem sıcaklıkları Hidrojen üretimi için en iyi H ₂ /CO oranı	Yüksek hava emisyonları
Ototermal reformasyon	Kısmi oksidasyondan düşük işlem sıcaklığı Düşük metan kayması	Sınırlı ticari deneyim Hava veya oksijen gerektirir
Kısmi oksidasyon	Azalan kükürt giderme gereksinimi Katalizör gerektirmez Düşük metan kayması	Düşük H ₂ /CO oranı Yüksek işlem sıcaklıkları

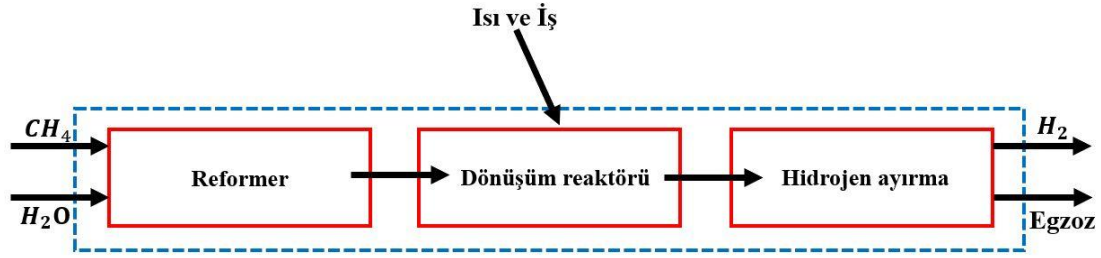
1.3.1.1. Buhar-metan reformasyonu

En basit hidrokarbon molekülü olan metan, 55.5 MJ/kg enerji yoğunluğuna sahiptir ve reformasyon işleminde 3-25 bar basınç aralığında yaklaşık 700-1000 °C’de buharla reaksiyona girer [35]. Hidrokarbon esaslı yakıt olan metanın (CH₄) su buharı ile reaksiyona girmesi sonucu H₂ ve CO gazların oluştuğu işlemdir. Genellikle yüksek sıcaklıklarda (900-1200 K) ve basınçlarda (5-25 bar) çalışan nikel bazlı bir katalizör üzerinden gerçekleşen endotermik bir reaksiyondur. İdeal buhar-metan reformasyon reaksiyonu Denklem 1.1’de verilmiştir. Sentez gazı olarak tanımlanan karbonmonoksit ve hidrojen gaz karışımı reformerden çıkar ve bir su-gaz dönüşüm reaktörü zehirli olan CO’yu CO₂ ve H₂’ye dönüştürür (Denklem 1.2).



Hidrojen ayırma yöntemlerinden oldukça yaygın olarak kullanılan basınç salımlı adsorpsiyon (PSA) yöntemiyle yüksek saflıkta hidrojen (yaklaşık olarak %99)

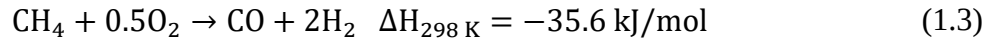
üretilen [36]. Şekil 1.3, buhar-metan reformasyon işleminin şematik diyagramını göstermektedir.



Şekil 1.3. Basitleştirilmiş buhar-metan reformasyon işlem şeması.

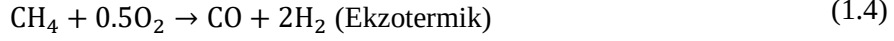
1.3.1.2. Kısmi oksidasyon

Sanayide sentez gaz üretiminde buhar metan reformasyonu yaygın olarak kullanılsa da standart çalışma koşulları karbon ayrışması, patlama riski ve katalizör sinterlemeye sebep olabilir. Sonuç olarak metan veya doğalgazın stokiyometrik miktarda saf oksijen ile kısmi oksidasyonu alternatif bir çözüm olarak önerilmiştir. Son dönemlerde yüksek sıcaklıklı yakıt pillerinde kısmi oksidasyon reaktörleri oldukça ilgi görmektedir. Buhar metan reformasyon işleminden daha hızlı bir reaksiyon olan metanın kısmi oksidasyon işlemi ekzotermiktir ve Denklem 1.3'te ifade edilmiştir. Kısmi oksidasyonda kükürt giderme işlemine ihtiyaç yoktur [37].



1.3.1.3. Ototermal reformasyon

Ototermal reformasyon, tek bir ototermik reaktörde kısmi oksidasyon ve buhar-metan reformasyon işlemlerinin birleşiminden oluşmaktadır. Doğal gaz önce katalitik bir fırında oksitlenerek sentez gazına ($\text{CO} + \text{H}_2$) dönüşür, ortaya çıkan zehirli karbonmonoksit gazı su varlığında katalitik dönüşüm reaksiyonu ile karbondioksit ve hidrojen gazları oluşturmak üzere reaksiyona girmektedir. Oluşan karbondioksit gazı endüstride yaygın olarak bilinen sulu amin-çözücü (AAS) yöntemiyle absorbe edilir. Ototermal reformasyon işleminde mükemmel C-C bağ kırma aktivitesi ve düşük maliyetinden kaynaklı genellikle nikel bazlı katalizör kullanılmaktadır. Yanma ve reformasyon reaksiyonları aşağıdaki denklemlerde gösterilmektedir [38].



1.3.2. Yenilenebilir kaynaklardan hidrojen üretimi

Fosil yakıtların hızla azalması ve oluşturdıkları emisyonların zararlı olmasından kaynaklı yakın gelecekte yenilenebilir teknolojilerin payının önemli ölçüde artacağı beklenmektedir. Yenilenebilir enerji kaynaklarından hidrojen üretmek için suyun ayrıştırılması ve biyokütle tabanlı teknolojilerle hidrojen üretimi dahil olmak üzere ilerleyen bölümlerde bahsedilecek birçok yöntem bulunmaktadır.

1.3.2.1. Biyokütle işlemi

Üç ana biyokütle kaynağı türü, enerji üretim kapasiteleri nedeniyle güvenli stok olarak kullanılma potansiyeline sahiptir. Birinci tür, tarımsal artık, hasat ve hayvan atıklarından oluşmaktadır. İkincisi, hasat edilen ağaçlardan ve çayırardan kaynaklanan orman atıkları, üçüncüsü ise ticari ve toplumsal atıklardır [39]. Biyokütle enerjisi, hayvan ve bitki kaynaklı tamamen doğal malzemelerden üretilen yenilenebilir enerjidir. Tükenmez bir kaynak olması nedeniyle Amerika Birleşik Devletleri'nin birincil enerji kaynağı olan hidroelektrik enerjiden sonra ikinci sırada yer alan yenilenebilir enerji kaynağıdır. Hidrojen üretimi için başlıca biyokütle teknolojileri gazlaştırma, piroliz ve süperkritik sudur.

1.3.2.2. Suyun ayrıştırılması

Su, dünyanın en bol bulunan ve en çok tüketilen ham maddelerinden biridir; hidrojen, elektroliz, termoliz ve foto-elektroliz gibi su ayrıştırma işlemleriyle üretilir. Yenilenebilir enerji kaynaklarından talep edilen enerji sağlandığında üretilen hidrojen insanlığın kullanabileceği temiz bir enerji taşıyıcısı olacaktır.

- **Elektroliz**

Elektrik akımı kullanarak suyu oksijen ve hidrojen bileşenlerine ayırmanın en eski ve en iyi bilinen yöntemi suyun elektrolizidir. Suyun elektrolizi bir elektroliz ünitesinde veya elektrolizörde gerçekleşir. Su elektrolizörleri saf sudan en az %99.9 saflıkta hidrojen üretmek için yaygın olarak kullanılan elektrokimyasal cihazlardır. Geliştirilen ve bugüne kadar yaygın olarak kullanılan elektroliz teknolojileri alkali, proton değişim

membranı (PEM) ve katı oksit elektroliz hücreleridir. Bu sistemlerde farklı çalışma koşulları ve malzemeler kullanılmasına rağmen çalışma prensipleri aynıdır. Suyun elektrolizi için en eski teknoloji alkali elektroliz işlemidir. Bunlardan katı oksit elektroliz işlemi ise araştırma-geliştirme (ARGE) aşamasındadır [40]. Alkali elektroliz teknolojisiyle karşılaştırıldığında, PEM elektroliz işlemi, kesintili yapıya sahip yeni bir enerji kaynağıyla entegrasyonu kolaylaştıran dalgalanmalara hızlı yanıt verme avantajını sunar. PEM elektroliz teknolojisinin daha az bakım gerektirmesi ve yüksek kalitede gaz sağlaması dağıtık sistemlerde kullanımını da kolaylaştırmıştır [41].

- **Termoliz**

Termoliz işleminde suyu hidrojen ve oksijene ayırmak için ısı kullanılmaktadır. Termoliz işlemi 500-1800°C'lik bir sıcaklık aralığı gerektirir ve en az üç adım içerir: hidrojen üretimi, oksijen üretimi ve malzemelerin rejenerasyonu. Suyun ayrıştırılmasında, çok daha düşük sıcaklıklarda (genellikle 1000 °C'nin altında) hidrojen ve oksijen üretimini gerçekleştirmek için termokimyasal döngüler kullanılır [42].

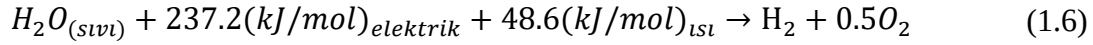
- **Fotoelektroliz**

Fotoelektroliz, suyu doğrudan hidrojen ve oksijene ayırmak için güneş ışığını kullanır. Bir fotoelektrokimyasal hücrede UV ışığı kullanarak hidrojen üretme olasılığı ilk kez 1972'de Fujishima ve Honda tarafından yarı iletken malzeme titanyum dioksit (TiO₂) kullanılarak gösterilmiştir. O zamandan beri, hidrojen üretiminde fotoelektrokatalitik elektrotlar için birçok yarı iletken malzeme araştırıldı. Fotoelektroliz işlemi, yarı iletken elektrotların yüksek maliyeti, düşük verimliliği ve düşük kararlılığı nedeniyle ticarileşmeden hala uzaktır [43].

1.4. Elektrolizörler

Suyun elektrokimyasal dönüşümle hidrojen ve oksijene ayrıştırılması işlemi Denklem 1.6'da verilmiştir [44]. Elektrolizördeki operasyonel süreçler yakıt piline zıttır. Yakıt pillerinde hidrojen ve oksijen reaksiyona girerek elektrik ve su üretirken, elektrolizörde ise elektrik enerjisi suyu oksijen ve hidrojene ayırmak için kullanılır. Genel olarak elektrolizörler, kullanılan elektrolit türlerine göre polimer elektrolit membranlı elektrolizör (PEMEL), alkali elektrolizör (AEL) ve katı oksit elektrolizör

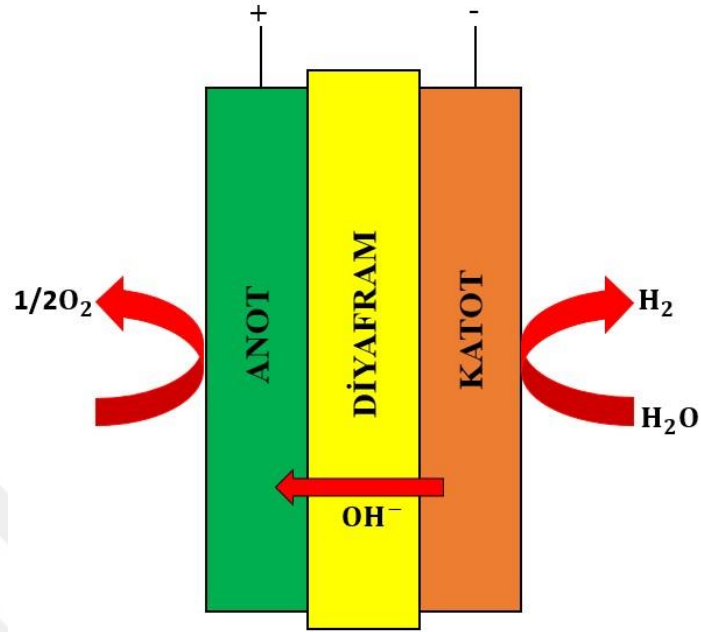
(KOEL) olmak üzere üç kategoriye ayrılabilir. Aşağıda bu elektrolizörlerin her biri kısaca açıklanacaktır.



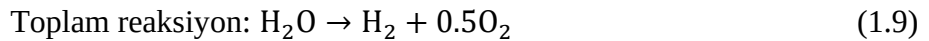
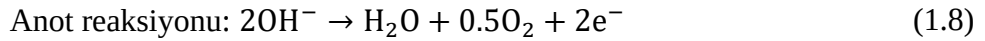
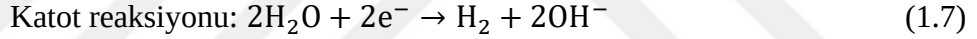
1.4.1. Alkali Elektrolizörler (AEL)

Alkali su elektrolizi en eski, ticari olarak en gelişmiş ve en ucuz su elektroliz teknolojisidir. Suyun alkali bir ortamda elektrolizi ilk kez 1789'da Troostwijk ve Deiman tarafından gerçekleştirilmiş, su dolu bir tüpe yerleştirilmiş iki altın tel aracılığıyla elektriği boşaltmak için elektrostatik jeneratör kullanılmış ve reaksiyona bağlı olarak gaz çıkışı gözlemlenmiştir. Hidrojen üretimi için oldukça köklü bir teknoloji olan alkali elektrolizörler MW elektrik gücü ölçeğine kadar elektroliz kurulumları ticari olarak mevcuttur [45]. Alkali elektrolizör hücreleri sıvı elektrolit olarak KOH veya NaOH sulu çözeltisi kullanır, düşük sıcaklıklarda (60-80°C) çalışmaktadır, elektrolit konsantrasyonu yaklaşık olarak %20-30'dur. Alkali elektrolizör sistemi alkali bir çözeltiye daldırılmış ve bir diyaframla ayrılmış bir çift elektrottan oluşmaktadır. Katotta, su molekülleri elektronlar tarafından hidrojene ve negatif yüklü hidroksit iyonlarına indirgenir. Anotta, hidroksit iyonları elektronları serbest bırakırken oksijen ve suya oksitlenir. OH⁻ iyonlarını taşımak, anot ve katodu ayırmak için bir asbest diyaframı kullanılmaktadır. Asbest toksik bir malzemedir, ayrıca gaz kabarcıklarına geçirgen olmasından dolayı alternatif diyafram malzemeleri geliştirilmiştir. Asbest bazlı gözenekli diyaframlar, sağlık tehlikeleri nedeniyle yasaklanmadan önce 1970'lerin ortalarına kadar onlarca yıl kullanılmıştır. Son dönemde yapılan araştırmalarda asbest diyaframına alternatif olarak anyon değiştirme membranları geliştirilmiştir. Alkali elektroliz işleminde üretilen hidrojen orta saflıktadır (yaklaşık olarak %99), üretilen gazdaki alkali sisin de uzaklaştırılması şarttır. Maksimum akım yoğunlukları 400 mA/cm²'den azdır, yaklaşık olarak % 60 verimlilikle hidrojen üretimi için güç tüketimi 4.5-5.5 kWh/Nm³'tür [46]. Elektrolizörün anot ve katot tarafları arasındaki basınç dengelenmezse hidrojen veya oksijen diyafram üzerinden nüfuz eder ve patlama riski oluşturabilir. Ayrıca, alkali elektrolizörler hızlı bir şekilde başlatılamaz ve yavaş bir yükleme tepkisine sahiptir. Uzun başlatma hazırlığı, alkali elektrolizörlerin yenilenebilir enerji kaynaklarının değişken doğasına uyum sağlamasını zorlaştırır. Bu nedenle, alkali elektrolizörler sabit bir güç girişi ile kullanılır. Alkali elektrolizörün şematik diyagramı Şekil 2.1'de

verilmiş, hücre içerisinde gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonlar aşağıdaki gibidir [47].



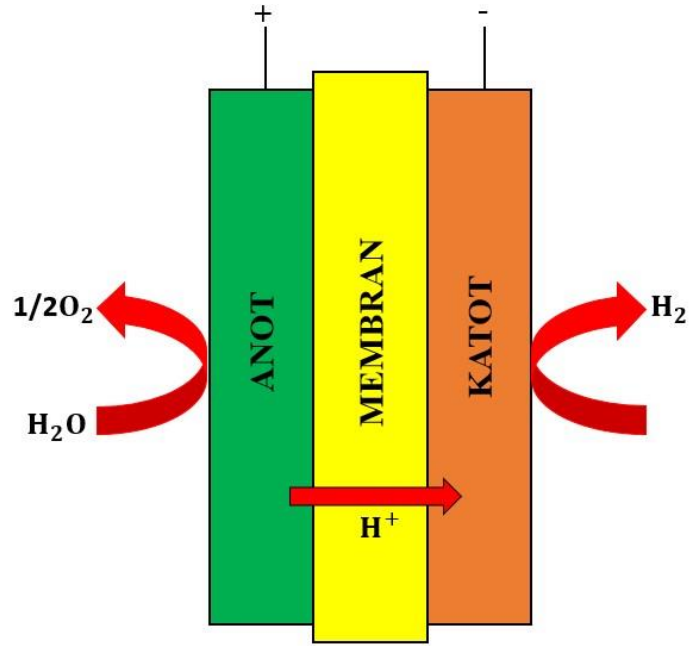
Şekil 1.4. Alkali elektrolizörün şematik gösterimi.



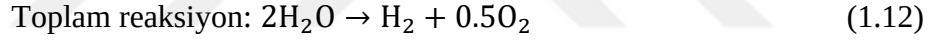
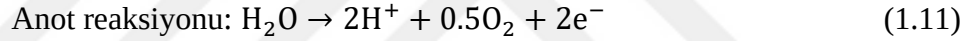
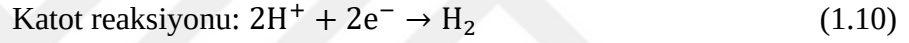
1.4.2. PEM elektrolizörler (PEMEL)

Suyun elektroliz işlemini gerçekleştirmek için ilk PEM tipi elektrolizör 1966 yılında General Electric tarafından alkali su elektrolizörlerindeki dezavantajların üstesinden gelmek için geliştirilmiştir. PEM su elektroliz teknolojisi PEM yakıt pili teknolojisine benzemektedir. Her iki teknolojiye de poliflorosülfonik asit malzeme membran kullanılmaktadır. Şekil 1.5'te gösterildiği gibi, bir PEM elektrolizör, aralarında bir zar bulunan anot ve katot olmak üzere iki bölmeye sahiptir. Polimer elektrolit membran (Nafion, fumaPem) kompakt sistem tasarımı, düşük gaz geçişi, yüksek proton geçirgenliği ve yüksek basınçlı çalışma sağlamaktan sorumludur. Tipik olarak PEM su elektrolizörleri yüksek akım yoğunluklarında (1-2 A/cm²) ve düşük işletme sıcaklıklarında (30-80°C) çalışabilmektedir [48]. Suyun elektroliz işlemini

gerçekleştirirler, elektrokimyasal reaksiyon sonucunda üretilen hidrojen ve oksijen gazları yaklaşık olarak %99.999 saflıktadır. PEM su elektrozörlerinde kostik bir membran kullanılmaz, bu yüzden alkali elektrolizörlere göre daha güvenilir olduğu söylenebilir. Hızlı yanıt, kompakt tasarım, yüksek çıkış basıncı ve yüksek verimlilik gibi üstün özellikler PEM elektrolizörleri gelecek vaat eden bir hidrojen üretim teknolojisi haline getirir. Tipik bir PEM elektrolizörün çalışma koşulları Tablo 1.4'te listelenmiştir. PEM elektrolizör sisteminin akım yoğunlukları alkali elektroliz sistemine kıyasla çok daha yüksektir. Bununla birlikte PEM elektrolizörlerin yaygınlaştırılmasında ve pratik olarak uygulanmasında karşılaşılan başlıca engel elektrokatalizör, akım toplayıcı ve bipolar plakaların yüksek maliyetli olmasıdır. Araştırmacılar, PEM elektrolizör maliyetinin düşürülmesi için elektrot malzemelerinde bazı iyileştirmeler yaptılar. Elektrokatalizörlerin etkinliğini artırmak, suyun ayrıştırılma performansını iyileştirmek için yaygın bir stratejidir. Katalitik aktivite, hücre performans analizinde önemli bir parametredir. Suyun elektroliz işleminde elektrokatalizörlerin kalitesini belirlemede bir diğer önemli parametre uzun sürede kararlılıktır. Literatürde PEM elektrolizörlerde nanoyapılı elektrokatalizör malzemeler üzerine çok sayıda çalışma yapılmıştır. RuO_2 ve IrO_2 anot elektrokatalizör malzeme olarak kullanılırken, katot elektrokatalizör malzeme olarak Pt kullanılmaktadır. Enerji verimliliğini ve elektrolizör kararlılığını iyileştirmek için yüksek aktivasyon, iyi dayanıklılık ve düşük maliyetli oksidasyon reaksiyonu için elektrokatalizörler üzerine araştırma gereklidir. Bu alandaki gelişmeler, hidrojen üretim maliyetini azaltabilir ve PEM su elektroliz teknolojisinin ticari gelişimini daha da hızlandırabilir. İridyum oksit bazlı elektrokatalizörleri sentezlemek ve performanslarını incelemek için önemli çabalar sarf edilmiştir. Elektrot maliyetini düşürmenin ve etkinliği artırmanın bir yöntemi, Ru, Sn ve Co gibi daha ucuz ikinci bir metal kullanmaktır. Bu nedenle, nano ölçekte morfolojiyi iyileştiren daha ucuz metallerin ve elektrot hazırlama yöntemlerinin kullanılması, OER'ye doğru elektrokatalizör performansında önemli gelişmelere yol açabilir. PEM elektrolizörlerde gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonlar aşağıda verilmiştir.



Şekil 1.5. PEM elektrolizörün şematik gösterimi.



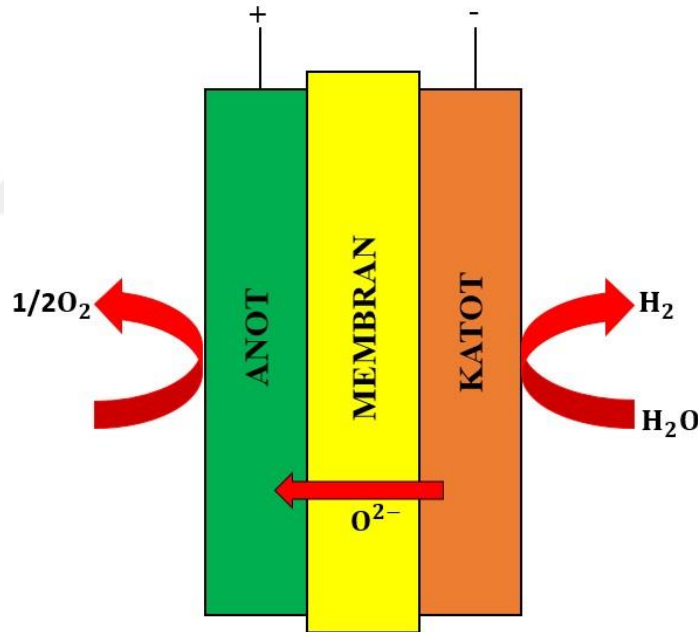
Tablo 1.4. Tipik PEM elektrolizör çalışma koşulları.

Çalışma koşulları	Değer	Birim
Hücre sıcaklığı	60-80	°C
Hücre basıncı	50-100	bar
Nominal akım yoğunluğu	<4	A/cm ²
Hücre voltajı	1.8-2.2	V
Güç yoğunluğu	<4.4	W/cm ²
Voltaj verimi ÜİD (%)	-	67-82
Sistemin özgül enerji tüketimi	kWh/Nm ³	4.5-5.5
Daha düşük kısmi yük aralığı (%)	-	0-10
Hidrojen üretim hızı (Yığın-sistem)	Nm ³ /h	400

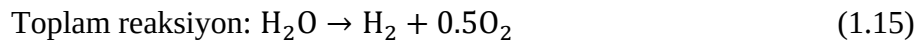
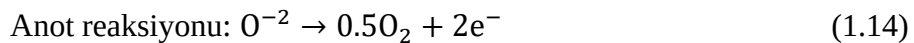
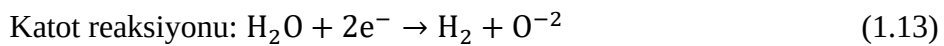
1.4.3. Katı oksit elektrolizörler (KOEL)

Katı oksit elektrolizörler, düşük sıcaklıklı elektrolizörler olarak bilinen PEM ve alkali elektrolizörlere kıyasla yüksek verimlilik sağlamak amacıyla yüksek sıcaklıklarda su buharının elektroliz işlemini gerçekleştiren teknolojinin adıdır. Katı oksit elektrolizör

çalışması için gerekli olan ısı endüstriyel atık ısı, rüzgar ve güneş enerjisi gibi dış kaynaklardan sağlanabilir [49]. Su dış devreden gelen elektronlarla elektrolizörün katot bölümünde indirgenir. Katotta oksit iyonları ve hidrojen gazı oluşur. Oksit iyonları seramik bir membran üzerinden anoda geçer ve burada oksijen gazı ve dış devre için elektronlar üretilmektedir. Katı oksit elektroliz hücresinin çalışma prensibi Şekil 1.6’da verilmiştir. Zorlayıcı ortam koşullarına dayanıklı olmadıklarından dolayı geliştirilmekte olan su elektroliz teknolojilerinden biridir. Düşük maliyetle hidrojen üretmede verimli olan katı oksit elektrolizörler elektrolit olarak seramik malzeme kullanırlar. Buhar-karbondioksit gaz kombinasyonu uygun bir katı oksit elektroliz teknolojisinde kullanılabilir. Alkali ve PEM teknolojilerinin aksine, katı oksit sistemleri 500 °C ile 1000 °C arasında değişen daha yüksek işletme sıcaklıklarında çalışabilir. Katı oksit elektrolizörlerde gerçekleşen kimyasal tepkimeler aşağıda verilmiştir.

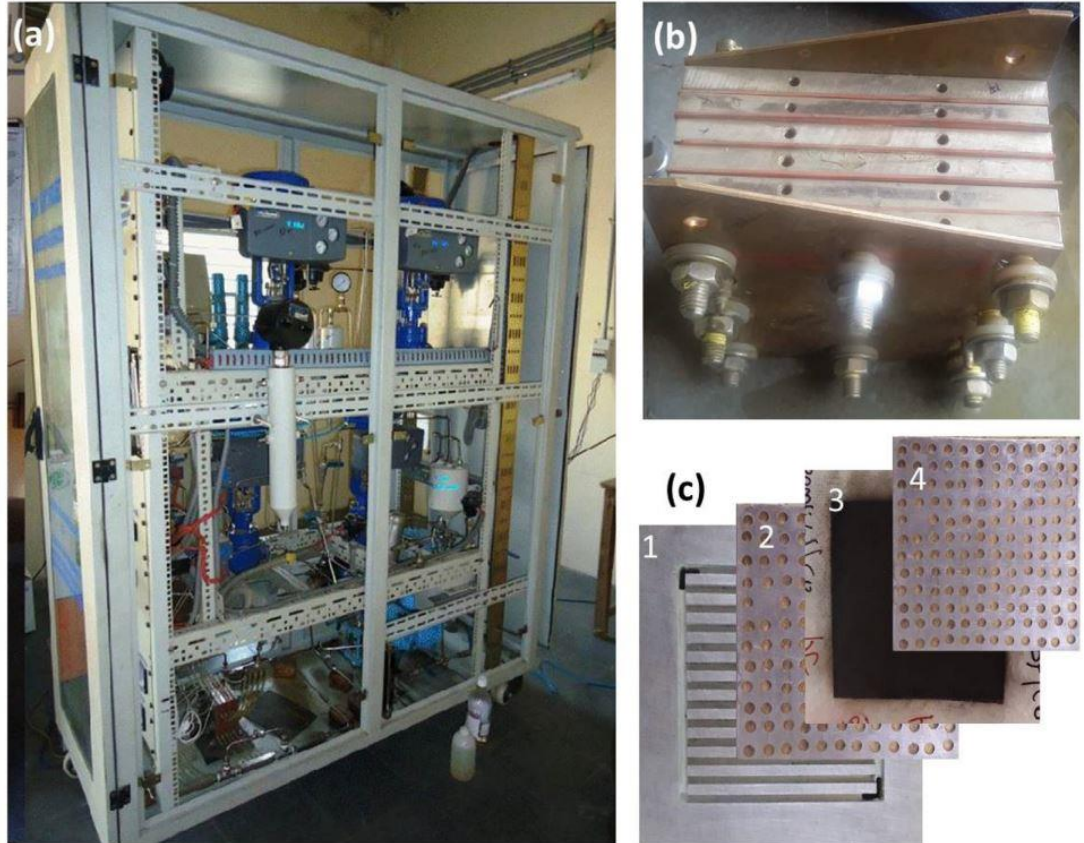


Şekil 1.6. Katı oksit elektrolizörün şematik gösterimi.



1.5. PEM Elektrolizör Hücre Bileşenleri

PEM su elektroliz hücresi membran elektrot ünitesi (MEÜ), akım toplayıcılar, bipolar plakalar, titanyum plaka-titanyum mesh grubu, ve uç plakalar olmak üzere beş temel bileşenden oluşmaktadır. PEM elektrolizör düzeneğinin şematik gösterimi Şekil 1.7'deki gibidir. Membran elektrot ünitesi (MEÜ), PEM elektroliz hücresini anot ve katot yarı hücrelerine ayırır.



Şekil 1.7. (a) Tipik PEM su elektrolizörünün genel görünümü (b) PEM hücre yığını (c) Hücre bileşenleri; 1-Bipolar plaka, 2-Anot akım toplayıcı, 3-MEÜ, 4-Katot akım toplayıcı [50].

1.5.1. Membran elektrot ünitesi

Membran elektrot ünitesi, toplam hücre maliyetinin yaklaşık % 24'ünü oluşturur; bir membran, iyonomer çözeltisi, anot ve katot elektrokatalizörlerinden meydana gelmektedir. Membran PEM su elektroliz hücresinin bel kemiğidir, tipik iyon geçirgen membranlar sırasıyla Nafion, Fumapem, Flemion ve Aciplex'tir. Bu membranların yüksek verim, iyi dayanıklılık, yüksek iyon geçirgenliği, yüksek mukavemet ve yüksek oksidatif kararlılığa sahip oldukları söylenebilir. Bunlar içinde en yaygın kullanılan membran malzemesi Nafion'dur (N115, N117, N212 vb.). Nafion; yüksek

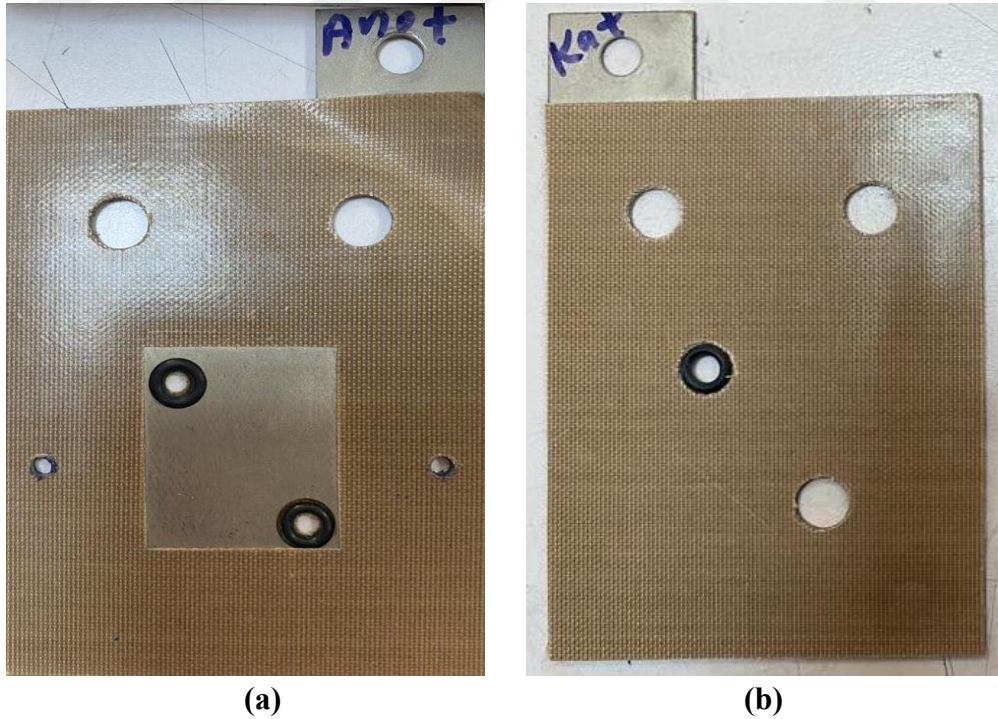
akım yoğunlukları (2 A/cm^2), yüksek dayanıklılık, yüksek proton iletkenliği ve iyi mekanik kararlılık özellikleri ile en çok tercih edilen malzeme haline gelmiştir. Birçok MEÜ üretim yöntemi olmasına rağmen en yaygın olarak kullanılanı CCM (Katalizör Kaplı Membran) yöntemidir. Bu yöntemde elektrokatalizör sulu harcı doğrudan membran yüzeyine kaplanır ve ardından $120 \text{ }^\circ\text{C}$ sıcaklıkta ve 60 kg/cm^2 basınçta sıcak preslenir. PEM elektrolizör hücresinde oksijen oluşum reaksiyonu anot elektrotunda gerçekleşir, tipik katalizör malzemesi $\text{RuO}_2/\text{IrO}_2$ 'dir. Hidrojen oluşum reaksiyonu katot elektrotunda gerçekleşir, katot katalizör malzemesi Pt/Pd bazlı asil metallerdir. İlk PEM su elektroliz araştırma makalesi 1973 yılında General Electric şirketinde Russell ve arkadaşları tarafından gerçekleştirilmiştir [51]. PEM elektroliz hücresinin yüksek akım yoğunlukları, yüksek gaz saflığı ve verimlilik gibi sayısız avantajı olmasına rağmen maliyetli olması önemli bir dezavantajdır. Elektrokatalizörler, su elektroliz yönteminin aktivasyon enerjisini azaltmak ve yük transfer hızını iyileştirmek için kullanılır. İyonomer çözeltisi, elektrot katmanlarından membrana iyon geçişini kolaylaştırır, böylece hücre omik kaybını azaltarak verimliliği artırır. Ayrıca iyonomer çözeltisi, katalizörün boyutsal olarak kararlı yapısını veren, elektrotların dayanıklılığını ve mekanik kararlılığını sağlayan bir bağlayıcı görevi görür. Tez çalışmasında performans testlerinin gerçekleştirildiği elektrolizörün MEÜ bileşeni Şekil 1.8'de gösterilmiştir. N115 Nafion malzemeden oluşan membranın anot tarafı iridyum, katot tarafı ise platin ile kaplanmıştır.



Şekil 1.8. Tez çalışmasında kullanılan membran elektrot ünitesi.

1.5.2. Akım toplayıcılar

Saf su PEM elektroliz hücresinin anot bölmesine pompalanır, bipolar plakalardan geçer ve akım toplayıcılar aracılığıyla yayılır. Saf su elektrot yüzeyine ulaşır ve suyun elektroliz işlemi gerçekleşir. Su molekülü oksijen, hidrojen iyonlarına ve elektronlarına ayrışır. Oksijen gazı elektrot yüzeyinden, akım toplayıcılardan ve bipolar plakalardan hücre dışına geri döndürülür. Hidrojen iyonları (protonlar) anot elektrot yüzeyinden membran boyunca katot tarafına hareket eder. Elektronlar akım toplayıcı ve bipolar plakadan katot tarafına doğru hareket ettirilir, katot elektrot yüzeyine ulaştıktan sonra protonlarla birleşerek hidrojeni oluşturur. Akım toplayıcılar PEM elektrolizörün genel mekanizması ve hücre verimliliği üzerinde önemli bir rol oynamaktadır. Membrana iyi bir mekanik dayanıklılık sağlayan akım toplayıcılar korozyona dayanıklı, asidik ortamdan dolayı iyi elektriksel iletkenliğe ve yüksek aşırı potansiyele sahip olmalıdır. Paslanmaz çelik, titanyum, bakır ve alüminyumdan yapılan metal bazlı akım toplayıcılar, yüksek elektrik iletkenlikleri nedeniyle PEM su elektroliz hücrelerinde yaygın olarak kullanılmaktadır [52]. Tez çalışmasında kullanılan deneysel PEM elektrolizör bileşenlerinden biri olan akım toplayıcı plakaların malzemesi, Şekil 1.9’da görseli sunulan bakırdır.



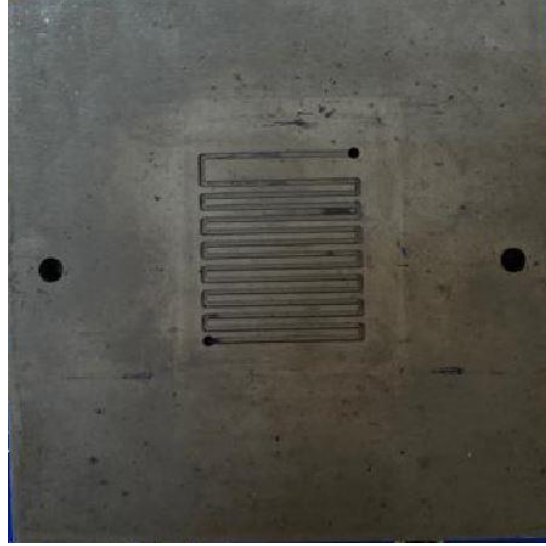
Şekil 1.9. Tez çalışmasında kullanılan akım toplayıcı plaka.



Şekil 1.9. (Devam) Tez çalışmasında kullanılan akım toplayıcı plaka.

1.5.3. Bipolar plakalar

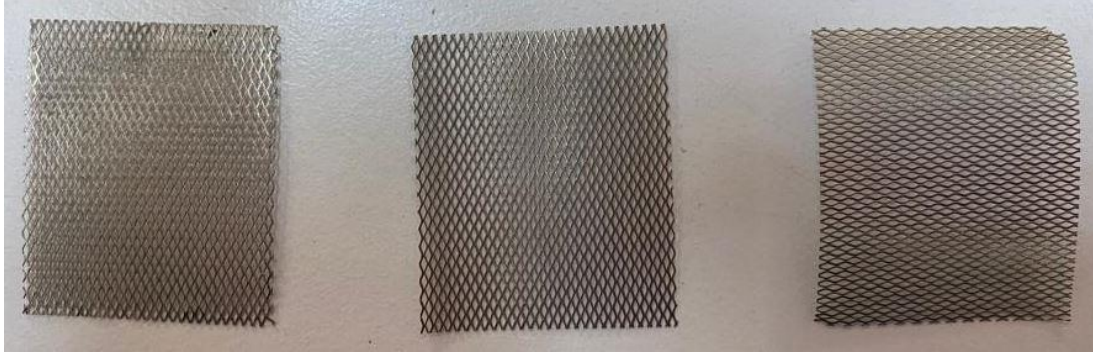
Akım toplayıcılar ve bipolar plakalar toplam hücre maliyetinin yaklaşık % 48’lik bir kısmını oluşturmaktadır. PEM elektrolizör hücresinde tipik bipolar plaka malzemeleri titanyum, grafit ve paslanmaz çeliktir, ancak bu malzemeler yüksek maliyetli ve farklı operasyonel dezavantajlara sahiptir. Birçok elektrolizör sistemi, daha iyi performans için farklı akış alanı tasarımlarına sahip bipolar plakalar kullanır. Yine de geleneksel paralel akış alanı tasarımı, özellikle PEM su elektrolizinde daha iyi elektrokimyasal aktivite göstermiştir [53]. Tipik olarak titanyum malzemeler yüksek mukavemet, yüksek ısı iletkenlik, düşük geçirgenlik ve düşük direnç sağlar, ancak hücrenin anot tarafında suyun elektrolizi sonucu oluşan oksijen gazı, titanyum malzemenin zamanla korozyona uğramasına neden olur. Bunun sonucunda inert oksit tabakası oluşacaktır. İnert oksit tabakasının oluşumu hücre performansını düşürür. Bu sorunları gidermek ve titanyum bipolar plakaları korumak için değerli metal kaplamalar ve alaşımlar incelenmiştir. Titanyum esaslı bipolar plakaların korozyon oranını azaltmak için yapılan bu kaplamalar oldukça maliyetlidir. Tez kapsamında incelenen PEM elektrolizörün katot yarı hücresinde elektrokimyasal reaksiyon sonucu oluşan maddelerin tüm aktif alan boyunca ilerleyişi Şekil 1.10’da gösterilen serpantin akış tasarımlı bipolar plaka üzerinden gerçekleştirilmiştir.



Şekil 1.10. Tez çalışmasında kullanılan serpantin akış tasarımlı bipolar plaka.

1.5.4. Titanyum plaka ve titanyum mesh grubu

PEM yakıt pilinde gaz fazındaki reaktanın (hidrojen/oksijen) hücre içerisindeki homojen dağılımı bipolar plaka üzerine açılan farklı desenlerdeki akış kanalları sayesinde sağlanırken, PEM elektrolizörlerde ise sıvı fazdaki reaktanın (su) elektrot yüzeylerine verimli bir şekilde difüzyonunu gerçekleştirmek için ince kalınlıkta bir titanyum plaka ve titanyum mesh (titanyum ızgara) grubu kullanılmaktadır. Titanyum malzeme iyi bir korozyon direncine, elektriksel iletkenliğe ve mekanik dayanıma sahiptir ancak oldukça maliyetlidir ve sertliği nedeniyle işlenmesi oldukça zordur. Wei ve ark. [54] çalışmalarında hücrenin anot tarafında homojen su dağılımı için akış dağıtıcı olarak titanyum mesh'i tercih etmişler, paralel akış alanına kıyasla daha yüksek akım yoğunluğu, hidrojen konsantrasyonu ve verim elde etmişlerdir. Bu doğrultuda, tez çalışmasında PEM elektrolizörün anot akış alanı için titanyum plaka ve titanyum mesh grubu kullanılmıştır. Titanyum ızgaradaki gözeneklerin şekli, boyutu ve sayısı suyun difüzyonunu doğrudan etkileyecektir ve verimli bir elektrolizörün tasarlanmasında kritik bir rol oynayacaktır, bu nedenle optimizasyon şarttır. Tez çalışmasında, PEM elektrolizörün anot yarı hücresinde suyun tüm aktif alan boyunca difüzyonunu kolaylaştırmak amacıyla Şekil 1.11'de verilen titanyum malzemeden oluşan üçlü ızgara plaka kullanılmıştır.



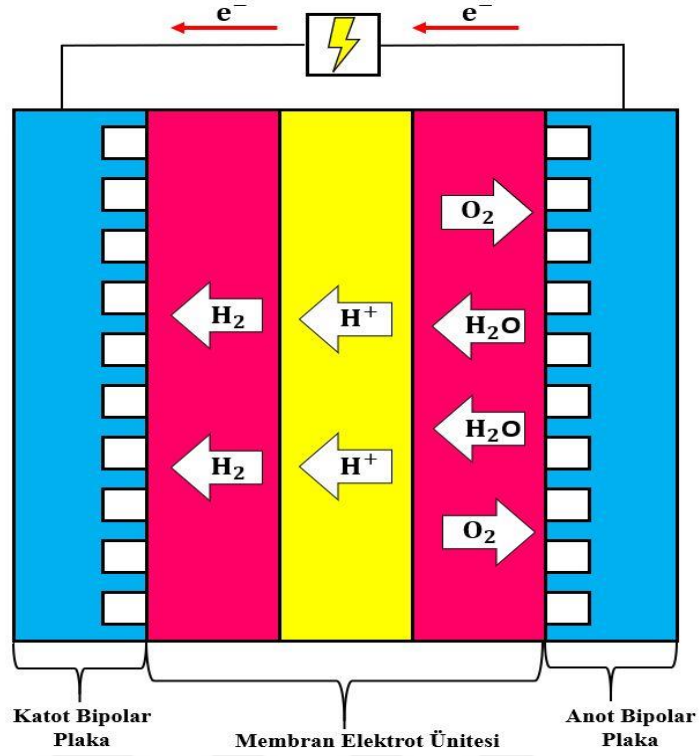
Şekil 1.11. Tez çalışmasında kullanılan titanyum mesh plakalar.

1.5.5. Uç plakalar

Uç plakalar, PEMEL yığınının her iki tarafında (anot ve katot) yeterli bir sıkıştırma kuvveti ile geleneksel kenetleme mekanizmasının altında monte edilir. Elektrolizör bileşenleri arasında homojen bir basınç dağılımı elde etmek için uç plaka malzemesini, şeklini, kalınlığını ve uç plakadaki cıvatalara uygulanan sıkıştırma torkunu optimize etmek kritik bir öneme sahiptir. Uç plaka malzemesi olarak yüksek mukavemetli ve yüksek yoğunluklu çelik ve alüminyum gibi metal plakalar yaygın olarak kullanılmaktadır.

1.6. PEM Elektrolizörün Çalışma Prensibi

Saf su, elektrokimyasal reaksiyon nedeniyle PEM elektrolizörünün anot katalizör tabakasında hidrojen iyonlarına, elektronlara ve oksijen bileşenlerine ayrışır. Üretilen oksijen, elektrolizörün anot bölgesinden boşaltılır ve kalan hidrojen iyonları proton ileten zardan, elektronlar ise dış devre yoluyla katot tarafına taşınır. Katot tarafında, protonlar ve doğru akım (DC) güç kaynağından gelen elektronlar yeniden birleşerek H_2 gazı üretir.



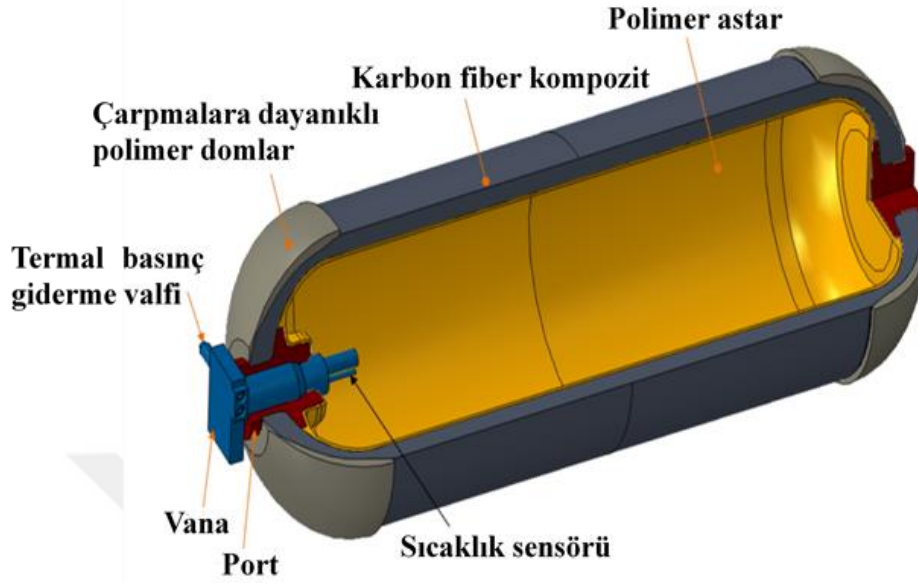
Şekil 1.12. PEM elektroliz hücresinin çalışma prensibi.

Hidrojen gazının katot tarafından hücreden kolayca uzaklaştırılması için su bir seçenek olarak kullanılabilir. Elektrokimyasal reaksiyonlar elektroliz hücresinin katalizör tabakasında gerçekleşir. Gaz difüzyon tabakası etkin akım dağıtımında ve MEÜ-bipolar plakalar arasındaki bağlantıda kritik öneme sahiptir. Hücrenin yapısal bütünlüğünü sağlayan bipolar plakalar, hücreleri ayıran PEM elektrolizör hücre yığınının önemli bir bileşendir. PEM elektrolizörünün çalışma prensibinin şematik görünümü Şekil 1.12’de verilmiştir.

1.7. Hidrojenin Depolanması

Hidrojen fiziksel olarak sıvı ve gaz fazlarında depolanabilir. Sıkıştırılmış hidrojen gazının yüksek basınçlı tanklarda fiziksel olarak depolanması, en köklü hidrojen depolama teknolojisidir. Küresel tankların araçlara sığması zor olduğundan hidrojen silindirik tanklarda depolanmaktadır. Yüksek basınçlı tankların malzemesi, hidrojen difüzyonuna ve depolanan hidrojenin neden olduğu muhtemel gevrekleşmeye karşı dayanıklı olmalıdır. Hidrojen depolama tankları dört standart tipte sınıflandırılabilir: Tip 1, Tip 2, Tip 3 ve Tip 4 [55]. Tip 1, genellikle çelik malzemeden yapılmış, 200-300 bar basınçta ağırlıkça yaklaşık %1 hidrojen depolayan tanktır. Ağır olduğundan

sanayide sabit kullanıma uygundur. Tip 4 yüksek basınçlı silindirik hidrojen tankının bileşenleri Şekil 1.13’de gösterilmiştir.



Şekil 1.13. Tip 4 yüksek basınçlı hidrojen tankının bileşenleri [56].

Tip 2, Tip 1'den daha hafif, bu tankta metalik duvar, silindirik kısım üzerine fiber reçine kompozit ile sarılır. Tip 3 tanklar alüminyum gibi metallerle kaplanmış karbon fiber kompozit malzemelerden (karbon fiber takviyeli plastik) yapılmıştır. Hidrojen, Tip 3 yüksek basınç tanklarında 450 bar basınca kadar güvenle depolanabilmektedir. Tip 4 tankın tamamı kompozit malzemedir. Tip 4 tanklar, basınçlı tanklar arasında en hafif olanıdır, bu da onları otomotiv endüstrisi için en uygun hale getirir ve 1000 bar'a kadar yüksek basınçlara dayanabilirler. Yakıt pilli araç endüstrisinde hidrojenin yaklaşık olarak 350-700 bara kadar basınçlandırılması gerekmektedir. Tip 3 ve Tip 4 yüksek basınçlı tanklar Toyota Mirai, Hyundai Tucson ve Honda Clarity gibi hidrojen yakıt hücreli araçlarda kullanılmaktadır. Florida'daki NASA Kennedy Uzay Merkezi'ndeki (KSC) dünyanın en büyük sıvı hidrojen (LH₂) depolama tankının görseli Şekil 1.14'te verilmiştir.



Şekil 1.14. Sıvı hidrojen tankı [57].



2. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Literatürde yeşil hidrojen üretiminde gelecek vaat eden PEM elektrolizörlerle ilişkili sayısal ve deneysel çalışmaların sayısı nispeten az ve yetersizdir. Sayısal simülasyonların çoğu kararlı, tek fazlı koşullara dayalı ve PEM elektrolizör performansını incelemeye yönelik olmakla birlikte bu bölümde literatürde mevcut olan çalışmalara değinilecektir.

Wang ve ark. [58], farklı tasarım ve çalışma parametrelerine sahip bir PEM elektroliz hücresinin performansını araştırmak için 3 boyutlu, izotermal olmayan, çift fazlı bir ısı ve kütle transfer modeli oluşturmuştur. Gaz difüzyon tabakasının küçük temas değeri ve yüksek gözenekli yapısı nedeniyle çalışmalarında verimli bir hücre performansı elde ettiler. Ma ve ark. [59] sıcaklık, akım yoğunluğu ve gaz hacim fraksiyonu dağılımlarını incelemek için üçlü serpantin akış alanına sahip 25 cm² aktif alanlı PEM elektrolizörünü sayısal olarak geliştirdiler. 1.45 V hücre voltajında düşük akım yoğunluklarından dolayı sıcaklık değişiminin minimum düzeyde olduğu kaydedildi. Akış kanalının giriş bölgesinde iki fazlı akıştan dolayı yüksek akım yoğunlukları, kanal çıkışına doğru ise düşük akım yoğunlukları oluşmuştur. Nie ve Chen [60], PEM elektrolizörün anot akış alan plakasının üç boyutlu (3B), çift fazlı ve kararlı matematiksel modelini geliştirdiler. Simülasyon modelleri, akış alan plakasındaki sıvı su/oksijen gaz akışının özelliklerini açıklamaktadır. Yaptıkları çalışmalar sonucunda, oksijen kabarcıklarının oluşum hızı arttıkça akış kanallarında ters akışın meydana geldiğini gözlemlemişlerdir. Toghyani ve ark. [61], tasarım ve işletme koşullarının PEM elektrolizör performansı üzerindeki etkilerini araştırmak için sonlu hacim yöntemi kullanarak kararlı, üç boyutlu bir hesaplamalı akışkanlar modeli geliştirdi. Sayısal sonuçlar elektrokimyasal reaksiyon kinetiğinin yavaşlaması nedeniyle düşük sıcaklıklarda hidrojen konsantrasyonunun azaldığını göstermektedir. Ayrıca, gaz difüzyon tabakası (GDL) ve membran kalınlığının artırılmasıyla daha düşük akım yoğunluklarının elde edildiğini bulmuşlardır. Son olarak, GDL gözenekliliğinin PEM elektrolizör güç yoğunluğu üzerinde önemli bir etkisinin olmadığı sonucuna varıldı. HAD yöntemine dayanarak, Olesen ve ark. [62], tek ve çift fazlı olmak üzere iki simülasyon modeli geliştirdiler. Akış özelliklerini incelemek için

çift fazlı modeli ve akış alan yapısını belirlemek için tek fazlı modeli kullandılar. İki parametreyi araştırdılar: parçacık çapının ve stokiyometrinin üretilen modeller üzerindeki etkisi. Toghyani ve ark. [63] tek fazlı, kararlı, izotermal olmayan, üç boyutlu, spiral akış alanlı bir PEM elektrolizörünün HAD modellemesini gerçekleştirdiler. 64 cm² aktif alana sahip yeni bir akış alanında basınç düşüşü, sıcaklık ve akım yoğunluğu dağılımları sayısal olarak incelenmiştir. Simülasyon sonuçları, yeni akış alanı tasarımında hidrojen üretiminin ve akım yoğunluğu dağılımlarının üniform olduğunu ortaya koydu. 80°C çalışma sıcaklığında, 1.5 bar basınçta ve 1.9 V çalışma voltajında minimum ve maksimum akım yoğunlukları sırasıyla 0.8 A/cm² ve 1.06 A/cm²'dir. Ruiz ve ark. [64], yüksek saflıkta hidrojen üretimi için üç farklı akış alanı tasarımında (serpantin, çoklu serpantin ve paralel) 26.01 cm² aktif alana sahip, izotermal olmayan, yüksek sıcaklıklı bir PEMEL modeli oluşturmuştur. Tek kanallı simülasyon modeli Fluent 13'te analiz edilmiş ve HAD sonuçları, model doğrulaması için literatürdeki deneysel sonuçlarla karşılaştırılmıştır. Analiz sonuçları, çoklu serpantin kanal tasarımının, hidrojen üretimi ve makul basınç düşüşü ile üniform sıcaklık dağılımı açısından en yüksek performansa sahip olduğunu göstermiştir. En yüksek hidrojen mol fraksiyonu, serpantin kanal geometrisinde elde edilmiştir. Su ve ark. [65], kabarcıkların dinamik davranışını dahil ederek hücre performansını ve kabarcık kapsamını (bubble coverage) analiz etmek için bir PEM elektroliz hücresi MATLAB/Simulink modeli geliştirdiler. Kabarcık kapsamı sırasıyla akım yoğunluğu, sıcaklık, basınç, su giriş hızı ve nem gibi parametrelere bağlı olarak değişmektedir. Kaya ve Demir [66], anot katalizör malzemesinin hücre performansı üzerindeki etkisini gözlemlemek için iki boyutlu bir izotermal PEMEL modeli geliştirdiler. Sıcaklık, membran kalınlığı, gaz akış kanallarındaki türlerin molar kesir dağılımı ve akım toplayıcı plaka uzunluğunun performans üzerindeki etkileri Pt ve Pt-Ir olmak üzere iki farklı anot katalizör malzemesi için sayısal olarak incelenmiştir. Sayısal sonuçlar, sıcaklık artışının hücre performansını ve hidrojen üretim hızını olumlu yönde etkilediğini göstermektedir. Toghyani ve ark. [67], beş farklı akış alanı konfigürasyonu için bir 3B sayısal simülasyon gerçekleştirmiştir: geleneksel, tek-geçişli serpantin, iki-geçişli serpantin, üç-geçişli serpantin ve dört-geçişli serpantin. Diğer kanal tasarımları ile karşılaştırıldığında, iki-geçişli serpantin tasarımında akım yoğunluğu, hidrojen kütle kesri ve basınç düşüşünün daha üniform bir dağılıma sahip olduğu görülmektedir. Upadhyay ve ark. [68], ANSYS Fluent çözücü kullanarak farklı çalışma koşullarının PEM elektroliz hücre performansı üzerindeki etkilerini sayısal

olarak incelediler. Düşük su akış hızının, yüksek katot basıncının ve düşük gaz difüzyon tabakası gözenekliliğinin elektrolizörü çalıştıran elektrik gücünü arttırdığını gözlemlediler. Toghyani ve ark. [69], dört farklı kanal tasarımına sahip üç boyutlu, kararlı ve izotermal olmayan PEM elektroliz hücrelerinin performanslarını basınç kaybı, sıcaklık, akım yoğunluğu dağılımı ve hidrojen kütle kesri açısından sayısal olarak araştırdılar. Simülasyon sonuçları, en iyi hücre performansının, metal köpükle doldurulmuş basit tek kanallı akış dağıtıcısı ile elde edildiğini göstermektedir. Bununla birlikte metal köpük geçirgenliğinin azalmasıyla basınç düşüşünün arttığı sonucuna varılmıştır. Lin ve ark. [70] çalışmalarında paralel, üçlü serpantin ve iğne-tip akış alanı tasarımlarını sayısal olarak incelediler. Diğer akış alanı tasarımlarıyla karşılaştırıldığında, iyi kütle transferi, üniform basınç dağılımı ve düşük temas empedansı özelliklerinden dolayı en iyi hücre performansının paralel akış alanı plakasında elde edildiğini bulmuşlardır. Bir dizi deney sonucunda PEM elektroliz hücre performansını en çok etkileyen parametrenin akış alan tasarımı olduğu sonucuna varmışlardır. Tijani ve ark. [71], değişim akım yoğunluğunun ve yük transfer katsayısının (CTC) hücre performansının davranışı üzerindeki etkilerini incelemek için bir matematiksel model önermiştir. Simülasyon sonuçları, özellikle anot elektrotta sıcaklığın CTC üzerindeki etkisinin kritik olduğunu göstermektedir; CTC'deki artış, çalışma voltajını azaltacaktır. Xu ve ark. [72], PEMEL'in anot akış alanındaki çift fazlı akış etkisini sayısal modele dahil ettiği bir çalışma gerçekleştirmiştir. Hücredeki oksijen gaz kabarcıklarının uzaklaştırılmasında serpantin akışlı dağıtıcının paralel akışlı dağıtıcıya göre daha iyi performans gösterdiği sonucuna varılmıştır. Ni [73], çalışmada hesaplamalı akışkanlar dinamiği yöntemini kullanarak iki boyutlu elektrolizör performansını analiz etmiştir. Sayısal sonuçlara göre gaz akış hızının artması hücre performansının artmasına neden olmuştur. Arbabi ve ark. [74], bir PEM elektrolizörünün gaz difüzyon tabakaları boyunca gaz kabarcığı taşınmasını simüle etmek için oksijen/su akışı etkilerini dahil ettikleri bir üç boyutlu matematiksel model hazırladılar. Sayısal model, GDL'in mikroyapısal tasarımında ve geliştirilmesinde bir rehber olarak kullanılabilir. Lee ve ark. [75], CL-GDL arayüz katmanındaki gaz dağılımlarını gözlemlemek için bir 2 boyutlu HAD modeli önermiştir. GDL'de optimum seviyede oksijenin ve suyun taşınımı için çalışma sıcaklığının artırılması gerektiği sonucuna varmışlardır. Afshari ve ark. [76] voltaj kayıplarını incelemek için sıfır boyutlu bir matematiksel model geliştirdiler. Hücre voltajına en yüksek katkıyı aktivasyon aşırı potansiyeli yaparken, en düşük katkıyı yapan ise konsantrasyon aşırı

potansiyelidir. Bu nedenle, yüksek elektrolizör performansı için omik ve aktivasyon aşırı potansiyellerinin azaltılması gerekir. Sıcaklık, basınç ve su debisi, PEM elektroliz hücre performansını önemli ölçüde etkileyen işletme koşullarıdır. Kim ve ark. [77], yüksek basınçlı PEM elektrolizörün bir boyutlu dinamik modelini geliştirdiler. Çalışmalarında gaz geçirgenliği, gaz sıkıştırılabilirliği, su taşınım mekanizması, anot ve katot akış kanallarındaki gaz hacmi değişimi ve suyun buharlaşması araştırıldı. Artan akım yoğunluğunun ve basıncın hücre performansını olumsuz etkilediği sonucuna vardılar. Falcão ve ark. [78] literatürdeki PEM elektrolizör modelleme çalışmalarını bir araya getirmiş ve bir derleme oluşturmuştur; PEM elektrolizör üreticileri ve modellemeye yeni başlayanlar için iyi bir rehber olduğu söylenebilir. PEMEL'in performansı ve dayanıklılığı için önemli olan termal etkiler, PEMEL'in anot bipolar plakasındaki sıvı su/oksijen gazı kabarcıklarının akışı ve elektroliz hücresinin dinamik davranışı üzerine çok sayıda çalışma incelemeleri kapsamında ayrıntılı olarak tartışılmaktadır. Grigoriev ve ark. [79], yüksek basınçlı bir PEM elektrolizörünün sayısal optimizasyonunu gerçekleştirmiştir. Matematiksel modelleri, gaz geçiş olayını, elektrokimyasal reaksiyonların kinetiğini ve su moleküllerinin elektro-ozmotik sürüklenmesini içerir. Sayısal sonuçlar, akım toplayıcı ve katalizör plakalarının gözeneklerindeki gaz içeriğinin, artan su debisiyle birlikte arttığını göstermektedir. Han ve ark. [80], PEM su elektrolizi için yeni bir omik kayıp modeli sundular. Elektrolizörün performansını değerlendirmek ve optimize etmek için çalışma basıncı, sıcaklık, membran kalınlığı, elektrot kalınlığı, arayüz direnci ve değişim akım yoğunluğu gibi farklı tasarım ve işletme faktörleri tartışılmıştır. Çalışma sıcaklığındaki artış PEMEL'in performansını olumlu yönde etkilemiştir. Diğer yandan elektrot ve membran kalınlıklarındaki artış, PEM elektrolizörün performansını olumsuz etkilemektedir. Selamet ve ark. [81], yüksek verimliliğe sahip bir PEM elektrolizör hücresi ve yığını oluşturmak için bir dizi elektroliz deneyleri gerçekleştirdiler. Öncelikle, 50 cm² aktif alana sahip tek hücreli PEM elektrolizör geliştirilmiş, ardından bazı malzeme ve tasarım iyileştirmeleri ile verimliliği artırılmıştır. Son olarak, çalışmalarında sırasıyla 5 ve 10 hücrelik bir yığın geliştirdiler ve su debisi ile sıcaklığın polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisini gözlemlediler. Hücre sayısı 1'den 10'a çıkarıldığında elektrolizör verimliliğinde önemli bir değişiklik olmadığı gözlemlenmiştir. Briguglio ve ark. [82] hidrodinamik bir çalışma gerçekleştirebilmek için toplam 10 hücre ve 120 kanaldan oluşan bir elektrolizör yığını geliştirdiler. Herbir kanaldaki suyun homojen dağılımı için tek bir hücrenin voltajının,

sıcaklığının ve basıncının belirlenmesi gerekmektedir. Çalışmaları sonucunda her bir hücredeki basınç profilinin üniform olduğu ve suyun her bir kanalda homojen bir şekilde dağıldığı sonucuna varmışlardır. Medina ve Santarelli [83] 160 cm²'lik aktif alana sahip bir PEM elektrolizör yığınının performans testlerini gerçekleştirdiler. Suyun sıcaklığının azaltılması veya katot basıncının artırılması verimin azalmasına sebep olmuştur. PEM elektroliz hücresine sağlanan maksimum elektrik gücünde, en iyi (700 kPa, 58 °C) ve en kötü (7000 kPa, 42 °C) koşullar arasındaki güç farkı yaklaşık 0.5 kW'dır. Millet ve ark. [84], PEMEL elektrotları için çeşitli elektrokatalizörler hazırlamıştır. Bunları 7-23 cm² aktif alana sahip tek hücreli bir PEM elektrolizör üzerinde test ettiler ve ardından birden fazla hücreyi birleştirerek 250 cm² aktif alana sahip yığınlar oluşturdular. Lickert ve ark. [85] sıcaklık, basınç ve su debisinin hücre performansı üzerindeki etkilerini iki farklı PEM elektrolizör yığını için incelediler. PEM elektroliz hücre yığınlarından biri anot tarafında akış alanı tasarımına sahip iken diğeri herhangi bir akış alanı tasarımından oluşmamıştır. Gaz difüzyon tabakası altında akış alanı tasarımı olmayan PEM elektrolizör yığını için farklı çalışma koşulları test edilmiş ve polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisinin diğerine kıyasla önemli olduğu sonucuna varılmıştır. Ayrıca sıcaklığın, basıncın ve su debisinin artırılmasının kütle transfer kayıplarını azalttığı sonucuna varılmıştır. Kang ve ark. [86] kaplanmamış ve kaplanmış titanyum keçe GDL'ler için farklı çalışma protokolleri uygulayarak anot katalizör ve gaz difüzyon katmanları (CL/GDL) arasındaki arayüzey temas özelliklerinin hücre performansı üzerindeki etkilerini deneysel olarak araştırmıştır. Çalışmaları sonucunda, 0.125 ile 1.040 mm arasında değişen anot GDL kalınlığının hücre performansı üzerinde önemli bir etkisinin olmadığını gözlemlemişlerdir. Hu ve ark. [87] PEM elektrolizörün montajı sırasında kullanılan cıvatalara farklı büyüklüklerde sıkıştırma torkları uygulamıştır. Sıkıştırma torkunun çift fazlı akış ve elektrokimyasal performans üzerindeki etkilerini deneysel olarak incelediler. Deneysel sonuçlar, sıkıştırma torku arttıkça temas basıncının arttığını ve PEM elektrolizör hücre performansının önce arttığını, sonra belli bir seviyeden sonra azaldığını göstermiştir. Selamet ve Ergoktaş [88], üç farklı conta malzemesinde temas direncinin ve sıkıştırma torkunun PEM elektroliz hücre performansı üzerindeki etkisini deneysel olarak araştırdılar. Sıkıştırma torku arttıkça, hücre bileşenleri arasındaki temas alanlarının artacağını, dolayısıyla temas direncinin azaldığını ve hücre performansının arttığını bulmuşlardır. Bununla birlikte, sıkıştırma torku belirli bir seviyenin üzerinde uygulandığında hücre bileşenleri deforme olur ve sınırlı kütle

transferi nedeniyle hücre performansı düşer. Soriano ve ark. [89] çalışmalarında farklı sızdırmazlık malzemeleri için sıkıştırma torku ile PEMEL'in elektrokimyasal performansı arasındaki ilişkiyi analiz ettiler. Basınç ölçüm filmi ile sıkıştırma basıncının MEÜ üzerindeki etkisini incelediler. Borgardt ve ark. [90] çeşitli elektrolizör tasarımları için sıkıştırma basıncı ile hücre performansı arasındaki ilişkiyi incelediler. Yüksek sıkıştırma basıncı PEM elektrolizörde omik ve kütle kayıplarına neden olacağından hücre performansını düşürmüştür. Maksimum performans için optimum sıkıştırma basıncının 2 ile 3 MPa arasında olduğu belirlenmiştir.

Elektrolizör sistemleri üzerine yapılan birçok sayısal ve deneysel çalışmaya rağmen literatürde çalışma parametrelerinin elektrolizör performansına etkisini bir optimizasyon algoritması ile inceleyen çalışma sayısı oldukça azdır. Bu nedenle çoğunluğu PEM yakıt pillerine yönelik olan optimizasyon çalışmalarına aşağıda değinilecektir.

Toghyani ve ark. [91] PEM elektrolizörünün termodinamik bir modelini geliştirdiler ve Taguchi yöntemini kullanarak hücre performansını etkileyebilecek çalışma koşullarını optimize ettiler. Test edilen parametrelerden anot değişim akım yoğunluğunun hücre voltajını %67.15'lik katkı oranıyla önemli ölçüde etkilediği gözlemlenmiştir. Varyans analizi (ANOVA) sonuçlarına göre hücre voltajını en az etkileyen parametre anot basıncıdır. Boyacı San ve Okur [92] PEM yakıt pil performansını önemli ölçüde etkileyen bipolar plakanın üretim koşulları için yanıt yüzeyi yöntemini (RSM) kullanarak bir optimizasyon çalışması gerçekleştirmişlerdir. Yanıt (response) parametreleri elektriksel iletkenlik, pürüzlülük ve fiziksel görünüm olarak belirlenirken bağımsız değişkenler zaman, basınç ve sıcaklık olarak seçilmiştir. Yüksek elektrik iletkenliğinin yüksek kalıplama sıcaklığıyla ilişkili olduğu sonucuna vardılar. Kanani ve ark. [93] bir PEM yakıt hücresinin güç davranışını dört farklı çalışma koşulu altında inceledi: reaktan sıcaklığı, katot nemlendirmesi, anot stokiyometrisi ve katot stokiyometrisi. Maksimum güç elde etmek için RSM'yi uyguladılar ve bağımsız-yanıt parametreleri arasındaki ilişkiyi modellediler. Elde edilen sonuçlar, üretilen gücü maksimuma çıkarmak için anot ve katot stokiyometrisinin orta seviyede tutulması gerektiğini göstermektedir. Taymaz ve ark. [94] reaktan akış hızı, hücre sıcaklığı, metanol sıcaklığı ve nemlendirme sıcaklığı gibi çalışma parametrelerinin doğrudan metanol yakıt hücresi performansı üzerindeki etkilerini araştırmak için RSM yöntemini temel alan ikinci mertebeden bir model

geliştirdiler. Yaptıkları çalışmada, oksijen debisi 141.11 ml/dk, metanol debisi 2.68 ml/dk, hücre sıcaklığı 68.92 °C, metanol sıcaklığı 52.06 °C ve nemlendirme sıcaklığı 48.47 °C iken maksimum akım 1.23 A olarak elde edilmiştir. Karimi ve ark. [95] PEMYP performansını RSM yöntemiyle incelediler. Bir yakıt hücresinin güç yoğunluğunu etkileyen basınç, sıcaklık ile suyun reaktan gazlarındaki kütle kesri gibi çalışma parametrelerinin optimum kombinasyonunu araştırdılar. SPEEK (Sülfonlanmış-Polieter-Eter-Keton) membranlı tek boyutlu bir membran elektrot ünite (MEÜ) modelini Nafion membranlı MEÜ ile karşılaştırdılar. Cha ve ark. [96] PEM yakıt hücresi için kısa kenar zincirli (SSC) bir membran önermiştir. Bunu, geri basınç, hücre voltajı, sıcaklık ve hava stokiyometrisi gibi farklı çalışma koşulları altında uzun kenar zincirli (LSC) membranla karşılaştırdılar. RSM yöntemini kullanarak hangi membranın en yüksek güç yoğunluğunu ürettiğini belirlediler. Araştırmaları, SSC membranlı PEMYP'nin yüksek nem tutma kapasitesi nedeniyle yüksek verimli ve kararlı sistemler için tercih edilmesi gerektiğini ortaya koymuştur. Boyacı San ve ark. [97] yanıt yüzeyi yöntemini kullanarak bir PEM yakıt hücresindeki hidrojen debisini ve polimer kompozit bipolar plaka özelliklerini optimize ettiler. Çalışmalarında temas açısı, hidrojen debisi ve yüzey pürüzlülüğü sırasıyla 81.2°, 1.87 dm³/dk ve 1.69 µm olduğunda hücre performansının maksimum olduğu sonucuna vardılar. Xuan ve ark. [98] PEM yakıt pilinde minimum hidrojen tüketimi ve maksimum güç üretimi için bir optimizasyon çalışması gerçekleştirmişlerdir. Araştırmalarında anot fazlalık oranı, katot fazlalık oranı, yığın sıcaklığı, akım ve nem sistemin bağımsız değişkenleri olarak tanımlanmıştır. Silva ve ark. [99] bir PEM yakıt hücresinin güç yoğunluğunu basıncın, hücre sıcaklığının ve katot nemlendirmesinin bir fonksiyonu olarak değerlendirmek için RSM yöntemini Hata Yayılımı (PoE) yaklaşımıyla entegre ettiler. Çalışmada maksimum hücre performansının elde edilebilmesi için optimum koşullar araştırılmıştır. Hossain ve ark. [100] güneş enerjisi ve zamana bağlı hidrojen üretimi miktarını araştırmak için Merkezi Kompozit Tasarım (CCD) yöntemiyle birleştirilmiş RSM'yi uyguladılar. 8760 saat süre ve 6 kW solar kapasite kullanılarak maksimum hidrojen üretiminin 75 Nm³ olarak elde edildiği kaydedilmiştir. PEM yakıt hücresinin işletme koşullarının sistem verimliliği ve güç çıkışı üzerindeki etkileri RSM yöntemi ile, Jeon ve ark. tarafından incelenmiştir. [101]. Çalışmalarında bağıl nem (% 20-40), çalışma sıcaklığı (80-140 °C) ve stokiyometrik oran (1.5-2.5) olmak üzere üç farklı parametre incelenmiştir. Optimizasyon sonuçları membranın proton iletkenliğinin

bağıl nem ile doğrudan ilişkili olduğunu, dolayısıyla sistem verimliliğinin bağıl nem ile doğru orantılı olarak arttığını göstermektedir.

2.1. Tez Çalışmasının Ana Hatları ve Literatüre Katkısı

Tez çalışması altı bölümde sunulmaktadır; birinci bölümde hidrojen enerjisi, hidrojen üretim yöntemleri, hidrojen depolama, elektrolizör çeşitleri, PEM elektrolizörün çalışma prensibini ve hidrojen üretim yöntemlerindeki önemi detaylı olarak anlatılmıştır.

İkinci bölümde, yakıt pilleri ve elektrolizörler üzerine sayısal ve deneysel çalışmaları içeren kapsamlı bir literatür taraması yapılmış, tezin ana hatları ve literatüre katkısı vurgulanmıştır.

Üçüncü bölümde, uygulamada geleneksel hale gelen ve en çok tercih edilen düz akış alanı plakası üç boyutlu olarak geliştirilmiş ve kanallardaki çift fazlı (sıvı+gaz) akışın kararsız koşullara göre simülasyonu yapılmıştır. PEM elektrolizörün anot bipolar plakasındaki hidrodinamik akışı analiz etmek için karışım (mixture) yöntemi kullanılmıştır. Son olarak, anot bipolar plakadaki çift fazlı akışın hız, basınç ve oksijen konsantrasyonu dağılımları detaylı olarak incelenmiş ve tartışılmıştır.

Dördüncü bölümünde, PEM elektrolizör performans testlerinin yapıldığı deney sistemi anlatılmaktadır. PEM elektrolizörünün performans göstergeleri olan hidrojen akış hızı ve akım parametrelerini maksimize etmek için çalışma parametreleri (sıcaklık, su akış hızı ve hücre voltajı) Taguchi yöntemiyle optimize edilmiştir. Her bir girdi faktörünün katkı oranını belirlemek için sinyal-gürültü oranı (S/N) ve varyans analizi (ANOVA) yöntemleri de uygulanmıştır. Bununla birlikte optimum seviyeleri elde etmek ve çalışma parametrelerinin etkisini analiz etmek için Deney Tasarımı (DOE) ve Yanıt Yüzey Yöntemi (RSM) çalışmaya dahil edilmiştir.

Beşinci bölümde, 80°C sabit sıcaklıkta Design-Expert 13 yazılımının (deneme sürümü) yanıt yüzeyi metodolojisini (RSM) kullanarak PEM elektroliz hücre performansını etkileyen proses değişkenlerinin optimum seviyeleri araştırıldı. Modelin girdi faktörleri olarak suyun debisi, hücre voltajı ve tork tanımlanırken, modelin yanıt fonksiyonları olarak hidrojen debisi ve akım dikkate alınmıştır. Deneysel testlerin gerçekleştirildiği PEM elektrolizörünün sonlu elemanlar modeli

geliştirilmiş ve simülasyon sonuçları deneysel sonuçlarla doğrulanmıştır. Son olarak, tez çalışmasının sonuçları altıncı bölümde verilmiştir.

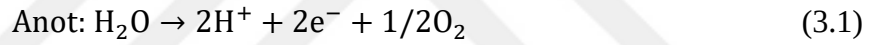
Literatürde PEM yakıt pillerine (PEMYP) kıyasla PEM elektrolizör hücrelerinin (PEMEL) performansını önemli ölçüde etkileyen tasarım ve işletme parametreleri üzerine yapılan çalışma sayısı oldukça azdır. PEM elektrolizör performansının ve PEMYP optimizasyonunun sayısal ve deneysel incelemesine ilişkin çalışmaların çoğu yukarıdaki literatür araştırmasına dahil edilmiştir. Bununla birlikte, yeşil hidrojen üretim teknolojisinin optimizasyonu ve geliştirilmesi, yakıt pil teknolojisine kıyasla hala yetersiz olduğu görülmektedir. Bu durum, 2000'li yıllara kadar elektrolizörle ilgili mevcut çalışmaların azlığından kaynaklanmaktadır. Önümüzdeki yıllarda yeşil hidrojen, Avrupa Birliği, Çin ve ABD gibi dünya enerji liderleri için ilgi çekici bir konu haline gelecek ve geleneksel fosil bazlı enerji kaynaklarına bağımlılık azalacaktır [102,103]. PEM yakıt hücreleri ve yığın tasarımları üzerine birçok optimizasyon çalışmasına rağmen, literatürde PEM elektrolizör verimliliğini ve performansını etkileyen çalışma parametrelerinin optimize edilmesine yönelik çok az çalışmaya rastlanılmıştır. Tezin ilk aşamasında, zamana bağlı (unsteady) koşullarda hesaplamalı akışkanlar dinamiği ile analiz edilen bir PEMEL hücresinin üç boyutlu anot akış alanındaki iki fazlı akış olgusu incelenmiştir. Ayrıca tez kapsamında kanal sayısının oksijen gaz kabarcığı/su akışı üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Bu tez çalışması, özellikle son beş yılda gündem konusu haline gelen yeşil hidrojen üreticileri olarak bilinen PEM elektroliz hücrelerinin verimliliğini ve performansını deneysel olarak araştırmayı hedeflemiştir. Maksimum hücre performansı için bağımsız değişkenlerin hem Taguchi hem de yanıt yüzey yönteminin (RSM) merkezi kompozit tasarımıyla optimum kombinasyonu yapılmıştır. Ayrıca deneysel testlerde kullanılan PEM elektrolizörün model geometrisi SpaceClaim'de geliştirilmiş, FEM analizleri ANSYS Mechanical'da gerçekleştirilmiş, her bir bileşenin mekanik davranışı simule edilmiştir. Farklı sıkıştırma torklarında basınç ölçüm filmlerinden elde edilen deneysel sonuçlar sayısal sonuçlarla karşılaştırılmış ve uyumlu olduğu görülmüştür. Bu tez çalışmasının sonuçları yüksek hücre performanslı ve verimli bir PEM elektrolizör tasarlamak veya üretmek isteyen elektrolizör üreticilerinin, mühendislerin ve akademisyenlerin ilgisini çekecek ve onlara yol gösterecektir.



3. PEM ELEKTROLİZÖRÜN ANOT BİPOLAR PLAKASINDAKİ ÇİFT FAZLI AKIŞIN MODELLENMESİ

3.1. PEM Elektroliz Hücresinin Termodinamiği

PEM elektrolizörler, hidrojen ve oksijen gazları üretmek üzere suyu ayrıştırmak için güneş, rüzgar ve biyokütle gibi yenilenebilir enerji kaynaklarından gelen doğru akım (DC) gücünü kullanan en umut verici teknolojilerden biridir. Elektroliz hücresi bir anot elektrotu ve bir katot elektrotundan oluşur. Ara bağlantılardaki akış kanalları yoluyla anot elektrotlarına beslenen sıvı su, oksijen, elektronlar ve hidrojen iyonlarına ayrılır. Hidrojen iyonları, iyon iletken zar (membran) üzerinden katot elektrotlarına aktarılır ve burada hidrojen gazı üretmek için elektronlarla birleşirler. PEM elektroliz hücresinin anot ve katodunda meydana gelen elektrokimyasal reaksiyonlar Denklem 3.1 ve Denklem 3.2’de verilmiştir.



PEMEL için toplam reaksiyon Denklem 3.3’deki gibi ifade edilir.



Bir mol suyu bileşenlerine ayrıştırmak için gereken enerji, bir mol suyun oluşum entalpisine eşdeğerdir. Suyu ayrıştırmak için gereken minimum enerji, Gibbs serbest enerji ilişkisi ile Denklem 3.4’deki gibi ifade edilir.

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (3.4)$$

Gibbs serbest enerjisi, reaksiyon entropi değişimi (ΔS), entalpi değişimi (ΔH) ve mutlak sıcaklık (T) cinsinden tanımlanır. Standart koşullarda reaksiyon entalpisi 285.84 kJ/mol, Gibbs serbest enerjisi ise 237.22 kJ/mol’dür [104]. Suyun elektrolizinde enerji hesaplamaları için tersinir hücre voltajı ve termo-nötr voltajı kullanılmaktadır. Elektroliz için gerekli minimum gerilme termo-nötr voltajı olarak tanımlanır (Denklem 3.5).

$$V_{TN} = \frac{\Delta H}{nF} = 1.48V \quad (3.5)$$

F, Faraday sabitidir (F=96500 C/mol) ve n, elektron sayısıdır (n=2). Tersinir hücre voltajı Denklem 3.6'da verilmiştir.

$$V_{rev} = \frac{\Delta G}{nF} = 1.23V \quad (3.6)$$

PEMEL enerji analizi için termodinamiğin birinci yasasının (enerjinin korunumu) denklemleri kullanılmıştır. Verim, reaksiyon ürünlerinin enerji içeriğinin toplam enerji gereksinimine bölümü olarak ifade edilebilir (Denklem 3.7).

$$\eta = \frac{E_{out}}{E_{in}} = \frac{\text{Ürünlerin enerjisi}}{\text{Reaktanların enerjisi}} \quad (3.7)$$

Ürünlerin enerji içeriği (Denklem 3.8 ve Denklem 3.9)'daki gibi hesaplanır;

$$E_{out(\dot{U}IS)} = m_{H_2} \cdot \dot{U}ID \quad (3.8)$$

$$E_{out(AID)} = m_{H_2} \cdot AID \quad (3.9)$$

Burada $\dot{U}ID$ üst ısııl değer, AID ise alt ısııl değerdir. Yukarıdaki denklemlerde yer alan hidrojen kütlesi hidrojen hacmi ile yoğunluğun çarpımından oluşmaktadır. Eşitlikleri düzenleyecek olursak (Denklem 3.10 ve Denklem 3.11);

$$E_{out(\dot{U}ID)} = \rho_{H_2} \cdot v_{H_2} \cdot \dot{U}ID \quad (3.10)$$

$$E_{out(AID)} = \rho_{H_2} \cdot v_{H_2} \cdot AID \quad (3.11)$$

Burada ρ_{H_2} hidrojen yoğunluğu (g/ml), v_{H_2} ise elektroliz reaksiyonu sonucunda üretilen hidrojen hacmidir (ml). Elektroliz hücresi giriş enerjisi, hidrojen gazı üretimi sırasında sağlanan elektrik gücüne karşılık gelir (Denklem 3.12).

$$E_{in} = P_{electric} \cdot t = I \cdot V \cdot t \quad (3.12)$$

Burada I doğru akım (A), V elektrik kaynağı tarafından uygulanan voltaj (V) ve t ise hidrojen üretim zamanıdır (s). PEM elektrolizör hücre verimi, Denklem 3.13 ve Denklem 3.14'deki gibi hesaplanır:

$$\eta_{\text{ÜID}} = \frac{v_{\text{H}_2} \cdot \rho_{\text{H}_2} \cdot \text{ÜID}}{IVt} \quad (3.13)$$

$$\eta_{\text{AID}} = \frac{v_{\text{H}_2} \cdot \rho_{\text{H}_2} \cdot \text{AID}}{IVt} \quad (3.14)$$

Normal koşullar altında hidrojen gazının teknik verileri Tablo 3.1.'de verilmiştir.

Tablo 3.1. Hidrojen gazının teknik özellikleri.

Özellik	Değer	Birim
Yoğunluk	0.08127	mg/ml
ÜID	141800	J/g
AID	120000	J/g

3.2. Elektrokimyasal Denklemler

3.2.1. Anot denklemleri

Suyun elektrolizi PEM elektrolizörün anot katalizör tabakasında gerçekleşir, kimyasal reaksiyon sonucunda oksijen gazı, hidrojen elektronları ve hidrojen iyonları oluşur (Denklem 3.15).



Elektrolizörün anottaki oksijen üretim ve su tüketim hızları Denklem 3.16 ve Denklem 3.17'deki gibi yazılabilir;

$$\dot{N}_{\text{O}_2\text{an}} = \dot{N}_{\text{O}_2\text{ai}} - \dot{N}_{\text{O}_2\text{ao}} + \dot{N}_{\text{O}_2\text{g}} \quad (3.16)$$

$$\dot{N}_{\text{H}_2\text{Oan}} = \dot{N}_{\text{H}_2\text{Oai}} - \dot{N}_{\text{H}_2\text{Oao}} - \dot{N}_{\text{H}_2\text{Oeod}} - \dot{N}_{\text{H}_2\text{Od}} \quad (3.17)$$

$\dot{N}_{\text{O}_2\text{ai}}$: Anoda giren oksijenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{\text{O}_2\text{ao}}$: Anottan çıkan oksijenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{\text{O}_2\text{g}}$: Anotta üretilen oksijenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{\text{H}_2\text{Oai}}$: Anoda giren suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{\text{H}_2\text{Oao}}$: Anottan çıkan suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{\text{H}_2\text{Oeod}}$: Elektro-osmotik sürüklenme ile katoda geçen suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2O_d}$: Difüzyon ile katoda geçen suyun anlık mol miktarı

Oksijen ve suyun kısmi basınçlarının toplamı anot yarı hücresinin toplam basıncına eşittir (Denklem 3.20). Suyun ve oksijenin kısmi basıncı mükemmel gaz denkleminde türetilmiştir (Denklem 3.18, Denklem 3.19).

$$P_{O_2} = \frac{N_{O_2} \cdot R_u \cdot T_m}{V_a} \quad (3.18)$$

$$P_{H_2O} = \frac{N_{H_2O} \cdot R_u \cdot T_m}{V_a} \quad (3.19)$$

$$P_a = P_{O_2} + P_{H_2O} = \frac{R_u \cdot T_m}{V_a} \cdot (N_{O_2} + N_{H_2O}) \quad (3.20)$$

T_m : Elektrolizörün ortalama sıcaklığı (K)

V_a : Anot yarı hücresinin hacmi (m^3)

Elektrolizörün anot yarı hücresindeki oksijenin molar oranı (y_{O_2}) oksijenin kısmi basıncının anot yarı hücre basınç oranına eşittir (Denklem 3.21).

$$y_{O_2} = \frac{P_{O_2}}{P_a} \quad (3.21)$$

Anotta üretilen oksijenin anlık mol miktarı Faraday denklemi ile bulunabilir (Denklem 3.22).

$$\dot{N}_{O_{2g}} = \frac{n \cdot I}{2F} = \frac{n \cdot A_{active} \cdot i}{2F} \quad (3.22)$$

F: Faraday sabiti (96487 C)

n: Elektrolizör yığınındaki toplam hücre sayısı

I: Akım miktarı

i: Akım yoğunluğu

3.2.2. Katot denklemleri

Elektronlarından ayrılan H^+ iyonları proton geçirgen membran (PEM) üzerinden katoda geçer. Elektroliz sonucunda oluşan negatif yüklü elektronlar dış devre üzerinden hareket ederek katot bölmesine ulaşır, pozitif yüklü hidrojen iyonları

elektronlarla birleşerek katotta hidrojen gazını oluşturur. Bir süre sonra katotta biriken hidrojen gazının oluşturduğu basınç atmosfer basıncının üzerine çıkar, elektrolizörden hidrojen atımı başlar (Denklem 3.23).



Elektrolizörün katottaki hidrojen ve su üretim hızları Denklem 3.24 ve Denklem 3.25'deki gibi yazılabilir;

$$\dot{N}_{H_2,cat} = \dot{N}_{H_2ci} - \dot{N}_{H_2co} + \dot{N}_{H_2g} \quad (3.24)$$

$$\dot{N}_{H_2O_{cat}} = \dot{N}_{H_2O_{ci}} - \dot{N}_{H_2O_{co}} + \dot{N}_{H_2O_{eod}} + \dot{N}_{H_2O_d} \quad (3.25)$$

Katot bölmesine hidrojen ve su tedarik edilmediği için $\dot{N}_{H_2ci} = 0$ ve $\dot{N}_{H_2O_{ci}} = 0$ olarak kabul edilir.

$\dot{N}_{H_2ci}$: Katoda giren hidrojenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2co}$: Katottan çıkan hidrojenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2g}$: Katotta üretilen hidrojenin anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2O_{ci}}$: Katoda giren suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2O_{co}}$: Katottan çıkan suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2O_{eod}}$: Elektro-osmotik sürüklenme ile katoda geçen suyun anlık mol miktarı

$\dot{N}_{H_2O_d}$: Difüzyon ile katoda geçen suyun anlık mol miktarı

Hidrojen ve suyun kısmi basınçlarının toplamı katot yarı hücresinin toplam basıncına eşittir (Denklem 3.28). Suyun ve hidrojenin kısmi basıncı mükemmel gaz denkleminde türetilmiştir (Denklem 3.26, Denklem 3.27).

$$P_{H_2} = \frac{N_{H_2} \cdot R_u \cdot T_m}{V_c} \quad (3.26)$$

$$P_{H_2O} = \frac{N_{H_2O} \cdot R_u \cdot T_m}{V_c} \quad (3.27)$$

$$P_c = P_{H_2} + P_{H_2O} = \frac{R_u \cdot T_m}{V_c} \cdot (N_{H_2} + N_{H_2O}) \quad (3.28)$$

T_m : Elektrolizörün ortalama sıcaklığı (K)

V_c : Katot yarı hücresinin hacmi (m^3)

Elektrolizörün katot yarı hücresindeki hidrojenin molar oranı (y_{H_2}) hidrojenin kısmi basıncının katot yarı hücre basınç oranına eşittir (Denklem 3.29).

$$y_{H_2} = \frac{P_{H_2}}{P_c} \quad (3.29)$$

Katotta üretilen hidrojenin anlık mol miktarı Faraday denklemi ile bulunabilir (Denklem 3.30).

$$\dot{N}_{H_{2g}} = \frac{n \cdot I}{2F} = \frac{n \cdot A_{active} \cdot i}{2F} \quad (3.30)$$

Membranın içindeki su miktarı elektrolizörün hem anot hem de katot bölmesindeki doyma basıncına bağlıdır. Doyma basıncı sadece sıcaklığın bir fonksiyonudur, Denklem 3.31'deki gibi ifade edilir.

$$P_{doy}(Pa) = -2846.4 + 411.24T(^{\circ}C) - 10.554T(^{\circ}C)^2 + 0.16636T(^{\circ}C)^3 \quad (3.31)$$

3.2.3. Membran denklemleri

Uygulamada çoğunlukla Nafion malzemesinin kullanıldığı membran, elektrolizörün en temel parçasını oluşturmaktadır. Elektrolizörün anot bölgesinden katot bölgesine geçen her pozitif yüklü hidrojen iyonu başına yaklaşık 3.5-4 adet su molekülü eşlik etmektedir [105]. Elektro-osmotik sürüklenme ile membran üzerinden geçen suyun anlık mol miktarı Denklem 3.32 ile hesaplanabilir;

$$\dot{N}_{H_2O_{eod}} = \frac{n_d \cdot i \cdot M_{H_2O} \cdot A_{active}}{F} \quad (3.32)$$

M_{H_2O} : Suyun molekül ağırlığı

n_d : Elektro-osmotik sürüklenme katsayısı

i : Akım yoğunluğu

Elektro-osmotik sürüklenme katsayısı sıcaklığın fonksiyonudur (Denklem 3.33).

$$n_d = 0.016T(K) - 2.89556 \quad (3.33)$$

Membran içindeki su içeriği Li ve arkadaşları tarafından Denklem 3.34'deki gibi ifade edilmiştir [106].

$$\lambda = 0.043 + 17.81a - 39.85a^2 + 36a^3 \quad (3.34)$$

Suyun aktifliği Denklem 3.35'deki gibi hesaplanır.

$$a = \frac{P}{P_{doy}} \quad (3.35)$$

Difüzyon ile membran üzerinden geçen suyun anlık mol miktarı Denklem 3.36 ile hesaplanabilir.

$$N_{H_2O_d} = D_{H_2O} \cdot \left(\frac{C_c - C_a}{t_m} \right) \cdot M_{H_2O} \cdot A_{active} \quad (3.36)$$

C_c : Katottaki suyun konsantrasyonu

C_a : Anottaki suyun konsantrasyonu

t_m : Membran kalınlığı

D_{H_2O} : Suyun difüzyon katsayısı

Suyun konsantrasyonu Denklem 3.37 ile hesaplanabilir.

$$C = \frac{\rho_m}{EW_m} \cdot \lambda \quad (3.37)$$

λ : Membran içindeki su içeriği

ρ_m : Membran yoğunluğu

EW_m : Membranın eşdeğer ağırlığı

Özetlemek gerekirse membran üzerinden geçen suyun anlık mol miktarı, difüzyon ve elektro-osmotik sürüklenme ile geçen suyun anlık mol miktarlarının toplamına eşittir (Denklem 3.38).

$$\dot{N}_{H_2O_{tot}} = \dot{N}_{H_2O_{eod}} + \dot{N}_{H_2O_d} \quad (3.38)$$

3.2.4. PEM elektrolizör voltaj hesabı

Pem elektrolizör için çalışma voltajı sürekli ve geçici durumdaki voltajların toplamına eşittir (Denklem 3.39, Denklem 3.40, Denklem 3.41).

$$V_{cell} = V_{steady} + V_{transient} \quad (3.39)$$

$$V_{steady} = E_{th} + V_{ohm,e} + V_{ohm,i} \quad (3.40)$$

$$V_{transient} = V_{act,a} + V_{act,c} + V_{mt,a} + V_{mt,c} \quad (3.41)$$

E_{th} : Nernst voltajı veya termo-nötral voltaj

V_{act} : Aktivasyon voltajı

V_{ohm} : Omik voltaj

Nernst voltajı Nernst denkleminde (Denklem 3.42) elde edilebilir.

$$E_{th} = E_0 + \frac{R \cdot T_m}{2F} \cdot \left[\ln \left(\frac{P_{H_2} \cdot P_{O_2}^{1/2}}{P_{H_2O}} \right) \right] \quad (3.42)$$

E_0 : Standart potansiyel

Standart potansiyel, anot ve katot aktivasyon voltajları sırasıyla Denklem 3.43, 3.44 ve 3.45'teki gibi hesaplanmaktadır.

$$E_0 = \frac{G_f}{2F} \quad (3.43)$$

$$V_{act,an} = \frac{R \cdot T_{an}}{\alpha_{an} \cdot F} \cdot \operatorname{arcsinh} \left(\frac{i}{2i_{0,an}} \right) \quad (3.44)$$

$$V_{act,cat} = \frac{R \cdot T_{cat}}{\alpha_{cat} \cdot F} \cdot \operatorname{arcsinh} \left(\frac{i}{2i_{0,cat}} \right) \quad (3.45)$$

$V_{act,an}$: Anot aktivasyon voltajı

$V_{act,cat}$: Katot aktivasyon voltajı

α_{an} : Anot şarj transfer katsayısı ($\alpha_{an} = 0.5$)

α_{cat} : Katot şarj transfer katsayısı ($\alpha_{\text{cat}} = 2$)

$i_{0,\text{an}}$: Anot değişim akım yoğunluğu ($i_{0,\text{an}} = 2 \times 10^{-7}$)

$i_{0,\text{cat}}$: Katot değişim akım yoğunluğu ($i_{0,\text{cat}} = 2 \times 10^{-3}$) [107].

Omik voltaj ve iyonik direnç formülasyonları sırasıyla Denklem 3.46 ve 3.47’de gösterilmektedir.

$$V_{\text{ohm},i} = i \cdot R_{\text{ohm},i} \quad (3.46)$$

$$R_{\text{ohm},i} = \frac{t_m}{\sigma_m} \quad (3.47)$$

V_{ohm} : Omik voltaj

$R_{\text{ohm},i}$: İyonik direnç

t_m : Membran kalınlığı

σ_m : Membran iletkenliği

Membran iletkenliği ve omik voltaj Springer ve arkadaşları tarafından sırasıyla Denklem 3.48 ve 3.49’daki denklemlerde ifade edilmiştir [108].

$$\sigma_m = (0.00514 \cdot \lambda_m - 0.00326) \cdot \exp \left[1268 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (3.48)$$

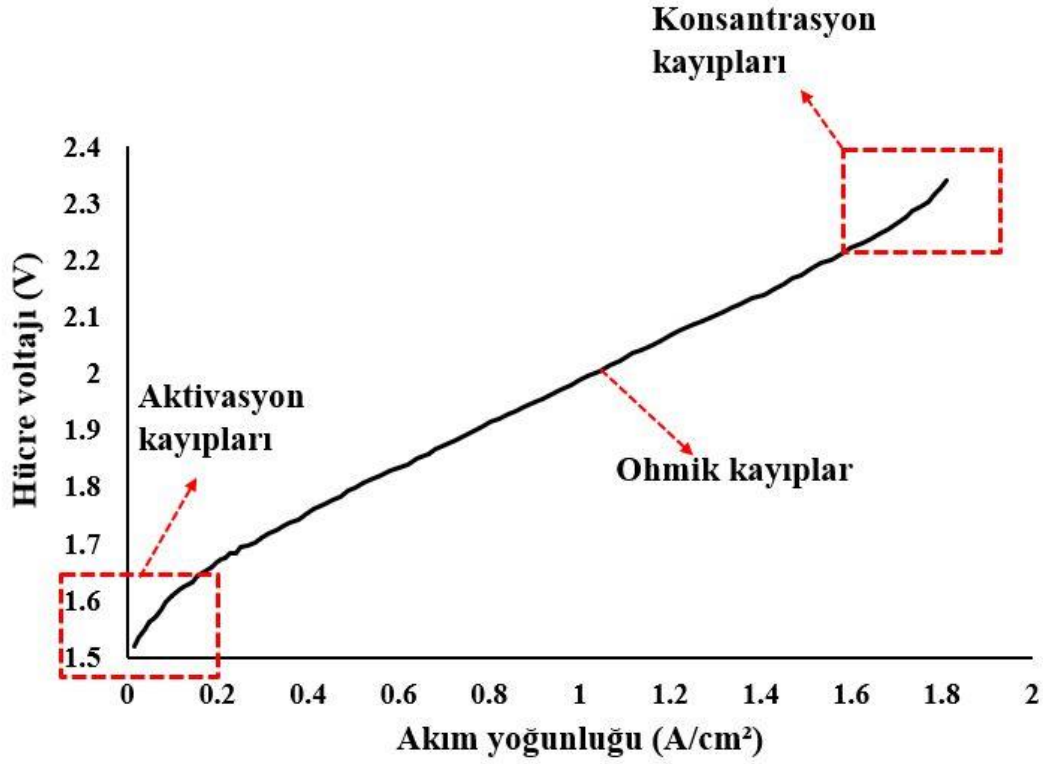
$$V_{\text{ohm}} = i \cdot (R_{\text{ohm},i} + R_{\text{ohm},e}) \quad (3.49)$$

$R_{\text{ohm},e}$: Elektronik direnç

T : Elektrolizör sıcaklığı

3.3. Polarizasyon Eğrisi

Hücre voltajının akım yoğunluğuna karşı grafiği, polarizasyon eğrisi olarak bilinmektedir. Polarizasyon eğrisi bir elektrokimyasal hücrenin performansını karakterize eder. Tek hücreli bir PEM elektrolizörün polarizasyon eğrisi, Şekil 3.1’de gösterildiği gibi üç bölgeye sahiptir. Polarizasyon eğrisinde düşük akım yoğunluklarının elde edildiği bölge aktivasyon kayıplarını, orta akım yoğunluklarının elde edildiği bölge ohmik kayıpları ve son olarak yüksek akım yoğunluklarının elde edildiği alan ise konsantrasyon kayıplarını göstermektedir.



Şekil 3.1. Tipik bir PEM elektrolizörün polarizasyon eğrisi.

3.3.1. Aktivasyon kayıplar

Elektrolizörün hem anotunda hem de katodunda meydana gelen aktivasyon aşırı gerilimi, meydana gelen elektrokimyasal reaksiyonların direnci olarak tanımlanabilir ve dolayısıyla aktivasyon enerjisiyle ilişkilidir. Herhangi bir dönüşüm için öncelikle bu aşırı gerilimin aşılması gerekir. Anot ve katot elektrot yüzeylerindeki elektrokimyasal reaksiyonların hızı azaldığında aktivasyon kayıpları meydana gelir. Aktivasyon aşırı potansiyeli, düşük veya orta sıcaklıktaki PEM su elektrolizörlerinde birincil kayıp olarak kabul edilmektedir [109].

3.3.2. Ohmik kayıplar

Ohmik aşırı gerilim, malzemenin hidrojen difüzyonuna karşı geliştirdiği dirençle ilgilidir. Ohmik kayıplar malzeme yapısına bağlı olarak değişiklik gösterebilir. PEM direnci ohmik aşırı gerilimin esas kaynağıdır.

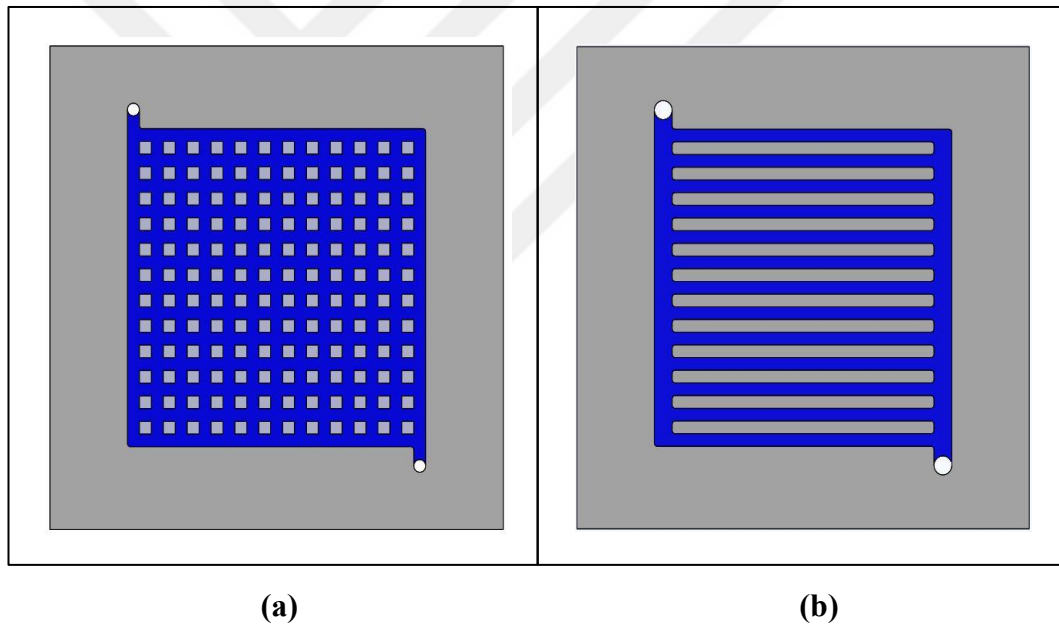
3.3.3. Konsantrasyon kayıplar

PEM su elektrolizöründe konsantrasyon veya kütle transfer kayıpları yüksek akım yoğunluklarında meydana gelmektedir. Yüksek miktarlarda üretilen hidrojen ve oksijen gazları, PEM elektrolizöründe kısmi basınçlar oluşturur ve bu da

konsantrasyon aşırı gerilimin başlıca nedenidir [110]. PEMEL verimi, oksijen gazının çok hızlı oluşması ve katalizör yüzeyindeki su temasının azalması nedeniyle azalır. PEM elektrolizörlerinde orta düzeydeki akım yoğunluklarında (1.6 A/cm^2) genellikle konsantrasyon kayıpları meydana gelmemektedir. Buna göre yüksek verim için akım değerlerinin sınırlandırılması gerekir.

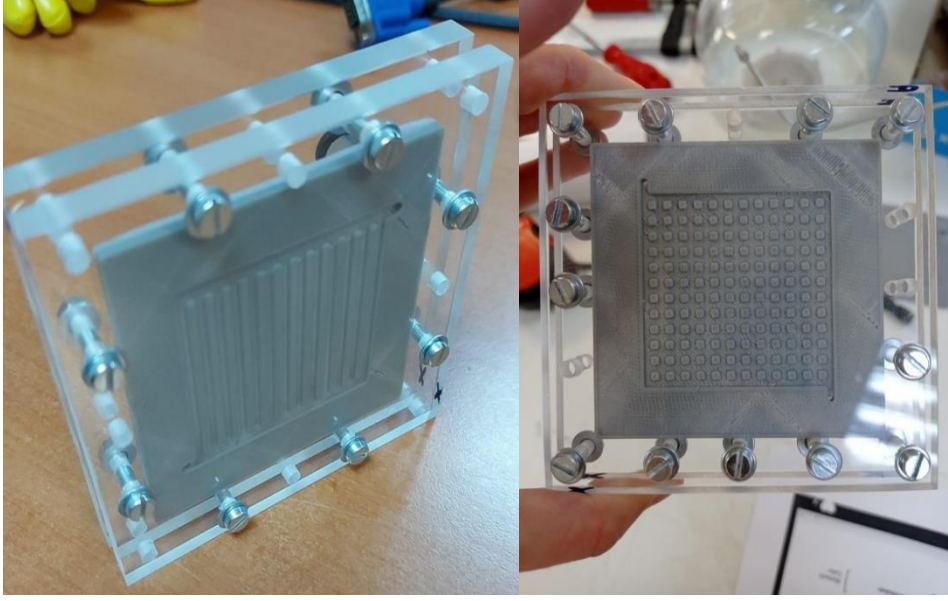
3.4. PEM Elektroliz Hücresinin Bipolar Plakasındaki Sıvı Akışının Deneysel Olarak İncelenmesi

Bir PEM elektrolizörde, bipolar plakalar için akış alanı tasarımı, gaz halindeki ürünün hücreden uzaklaştırılmasını, sıvı reaktan beslemesini ve düzgün reaktan dağılımlarını doğrudan etkilemektedir. Çalışmanın bu kısmında geleneksel düz ve iğne tip olmak üzere iki farklı akış plaka tasarımına sahip bipolar plakalar (50mm-50mm) Şekil 3.2’de gösterildiği gibi Solidworks’te çizilmiştir.

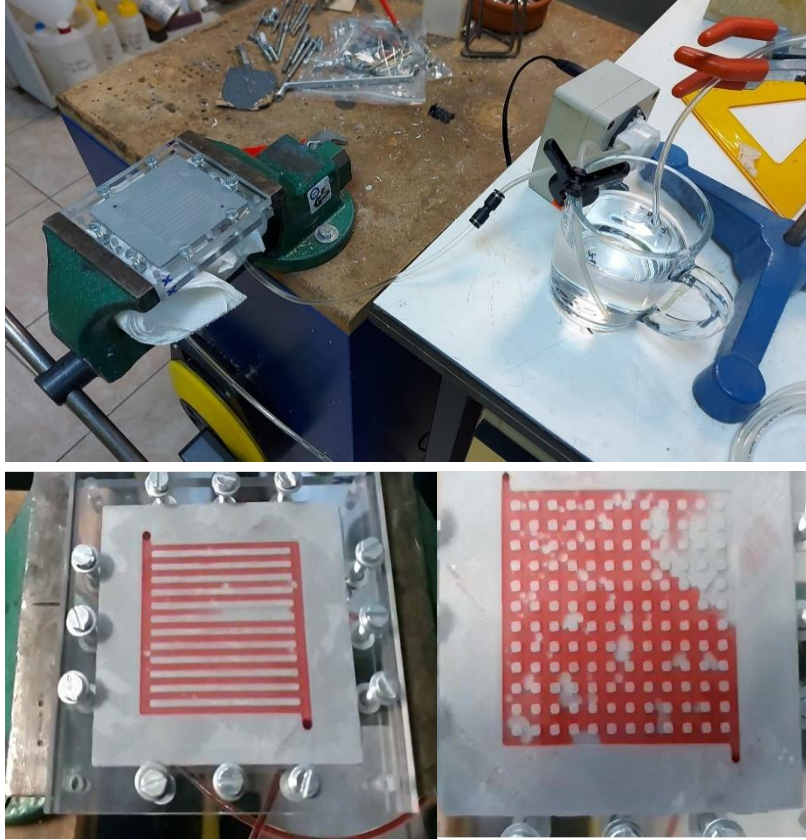


Şekil 3.2. İğne (a) ve paralel tip (b) akış plaka tasarımları.

STL formatında kaydedilen model geometrileri Zortrax üç boyutlu yazıcıya aktarılmıştır. Şekil 3.3’te gösterildiği gibi model geometrileri 3B yazıcıdan alınmış, suyun iki farklı kanal tasarımı üzerindeki akışı incelenmiştir. Suyun akışını kolaylıkla gözlemleyebilmek için kırmızı renkte gıda boyası kullanılmıştır (Şekil 3.4). Yapılan deney sonucunda, suyun en iyi dağılım gösterdiği kanal tipi paralel tip akış plaka tasarımıdır. İğne tip akış alan bölgesinde çok fazla sayıda ölü bölge olduğu gözlemlenmiştir.



Şekil 3.3. 3B yazıcıdan çıkan ürünler.



Şekil 3.4. Suyun iğne ve paralel akış tip plakalardaki dağılımları.

3.5. PEM Elektroliz Hücresinin Bipolar Plakasındaki Sıvı-Gaz Akışının Sayısal Olarak İncelenmesi

3.5.1. Problem tanımı ve sayısal uygulama

Bir PEM elektroliz hücresi yapısal olarak bir yakıt hücresine benzer, ancak çalışma prensipleri farklıdır. Yakıt pilinin çalışması sırasında anotta hidrojen yükseltgenmesi, katotta oksijen indirgenmesi gerçekleşir. Elektrokimyasal reaksiyon sonucunda akım ve su oluşur. Elektrokimyasal reaksiyon nedeniyle PEM elektrolizörünün anot katalizör tabakasına boşaltılan su, hidrojen iyonlarına, elektronlara ve oksijen gazına ayrışır. Hidrojen iyonları anot bölmesinden katot bölgesine membran üzerinden aktarılır; membran yalıtkan olduğundan, elektronlar harici bir devre aracılığıyla transfer olur. Hidrojen iyonları ve elektronlar katot bölgesinde birleşerek hidrojen gazı oluşturur. Hidrojen ve oksijen gazları farklı elektrotlarda olduğu için karışmamasına dikkat edilmelidir. PEM su elektrolizörü anot ve katot olmak üzere iki temel parçadan oluşmaktadır. Tezin bu bölümünde, elektrolizörün anot bipolar plakası Comsol Multiphysics'te modellenmiştir ve elektrolizörün içindeki elektrokimyasal reaksiyonlar göz ardı edilmiştir. Paralel akış alanına sahip anot akış plakasında, sıvı fazdaki su giriş portundan girer. Zamanla oksijen kabarcıkları oluşur; sıvı su/gaz kabarcıkları karışır ve çıkış portundan elektrolizörü terk eder. Sayısal modelde, sıvı su sürekli faz, oksijen gaz kabarcıkları ise dağılmış faz olarak tanımlanmıştır. Tezde tartışılan sayısal model birkaç varsayıma dayanmaktadır: Düz kanallardaki akışın laminar ve kararsız olduğu varsayılır ve yerçekimi kuvvet etkileri modele dahil edilmiştir. PEM su elektrolizörünün izotermal koşullarda çalıştığı kabul edilmiştir.

3.5.2. Korunum denklemleri ve sınır koşulları

Karışım (mixture) modeli, iki fazlı bir akışta fazlar arasındaki sürüklenme modellemesi için uygulanır. Sıkıştırılabilir, kararsız (unsteady) akış için süreklilik denklemi Denklem 3.50'de verilmiştir [111].

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (3.50)$$

Karışım yoğunluğu ve hızı sırasıyla Denklem 3.51 ve Denklem 3.52'de verilmiştir.

$$\rho = \phi_c \rho_c + \phi_d \rho_d \quad (3.51)$$

$$u = \frac{\phi_c \rho_c u_c + \phi_d \rho_d u_d}{\rho} \quad (3.52)$$

Dağınık fazın kütle kesri Denklem 3.53'deki gibi tanımlanır.

$$C_d = \frac{\phi_d \rho_d}{\rho} \quad (3.53)$$

ρ_c ve ρ_d sırasıyla sürekli (continuous) ve dağınık (dispersed) fazların yoğunluklarıdır, benzer şekilde ϕ_c ve ϕ_d sürekli ve dağınık fazların hacim kesirleridir. Karışımın viskozitesi Denklem 3.54'deki gibi hesaplanır [112].

$$\mu = \phi_c \mu_c + \phi_d \mu_d \quad (3.54)$$

Akış alanındaki çift fazlı karışım için Navier-Stokes denklemi aşağıdaki gibidir (Denklem 3.55).

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \rho(u \cdot \nabla)u \\ = -\nabla p - \nabla \cdot [\rho C_d(1 - C_d)u_{slip}u_{slip}] + \nabla \cdot (\mu(\nabla u + (\nabla u)^T)) + \rho g + F \end{aligned} \quad (3.55)$$

Burada ρg yerçekimi, F ise viskoz sürüklenme kuvvetidir. Viskoz sürüklenme kuvveti Denklem 3.56'da verilmiştir.

$$F = -\frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_c \cdot C_{Drag}}{d_b} \cdot |u_d - u_c| \cdot (u_d - u_c) \quad (3.56)$$

Farklı fazlar arasındaki kayma hızı Denklem 3.57'deki gibi tanımlanır.

$$u_{slip} = u_{cd} = u_d - u_c \quad (3.57)$$

Sürüklenme katsayısı Schiller-Neumann korelasyonu Denklem 3.58 ile hesaplanabilir [113].

$$C_{Drag} = \begin{cases} \frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687}) & Re < 1000 \\ 0.44 & Re \geq 1000 \end{cases} \quad (3.58)$$

Oksijen kabarcıkları için taşınım denklemi Denklem 3.59'da verilmiştir.

$$\frac{\partial(\phi_d \rho_d)}{\partial t} + \nabla \cdot (\phi_d \rho_d u_d) = -m_{cd} \quad (3.59)$$

Burada, m_{cd} oksijen gaz kabarcıkları/sıvı akışında kütle transfer oranıdır. PEM elektrolizör anot bipolar plakası, tek alanlı bir modeldir; kısmi diferansiyel denklemleri çözmek için dış yüzeylere uygun sınır koşulları tanımlanmıştır. Sayısal simülasyonlar 1 atm basınçta ve 20 °C sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. Anot bipolar plakanın giriş portu için hız sınır koşulu tanımlanmış, çıkış portu için de basınç sınır koşulu tanımlanmıştır. Diğer tüm sınırlar için kaymama koşulları (no-slip condition) dikkate alınmıştır. Son olarak, yerçekimi kuvveti etkileri modele dahil edilmiştir. Tasarım ve işletme parametreleri Tablo 3.1'de verilmiştir.

Tablo 3.1. PEM elektroliz hücre simülasyonlarında kullanılan tasarım ve işletme parametreleri.

Parametre	Birim	Sembol	Değer
Tasarım parametresi:			
Giriş manifoldunun yarıçapı	mm	R_{in}	6.35
Kanal yüksekliği	mm	H_{ch}	1
Elektrot kanal uzunluğu	mm	L_{ch}	100
Giriş/çıkış kanal uzunluğu	mm	L_{in-out}	20
Kanal genişliği	mm	W_{ch}	2
Dönme açısı	derece	θ	0
Kanal sayısı	-	N_{ch}	4-14
Çalışma parametresi:			
Oksijenin kütleli debisi	mg/s	$\dot{m}_{O_2}$	0, 4, 8, 10, 12
Suyun hacimsel debisi	ml/dk	Q_{H_2O}	200
Oksijen kabarcığı çapı	mm	D_d	0.01
Oksijen gaz yoğunluğu	kg/m ³	ρ_{O_2}	1.31

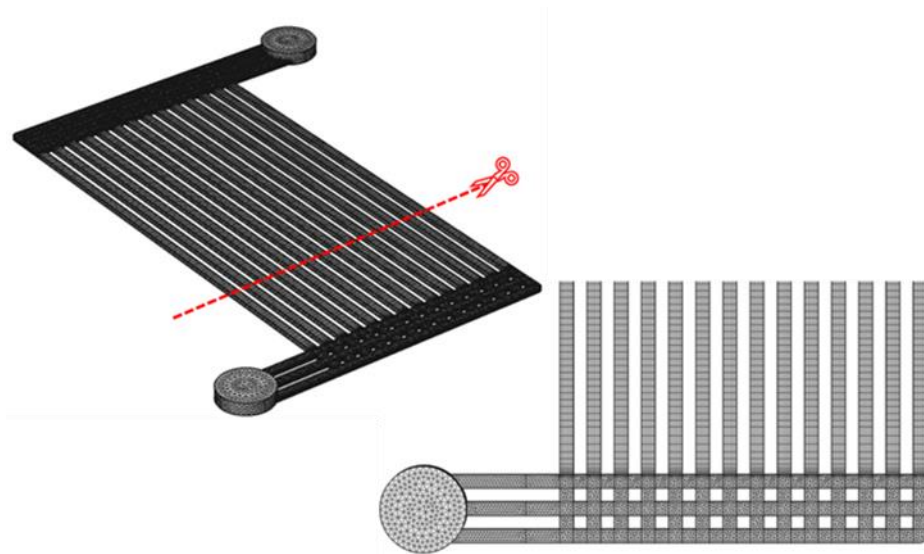
3.5.3. Mesh bağımsızlık çalışması ve modelin doğrulanması

HAD simülasyonlarında mesh (ağ) yapısı, düşük hesaplama maliyeti ve kısa sürede hassas sonuçlar elde etmede önemli bir parametredir. Geleneksel akış alanı plakasının mesh yapısının şematik konfigürasyonu Şekil 3.5'de gösterilmiştir. Bu çalışmada, akış alanı plakasının orta bölgesindeki kanallarda hex elemanları ve bipolar plakanın giriş ve çıkış manifoldlarında tet elemanları olmak üzere iki farklı eleman tipi kullanılmıştır.

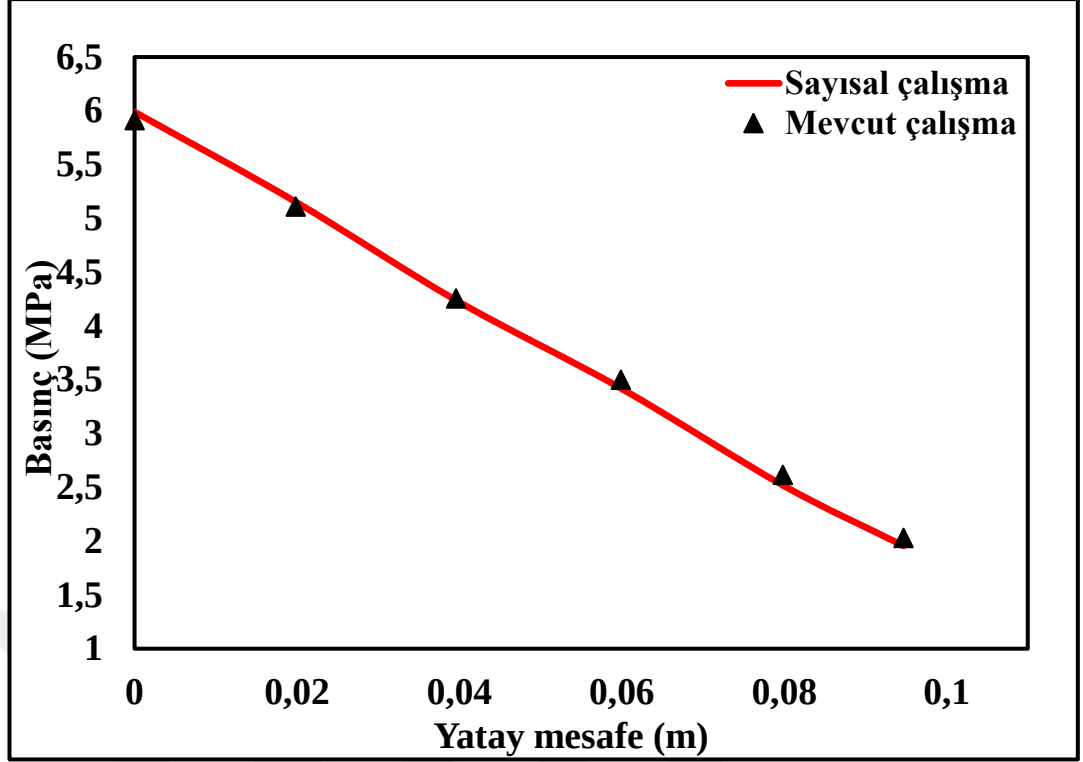
Hesaplama alanı, Comsol Multiphysics kullanılarak oluşturulmuş ve ağdan bağımsızlık çalışması, 14 kanallı bir anot akış alanı plakası için gerçekleştirilmiştir. Simülasyon modeli sonlu elemanlar yöntemi kullanılarak çözüldüğünden, eleman sayısının model doğruluğu üzerindeki etkisi incelenmelidir. Sayısal model için toplam eleman sayıları sırasıyla 74989, 345796 ve 2312633 olan üç farklı ağ yapısı geliştirilmiştir. Üç farklı ağ yapısı için oksijen hacim kesri değerleri Tablo 3.2'de verilmiştir. Ağ 2 ile Ağ 3 arasındaki geçişte küçük bir bağıl hata elde edildiğinden, sayısal simülasyonlar için optimum ağ yapısının Ağ 2 olduğuna karar verilmiştir. Ağ 2 ve Ağ 3 arasındaki standart sapma yaklaşık % 0.036'dır. Bu çalışma, düz kanal geometrisinde iki fazlı akışı karakterize edebilmek için hesaplamalı akışkanlar dinamiğini kullanmıştır. Su, dairesel bir giriş manifoldu ile sırasıyla N=4, N=6, N=8, N=10, N=12 ve N=14 kanallarıyla geleneksel akış alanına dağıtılır. Çift fazlı oksijen gaz-sıvı su karışımı, dairesel bir çıkış manifoldu yardımıyla elektrolizör hücresinden ayrılır. Karışım modeli, sürekli fazı tanımlayan sıvı su ve dağılmış fazı temsil eden oksijen gaz kabarcıklarından oluşmaktadır. Laminer, sıkıştırılamaz akış ve izotermal koşullar varsayılmıştır. Sıvı su girişi sınır koşulu olarak tanımlanır ve debisi 0.2 l/dk'dır. Aynı şekilde, toplam oksijen üretimi 0'dan 0.012 g/s'ye değiştirilmiştir.

Tablo 3.2. 14 kanallı anot akış tasarımı için ağ bağımsızlık çalışması.

Ağ numarası	Eleman sayısı	Oksijen hacim kesri	Bağıl hata (%)
1	74989	1.06125	-
2	345796	1.08418	2.161
3	2312633	1.08457	0.036



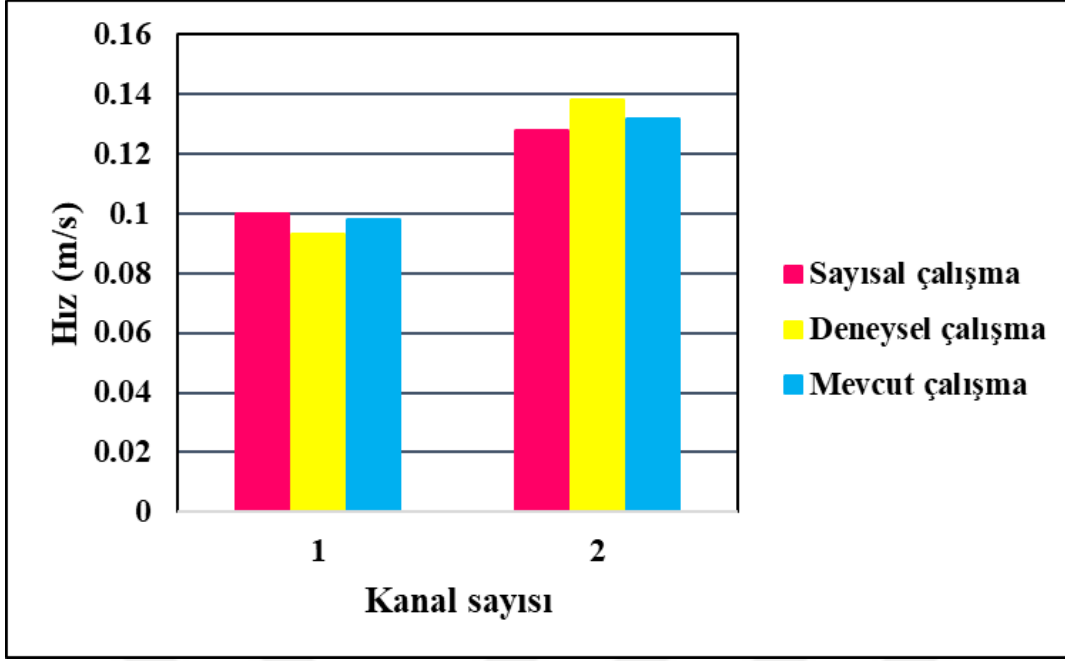
Şekil 3.5. Geleneksel akış tasarımı için mesh yapısı.



Şekil 3.6. 3B simülasyon modelinin literatürdeki sayısal çalışma ile doğrulanması.

Son olarak, sayısal model, literatürden referans alınan simülasyon sonuçları ile karşılaştırılmıştır ve model doğrulanması yapılmıştır. Tijani ve ark. [114], PEM elektrolizörün anot bipolar plakasını paralel, tek geçişli (1-S) serpantin ve çift geçişli (2-S) serpantin olmak üzere üç farklı tasarımda geliştirdiler. Sayısal simülasyonlar 80 bar basınçta ve 300 K sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. Reynolds sayısı, statik basınç ve hız dağılımları karşılaştırılmış ve farklı akış alanı tasarımları için optimize edilmiştir. Şekil 3.6, maksimum hata oranının yüzde 4'ü geçmediğini göstermektedir.

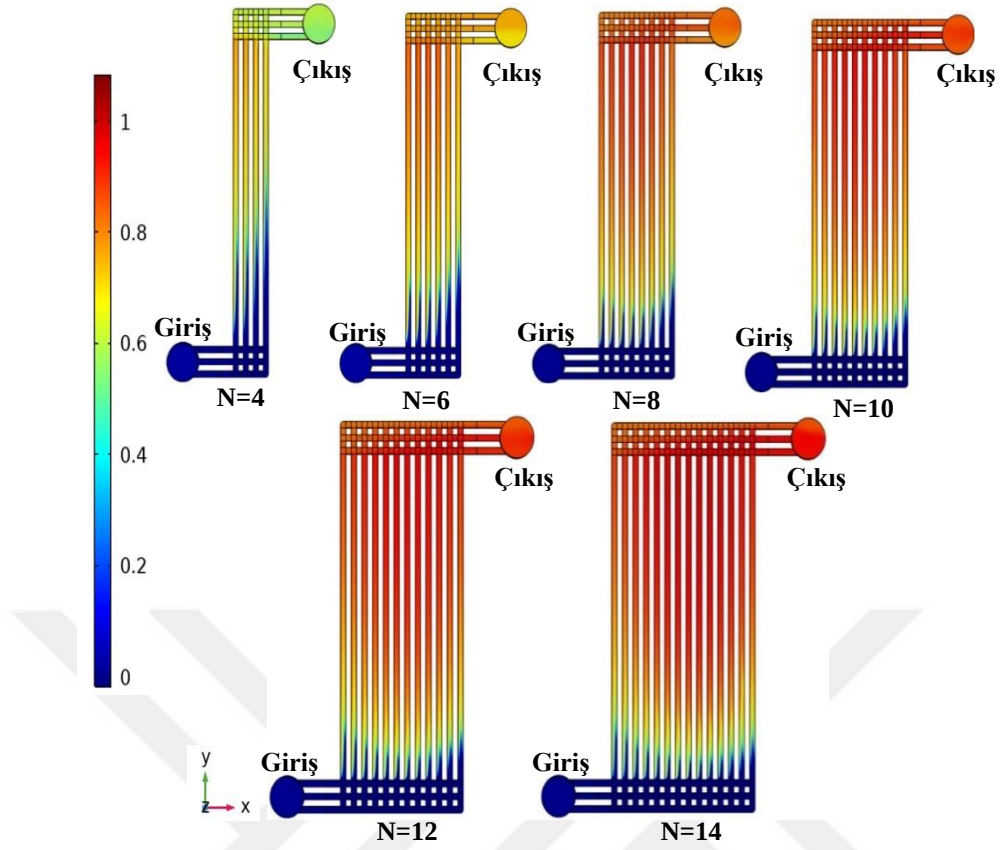
Barreras ve ark. [115] geleneksel tip düz akışlı plakadaki akış dağılımını hem sayısal hem de deneysel bir yöntem kullanarak incelediler. Sayısal yaklaşımda, iki boyutlu kararlı sayısal modelin HAD simülasyonları gerçekleştirilmiştir. Akış sıkıştırılmaz ve izotermal kabul edilerek analiz edilmiştir. Akış olayı, düzlemsel lazerle indüklenen floresan (PLIF) iz takibi kullanılarak deneysel süreçte görselleştirilmiştir. Şekil 3.7 mevcut çalışma ile deneysel çalışma arasındaki bir karşılaştırmayı göstermektedir. İki çalışma arasında iyi bir uyum olduğu görülmektedir.



Şekil 3.7. 3B simülasyon modelinin literatürdeki deneysel çalışma ile doğrulanması.

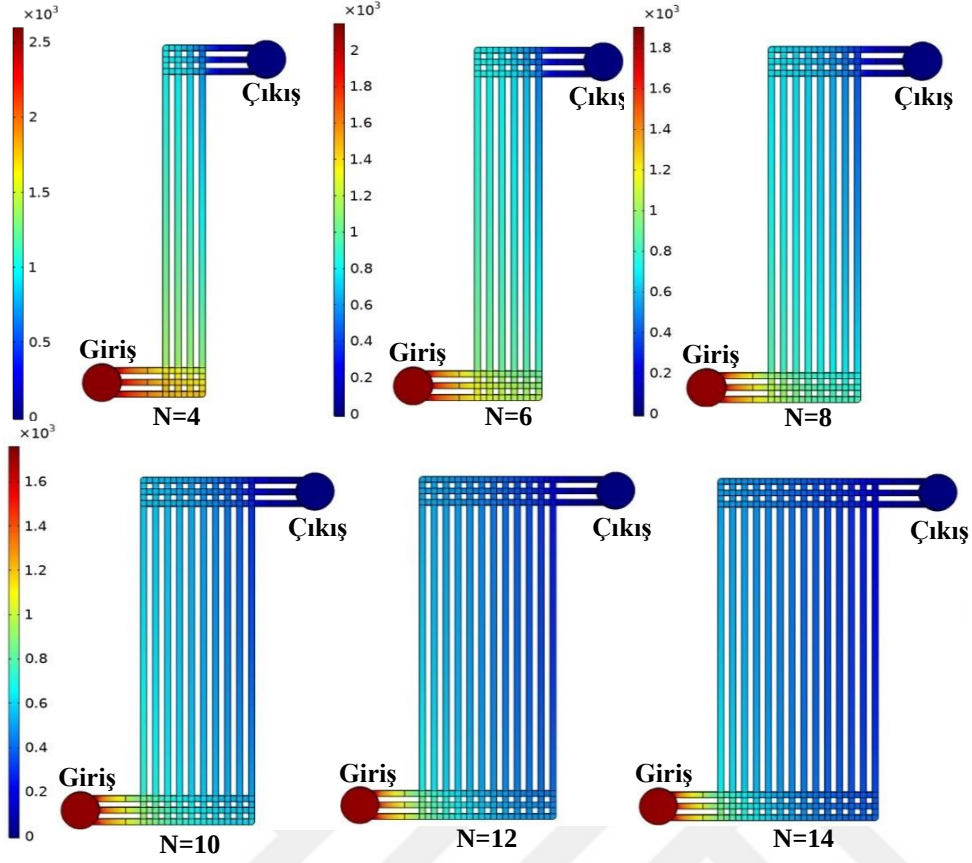
3.5.4. Sayısal çalışma için elde edilen sonuçlar

Bu bölümde, PEM elektrolizörün anot bipolar plakasındaki çift fazlı akışın hidrodinamiği sayısal olarak incelenmiş ve sonuçlar tartışılmıştır. Simülasyon modeli iki adımda çözülmüştür. İlk olarak, akış analizi tek fazda (saf sıvı su, oksijen üretimi yok) kararlı akış koşulları altında gerçekleştirilmiştir. Bu çözüm daha sonra oksijen üretiminin ilk saniyede 0'dan tam üretime yükseltildiği $t=15$ s simülasyonu için başlangıç koşulları olarak kullanılmıştır. Oksijen kabarcıkları, akış alanının giriş manifoldundan çıkış manifolduna doğru zamanla üretilir. Görüldüğü gibi kanal sayısı arttıkça akış alanı içindeki oksijen dağılım seviyesi artmaktadır. Dört kanallı bir elektrolizör için en yüksek oksijen konsantrasyonu 1.07'ye eşitken, altı kanallı bir elektrolizör için en yüksek oksijen konsantrasyonu 1.08'dir. Son olarak, 14 kanallı bir elektrolizör için en yüksek gaz konsantrasyonu çıkış manifoldunda gözlemlenmiş, yaklaşık olarak 1.08'dir (Şekil 3.8).

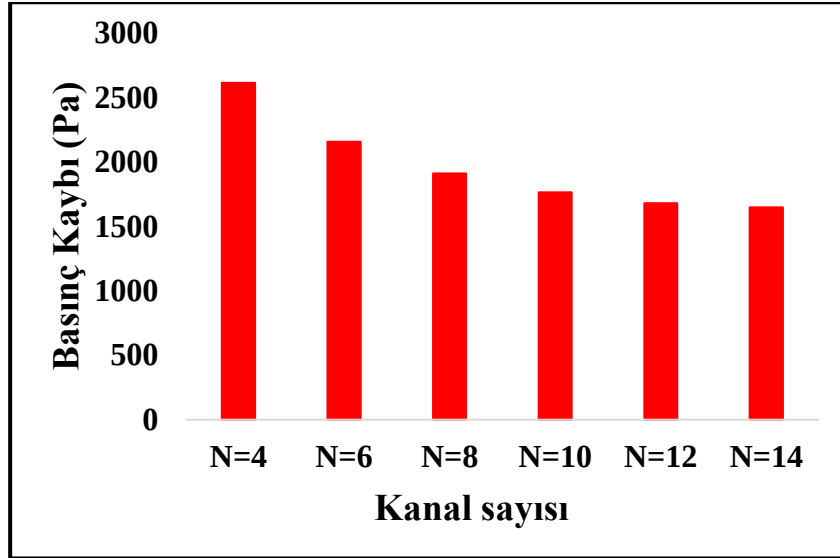


Şekil 3.8. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında oksijen gaz kabarcıklarının farklı kanal sayılarına göre dağılımı.

200 ml/dk su debisi, 0.010 g/s oksijen gaz kabarcıkları oluşum hızı için basınç dağılım konturu Şekil 3.9'da gösterilmektedir. Akış alanının giriş portuna yakın kanallardaki basıncın çıkış portuna yakın kanallardaki basınçtan daha fazla olduğu görülmektedir. En yüksek basınç kaybı 4 kanallı akış alan plakasında gerçekleşmiştir. Basınç, akış alanının giriş portundan çıkış portuna doğru çapraz bir şekilde düşer. Anot akış alanındaki keskin manevralar nedeniyle basınç düşüşünün giriş ve çıkış manifoldlarında maksimum olduğu sonucuna varılmıştır. 15 s'de maksimum basınç düşüşü, kanal sayısı 4 iken 2614.8 Pa, 6 iken 2157.9 Pa ve 8 iken 1912.2 Pa olarak kaydedilmiştir.

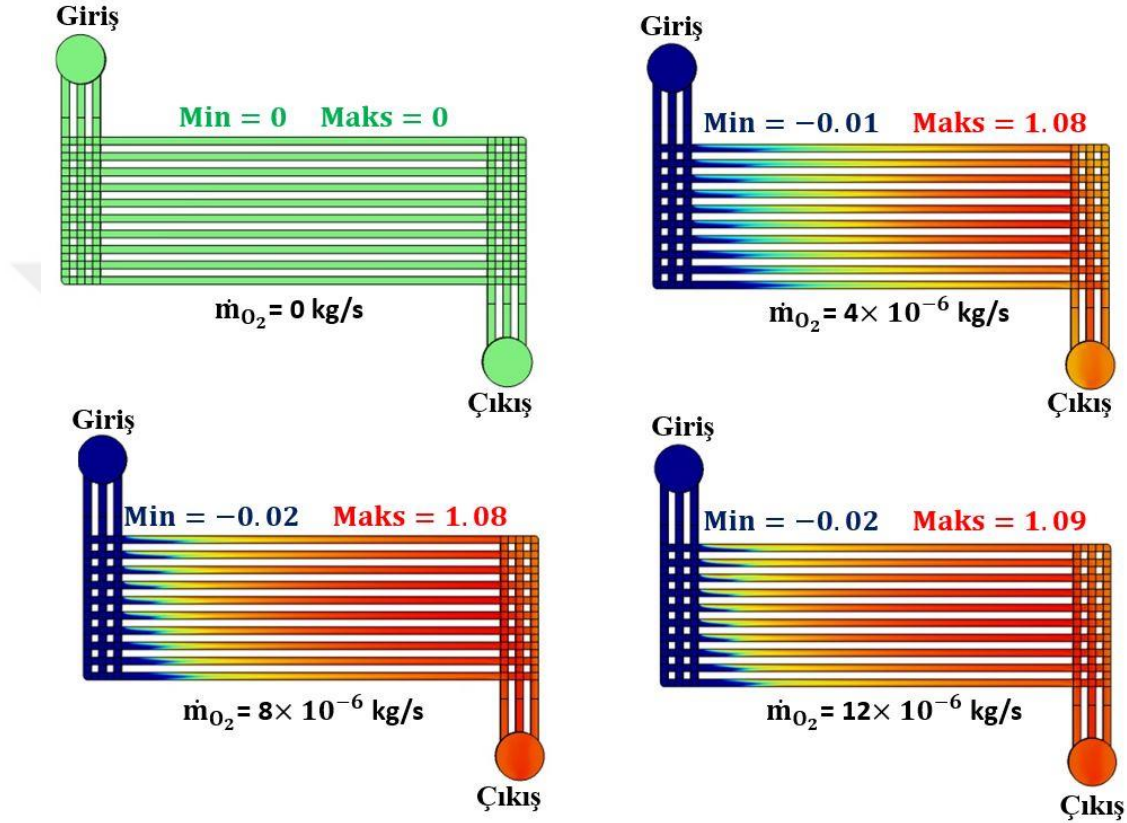


Şekil 3.9. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında basıncın farklı kanal sayılarına göre dağılımı.



Şekil 3.10. Suyun hacimsel debisinin 200 ml/dk ve oksijenin kütleli debisinin 10 mg/sn olduğu koşullar altında basıncın farklı kanal sayılarına göre dağılımı.

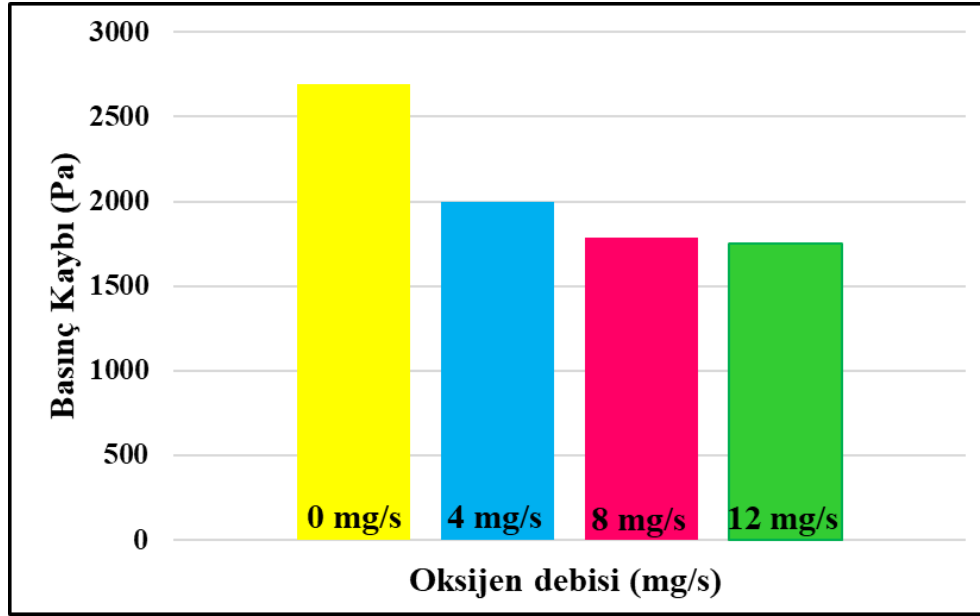
14 kanallı anot akış tasarımındaki basınç düşüşü 1649.6 Pa'dır. Şekil 3.10'da kanal sayısı arttıkça basınç düşüşü azalmaktadır. PEM elektrolizörün anot bipolar plakası boyunca oluşan yüksek basınç düşüşü yüksek pompalama gücü gerektirecektir. Akış hızıyla güçlü bir ilişkisi olan basınç düşüşü, elektrolizörün çalışma koşullarında önemli bir parametredir. Bu çalışmada, akış alanı plakasında basınç gradyanına neden olan iki temel faktör vardır: sürüklenme ve kanal sayısı.



Şekil 3.11. Farklı oksijen akış hızlarında paralel akış alanına sahip PEMEL'deki oksijen konsantrasyonu dağılımı.

Şekil 3.11, 10 kanallı bir akış alanı için farklı oksijen akış hızlarında oksijen gazı kabarcıklarının fraksiyonlarını göstermektedir. Sayısal simülasyonlar dört farklı durum için gerçekleştirilmiştir. Oksijen üretim hızı arttıkça, akış dağıtıcısındaki kanallardan geçen su akışına kıyasla oksijen kabarcıklarının akışı önemli hale gelecektir. Bipolar plakanın giriş portunda oksijenin hacim kesri sıfırdır. Oksijenin hacim kesri, aktif alan yüzeyi boyunca akış alanı plakasının girişinden itibaren artar. Oksijen kabarcıklarının oluşum hızı arttıkça akış alanı plakasının çıkışında ortalama oksijen hacim kesrinin arttığı gözlemlenmiştir. Akış kanallarının diğer bölümlerindeki sıvı karışımı ile karşılaştırıldığında, aktif yüzeye yakın sıvı karışımı daha yüksek oksijen konsantrasyonuna sahiptir. Sayısal simülasyonlarda oksijenin hacimsel debisi

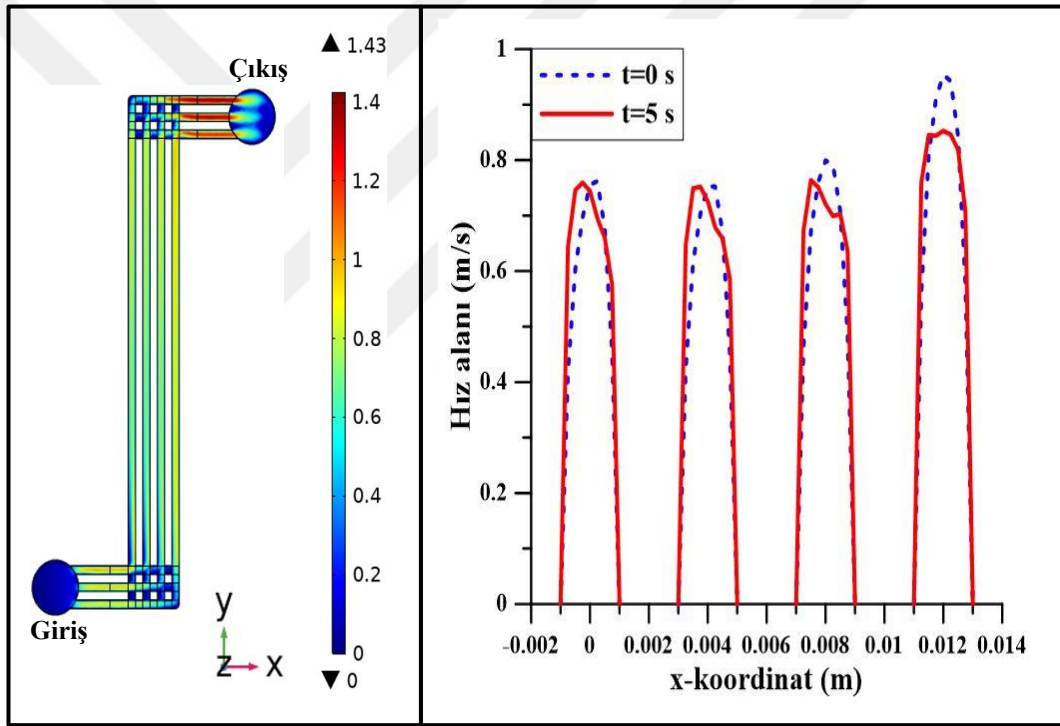
0.004 g/s artırılarak 0'dan 0.012 g/s'ye çıkarılmıştır. 10 kanallı bir akış alanındaki en yüksek oksijen konsantrasyonları, oksijen akış hızları 0.008 ve 0.012 g/s olduğunda elde edilmiştir. Oksijen akış hızı 0.004 g/s olduğunda akış alanının merkezinde gelişen bir oksijen dağılım profili gözlemlenmiştir.



Şekil 3.12. PEM elektroliz hücresinin anot paralel akış tasarımında farklı oksijen akış hızlarına karşı basınç kayıpları.

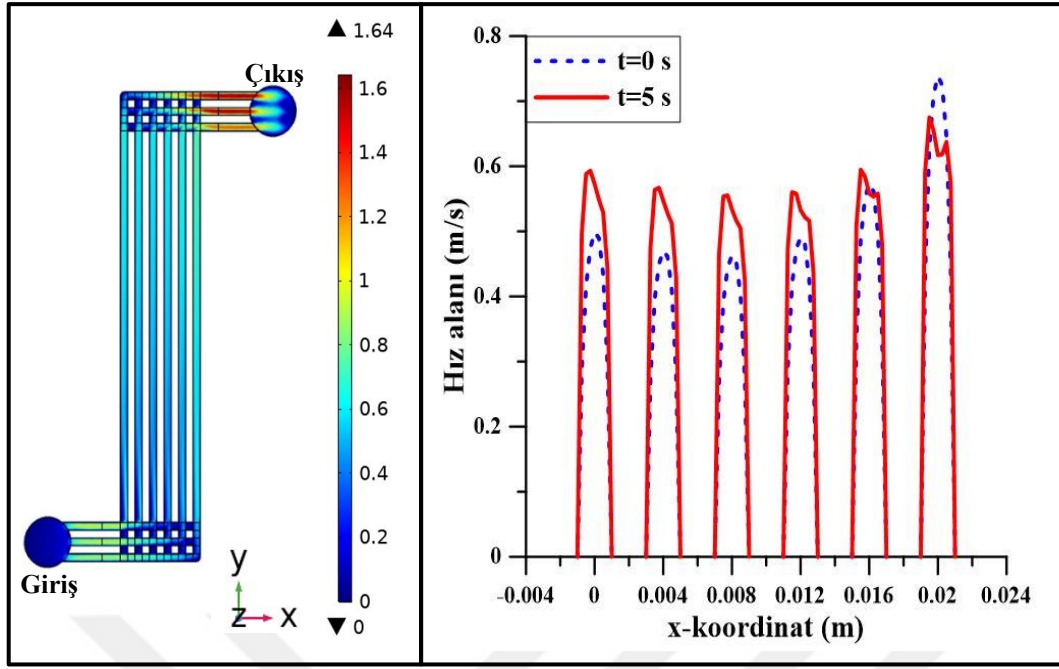
Şekil 3.12, oksijen debisindeki artışla birlikte basınç düşüşünün azaldığını göstermektedir. Oksijenin kütleli debisi 0'dan 12 mg/s'ye ulaştığında, basınç düşüşü yaklaşık %35 oranında azalır. Hız dağılımı farklı sayıda kanala sahip bir PEMEL'in anot akış alanı modeli boyunca üniform değildir (Şekil 3.13). Giriş ve çıkış manifoldlardaki akış hızı, bipolar plakanın merkezinden nispeten daha yüksektir. Anot akış alanı tasarımında, suyu aktif alan boyunca homojen bir şekilde dağıtmak için giriş portundan su pompalanır. Düz akış alanının giriş portunda akış hızı minimumdur. Giriş portundan yönlendirilen akış, üç kısa bölücü ile birlikte gelişme olanağına sahip değildir. Giriş ve çıkış manifoldları arasındaki düz ve uzun kanallar sayesinde akış hızla tam olarak gelişir. Oksijen gaz kabarcıklarının hızı sıvı suyunkinden daha yüksektir. Oksijen gazı kabarcıklarının zamana bağlı oluşumu, iki faz arasındaki yoğunluk farklarından dolayı bağlı hızı arttırmıştır. Bu durum, bipolar plakanın çıkış manifoldunda akış hızının maksimum bir değere ulaşmasıyla sonuçlanır. Ayrıca 0.2 lt/dk sabit debiyle yönlendirilen suyun çıkış manifoldunda kanal sayısındaki artışla birlikte hızı 2 m/s'ye çıkmaktadır. Bipolar plakadaki akış hızının zamana bağlı olarak oksijen gaz kabarcıklarının oluşumu ile arttığı gözlemlenmiştir. Geleneksel akış

alanının merkezinde akış hızı azalır. Ancak kanal sayısı azaldıkça akışkan daha az kanala dağıtılacağından akış alanının ortasındaki en yüksek akış hızı 4 kanallı akış alanı tasarımından elde edilmiştir. Hız grafikleri, kanallardaki sıvı/gaz akış dağılımının tekdüzeliğini gösterir. $t = 0$ 'da, saf su akışı nedeniyle akış dağılımı düzgün değildir, ancak zamana bağlı oksijen gaz kabarcıklarının oluşması nedeniyle hız profili üniform hale gelmiştir. Kaymama koşulundan dolayı, kütle ortalamalı akış hızı kanalların merkezinde yüksek, kanal duvarlarında ise sıfırdır. Maksimum akış hızı, çıkış manifolduna yakın kanallarda görülmüştür. 4 kanallı akış alanı için maksimum hız $t=0$ s'de 0.95 m/s'dir. Kanallar 4'ten 10'a yükseldiğinde maksimum akış hızı 0.58 m/s'ye düşmüştür. Kanal sayısı 4'ten 10'a çıkarıldığında maksimum hız $t=5$ s'de yaklaşık %43.5 oranında azalmaktadır.

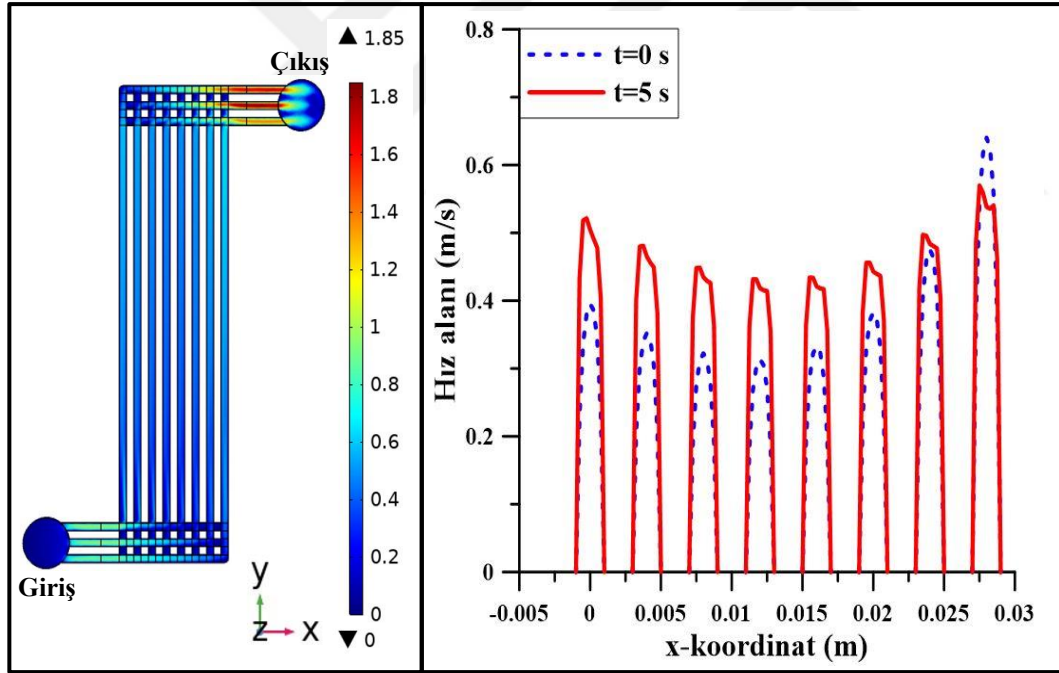


(a)

Şekil 3.13. PEM elektrolizörün anot akış alan plakasındaki çift fazlı akışın kütle ortalamalı hız dağılımı, (a) $N_{\text{kanal}}=4$, (b) $N_{\text{kanal}}=6$, (c) $N_{\text{kanal}}=8$ ve (d) $N_{\text{kanal}}=10$.

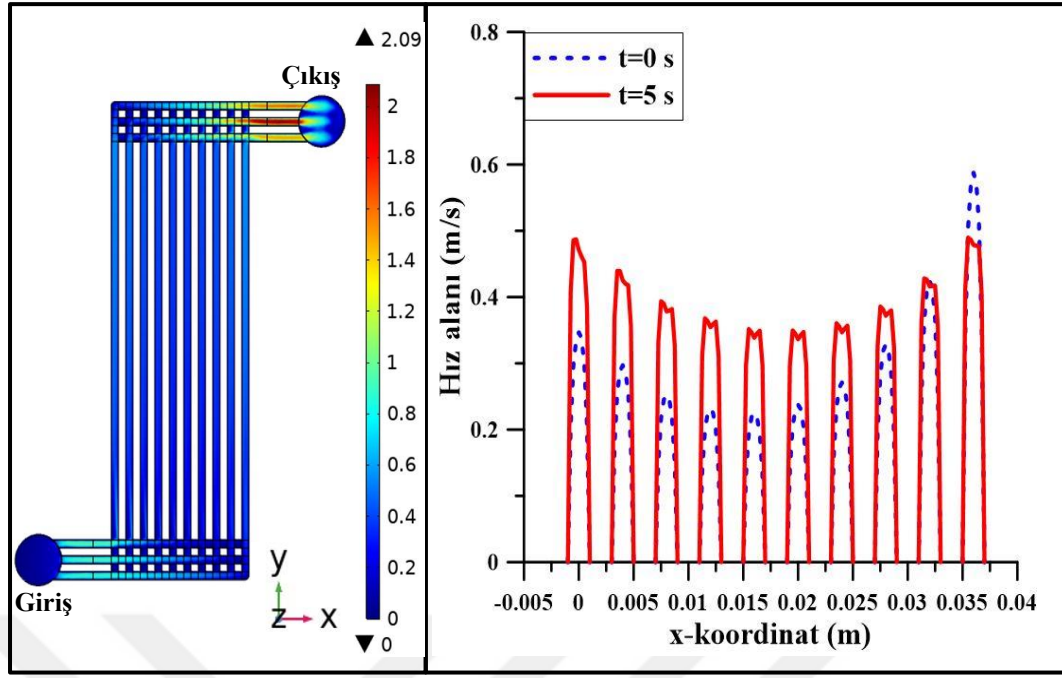


(b)



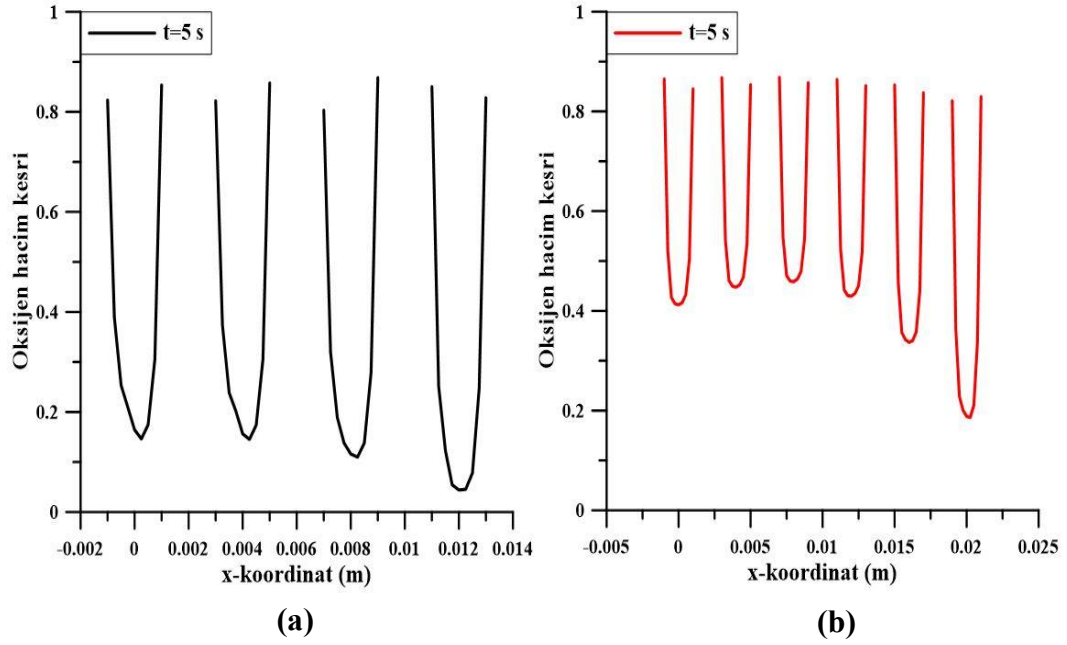
(c)

Şekil 3.13. (Devam) PEM elektrolizörün anot akış alan plakasındaki çift fazlı akışın kütle ortalama hız dağılımı, (a) $N_{\text{kanal}}=4$, (b) $N_{\text{kanal}}=6$, (c) $N_{\text{kanal}}=8$ ve (d) $N_{\text{kanal}}=10$.



(d)

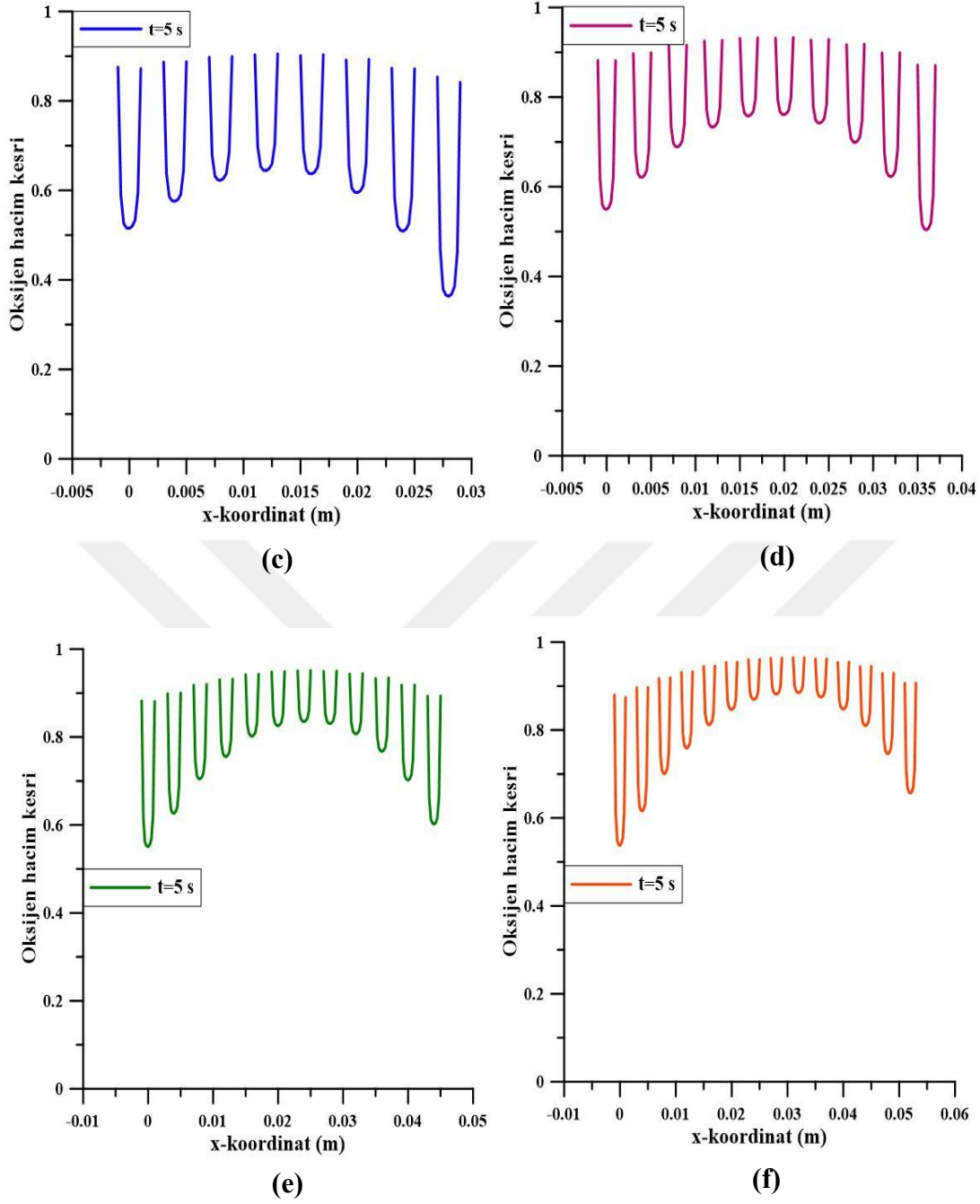
Şekil 3.13. (Devam) PEM elektrolizörün anot akış alan plakasındaki çift fazlı akışın kütle ortalamalı hız dağılımı, (a) $N_{\text{kanal}}=4$, (b) $N_{\text{kanal}}=6$, (c) $N_{\text{kanal}}=8$ ve (d) $N_{\text{kanal}}=10$.



(a)

(b)

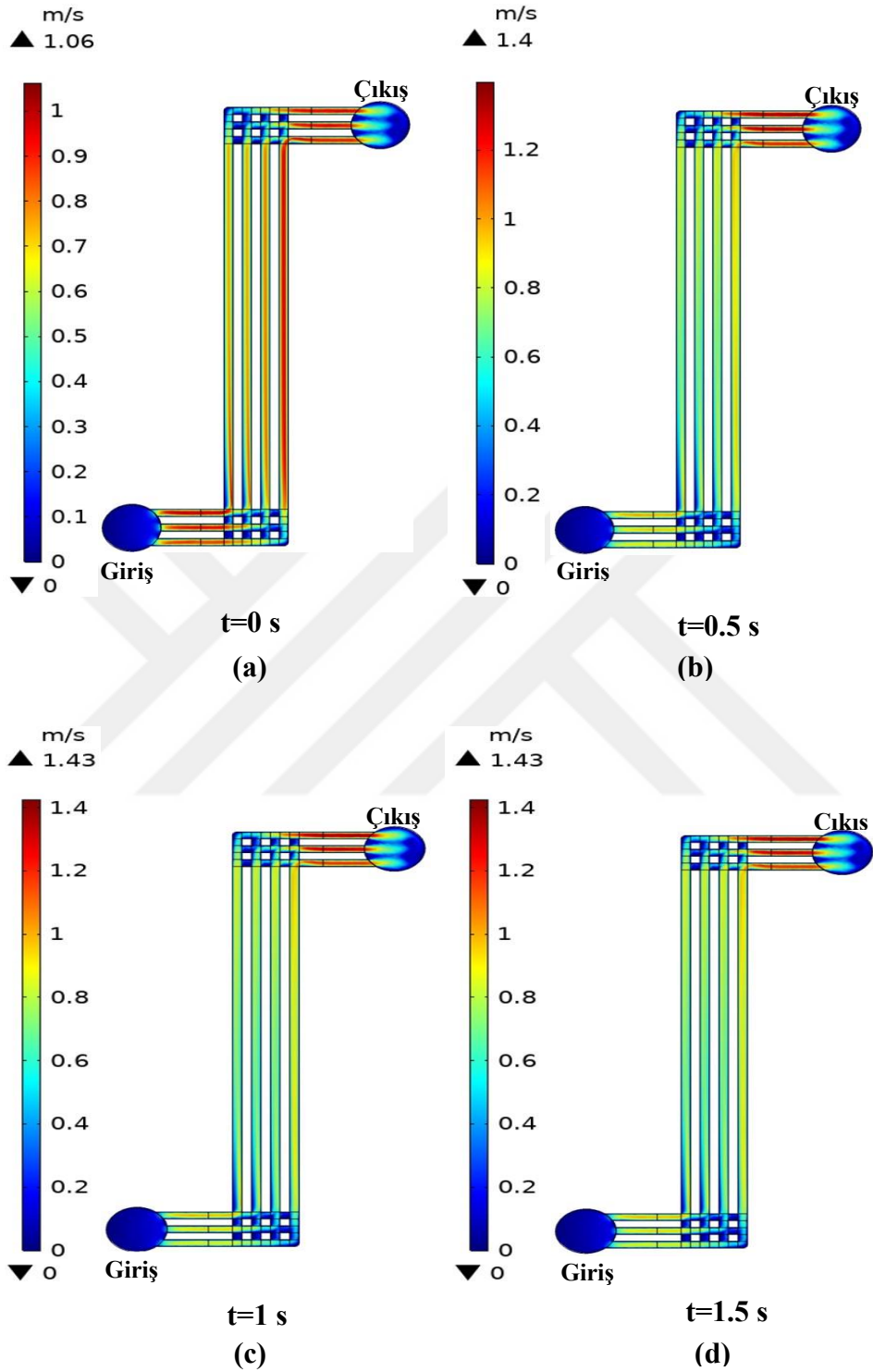
Şekil 3.14. PEM elektrolizörün anot akış alan tasarımındaki oksijen hacim kesrinin dağılımları, (a) $N_{\text{kanal}}=4$, (b) $N_{\text{kanal}}=6$, (c) $N_{\text{kanal}}=8$, (d) $N_{\text{kanal}}=10$, (e) $N_{\text{kanal}}=12$ ve (f) $N_{\text{kanal}}=14$.



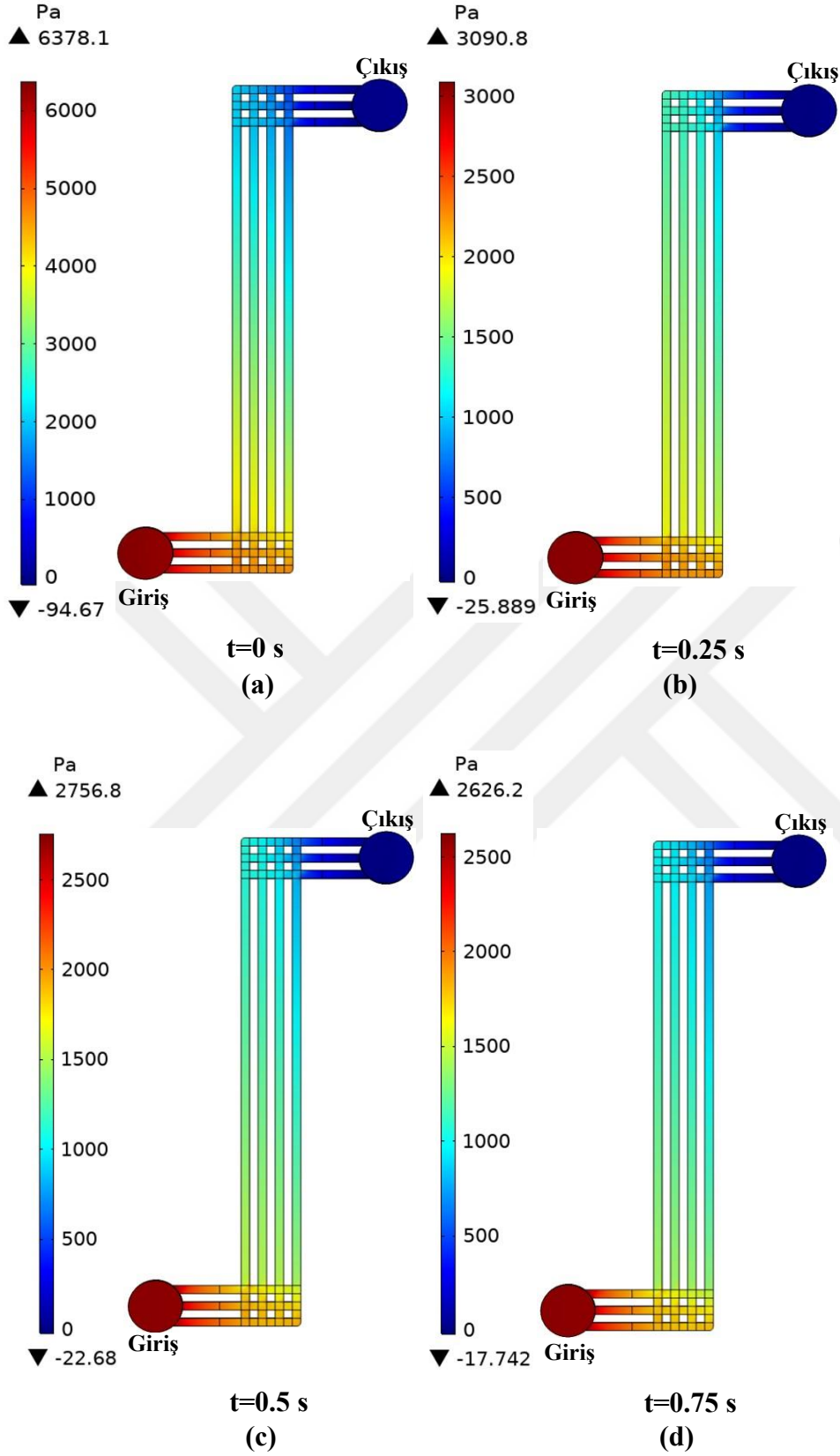
Şekil 3.14. (Devam) PEM elektrolizörün anot akış alan tasarımıındaki oksijen hacim kesrinin dağılımları, (a) $N_{\text{kanal}}=4$, (b) $N_{\text{kanal}}=6$, (c) $N_{\text{kanal}}=8$, (d) $N_{\text{kanal}}=10$, (e) $N_{\text{kanal}}=12$ ve (f) $N_{\text{kanal}}=14$.

Şekil 3.14, akış kanallarındaki oksijen hacim kesrinin dağılımını göstermektedir. Kanal sayısı arttıkça basınç düşüşü önemli ölçüde azalır ve aynı zamanda oksijen gaz fraksiyonu dağılımı artar. Oksijen hacim fraksiyonunun dağılımı 4, 6 ve 8 kanallı akış alanı tasarımlarında üniform değildir. En düşük oksijen konsantrasyonu dağılımı, kanal sayısı 10'dan az olduğunda gözlemlenmiştir. Simülasyon sonuçları, 10 kanallı akış alanı tasarımının simetrik bir oksijen konsantrasyonu dağılımına sahip olduğunu

ortaya çıkarmıştır. Kanal sayısı 4'ten 14'e çıkarıldığında birinci kanaldaki minimum oksijen gaz fraksiyonu yaklaşık 2.5 kat artar.



Şekil 3.15. 293.15 K sıcaklıkta, 100 kPa basınçta $t=0$ s, $t=0.5$ s, $t=1$ s ve $t=1.5$ s simülasyon süresinde bir anot akış alanındaki çift fazlı akış hızı profillerinin (m/s) 2B konturları.



Şekil 3.16. 293.15 K sıcaklıkta, 100 kPa basınçta $t=0$ s, $t=0.25$ s, $t=0.5$ s ve $t=0.75$ s simülasyon süresinde anot bölgesindeki statik basıncın (Pa) 2B konturları.

4-kanallı bir PEMEL akış alan tasarımında kütle ortalama hız konturları simülasyon süreleri $t=0$ s, $t=0.5$ s, $t=1$ s ve $t=1.5$ s için gösterilmiştir (Şekil 3.15). Akış hızı yaklaşık 1 sn'lik simülasyon süresinde maksimuma ulaşır. 1 sn sonrasında hızın neredeyse sabit kaldığı gözlemlenmiştir. 4-kanallı bir elektrolizör için, anot akış alanındaki statik basınç konturları Şekil 3.16'da $t=0$ s, $t=0.25$ s, $t=0.5$ s ve $t=0.75$ s'de gösterilmiştir. İlk 0.25 sn'de basınç, kanallar içinde üniform olmayan bir dağılım gösterir. Zaman geçtikçe statik basınç kanallar içinde daha kararlı bir hale gelir. Ayrıca basınç düşüşü zamanla azalmıştır.





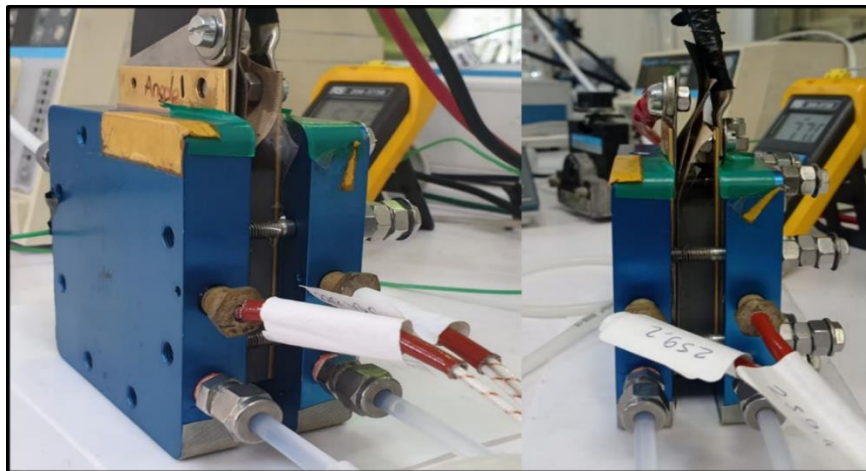
4. PEM ELEKTROLİZÖRÜN ÇALIŞMA PERFORMANSININ DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

4.1. Çalışmanın Amacı

Tezin bu bölümünde hücre sıcaklığının, su debisinin ve hücre voltajının akım ve hidrojen üretim hızlarına etkisini araştırmak için bir dizi deney yapılmıştır. Deneyler, atmosferik basınç altında 9 cm² aktif alana sahip tek bir hücre için gerçekleştirilmiştir. PEM elektroliz hücre performansını önemli ölçüde etkileyen çalışma parametrelerinin optimizasyonu Taguchi ve RSM yöntemleri kullanılarak gerçekleştirilecek, maksimum hücre performansı için optimum koşullar belirlenecektir.

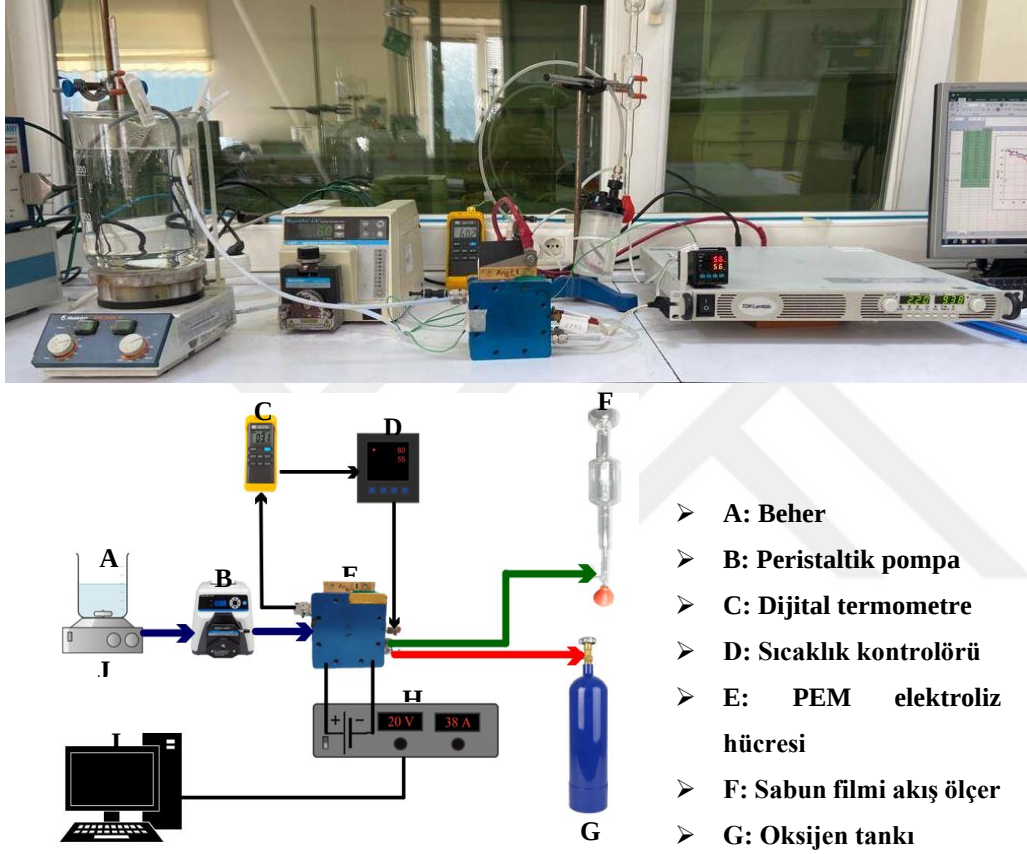
4.2. Deney Sistemi

9 cm² aktif alana sahip bir PEM elektroliz hücresinin tüm bileşenleri TÜBİTAK MAM Enerji Enstitüsü laboratuvarında monte edilmiştir (Şekil 4.1). PEM elektroliz hücresinin performans testlerinin yapıldığı deneysel test düzeneği Şekil 4.2'de verilmiştir. Nafion 115 membran, anot ve katot katalizörleri arasına sıkıştırılmıştır. Anot katalizörü olarak iridyum oksit (IrO₂) ve katot katalizörü olarak Pt kullanılmıştır. Deneysel test sisteminin ana bileşenleri bir PEM elektroliz hücresi, DC güç kaynağı, peristaltik pompa, ısıtıcı, sıcaklık kontrolörü ve bir veri toplama sistemidir. Tüm performans testleri atmosfer basıncında (1 atm) gerçekleştirilmiştir.



Şekil 4.1. Deneysel PEM elektroliz hücresi.

Hücreye saf su sağlamak için ayarlanabilir bir Masterflex peristaltik pompa (Model 77390-00) kullanılmıştır. Tüm performans testlerinde hücreye pompalanan saf su günlük olarak değiştirilerek iletkenliği ölçülmüştür (Şekil 4.3). Heidolph marka ısıtıcı ile hücreye beslenen suyun sıcaklığı istenilen seviyeye getirilmiştir. K tipi termokupllar ve bir ENDA sıcaklık kontrol cihazı, su ve hücre sıcaklıklarını kontrol etmiştir. Suyun hidrojen ve oksijen moleküllerine ayrışması için gereken enerji 0.76 kW'lık bir güç kaynağından (TDK-Lambda) karşılanmıştır.



Şekil 4.2. PEM elektrolizör test sistemi.

Oluşan hidrojen bir sabun filmlili akış ölçerden geçirilir ve hidrojen akış hızı veya hidrojenin hacimsel debisi ölçülür. Tüm veriler, bilgisayarda kaydedilmiştir.

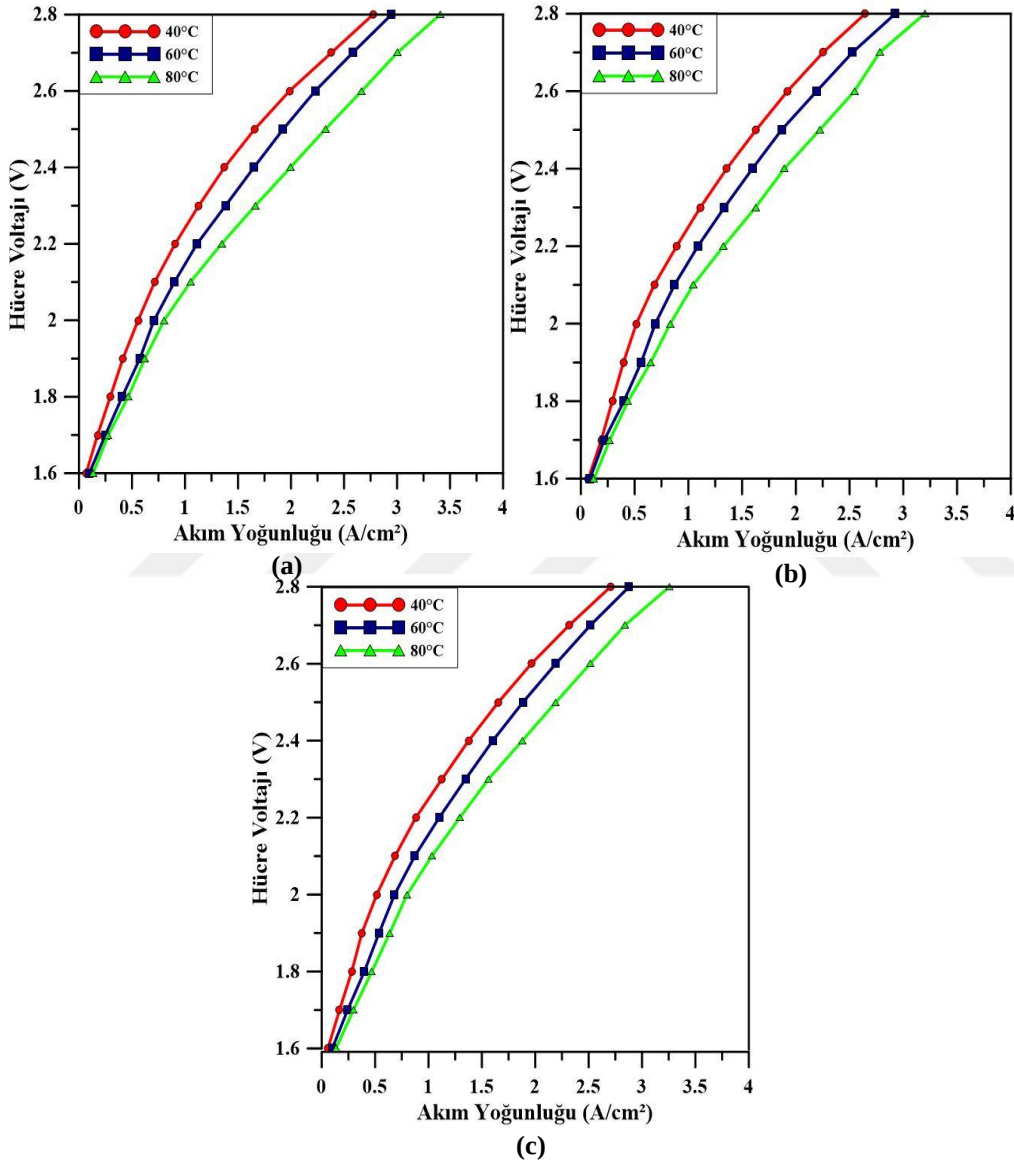


Şekil 4.3. Saf su kalem tip iletkenlik ölçer.

4.3. PEM Elektroliz Hücresi İçin Deneysel Sonuçlar

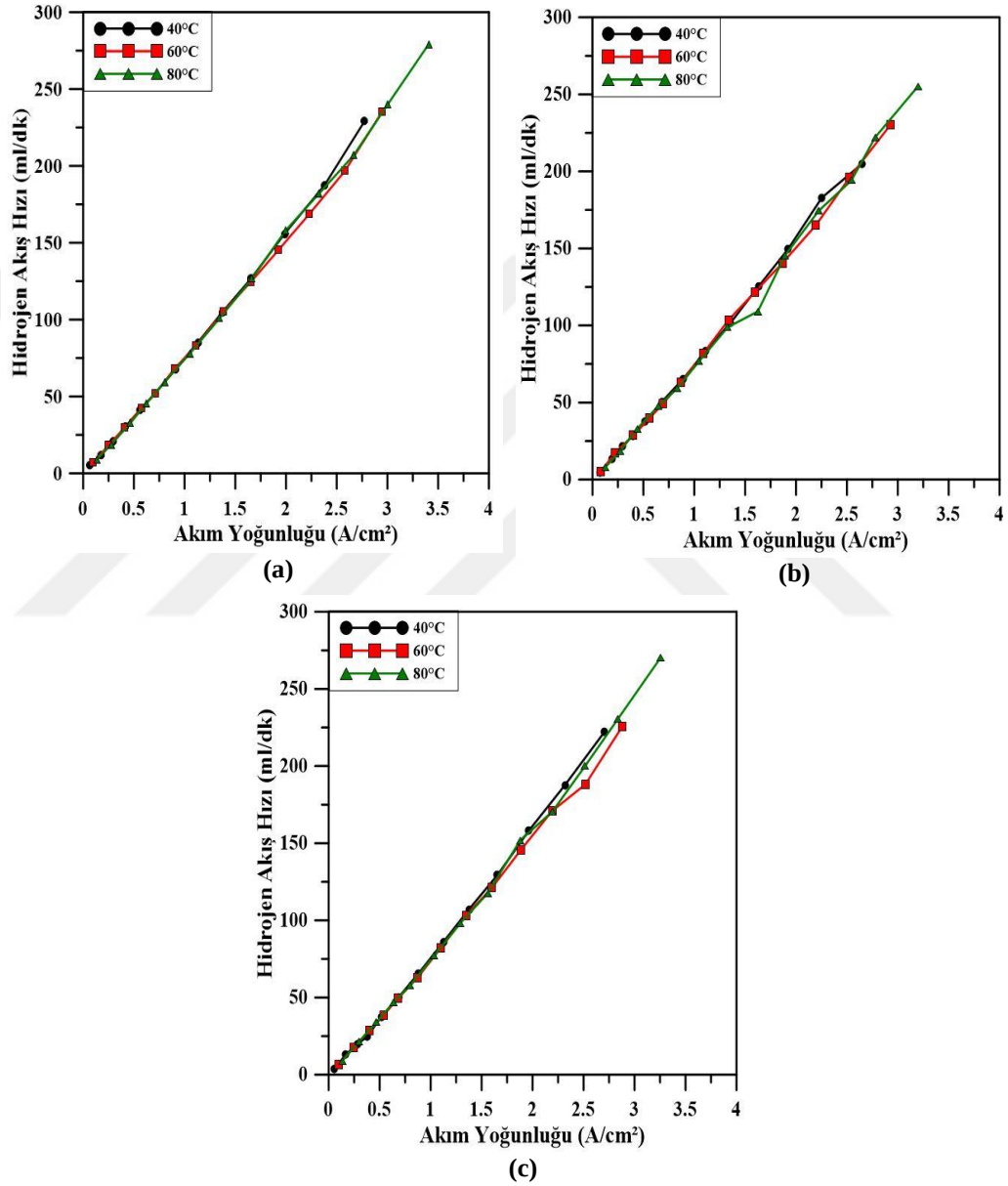
Şekil 4.4 sırasıyla 16.5 ml/dk (pompa hızı 5), 23.0 ml/dk (pompa hızı 7) ve 30.6 ml/dk (pompa hızı 9) su debilerinde çalışan PEMEL'in işletme sıcaklığının hücre performansı üzerindeki etkisini göstermektedir. 2.4 V hücre voltajında, su debisi 30.6 ml/dk iken sıcaklık 40°C'den 80°C'ye çıkarıldığında akım yoğunluğu 1.376'dan 1.878 A/cm²'ye yükseldiği gözlemlenmiştir. En iyi hücre performansı 80°C sıcaklıkta elde edilmiştir. DeneySEL sonuçlara göre, yüksek sıcaklıklarda membran-katalizör arayüzünde yük transfer katsayısının kinetiğinin artmasıyla birlikte akım yoğunlukları da artmıştır. Bu nedenle, sıcaklığın artmasıyla aktivasyon aşırı potansiyeli azalmıştır. Ayrıca, yüksek sıcaklıklarda elektrokimyasal reaksiyonlar hızlanır, proton iletkenliği artar ve konsantrasyon aşırı potansiyeli azalır. Ancak 80 °C'nin üzerindeki hücre sıcaklıkları membran dehidrasyonuna neden olur, bu nedenle ısıl direnci yüksek Nafion membranların kullanılması gerekir. Brezak ve ark. [116] çalışmalarında geliştirdikleri PEM elektrolizörün matematiksel modelinde sıcaklığın hücre performansı üzerindeki etkisini incelediler. Sıcaklığı 40°C'den 80°C'ye yükselttiklerinde akım yoğunluğu ve verim değerlerinin arttığı sonucuna varmışlardır. Ayrıca çalışmalarında 80°C ve üzerindeki sıcaklıklarda membran ömrünün önemli ölçüde kısaldığını vurgulamışlardır. Bu çalışmada diğer su debilerine göre yüksek

akım yoğunluğunun elde edildiği optimum su debisi 16.5 ml/dk'dır. Yüksek akım yoğunluklarında, her iki elektrot üzerindeki düşük yük transfer direnci nedeniyle elektrokimyasal reaksiyon hızı artar ve bu da hücre performansını artırır [117]. Su debisinin artması soğutma hızını artıracığından PEM elektroliz hücresinin çalışma sıcaklığı da düşecektir. Çalışma sıcaklığındaki bu düşüş, zarın iyon iletkenliğinin azalmasına neden olacaktır. Bu nedenle, yüksek hücre performansı için su akış hızı optimum bir seviyede (16.5 ml/dk) tutulmuştur.



Şekil 4.4. Sıcaklığın, 16.5 ml/dk (a), 23.0 ml/dk (b) ve 30.6 ml/dk (c) su akış hızında PEM elektroliz hücresinin polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisi.

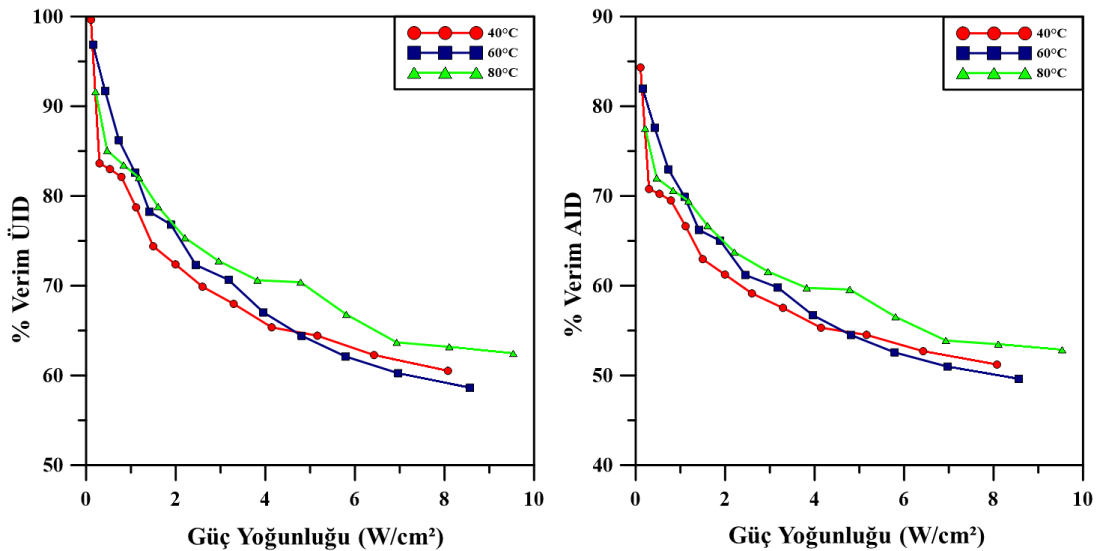
Farklı su sıcaklıklarında hidrojen akış hızının değişimi Şekil 4.5'te gösterilmektedir. Buna göre, tüm eğriler aynı eğilime sahiptir; sıcaklık arttıkça hidrojen üretim hızı artmaktadır. Üretilen hidrojen akış hızının 80°C hücre sıcaklığında maksimum olduğu gözlemlenmiştir. Yapılan deneyler sonucunda artan sıcaklığın elektrokimyasal reaksiyon kinetiğini hızlandırarak hücre performansını iyileştirdiği ve buna bağlı olarak hidrojen üretim hızının arttığı sonucuna varılmıştır.



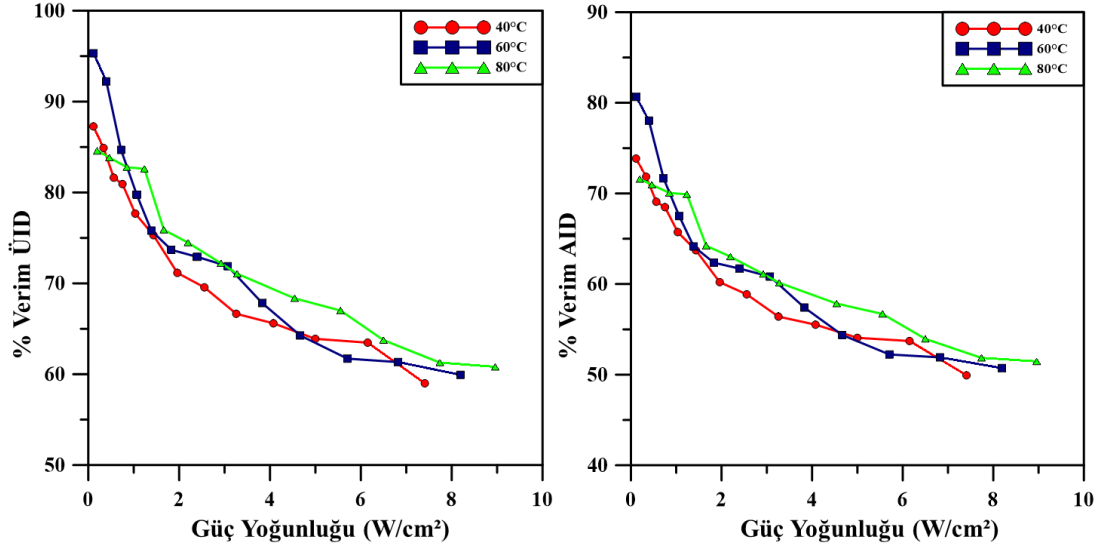
Şekil 4.5. Hidrojen akış hızının, 16.5 ml/dk (a), 23.0 ml/dk (b) ve 30.6 ml/dk (c) su akış hızında PEM elektroliz hücresinin polarizasyon eğrisi üzerindeki etkisi.

Benzer şekilde, Choi ve ark. [118] çalışmalarında yüksek saflıkta hidrojen üretim hızı elde etmek için elektrolizör çalışma sıcaklığının 70 ve 80°C'de sabit tutulması

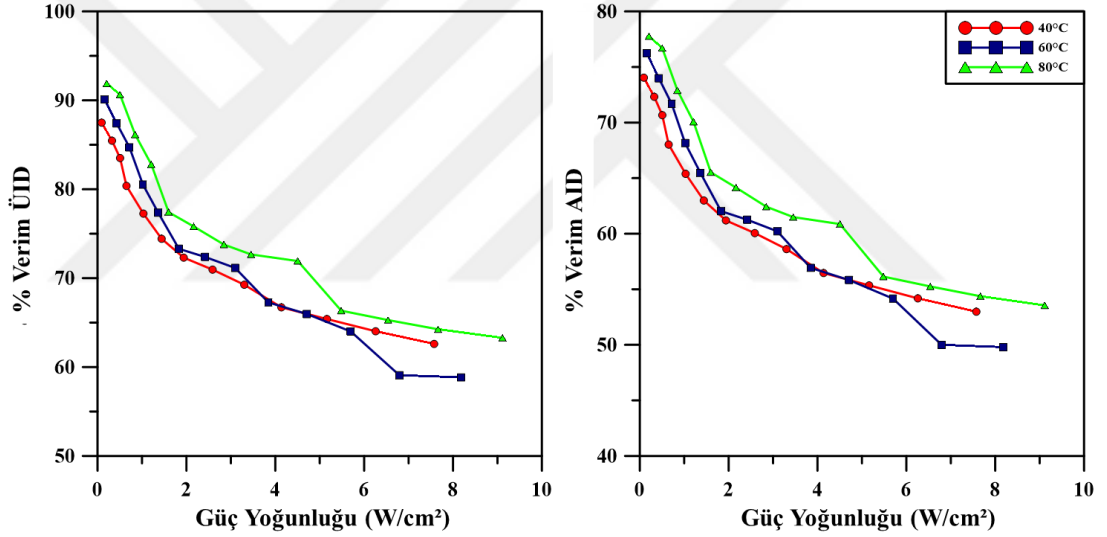
gerektiğini vurgulamıştır. 2.8 V hücre voltajında suyun debisi 16.5 ml/dk iken çalışma sıcaklığının 40°C'den 80°C'ye yükselmesi hidrojen akış hızının 229'dan 279.1 mL/dk'ya çıkmasına neden olmuştur. Literatürden, Azam ve ark. [119], 36 cm² aktif alana sahip bir PEM elektrolizörde altı farklı su debisinde akım yoğunluğu-H₂ debi grafiklerini deneysel olarak elde ettiler. Benzer şekilde, PEMEL'den elde edilen hidrojen debilerinde önemli bir değişiklik olmadığı sonucuna vardılar. PEM elektroliz hücresinin 40°C, 60°C ve 80°C'deki enerji verimliliği, 16.5 ml/dk su akış hızı için Şekil 4.6'da, 23 ml/dk için Şekil 4.7'de ve 30.6 ml/dk için Şekil 4.8'de gösterilmektedir. Sonuçlar, en yüksek enerji veriminin 80°C'de elde edildiğini göstermektedir. 80°C çalışma sıcaklığında, PEM elektroliz hücresinin elektrotları daha reaktiftir, bu da daha yüksek akım yoğunluğu ve dolayısıyla daha düşük aktivasyon aşırı potansiyeli ile sonuçlanır. Hücre voltajı arttığında enerji verimliliği azalır. Taguchi yöntemi ile tasarlanan PEM elektroliz test sisteminde en yüksek performansın elde edildiği noktada üst ısıl değer (ÜİD) ve alt ısıl değer (AİD) verimleri sırasıyla %70.4 ve %59.6'dır. Su debisi 16.5 ml/dk iken hidrojen gazının üst ısıl değerine (ÜİD) göre hesaplanan verimin alt sınır seviyesi yaklaşık %60'tır (Şekil 4.6). Benzer şekilde literatürde yayınlanan makalede de üst ısıl değer üzerinden hesaplanan verim değerinin alt sınır değeri %65 olarak bulunmuştur [119]. Şekil 4.7, 40°C sıcaklıkta su debisi 23 ml/dk olduğunda elde edilen en düşük enerji verimliliğinin %50 olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.6. 16.5 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.



Şekil 4.7. 23 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.



Şekil 4.8. 30.6 ml/dk su debisi için farklı hücre sıcaklıklarında güç yoğunluğu fonksiyonu olarak hidrojen üretim verimliliğinin grafiği.

4.4. PEM Elektrolizörün Taguchi Yöntemiyle Optimizasyonu

4.4.1. Taguchi yöntemi

Taguchi yöntemi, Genichi Taguchi tarafından geliştirilen deneysel optimizasyon için kullanılan güçlü bir istatistiksel yöntemdir. Birden çok parametreyi optimize etmeye uygun güçlü deneysel tasarım olarak da tanımlanabilir. Bu yöntem, kontrol faktörlerinin veya bağımsız değişkenlerin optimal seviyelerini belirlemekte, amaç fonksiyonu üzerindeki etkilerini analiz etmekte, kontrol edilebilen veya edilemeyen parametreler arasındaki ilişkiyi ortaya koymaktadır. Taguchi optimizasyonu,

araştırmacı tarafından önerilen girdi faktörlerini dikkate alır ve bu faktörlerin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkisini Sinyal/Gürültü (S/N) oranları aracılığıyla gösterir. Bu yöntem, deney sayısını azaltmaya yardımcı olur. Ayrıca, maksimum PEM elektrolizör performansı için girdi faktörlerinin optimum kombinasyonunu oluşturan mükemmel bir mühendislik aracıdır.

Tablo 4.1. Üç parametrelili L9 ortogonal dizisi ve deneysel tasarımın S/N oranları.

Deneme Sayısı	Sıcaklık (°C)	Pompa hızı	Hücre voltajı (V)	S/N Oranı
1	40	5	1.6	14.0882
2	40	7	2	31.5061
3	40	9	2.4	40.5990
4	60	5	2	34.3033
5	60	7	2.4	41.7058
6	60	9	1.6	16.4955
7	80	5	2.4	43.9671
8	80	7	1.6	17.7860
9	80	9	2	35.2641

Taguchi yönteminin en önemli avantajı, girdi faktörlerinin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkisini daha az deneysel maliyetle açıklamak için ortogonal bir serinin benzersiz tasarımını kullanmasıdır. Bu çalışmada, deneysel maliyeti azaltmak ve bilgilerin çoğuna erişmek için ilk önce ortogonal bir dizi tasarlanmıştır. Hücre sıcaklığı, pompa hızı, hücre voltajı ve deneysel tasarımın S/N oranları Tablo 4.1’de verilmiştir. L9 standart ortogonal dizisini kullanan bu optimizasyon yönteminin temel amacı, maksimum akım ve hidrojen akış hızını elde etmektir. S/N oranı hedef değere yakınlık derecesini temsil etmektedir. Sinyal ortalama çıktıyı, gürültü ise ortalama çıktının sapma miktarını gösterir. En iyi elektrolizör performansı, sinyal seviyesi rastgele gürültü seviyesinden çok daha yüksek olduğunda yüksek S/N oranıyla elde edilir. S/N oranı arttıkça elektrolizör hücresi daha iyi çalışma koşullarında çalışır. Tablo 4.1’de en yüksek S/N oranı (43.9671) 80°C sıcaklıkta, 5 pompa hızında ve 2.4 V hücre voltajında elde edilmiştir. Bu durum, deneysel tasarımdaki en yüksek hücre performansının bu çalışma koşullarıyla elde edildiği anlamına gelir. Kontrol faktörlerin S/N oranları için akım ve hidrojen akış hızı grafikleri Şekil 4.9’da verilmiştir. Sıcaklık 40 °C’den 80 °C’ye çıkarıldığında akım ve hidrojen akış hızlarının

arttığı gözlemlenmiştir. Pompa hızı 5'ten 9'a çıkarıldığında akım ve hidrojen akış hızında önemli bir değişiklik olmamıştır. Son olarak, hücre voltajı her iki farklı yanıt fonksiyonunu da önemli ölçüde etkilemiştir. İstatistiksel analiz için üç farklı S/N oranı türü vardır (a) daha büyük olan daha iyidir, (b) daha küçük olan daha iyidir ve (c) nominal daha iyidir. Kontrol edilebilir ve kontrol edilemeyen gürültü kaynakları, PEM elektroliz hücresinin performansını etkiler. Hassas sonuçlar elde etmek ve kontrol edilemeyen gürültü kaynaklarının etkisini en aza indirmek için deneyler üç kez tekrarlanmıştır. Tezin bu bölümünde, maksimum akım ve hidrojen akış hızı elde etmek için optimum çalışma parametrelerini belirleyeceğiz; bu nedenle, analiz sonuçları S/N oranı daha büyük olan daha iyidir şeklinde değerlendirilecektir. Bu yanıt için S/N denklemi aşağıda verilmiştir (Denklem 4.1).

$$\frac{S}{N} = -10 \log_{10} \left(\frac{1}{n_r} \sum_{i=1}^{n_r} \frac{1}{Y_i^2} \right) \quad (4.1)$$

Burada,

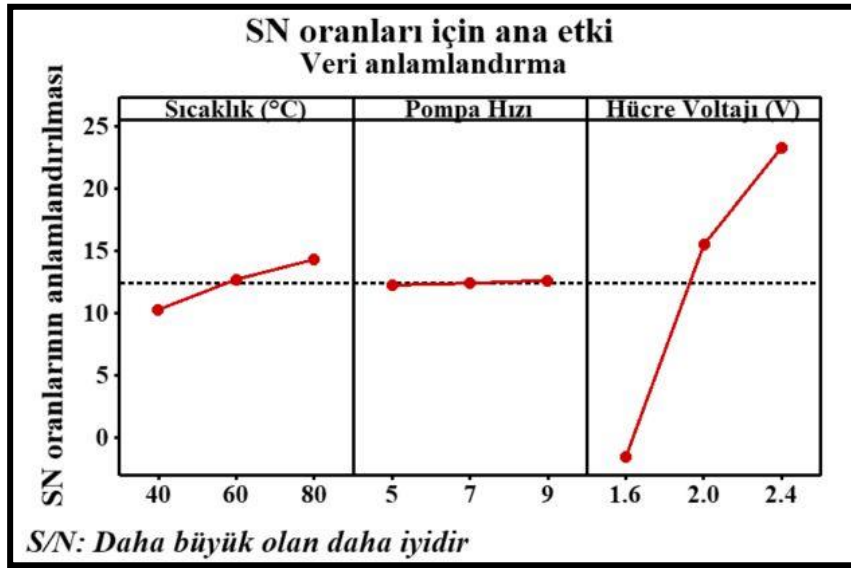
n_r : Gürültü faktörlerinin seviyeleri için deneme sayısı

Y_i : Sonuç verilerinin değeri

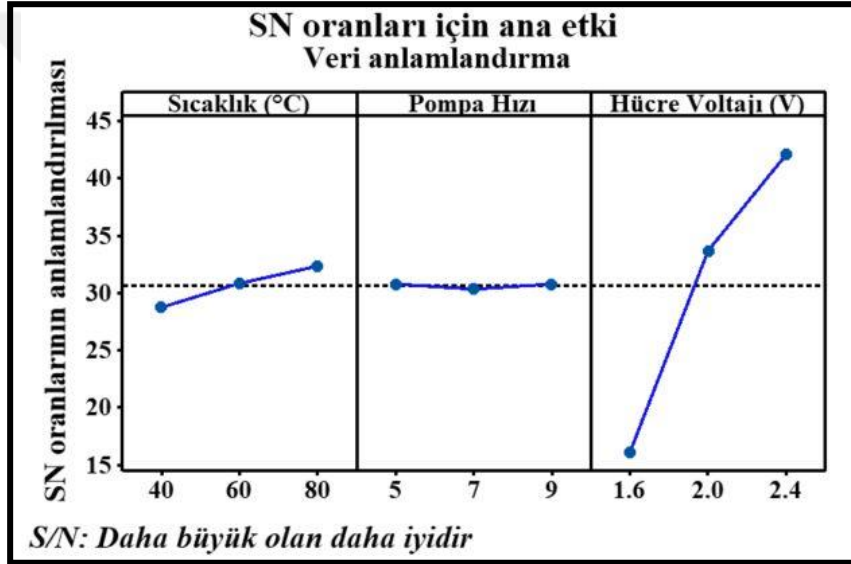
Giriş parametreleri Minitab yazılımında (deneme sürümü) Taguchi yöntemi kullanılarak analiz edilir. Yanıt fonksiyonunu etkileyen üç farklı bağımsız parametrenin önemi bir delta değeri ile ölçülür. Delta değerinin yüksek olması bağımsız değişkenin anlamlılığıyla doğrudan ilişkilidir. Rank, bağımsız parametrenin yanıt fonksiyonu üzerindeki etki sırası anlamına gelir.

Tablo 4.2. S/N oranları için yanıt tablosu.

Hidrojen Akış Hızı (ml/dk)				Akım (A)		
Seviye	Sıcaklık	Pompa hızı	Hücre voltajı	Sıcaklık	Pompa hızı	Hücre voltajı
1	28.73	30.79	16.12	10.303	12.290	-1.493
2	30.83	30.33	33.69	12.738	12.440	15.522
3	32.34	30.79	42.09	14.348	12.659	23.360
Delta	3.61	0.45	25.97	4.045	0.369	24.852
Rank	2	3	1	2	3	1



(a)



(b)

Şekil 4.9. Kontrol faktörlerin S/N oranları için (a) akım (A) ve (b) hidrojen akış hızı (ml/dk) grafikleri.

PEMEL akımını etkileyen en kritik faktörün hücre voltajı olduğu, bunu sıcaklık ve pompa hızının takip ettiği kaydedilmiştir. S/N oranları için yanıt tablosu Tablo 4.2’de verilmiştir. Maksimum S/N ile minimum S/N arasındaki fark tabloda Delta olarak tanımlanmıştır. Yüksek delta değeri, hücre performansını olumlu ya da olumsuz etkileyen en etkili parametredir. Örneğin, Rank 1 en anlamlı parametreyi gösterir, Rank 3 ise en anlamsız kontrol faktörünü gösterir. Maksimum elektrolizör performansı elde etmek için S/N oranı yanıt tablosundan kontrol faktörlerinin en yüksek düzeyi, deney sisteminin en iyi değeri olarak dikkate alınmıştır. Maksimum akım ve hidrojen

akış hızı için üç kontrol faktörünün optimum seviye kombinasyonu HV1S2PH3 olarak özetlenebilir.

4.4.2. ANOVA analizi

Tezin bu bölümünde, her bir parametrenin yanıt fonksiyonları üzerindeki katkı oranları (parametre etkisi) belirlenmiş, işletme parametreleri ile optimizasyon yanıtları arasındaki ilişkiyi temsil etmek için istatistiksel bir mühendislik aracı olarak varyans analizi (ANOVA) yöntemi kullanılmıştır. En kritik çalışma parametresinin akım ve hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi veya katkı oranı bu teknik kullanılarak belirlenebilir. Varyans analizi, karelerin toplamı (SS), kareler ortalaması (MS) ve serbestlik derecesi (DF) gibi farklı kontrol faktörleriyle optimizasyon yanıtlarına her bir parametrenin katkı oranını hesaplamak için kullanılır.

$$S_m = \frac{\left(\sum \frac{S}{N_i}\right)^2}{N} \quad (4.2)$$

$$S_T = \left(\sum \frac{S}{N_i}\right)^2 - S_m \quad (4.3)$$

$$SS_A = \frac{A_1^2}{N_{A1}} + \frac{A_2^2}{N_{A2}} + \dots + \frac{A_n^2}{N_{Ai}} - S_m \quad (4.4)$$

$$MS_i = \frac{SS_i}{DF_i} \quad (4.5)$$

$$F_i = \frac{MS_i}{MS \text{ hata}} \quad (4.6)$$

$$\text{Katkı (\%)} = \frac{SS_i - (DF_i)(MS \text{ hata})}{S_T} \quad (4.7)$$

Denklem 4.2'den Denklem 4.7'ye kadar tüm eşitliklerde S, N, DF ve SS sırasıyla sinyali, gürültüye giden sinyal sayısını, serbestlik derecesi ve karelerin toplamını göstermektedir. Hidrojen akış hızı ve akım için ANOVA analizinin sonuçları sırasıyla Tablo 4.3 ve Tablo 4.4'te verilmiştir.

Tablo 4.3. Hidrojen akış hızı için varyans analizinin (ANOVA) sonuçları.

Parametreler	DF	Parametre etkisi (%)	Adj SS	Adj MS	F-Değer	P-Değer
Sıcaklık (°C)	1	3.67	907.7	907.7	4.29	0.093
Pompa hızı	1	1.25	309.1	309.1	1.46	0.281
Hücre voltajı (V)	1	90.81	22477.2	22477.2	106.13	0.000
Hata	5	4.28	1059.0	211.8		
Toplam	8	100.00				

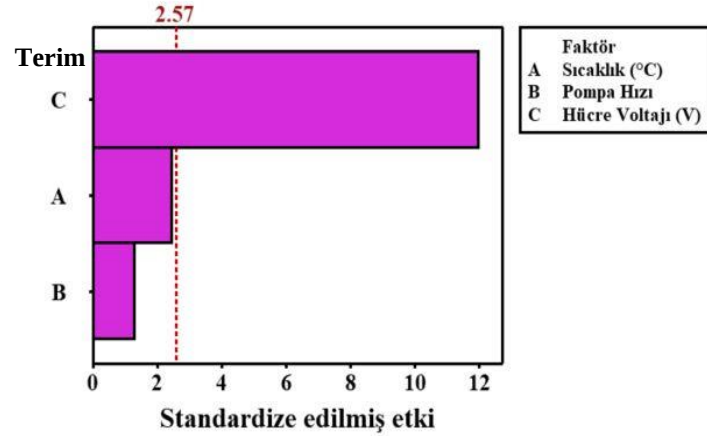
Tablo 4.4. Akım için varyans analizinin (ANOVA) sonuçları.

Parametreler	DF	Parametre etkisi (%)	Adj SS	Adj MS	F-Değer	P-Değer
Sıcaklık (°C)	1	3.84%	12.327	12.327	5.96	0.058
Pompa hızı	1	1.04%	3.330	3.330	1.61	0.260
Hücre voltajı (V)	1	91.91%	295.261	295.261	142.86	0.000
Hata	5	3.22%	10.334	2.067		
Toplam	8	100.00%				

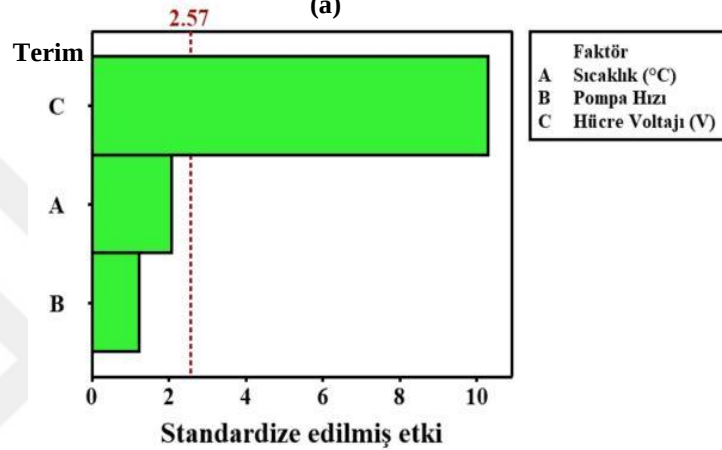
F-değeri, model kareler ortalamasının artık kareler ortalamasına oranı olarak ifade edilebilir. Tablolardan, hücre voltajının yüksek F değeri ve buna karşılık gelen düşük P değeri ile akımı ve hidrojen akış hızını önemli ölçüde etkilediği çıkarılabilir. Hidrojen akış hızına en yüksek parametre etkisine sahip bağımsız değişken %90.81 katkı oranıyla hücre voltajı olurken, en düşük parametre etkisi ise yaklaşık %1.25 ile pompa hızıdır. Sıcaklık etkisi de yaklaşık %3.67'dir (Tablo 4.3). Benzer şekilde akıma parametre etkisi en yüksek olan bağımsız değişken %91.91 katkı oranıyla hücre voltajıdır. Karşılaştırıldığında en düşük parametre etkisi yaklaşık %1.04 ile pompa hızıdır. Sıcaklık etkisi ise yaklaşık %3.84'tür (Tablo 4.4).

4.4.3. Pareto diyagramı

Pareto diyagramı, yanıt fonksiyonunu etkileyen kontrol faktörlerinin veya etkileşimlerin önem sırasını göstermek için geliştirilmiş bir çubuk grafiğidir.



(a)



(b)

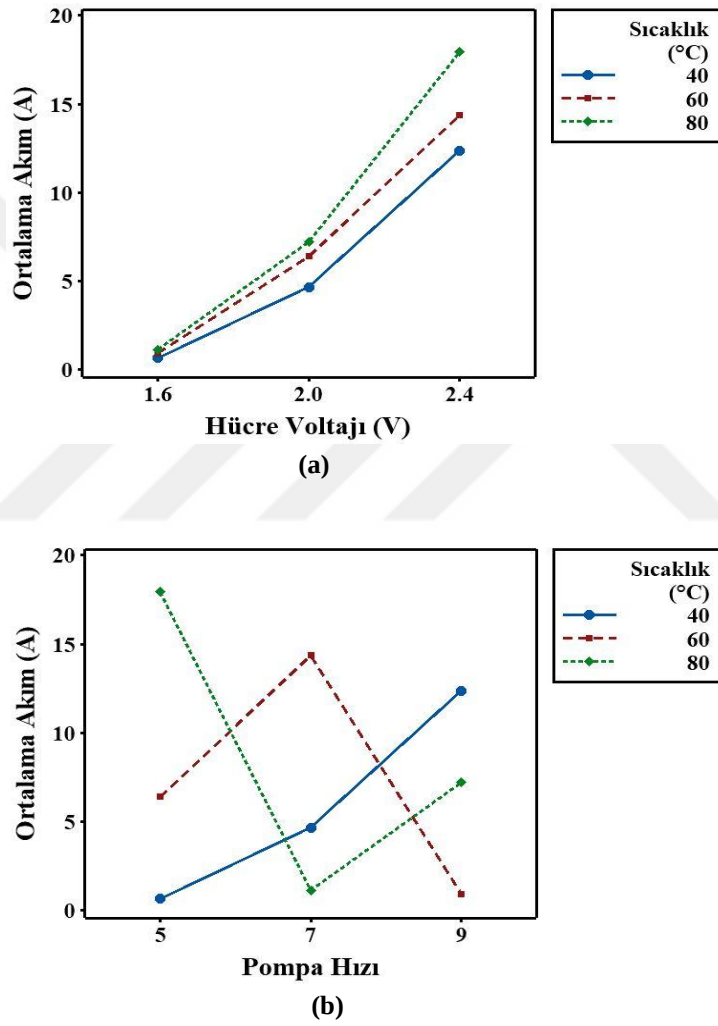
Şekil 4.10. Taguchi tasarımına göre girdi faktörlerinin Pareto grafikleri: (a) akım (A), (b) hidrojen akış hızı (ml/dk).

Her bir çalışma faktörünün önemi, Şekil 4.10'da gösterilen bir Pareto diyagramı oluşturularak grafiksel olarak yorumlanabilir. Akım ve hidrojen akış hızını etkileyen en önemli faktörün hücre voltajı (C), ardından sıcaklık (A) ve son olarak da pompa hızı (B) olduğu görülmüştür. Standardize edilmiş etki, kırmızı kesikli çizgiyle gösterilen 2.57 minimum eşik değerinden daha büyük olduğundan, hücre voltajının önemli bir parametre olduğu grafikten açıkça görülmektedir. Benzer şekilde, sıcaklığın akım üzerindeki standardize edilmiş etkisinin de neredeyse eşik değerinde olduğu çıkarımı yapılabilir.

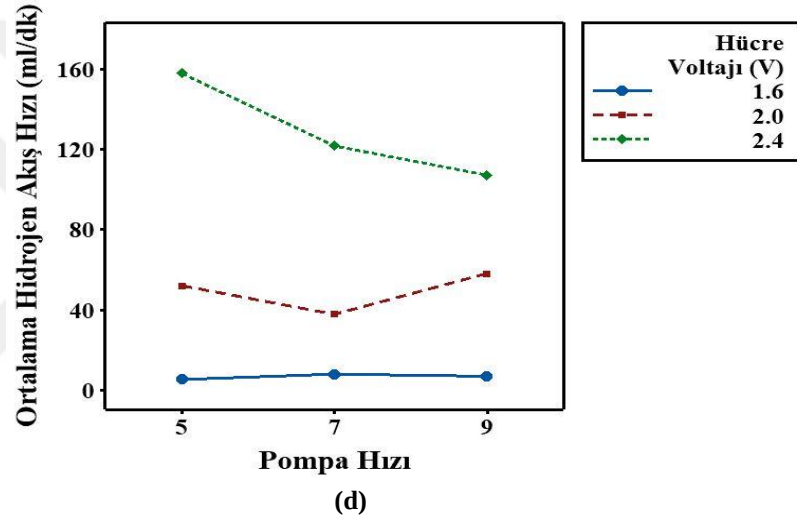
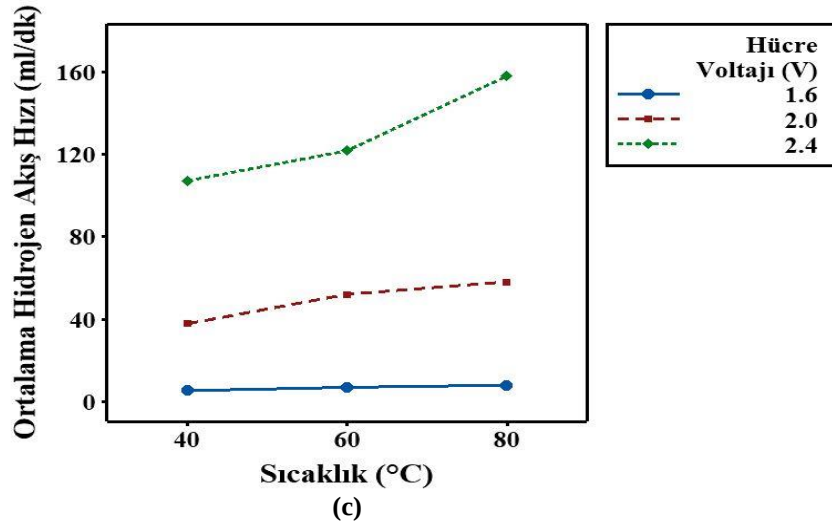
4.4.4. Etkileşim (interaction) diyagramı

İki kontrol faktörü kombinasyonunun elektrolizör akımı ve hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi, etkileşim grafikleriyle gözlemlenebilir. Paralel çizgiler zayıf etkileşimi, paralel olmayan çizgiler ise güçlü etkileşimi ifade eder [120]. Şekil 4.11(a), hücre voltajı ve sıcaklık arasındaki etkileşim grafiğini göstermektedir. 80°C sıcaklık

ve 2.4V hücre voltajı birleştirildiğinde akım maksimize edilir. Şekil 4.11(b), sıcaklık ve pompa hızı arasındaki etkileşim grafiğini göstermektedir. Maksimum akım, pompa hızı 5 ve sıcaklık 80°C olduğunda elde edilmiştir. Düşük çalışma voltajlarında sıcaklık değişiminin PEM elektrolizör hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi nispeten küçüktür (Şekil 4.11(c)). Sıcaklık, 1.6 V hücre voltajında hidrojen akış hızında önemli bir değişikliğe neden olmamaktadır. Şekil 4.11(d)'de gösterildiği gibi, daha küçük pompa hızı ve yüksek hücre voltajı birleştirildiğinde hidrojen akış hızı maksimize edilir. 1.6 V hücre voltajında pompa hızının hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi minimumdur.



Şekil 4.11. Akım (A) ve hidrojen akış hızı (ml/dk) için etkileşim grafikleri.



Şekil 4.11. (Devam) Akım (A) ve hidrojen akış hızı (ml/dk) için etkileşim grafikleri.

4.4.5. Regresyon analizi

Regresyon analizi, bağımlı değişken ile bir veya daha fazla kontrol faktörü arasındaki matematiksel ilişkiyi temsil etmek ve yeni tahminler oluşturmak için en küçük kareler yöntemini kullanarak bir denklem üretir. Çoklu doğrusal regresyonlar Denklem 4.8'deki gibi ifade edilebilir.

$$Y = a + b_1X_1 + b_2X_2 + \dots b_kX_k \quad (4.8)$$

a , b_1 , b_2 ve b_k en küçük kareler yöntemiyle belirlenen katsayılar, X_1 , X_2 ve X_k kodlanmamış (non-coded) değişkenler ve y ise yanıt değişkenidir. Regresyon analizi sonuçları, bağımsız ve bağımlı değişkenler arasındaki ilişkinin istatistiksel anlamlılığını, yönünü ve boyutunu gösterir. Her katsayının işareti, istatistiksel ilişkinin

yönünü ifade eder. Regresyon analizi Minitab yazılımında gerçekleştirilir ve kontrol faktörlerinin regresyon analizi aşağıdaki gibi doğrusal denklemlerle (Denklem 4.9 ve Denklem 4.10) ifade edilir:

$$\text{Akım} = -29.49 + 0.0717 \cdot \text{Sıcaklık} - 0.373 \cdot \text{Pompa hızı} + 17.54 \cdot \text{Hücre voltajı} \quad (4.9)$$

$$\begin{aligned} \text{Hidrojen akış hızı} \\ = -256.3 + 0.615 \cdot \text{Sıcaklık} - 3.59 \cdot \text{Pompa hızı} \\ + 153 \cdot \text{Hücre voltajı} \end{aligned} \quad (4.10)$$

R^2 ve düzeltilmiş R^2 , uyarlanmış model sonuçlarının değişkenlik yüzdesini belirlemek için kullanılır. Bir regresyon analizinde, kararlılık indeksi (R^2) 0.8 ile 1 arasında olmalıdır [121]. Akım ve hidrojen akış hızı için lineer denklemlerden elde edilen tahmini değerler Tablo 4.5'te verilmiştir. Girdi faktörleri aralığına uygulanan regresyon analizi ile istatistiksel modelin amaç fonksiyonları deney yapmadan hesaplanabilmektedir. Deneysel ve birinci dereceden model sonuçlarına göre, en yüksek hücre performansı için optimum giriş faktörleri 80°C sıcaklık, 16.5 ml/dk su akış hızı ve 2.4 V hücre voltajıdır. Tablo 4.6'da gösterildiği gibi akım ve hidrojen akış hızlarına ilişkin regresyon katsayıları sırasıyla 0.97 ve 0.96'dır. Her iki regresyon modelinin de deneysel verilerle mükemmel uyum sağladığı görülmüştür. Akım ve hidrojen akış hızları için düzeltilmiş R^2 , sırasıyla 0.95 ve 0.93 olarak hesaplanmıştır.

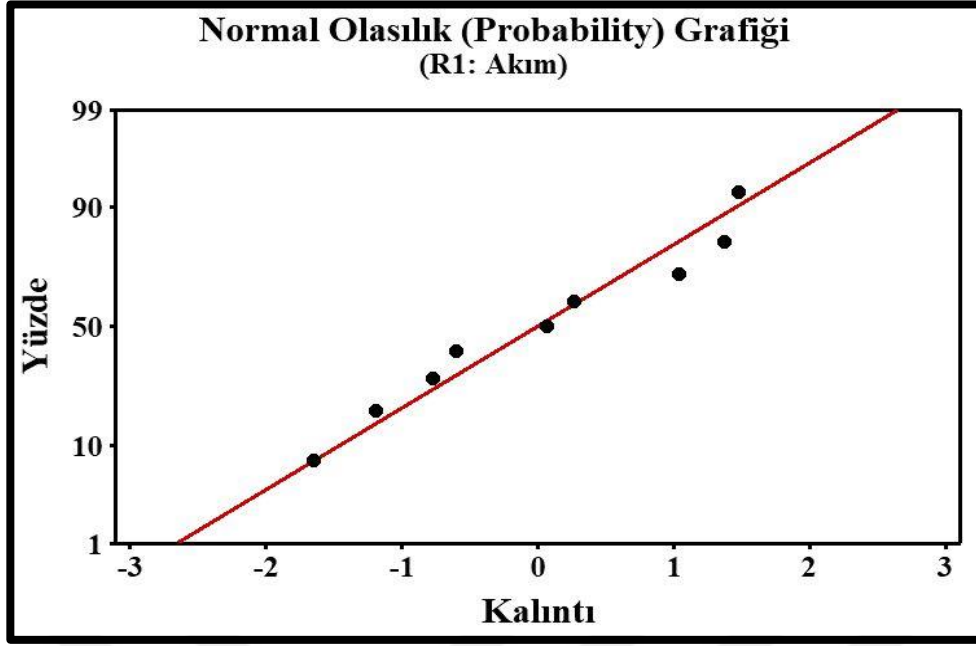
Tablo 4.5. Akım ve hidrojen akış hızı için Taguchi yöntemiyle tahmin edilen değerler.

Deney sayısı	Sıcaklık (°C)	Pompa hızı	Hücre voltajı (V)	Tahmini akım (A)	Tahmini hidrojen akış hızı (ml/dk)
1	40	5	1.6	0.501	5.008
2	40	7	2	4.098	31.739
3	40	9	2.4	13.041	113.066
4	60	5	2	7.031	57.826
5	60	7	2.4	14.251	121.645
6	60	9	1.6	0.338	6.68
7	80	5	2.4	17.398	152.019
8	80	7	1.6	1.761	13.676
9	80	9	2	7.081	57.915

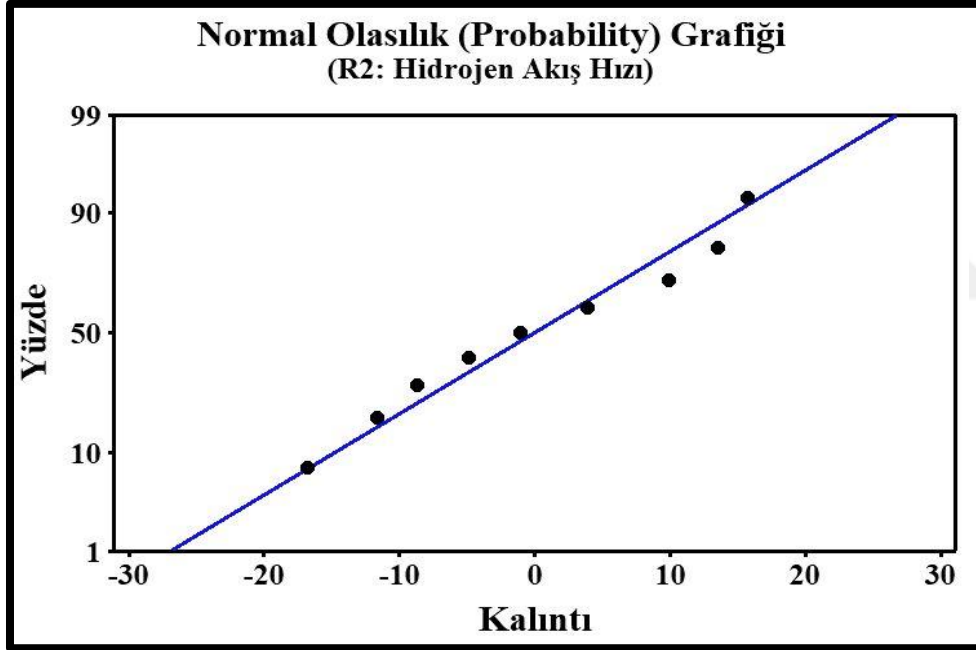
Tablo 4.6. Akım ve hidrojen akış hızı için regresyon analizi sonuçları.

	Kaynak	Katsayılar	Hata katsayılarının toplamı	F-değeri	P-değeri	R ²	Düzeltilmiş R ²
Akım (A)	Sabit	-29.49	4.02	-7.34	0.001		
	Sıcaklık (°C)	0.0717	0.0293	2.44	0.058		
	Pompa hızı	-0.373	0.293	-1.27	0.260	%96.78	%94.85
	Hücre voltajı (V)	17.54	1.47	11.95	0.000		
Hidrojen akış hızı (ml/dk)	Sabit	-256.3	40.7	-6.30	0.001		
	Sıcaklık (°C)	0.615	0.297	2.07	0.093		
	Pompa hızı	-3.59	2.97	-1.21	0.281	%95.72	%93.16
	Hücre voltajı (V)	153	14.9	10.30	0.000		

Deneysel ve sayısal değerler arasındaki farklar, kalıntıların normal olasılık grafiğinde gösterilmektedir (Şekil 4.12). Deneysel veriler düz bir çizgiye yakınsa veriler normal aralıktadır. Şekil 4.12'de görüldüğü gibi sayısal model ile deneysel veriler arasında mükemmel bir uyum vardır. Buradan modelin kabul edilebilir yeterliliğe sahip olduğu sonucuna varılmaktadır.



(a)



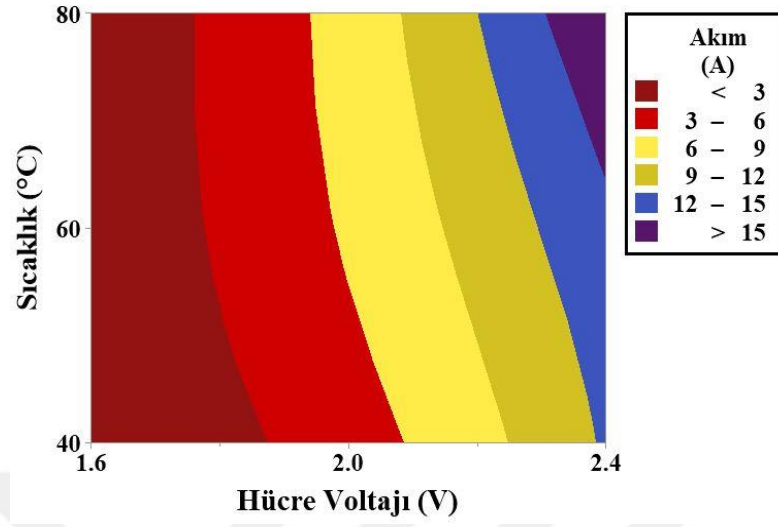
(b)

Şekil 4.12. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kalıntıların normal olasılık grafikleri.

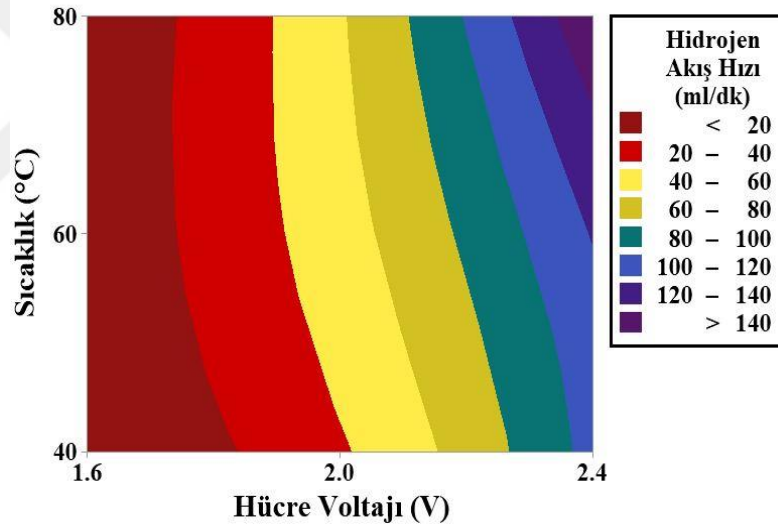
Bağımsız değişkenlerin bir fonksiyonu olarak akım ve hidrojen akış hızı kontur grafikleri Şekil 4.13(a-f)'te verilmiştir. Şekil 4.13(a)'da, PEM elektrolizör sisteminden çekilen akım değerleri, hücre voltajı ve sıcaklığının bir fonksiyonu olarak farklı renklerle karakterize edilmiştir. Aktif alanı 9 cm² olan PEM elektroliz hücresinden 2.4 V hücre voltajında ve 80°C çalışma sıcaklığında yaklaşık olarak 15 A akım değeri elde edilmiştir. Şekil 4.13(b)'de çalışma sıcaklığı ve hücre voltajındaki artışla hidrojen akış hızının homojen bir şekilde arttığı görülmektedir. Düşük veya yüksek debili su, 1.6 V

hücre voltajında akımda önemli bir değişikliğe neden olmamıştır (Şekil 4.13(c)).

Pompa hızının azalmasıyla hidrojen akış hızı artmıştır (Şekil 4.13(d)).

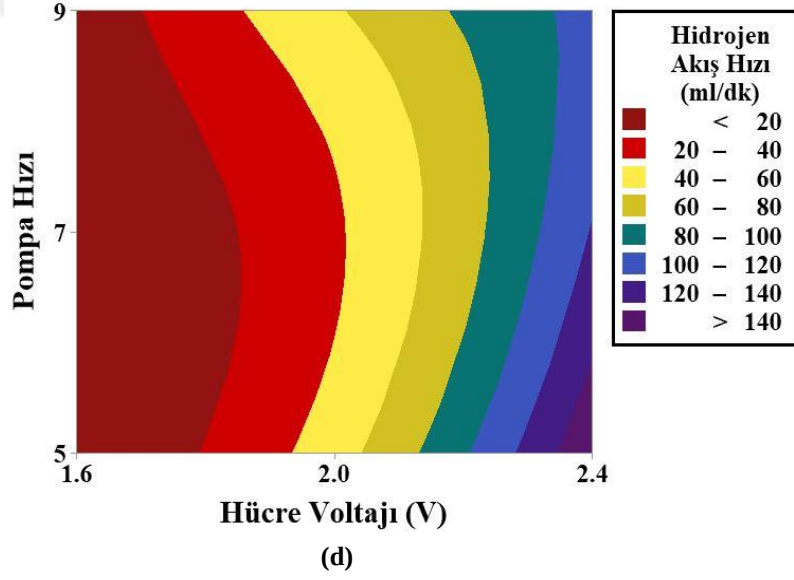
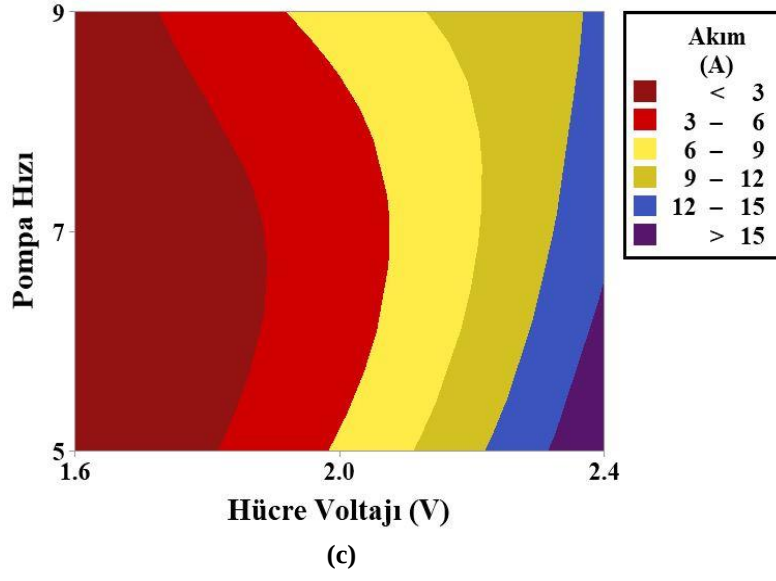


(a)

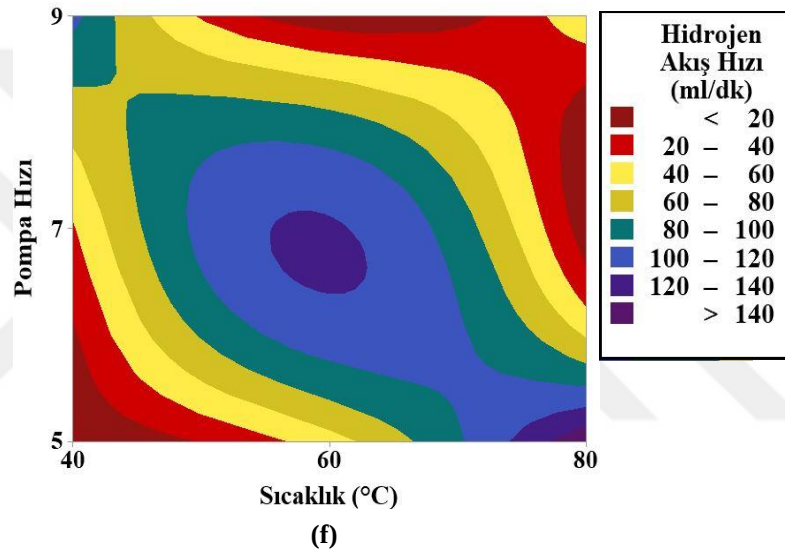
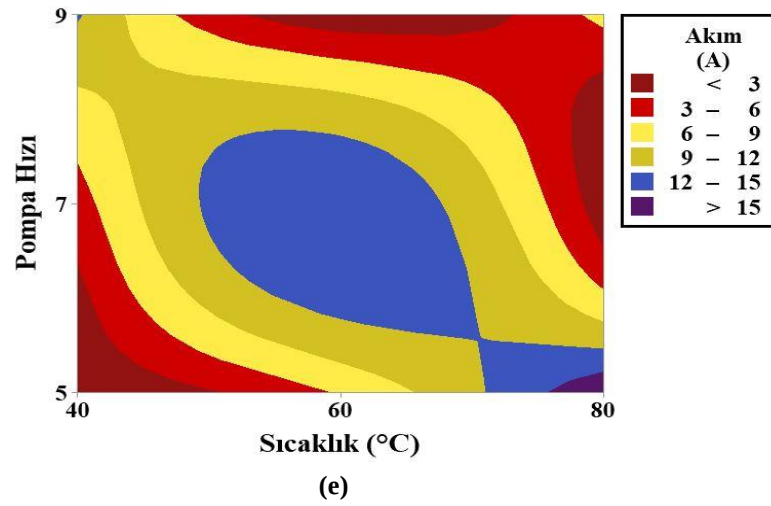


(b)

Şekil 4.13. Kontrol faktörlerinin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkilerini gösteren kontur grafikleri.



Şekil 4.13.(Devam) Kontrol faktörlerinin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkilerini gösteren kontur grafikleri.



Şekil 4.13.(Devam) Kontrol faktörlerinin yanıt fonksiyonu üzerindeki etkilerini gösteren kontur grafikleri.

Şekil 4.13(e)'de, kontur grafiğinin ortasındaki mavi renkle temsil edilen yüksek akım yoğunluğu (12 ile 15 A arasında değişen), 60°C'lik çalışma sıcaklığında ve 23 ml/dk'lık su akış hızında dağılım göstermiştir. Hidrojen akış hızının sol üst köşeden sağ alt köşeye doğru köşegen boyunca arttığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.13(f)).

4.5. PEM Elektrolizörün Yanıt Yüzeyi Yöntemiyle (RSM) Optimizasyonu

4.5.1. Deney tasarım yöntemi

Herhangi bir problemde amaç fonksiyonu bağımlı ve bağımsız değişkenlerden oluşur ve bunların değişimleri ve etkileşimleri tepki fonksiyonunu etkiler. Deney Tasarımı (DOE), bir amaç fonksiyonunun optimal değerini keşfetmek için mükemmel bir

yaklaşımıdır. Faktöriyel deneylerin deneysel tasarımı ve analizi için Design-Expert istatistiksel yazılım paketi kullanılmaktadır. Yanıt yüzeyi yöntemi (RSM), orta seviyede faktörlere sahip deney tasarımı için yüksek hassasiyetli, en umut verici bir optimizasyon aracıdır. RSM'ye dayalı optimum tasarım, hesaplama yükünü ve optimizasyon süresini önemli ölçüde azaltır. Merkezi kompozit tasarım (CCD), RSM'de ikinci dereceden polinom modelleri geliştirmek ve ikinci mertebeden yanıt yüzeyini değerlendirmek için kullanılan kesirli faktöriyel bir tasarımdır. CCD yöntemiyle yapılan toplam deney sayısı $2k + n_0 + n_a$ kullanılarak elde edilmiştir; burada n_a eksen noktalarını, n_0 merkez noktasını ve k girdi faktörlerinin sayısını gösterir. Bu çalışmada, değişkenlerin bağımlı değişken veya yanıt üzerindeki etkisini belirlemek için üç bağımsız değişken ile merkezi kompozit tasarım gerçekleştirilmiştir. PEM elektrolizör akımını ve hidrojen akış hızını optimize etmek için üç farklı çalışma faktörü seçilmiştir. Hücre sıcaklığı, pompa hızı ve hücre voltajı bağımsız değişkenler olarak tanımlanmış ve yanıt parametreleri olarak akım ve hidrojen akış hızları seçilmiştir. Toplam deney sayısı 17 olup, üç çalışma faktörü ve iki bağımlı değişken bulunmaktadır. PEM elektrolizörlerini çalıştırmak için tipik hücre voltajları 1.6-2.2 V arasında değişirken, yüksek hücre performansı için sıcaklık 50°C'den 80°C'ye yükseltilebilir. Lee ve ark. [122] 70°C çalışma sıcaklığında, 25 cm² aktif alana sahip bir PEM elektroliz hücresinden maksimum hidrojen ve oksijen üretim hızlarını elde ettiler. Çalışmalarındaki su akış hızı 5 ile 30 ml/dk arasında değiştirilmiştir. Tezin bu bölümünde gerçekleştirilen deneylerin çalışma parametre aralıkları şu şekildedir; sıcaklık (50-80°C), pompa hızı (3-9) ve hücre voltajı (1.8-2.3V). Pompa hızı, PEM elektroliz hücresinin anot tarafına boşaltılan suyun debisi ile doğrudan ilişkilidir. Her pompa hızı değeri bir su akış hızına karşılık gelir. Çalışmada kullanılan ayarlanabilir Masterflex peristaltik pompa hızı 3, 6 ve 9 olduğunda su debisi sırasıyla 9.7, 19.75 ve 30.6 ml/dk'dır. Akım ve hidrojen akış hızı için CCD'nin deneysel planı Tablo 4.7'de verilmiştir. Bağımsız değişkenler ile yanıt arasındaki ilişkinin doğası, bir yanıt fonksiyonu kullanılarak ifade edilir. Yanıt fonksiyonu Denklem 4.11'deki gibi tanımlanır;

$$y = f(X_1, X_2, X_3 \dots \dots \dots X_n) \pm E \quad (4.11)$$

Bu denklemde f yanıt fonksiyonu, y deneysel yanıt, $X_1, X_2, \dots X_n$ deneysel değişkenler ve E deneyin hatasıdır. Yanıt yüzeyi ikinci dereceden bir modelden oluşmaktadır

(Denklem 4.12). İkinci mertebeden polinom, küçük bir sayısal hata ile düzgün kavisli bir yüzeyi temsil eder.

$$y = a_0 + \sum_{i=1}^3 a_i X_i + \sum_{i=1}^3 a_{ii} X_i^2 + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=i+1}^3 a_{ij} X_i X_j + e \quad (4.12)$$

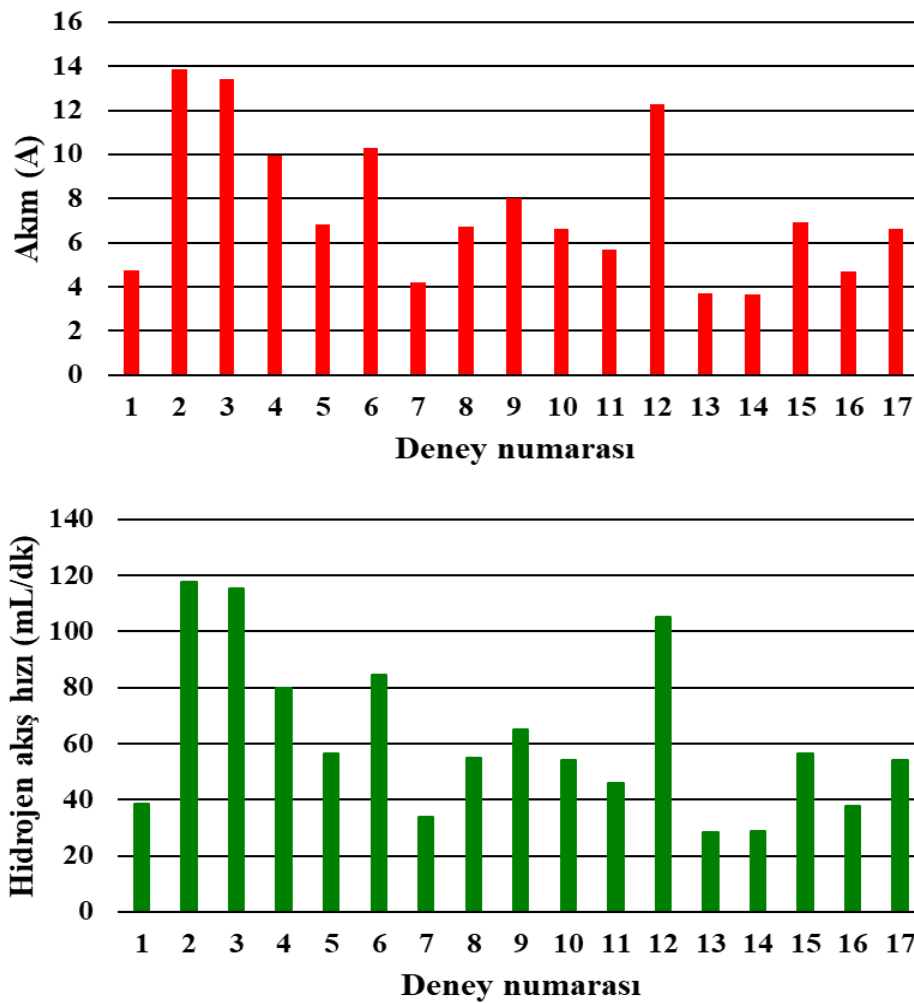
Burada y deneysel yanıt (akım veya hidrojen akış hızı), $X_i (i = 1 - 3)$ deneysel değişkenler, a_0 sabit katsayı, $a_i (i = 1 - 3)$ doğrusal katsayılar, $a_{ij} (i \neq j)$ ikinci dereceden etkileşim katsayıları ve e ise deney hatasıdır. Her bir deney için deneysel hata $e_i = y_i - \hat{y}_i$, $i = 1, 2, 3, \dots, n$ olarak hesaplandı, burada $\hat{y}_i$ tahmin edilen bağımlı değişkeni, y_i gözlenen bağımlı değişkeni ve e_i hatayı göstermektedir. Deneysel yanıt ve girdi faktörleri arasındaki ilişkiyi açıklamak için Denklem 4.12'deki katsayılar ve optimum seviyeler hesaplanmıştır. İstatistiksel ve deneysel veriler arasındaki uyum düzeyi kararlılık indeksi R^2 ile belirlenir.

Tablo 4.7. Akım ve hidrojen akış hızı için CCD'nin deneysel planı.

Bağımsız değişkenler			
Deney sayısı	A: Sıcaklık (°C)	B: Pompa hızı	C: Hücre voltajı (V)
1	80	3	1.8
2	80	3	2.3
3	80	9	2.3
4	50	9	2.3
5	65	9	2
6	50	3	2.3
7	65	6	1.8
8	65	3	2
9	80	6	2
10	65	6	2
11	50	6	2
12	65	6	2.3
13	50	9	1.8
14	50	3	1.8
15	65	6	2
16	80	9	1.8
17	65	6	2

4.5.2. PEM elektrolizörün istatistiksel analizi

Tezin bu bölümünde çalışma koşullarının (sıcaklık, pompa hızı ve hücre voltajı) PEM elektroliz hücre akımı ve hidrojen akış hızı üzerindeki etkisini araştırmak için bir CCD yaklaşımına dayalı Design-Expert 13 (deneme sürümü) kullanılarak yanıt yüzey yöntemi (RSM) uygulanmıştır. Çalışma parametrelerinin yanıt parametreleri üzerindeki anlamlılık seviyeleri belirlendikten sonra, maksimum akım ve hidrojen akış hızını elde etmek için optimizasyon yöntemi kullanılmıştır. Diğer deneylerle karşılaştırıldığında en yüksek akım ve hidrojen akış hızları Deney 2 ve Deney 3'te elde edilmiştir (Şekil 4.14). Her parametrenin katkı düzeyini ortaya çıkarmak, girdi faktörlerinin optimum kombinasyonunu belirlemek ve sayısal ve deneysel sonuçlar arasındaki uyumu analiz etmek için varyans analizi (ANOVA) kullanılmıştır. Tablo 4.8 ve Tablo 4.9, akım ve hidrojen akış hızları için önerilen model kaynaklarının ikinci mertebeden (kuadratik) olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.14. Akım ve hidrojen akış hızının deneylere göre dağılımı.

Tablo 4.8. Akım uyum özeti.

Kaynak	Ardışık p-değeri	Uyum eksikliği değeri	Düzeltilmiş p- R ²	Tahmini R ²	
Lineer	<0.0001	0.0280	0.9280	0.8910	
2FI	0.2839	0.0293	0.9349	0.8030	
Kuadratik	<0.0001	0.5271	0.9973	0.9936	Önerilen
Kübik	0.5918	0.3214	0.9970	0.5916	

Tablo 4.9. Hidrojen akış hızı uyum özeti.

Kaynak	Ardışık p-değeri	Uyum eksikliği değeri	Düzeltilmiş p- R ²	Tahmini R ²	
Lineer	<0.0001	0.0224	0.9146	0.8701	
2FI	0.2237	0.0247	0.9269	0.7990	
Kuadratik	<0.0001	0.2708	0.9945	0.9836	Önerilen
Kübik	0.3975	0.1919	0.9956	0.1485	

Akım için yapılan varyans analizi sonuçlarına göre R² ve Adj R² sırasıyla 0.9988 ve 0.9973 olarak elde edilmiştir (Tablo 4.10). Ayrıca, hidrojen akış hızı için varyans analizi sonuçları Tablo 4.11'de sunulmaktadır. S/N (sinyal/gürültü) oranını ölçen yeterli hassasiyet (Adeq precision) akım için 78.8126 ve hidrojen akış hızı için 54.6909 olarak bulunmuştur. Bu oran 4'ten büyük olduğu için tasarım uzayında gezinmeye uygundur. 0.05'ten küçük P-değerleri, model parametrelerinin anlamlı olduğunu gösterir. ANOVA analizi, hücre voltajı ve sıcaklığın, akım ve hidrojen akış hızını etkileyen iki anlamlı model terimi olduğu sonucuna varmıştır.

Tablo 4.10. Akım için ANOVA sonuçları.

Kaynak	SS	DF	MS	F-Değeri	P-Değeri
Model	173.33	9	19.26	667.69	<0.0001
A: Sıcaklık (°C)	13.18	1	13.18	456.90	<0.0001
B: Pompa hızı	0.0449	1	0.0449	1.56	0.2523
C: Hücre voltajı (V)	150.16	1	150.16	5205.75	<0.0001
AB	0.0041	1	0.0041	0.1404	0.7190
AC	3.03	1	3.03	104.90	<0.0001
BC	0.0613	1	0.0613	2.12	0.1884
A ²	0.0019	1	0.0019	0.0658	0.8049
B ²	0.0225	1	0.0225	0.7797	0.4065
C ²	4.87	1	4.87	168.88	<0.0001
Kalıntı	0.2019	7	0.0288		
Uyum eksikliği	0.1496	5	0.0299	1.15	0.5271
Saf hata	0.0523	2	0.0261		
Toplam	173.53	16			
Standart sapma	0.1698			R ²	0.9988
Ortalama	7.55			Adj R ²	0.9973
C.V.%	2.25			Pred R ²	0.9936
				Yeterli hassasiyet	78.8126

Tablo 4.11. Hidrojen akış hızı için ANOVA sonuçları.

Kaynak	SS	DF	MS	F-Değeri	P-Değeri
Model	13285.52	9	1476.17	323.06	<0.0001
A: Sıcaklık (°C)	1133.37	1	1133.37	248.04	<0.0001
B: Pompa hızı	4.04	1	4.04	0.8852	0.3781
C: Hücre voltajı (V)	11256.03	1	11256.03	2463.37	<0.0001
AB	0.4278	1	0.4278	0.0936	0.7685
AC	311.63	1	311.63	68.20	<0.0001
BC	3.77	1	3.77	0.8245	0.3940
A ²	3.35	1	3.35	0.7322	0.4205
B ²	2.77	1	2.77	0.6070	0.4614
C ²	441.20	1	441.20	96.56	<0.0001
Kalıntı	31.99	7	4.57		
Uyum eksikliği	28.19	5	5.64	2.97	0.2708
Saf hata	3.80	2	1.90		
Toplam	13317.51	16			
Standart sapma	2.14			R ²	0.9976
Ortalama	62.18			Adj R ²	0.9945
C.V.%	3.44			Pred R ²	0.9836
				Yeterli hassasiyet	54.6909

Model terimlerindeki yüksek F-değeri ve düşük P-değeri nedeniyle hücre voltajının akım ve hidrojen akış hızını önemli ölçüde etkilediği gözlemlenmiştir. İstatistiksel analiz sonuçları A, C, AC ve C² terimlerinin P-değerlerinin 0.05'ten küçük olduğunu ortaya çıkarmıştır. Özetle, P-değeri 0.05'ten küçük olan terimler model için anlamlı terimlerdir. P-değerlerinin 0.10'dan büyük olması nedeniyle B, AB, BC, A² ve B² terimlerinin model için anlamsız olduğunu söyleyebiliriz. Çalışma parametreleri ve akım arasındaki ikinci dereceden ampirik ilişki Denklem 4.13'te verilmiştir.

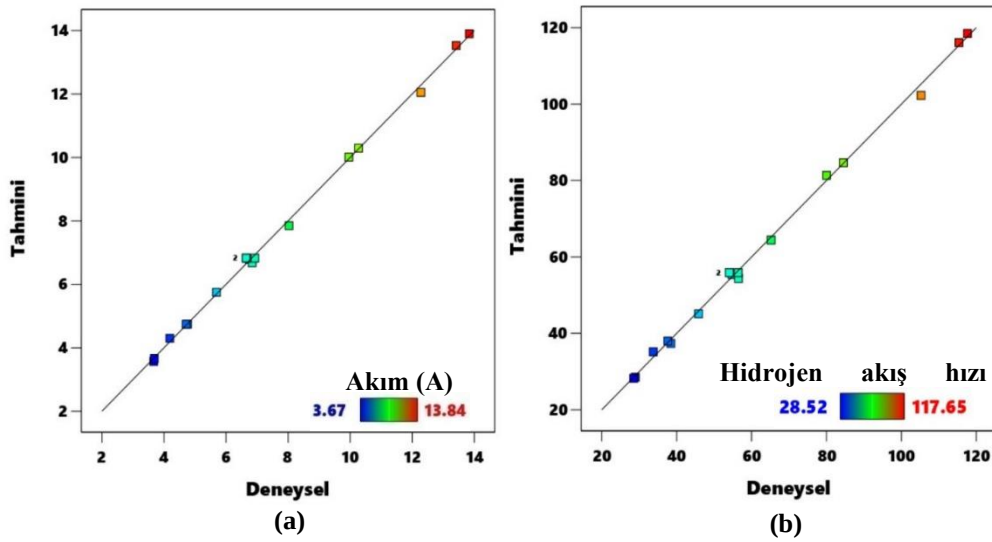
$$\begin{aligned}
 \text{Akım (A)} = & +6.82521 + 1.14800 * A - 0.067000 * B + 3.87500 \\
 & * C - 0.022500 * A * B + 0.615000 * A * C \\
 & - 0.087500 * B * C - 0.026620 * A^2 - 0.091620 \\
 & * B^2 + 1.34838 * C^2
 \end{aligned} \tag{4.13}$$

Çalışma parametreleri ve hidrojen akış hızı arasındaki ikinci dereceden ampirik ilişki Denklem 4.14'te verilmiştir.

Hidrojen akış hızı (ml/dk)

$$\begin{aligned}
 &= +55.88541 + 10.64600 * A - 0.636000 * B \\
 &+ 33.55000 * C + 0.231250 * A * B + 6.24125 * A \\
 &* C - 0.686250 * B * C - 1.11746 * A^2 - 1.01746 \\
 &* B^2 + 12.83254 * C^2
 \end{aligned} \tag{4.14}$$

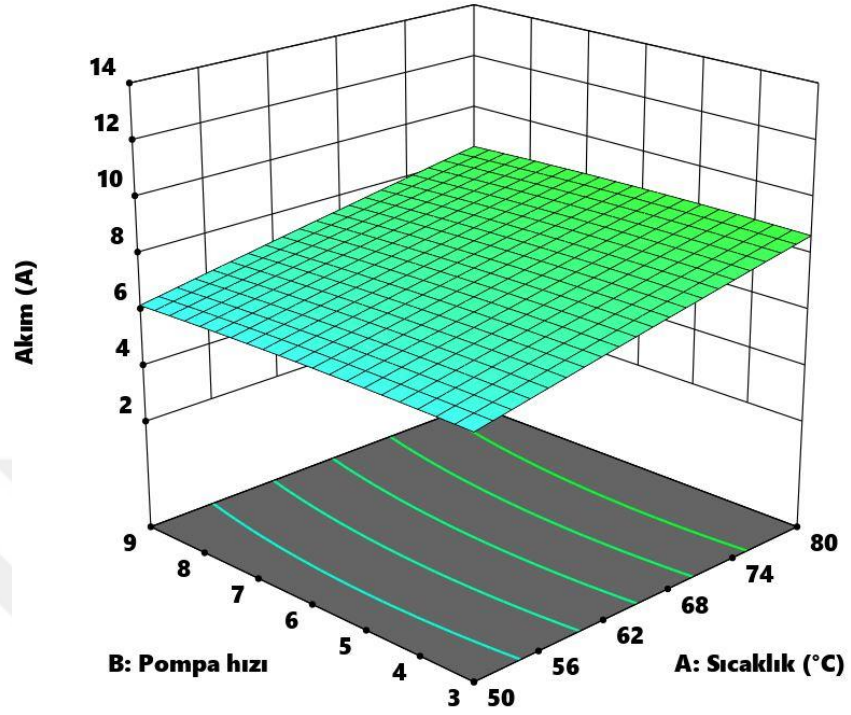
Akım ve hidrojen akış hızı için deneysel ve tahmini veriler Şekil 4.15'te gösterilmektedir. Deneysel değerler noktasal formda olup düz çizgiye yakın dağılım göstermişlerdir. Şekil 4.15'e göre ampirik model verilerinin deneysel verilerle iyi bir uyum içinde olduğu görülmektedir.



Şekil 4.15. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için deneysel ve tahmini veriler.

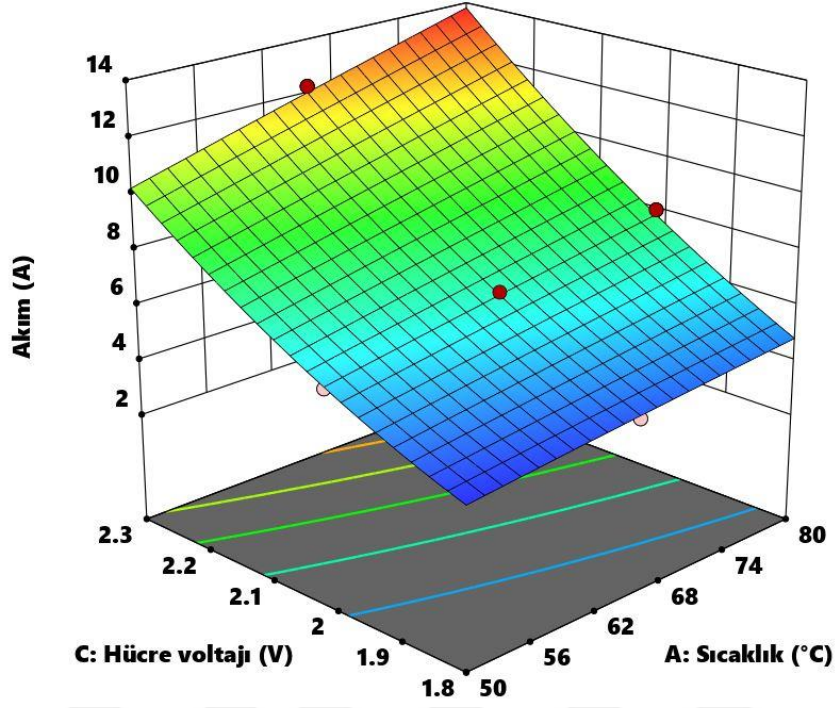
Hücre sıcaklığının ve pompa hızının akım üzerindeki etkisi üç boyutlu yüzey grafiğinde görülebilir. PEM elektroliz hücresinin akım değerleri çalışma sıcaklığının 50 °C'den 80 °C'ye yükselmesiyle artmaktadır (Şekil 4.16). Arrhenius denkleminde göre anot ve katotta çalışma sıcaklığının artmasıyla elektrokimyasal reaksiyon kinetiği hızlanmakta ve aktivasyon kayıpları azalmaktadır. Bu, hücre performansının artmasına neden olacaktır. Aynı sıcaklık seviyesinde pompa hızının hücre performansı üzerinde oluşturduğu değişim etkisinin minimum olduğu sonucuna varılabilir. Ayrıca düşük pompa hızında yüksek akım elde edilmiştir. Yüksek pompa hızı, anot

tarafındaki oksijen kabarcıkları üzerinde basınç oluşturarak hücreden çıkarılmasını zorlaştırabilir. Bu da hücre performansını olumsuz etkiler.



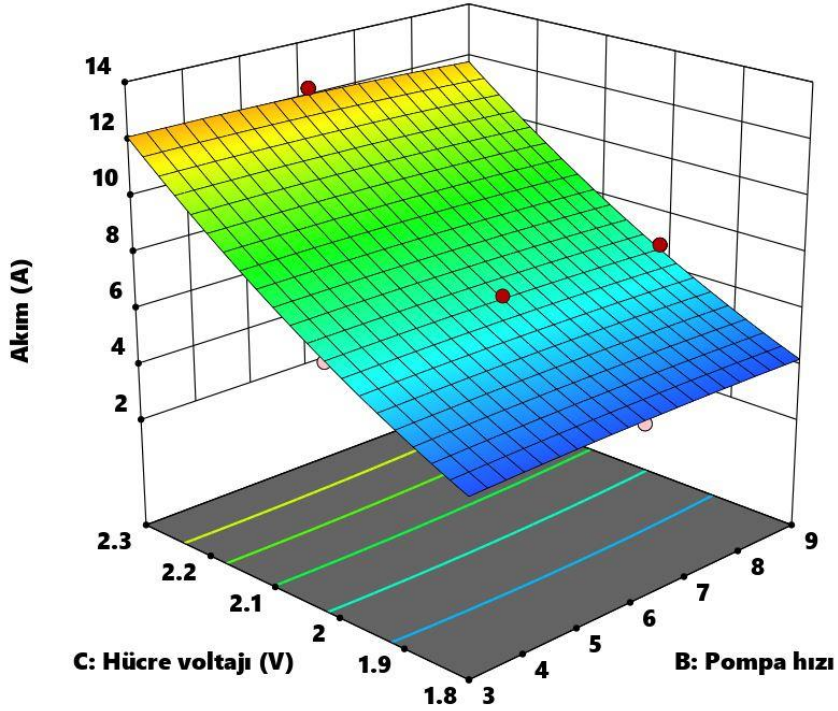
Şekil 4.16. Pompa hızı ve sıcaklığın akım üzerindeki etkisi.

Hücre voltajı ve sıcaklığın akım üzerindeki etkisi Şekil 4.17’de verilmiştir. 3B yüzey grafiklerinin çeşitli renk kodları, yüzey tarafından gösterildiği gibi akım değerlerini gösterir.

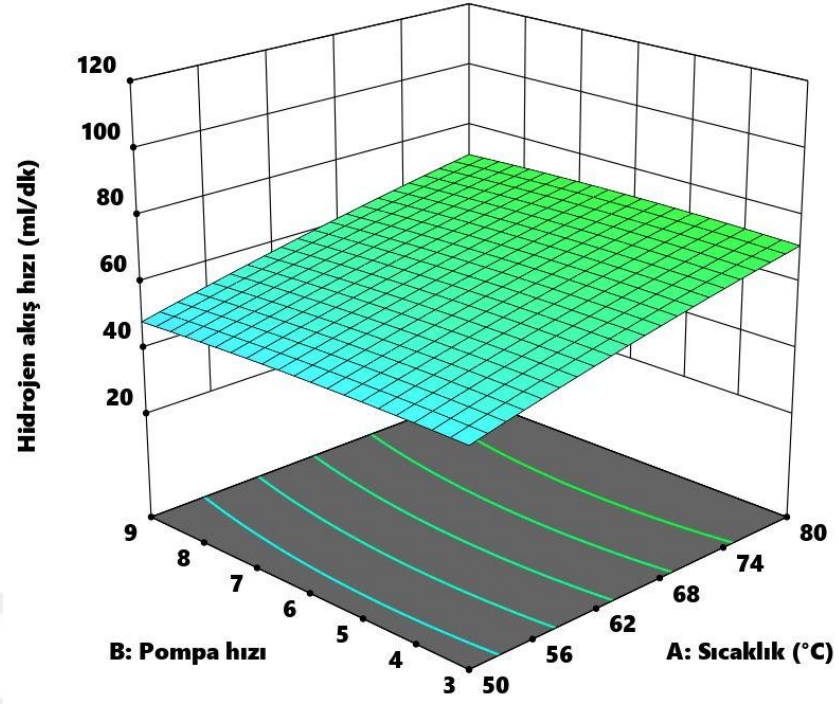


Şekil 4.17. Hücre voltajı ve sıcaklığın akım üzerindeki etkisi.

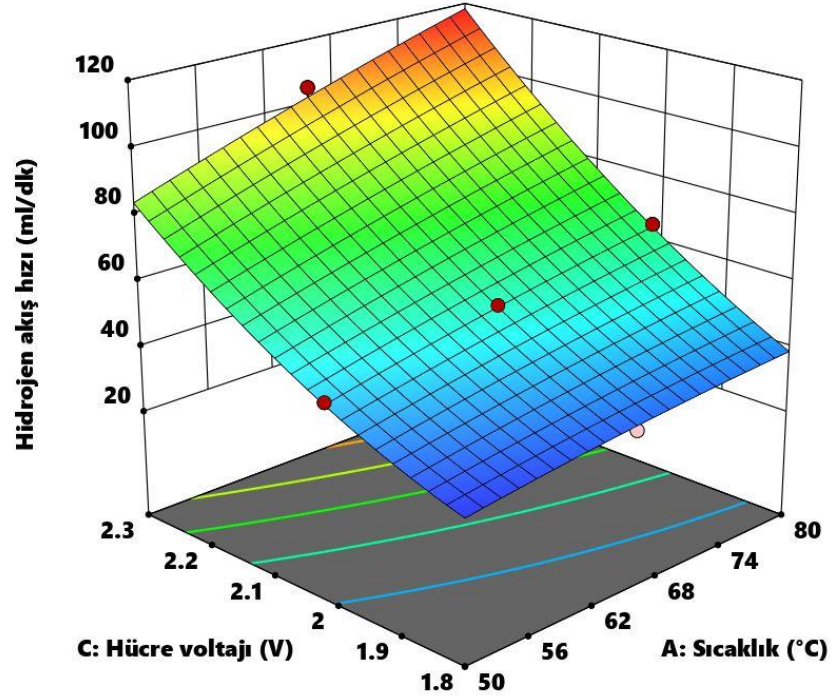
Hücre voltajının artması sonucu akım değerlerinin artmaya başladığı görülmektedir. En yüksek akım seviyesi 80 °C çalışma sıcaklığında, 3 pompa hızında ve 2.3 V hücre voltajında elde edilmiştir.



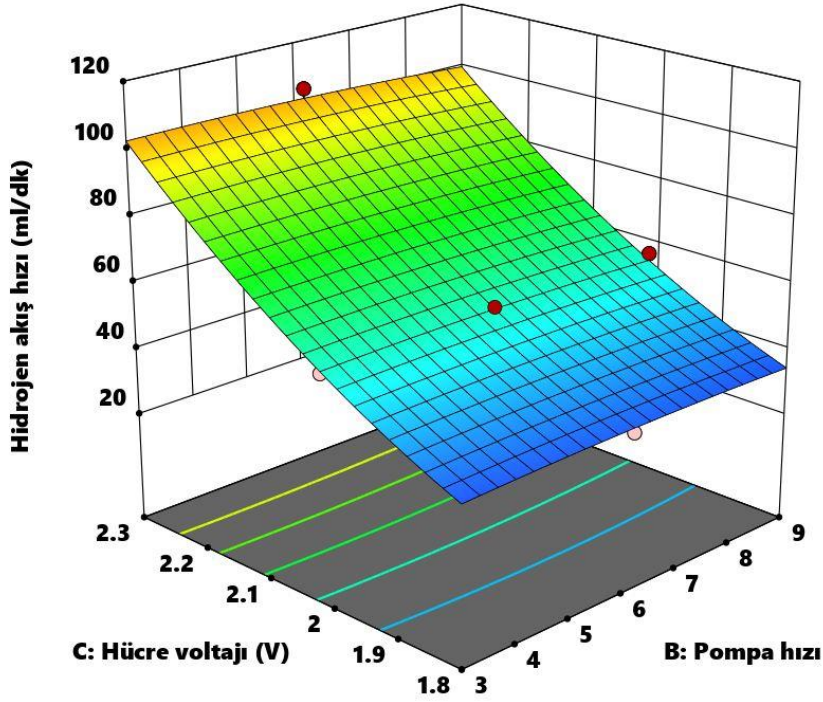
Şekil 4.18. Hücre voltajı ve pompa hızının akım üzerindeki etkisi.



Şekil 4.19. Pompa hızı ve sıcaklığın hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi.



Şekil 4.20. Hücre voltajı ve sıcaklığın hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi.



Şekil 4.21. Hücre voltajı ve pompa hızının hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi

Şekil 4.18 pompa hızının ve hücre voltajının akım üzerindeki etkilerini gösterir. Hücre voltajının akım üzerindeki etkisi su besleme hızından daha baskındır. En yüksek akım değerlerine yaklaşık 3 pompa hızında ulaşılmıştır. Pompa hızı ve çalışma sıcaklığına göre hidrojen akış hızındaki değişim Şekil 4.19’da gösterilmektedir. Sıcaklık, pompa hızına kıyasla hidrojen akış hızı değişiminde baskın bir kontrol faktörüdür. Şekil 4.20, sıcaklık ve hücre voltajının PEM elektroliz hücresinin hidrojen akış hızı üzerindeki etkisini göstermektedir. Çalışma sıcaklığı arttıkça, elektrokimyasal reaksiyon kinetiği hızlanarak daha yüksek hidrojen akış hızları elde edilir. Çalışma parametrelerinin akım ve hidrojen debisi üzerindeki etkilerinin benzer davranış sergilediği gözlemlenmiştir. Hücre voltajı ve pompa hızının hidrojen akış hızı üzerindeki etkisi Şekil 4.21’de gösterilmektedir. Hidrojen akış hızı, pompa hızı azaldığında ve hücre voltajı belirli bir aralıkta arttığında artış eğilimi gösterecektir. En yüksek hücre performansı, en yüksek hücre voltajı ve en düşük pompa hızında elde edilmiştir. PEM elektroliz hücresinden deneysel olarak elde edilen hidrojen hacminin teorik olarak elde edilen hidrojen hacmine oranı Faraday verimi olarak ifade edilir (Denklem 4.15).

$$\eta_{\text{faraday}} = \frac{V_{\text{H}_2}(\text{deneysel})}{V_{\text{H}_2}(\text{teorik})} \quad (4.15)$$

Denklem 4.16, %100 Faraday verimliliğinde teorik olarak üretilen hidrojen hacmini hesaplar.

$$V_{H_2} = V_M(l) \left(\frac{10^3 \text{ ml}}{l} \right) \left(\frac{t(60s)}{\text{min}} \right) \left(\frac{I \left(\frac{C}{s} \right)}{2F(C)} \right) \quad (4.16)$$

Burada V_M özgül hacim (RT/P), T mutlak sıcaklığı, R ideal gaz sabiti, P mutlak basıncı, t zamanı, F Faraday sabiti (96485 C) ve I akımdır. Faraday yasasına göre teorik hidrojen hacmi, akım yoğunluğu, hücrenin aktif alanı ve elektroliz süresine göre hesaplanır.

4.5.3. PEM elektrolizör sistemi için çalışma koşullarının optimizasyonu

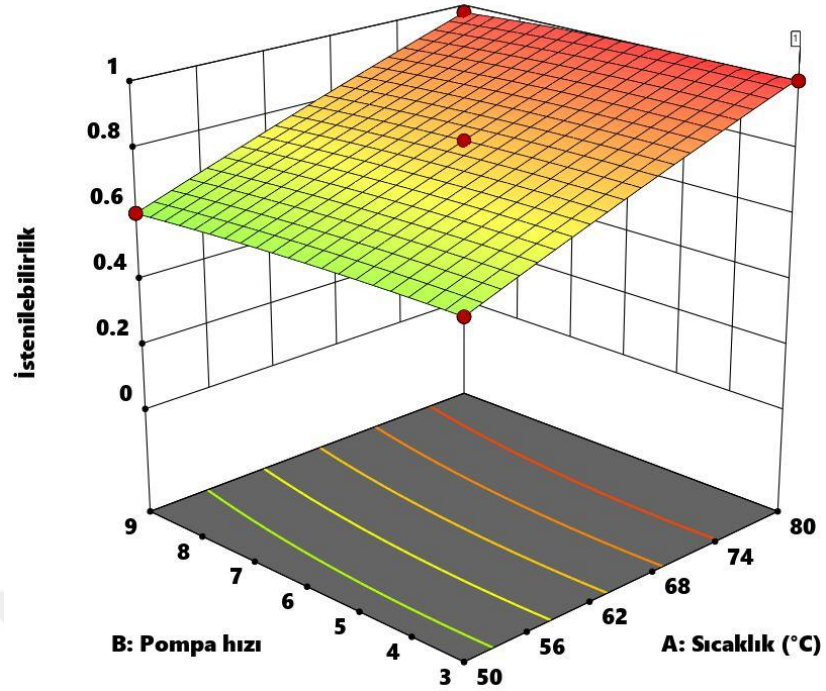
Tezin bu bölümünde RSM yöntemi, 9 cm² aktif alana sahip bir PEM elektroliz hücresinin akımını ve hidrojen akış hızını maksimuma çıkarmak için optimum çalışma koşullarını (sıcaklık, pompa hızı ve hücre voltajı) araştırmıştır. Çalışma koşullarının sınır, hedef değerleri ve önem düzeyleri Tablo 4.12’de verilmektedir. Maksimum akım ve hidrojen akış hızı elde etmek için yanıt değişkenlerinin önem derecesi yazılım programında 5 olarak tanımlanmıştır.

Tablo 4.12. Optimizasyon çalışması için işletme parametrelerinin sınır değerleri ve önemi.

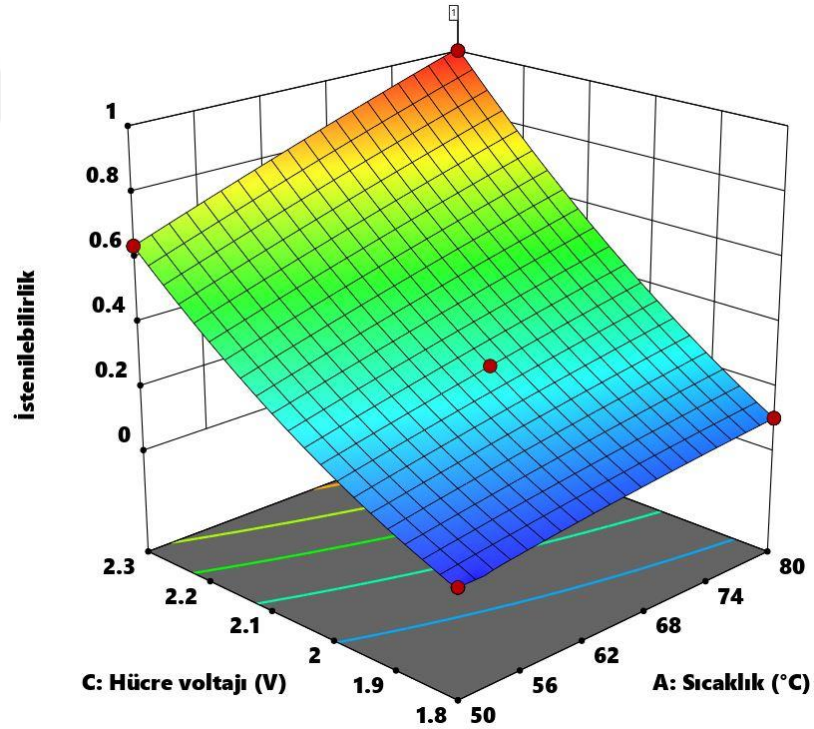
Parametre	Hedef değeri	Alt sınır	Üst sınır	Alt ağırlık	Üst ağırlık	Önem derecesi
Sıcaklık (°C)	Belirli bir aralıkta	50	80	1	1	3
Pompa hızı	Belirli bir aralıkta	3	9	1	1	3
Hücre voltajı (V)	Belirli bir aralıkta	1.8	2.3	1	1	3
Akım (A)	maksimum	3.67	13.84	1	1	5
Hidrojen akış hızı (ml/min)	maksimum	28.52	117.65	1	1	5

Tablo 4.13. Optimizasyon sonuçları.

Deneme sayısı	A: Sıcaklık (°C)	B: Pompa hızı	C: Hücre voltajı (V)	R1: Akım (A)	R2: Hidrojen akış hızı (ml/dk)	İstenirlik
1	80.000	3.000	2.300	13.897	118.458	1.000
2	79.995	5.212	2.300	13.842	118.491	1.000
3	79.941	3.042	2.299	13.878	118.299	1.000
4	80.000	5.672	2.300	13.822	118.403	0.999
5	79.409	3.799	2.300	13.821	118.029	0.999
6	80.000	3.941	2.297	13.821	118.006	0.999
7	80.000	5.940	2.300	13.807	118.309	0.998
8	80.000	6.013	2.300	13.803	118.280	0.998
9	80.000	6.234	2.300	13.788	118.187	0.997
10	80.000	6.269	2.300	13.786	118.171	0.997
11	80.000	6.520	2.300	13.768	118.049	0.996
12	79.945	6.766	2.300	13.744	117.861	0.995
13	80.000	7.247	2.300	13.710	117.615	0.993
14	80.000	7.370	2.300	13.700	117.531	0.992
15	80.000	7.629	2.300	13.676	117.340	0.990
16	80.000	7.712	2.300	13.668	117.276	0.989
17	80.000	7.992	2.300	13.640	117.047	0.987
18	80.000	8.129	2.300	13.625	116.929	0.985
19	80.000	8.226	2.300	13.615	116.843	0.984
20	80.000	8.563	2.300	13.578	116.527	0.981
21	80.000	8.708	2.300	13.561	116.383	0.979
22	80.000	8.871	2.300	13.542	116.216	0.977
23	80.000	3.000	2.282	13.476	114.576	0.965
24	78.885	9.000	2.300	13.399	114.948	0.963
25	80.000	3.000	2.278	13.387	113.755	0.956



Şekil 4.22. Pompa hızı ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.



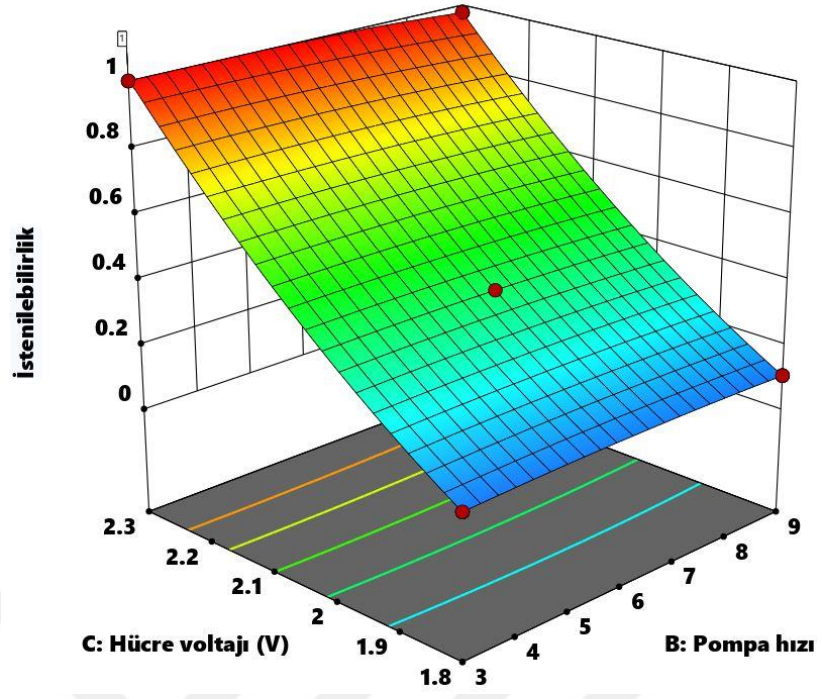
Şekil 4.23. Hücre voltajı ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.

PEM elektroliz hücresinin girdi faktörlerinin hedef değeri belirli bir aralıkta, yanıt faktörlerinin hedef değeri ise maksimum olarak tanımlanmıştır. Girdi faktörlerinin önem derecesi 3 iken, çıktı faktörlerinin önem derecesi 5 olarak kaydedilmiştir. İstenirlik (desirability) değerleri 0 (en az istenilen) ile 1 (optimum değer) arasında

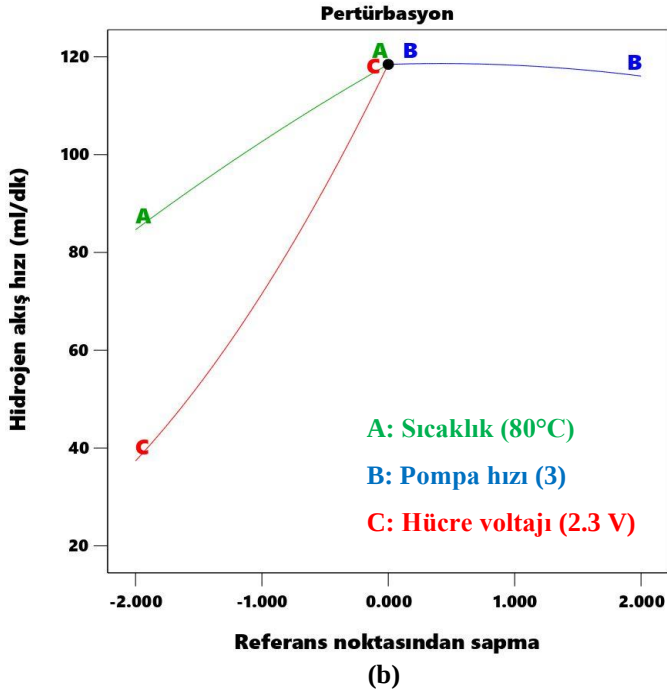
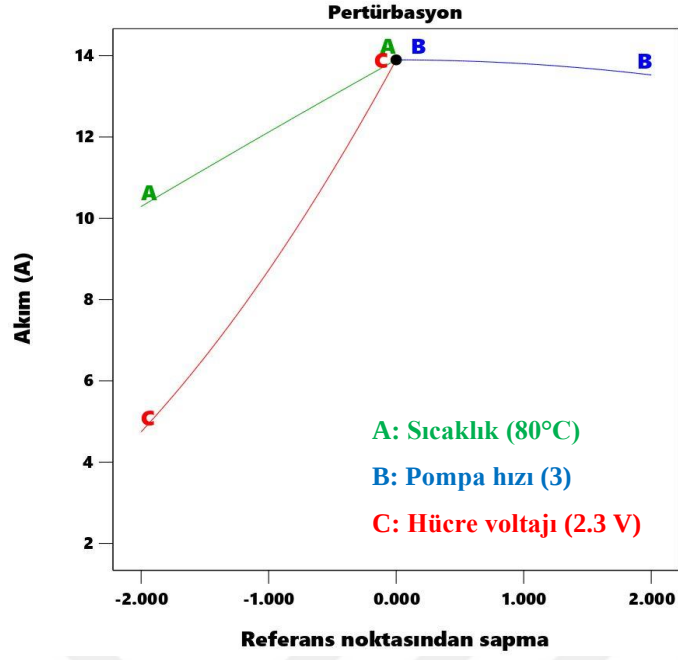
değişir. İstenirlik değerleri 0.956 ile 1 arasında değişen optimum noktalar Tablo 4.13'de özetlenmiştir. Her bir yanıtın istenirlik değerlerinin geometrik ortalaması bir istenirlik fonksiyonu verir ve Denklem 4.17 ile ifade edilebilir [123].

$$D = \left(\prod_{i=1}^n d_i \right)^{1/n} \quad (4.17)$$

n, bağımlı değişkenlerin veya yanıtların sayısıdır. Yanıtlardan biri istenirlik aralığının (0-1) dışında kalırsa, istenirlik işlevi sıfıra eşittir. İstenirlik grafikleri, Şekil (4.22-4.24)'de verilmiştir. 80°C çalışma sıcaklığında, 3 pompa hızında ve 2.3 V hücre voltajında maksimum akım (13.897 A) ve maksimum hidrojen akış hızı (118.458 ml/dk) elde edilmiştir. Optimizasyon ve deney sonuçlarının uyumu ve istenirlik değerinin yüksek olması, modelin yüksek doğrulukta oluşturulduğunu göstermektedir. RSM yönteminin akım ve hidrojen akış hızı için optimum noktaları belirlediği pertürbasyon grafikleri Şekil 4.25'te verilmiştir. Hücre voltajı, çalışma sıcaklığına ve pompa hızına kıyasla daha dik bir eğime sahiptir. Eğimi en yüksek olan hücre gerilimi, akım ve hidrojen debisini en çok etkileyen parametredir. Kontrol faktörleri arasında pompa hızı en düşük eğime sahiptir. İncelenen aralıkta PEM elektroliz hücresinin performansı için pompa hızının kritik bir rol oynamadığı gözlenmektedir. Öte yandan, pompa hızı diğer tüm parametrelere göre düşük ve negatif bir eğim göstermektedir. Negatif eğim, düşük bir pompa hızının maksimum akıma ve hidrojen akış hızına ulaşabileceğini gösterir.



Şekil 4.24. Hücre voltajı ve pompa hızının bir fonksiyonu olarak istenirlik grafiği.



Şekil 4.25. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için pertürbasyon grafiği.

5. PEM ELEKTROLİZÖRÜN MEKANİK DAVRANIŞININ SONLU ELEMANLAR YÖNTEMİ KULLANILARAK MODELLENMESİ VE DENEYSEL DOĞRULANMASI

5.1. Deneysel Yaklaşım

Tezin bu bölümünde, TÜBİTAK MAM enerji laboratuvarında geliştirilen 9 cm² aktif alana sahip tek hücreli PEM elektrolizörün performansı RSM yöntemiyle analiz edilecektir. Deney hücresinin sonlu elemanlar modeli oluşturulacak ve elektroliz hücresinin farklı sıkıştırma torklarındaki mekanik davranışı incelenecektir. Deneysel yaklaşımda, seçilen parametrelerin yanıt parametreleri üzerindeki etkilerini araştırmak için hücre voltajı, pompa hızı ve sıkıştırma torku olmak üzere üç bağımsız değişken ile bir merkezi kompozit tasarım (CCD) geliştirilmiştir. Design-Expert yazılımı, pompa hızı, hücre voltajı ve sıkıştırma torku girdi faktörlerinin akım ve hidrojen akış hızı yanıt parametreleri üzerindeki lineer, etkileşimli ve kuadratik etkilerini değerlendirmiştir. Pompa hızı, hücre voltajı ve sıkıştırma torku değerleri sırasıyla 10-70, 1.8-2.2 V ve 3-10 Nm arasında değişmektedir. Masterflex model peristaltik pompa hızları sırasıyla 10, 40 ve 70 olduğunda su akış hızları 2.45, 9.55 ve 16.8 ml/dk olmaktadır. Su elektroliz teknolojisinde maksimum yanıt yüzeyi için çalışma koşulları optimize edilmelidir. Her iki yanıt faktörü için deney tasarımı Tablo 5.1'de verilmiştir.

Table 5.1. Deneysel verilerin merkezi kompozit tasarımı.

Çalışma sırası	Deney sayısı	A: hızı	Pompa	B: voltajı (V)	Hücre	C: Sıkıştırma torku (Nm)
8	1	70		2.2		10
4	2	70		2.2		3
3	3	10		2.2		3
14	4	40		2		10
6	5	70		1.8		10
10	6	70		2		6.5
2	7	70		1.8		3
15	8	40		2		6.5
16	9	40		2		6.5
11	10	40		1.8		6.5
9	11	10		2		6.5
17	12	40		2		6.5
7	13	10		2.2		10
5	14	10		1.8		10
13	15	40		2		3
12	16	40		2.2		6.5
1	17	10		1.8		3

5.1.1. ANOVA sonuçları

Bir veya daha fazla bağımsız değişkenin yanıt fonksiyonu üzerindeki bireysel ve birleşik etkilerini değerlendiren varyans analizi (ANOVA), önemli bir istatistiksel analiz testidir. Akım ve hidrojen akış hızlarına ilişkin ANOVA tabloları sırasıyla Tablo 5.2 ve Tablo 5.3'te verilmiştir. Akım ve hidrojen akış hızları için F değerleri sırasıyla 262.29 ve 452.13 olup regresyon modellerinin anlamlı olduğunu göstermektedir. Yüksek bir F-değeri model güvenilirliği ile doğrusal bir ilişkiye sahiptir, dolayısıyla en tatmin edici regresyon modeli hidrojen akış hızıdır. İstatistiksel analizde modelin olasılığı (probability) P-değeriyle ifade edilir. Bu çalışmada, B (hücre voltajı), C (sıkıştırma torku), BC ve C², PEMEL'den elde edilen akımı önemli ölçüde etkileyebilmektedir (P-değeri<0.0500). Benzer şekilde A (pompa hızı), B (hücre voltajı), C (sıkıştırma torku), BC, B² ve C², PEMEL'den üretilen hidrojenin akış hızını veya debisini önemli ölçüde etkiler. Regresyon modellerinin olasılık değerlerinin

0.1000'den büyük olması, yanıt fonksiyonu üzerindeki etkilerinin ihmal edilebilir düzeyde olduğunu göstermektedir.

Tablo 5.2. Akım için ANOVA sonuçları.

Kaynak	SS	DF	MS	F-Değeri	P-Değeri
Model	418.34	9	46.48	262.29	<0.0001
A: Pompa hızı	0.5712	1	0.5712	3.22	0.1157
B: Hücre voltajı (V)	314.83	1	314.83	1776.56	<0.0001
C: Tork (Nm)	77.95	1	77.95	439.88	<0.0001
AB	0.0703	1	0.0703	0.3968	0.5488
AC	0.0990	1	0.0990	0.5587	0.4791
BC	16.10	1	16.10	90.87	<0.0001
A ²	0.0003	1	0.0003	0.0015	0.9703
B ²	0.3669	1	0.3669	2.07	0.1933
C ²	6.90	1	6.90	38.94	0.0004
Kalıntı	1.24	7	0.1772		
Uyum eksikliği	1.24	5	0.2481		
Saf hata	0.0000	2	0.0000		
Toplam	419.58	16			
Standart sapma	0.4210			R ²	0.9970
Ortalama	14.29			Adj R ²	0.9932
C.V.%	2.95			Pred R ²	0.9754
				Yeterli hassasiyet	53.5326

Tablo 5.3. Hidrojen akış hızı için ANOVA sonuçları.

Kaynak	SS	DF	MS	F-Değeri	P-Değeri
Model	26893.73	9	2988.19	452.13	<0.0001
A: Pompa hızı	61.74	1	61.74	9.34	0.0184
B: Hücre voltajı (V)	21103.88	1	21103.88	3193.15	<0.0001
C: Tork (Nm)	3977.91	1	3977.91	601.88	<0.0001
AB	29.97	1	29.97	4.54	0.0707
AC	2.20	1	2.20	0.3336	0.5816
BC	1099.72	1	1099.72	166.39	<0.0001
A ²	0.5763	1	0.5763	0.0872	0.7763
B ²	42.37	1	42.37	6.41	0.0391
C ²	496.19	1	496.19	75.08	<0.0001
Kalıntı	46.26	7	6.61		
Uyum eksikliği	46.26	5	9.25		
Saf hata	0.0000	2	0.0000		
Toplam	26939.99	16			
Standart sapma	2.57			R ²	0.9983
Ortalama	112.63			Adj R ²	0.9961
C.V.%	2.28			Pred R ²	0.9882
				Yeterli hassasiyet	69.3487

5.1.2. Model denklemleri

Design-Expert yazılımında gerçek girdi faktörlerine dayalı olarak akım ve hidrojen akış hızları için model denklemler oluşturulmuştur (Denklem 5.1, Denklem 5.2).

$$\begin{aligned}
 Akım (A) = & +10.87405 + 0.017279 * A - 21.50115 * B - 1.59505 \\
 & * C - 0.015625 * A * B + 0.001060 * A * C \\
 & + 2.02679 * B * C - 0.000011 * A^2 + 9.25176 * B^2 \\
 & - 0.131015 * C^2
 \end{aligned}
 \tag{5.1}$$

H_2 debi (ml/dk)

$$\begin{aligned} &= +168.57442 + 0.571109 * A - 263.92662 * B \\ &- 13.55821 * C - 0.322604 * A * B + 0.005000 * A \\ &* C + 16.74932 * B * C - 0.000515 * A^2 + 99.41375 \\ &* B^2 - 1.11092 * C^2 \end{aligned} \quad (5.2)$$

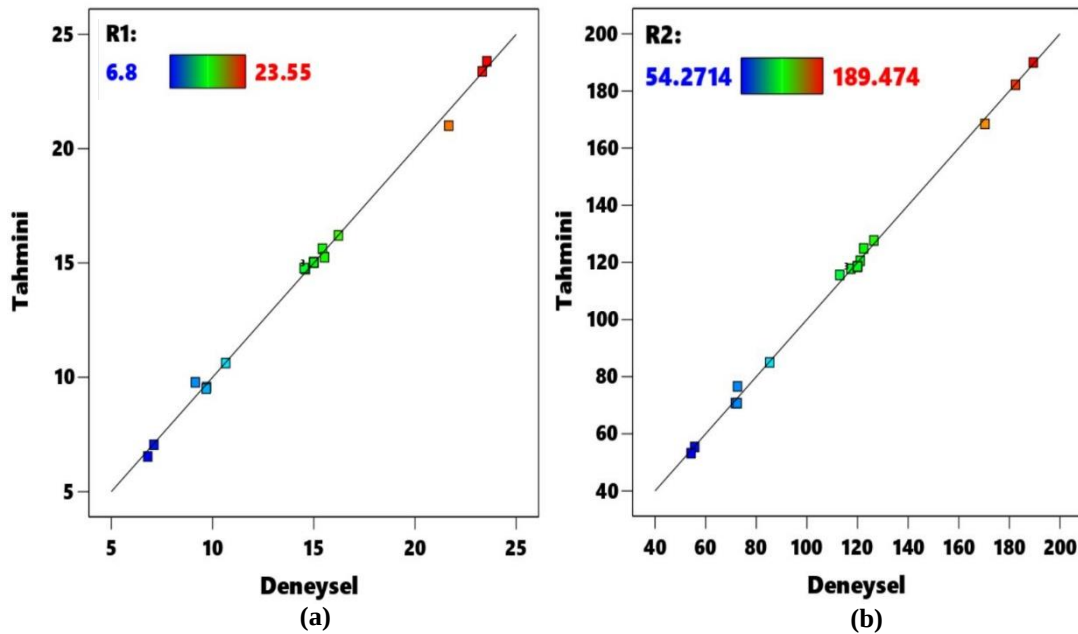
Her iki bağımlı değişken için model denklemleri ikinci mertebededir. Regresyon modellerinin istatistiksel sonuçları kararlılık indeksi (R^2), tahmini R^2 (Pred R^2), düzeltilmiş R^2 (Adj R^2), yeterli hassasiyet, standart sapma, ortalama, tahmini artık hata kareler toplamı (PRESS) ve varyasyon katsayısı (CV) gibi kritik istatistiksel parametreleri içerir (Tablo 5.3). 0 ile 1 arasında değişen R^2 , regresyon modelinin deneysel verilerle uyumunu belirler [124]. R^2 değeri 1'e ne kadar yakınsa, regresyon modeli deneysel verilerle o kadar iyi uyum sağlar. Kararlılık indeksi (R^2) akım için 0.9970, hidrojen akış hızı için 0.9983 olarak bulunmuştur. Ayrıca Pred R^2 ile Adj R^2 arasındaki farkın 0.2'den az olması, gerçek ve tahmini değerlerin birbiriyle iyi bir uyum içinde olduğunu gösterir. Yeterli hassasiyet, sinyal-gürültü oranıdır (S/N) ve 4'ü aşması amaçlanır. Bu çalışmada, akım ve hidrojen akış hızları için yeterli hassasiyet sırasıyla 53.5326 ve 69.3487'dir. Regresyon modelleri için yeterli hassasiyet değerleri karşılaştırıldığında, hidrojen akış hızının daha yüksek bir S/N değerine sahip olduğu, dolayısıyla daha güvenilir bir model olduğu söylenebilir. Varyasyon katsayısı (CV), ortalamaya kıyasla sapma derecesini gösterir. Yüksek varyasyon katsayısı değeri, düşük güvenilirliğe sahip bir modele işaret eder. Akım ve hidrojen akış hızı için varyasyon katsayısı değerleri karşılaştırıldığında hidrojen akış hızının daha kararlı ve güvenilir bir model olduğu sonucuna varılabilir.

Tablo 5.3. Regresyon modellerinin istatistiksel sonuçları.

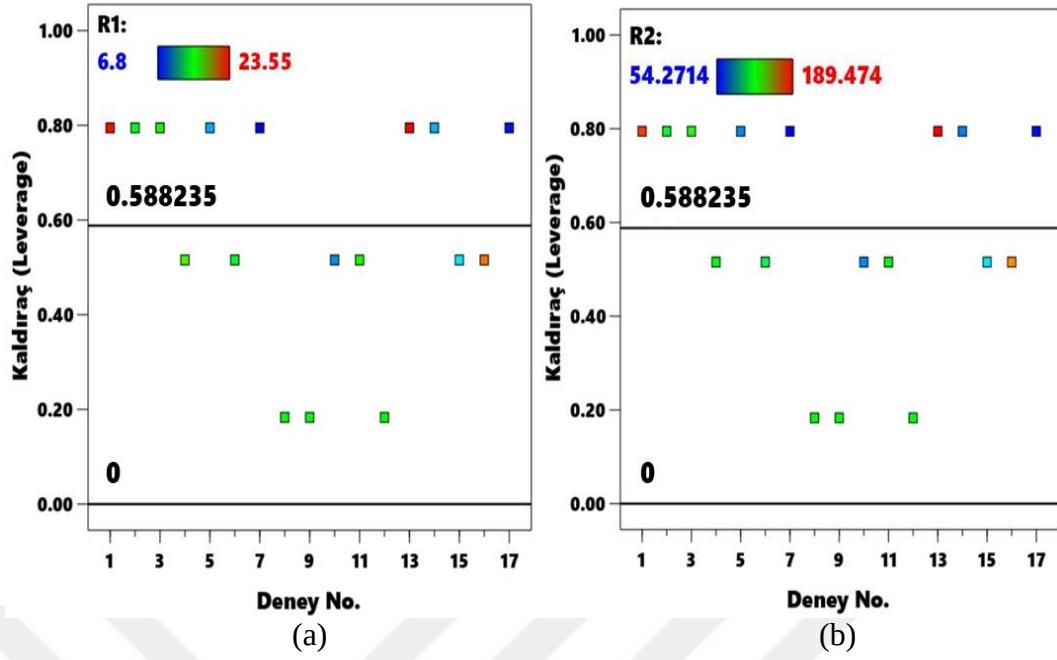
Parametre	R1: Akım (A)	R2: Hidrojen akış hızı (ml/dk)
R^2	0.9970	0.9983
Pred R^2	0.9754	0.9882
Adj R^2	0.9932	0.9961
Yeterli hassasiyet	53.5326	69.3487
Standart sapma	0.4210	2.57
Ortalama	14.29	112.63
PRESS	10.31	318.04
C.V. %	2.95	2.28

5.1.3. Regresyon model validasyonu

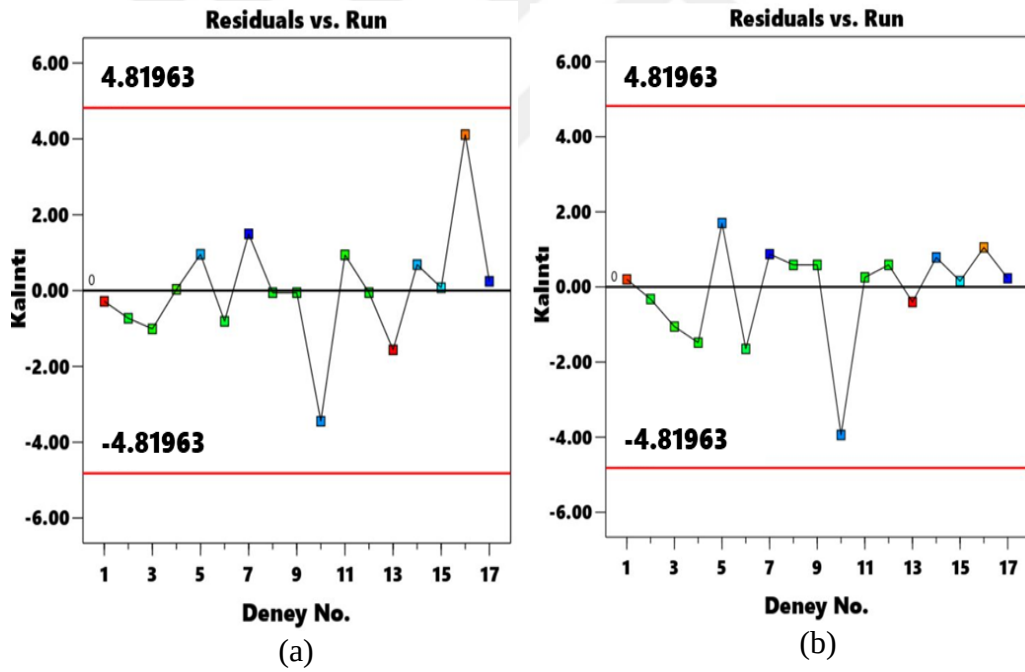
Şekil 5.1, modelin doğruluğunu gösteren kritik bir çizimdir; bağımlı değişkenlerin tahmini ve deneysel değerleri 45°'lik bir çizgi boyunca dağılmıştır. Düz bir çizgi üzerinde dağılım gösteren akım ve hidrojen akış hızı değerleri sırasıyla Şekil 5.1 (a) ve Şekil 5.1 (b)'de verilmiştir. Regresyon modeli verilerinin deneysel sonuçlarla uyumlu olduğu görülmüştür (Şekil 5.1). Kaldıraç grafiği, modelin doğruluğunu gösteren başka bir grafikdir (Şekil 5.2). Kaldıraç değeri, model katsayı sayısının deneysel deneme sayısına oranıdır. Bu çalışmada model katsayı sayısı 10, deney sayısı 17 olduğundan kaldıraç değeri 0.588235 olarak hesaplanmıştır. Kaldıraç değeri 0 ile 1 arasında değişir. Kaldıraç değerinin 1 olması, model ve deneysel verilerin mükemmel şekilde örtüştüğünü gösterir. Kalıntı (residual), deneysel veriler ile simülasyon verileri arasındaki farktır. Şekil 5.3(a) ve Şekil 5.3(b)'de gösterildiği gibi, sırasıyla akım ve hidrojen akış hızına yönelik deney sayısına göre kalıntı (residual) grafikler verilmiştir. İstatistiksel sonuçlar, her iki grafikteki tüm veri noktalarının aralık içinde olduğunu göstermiştir. Regresyon analizi sonuçlarını olumsuz etkileyen herhangi bir veriye rastlanmamıştır.



Şekil 5.1. Deneysel ve tahmini değerlerin karşılaştırılması (a) akım (A), (b) hidrojen akış hızı (ml/dk).



Şekil 5.2. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kaldıraç grafikleri.

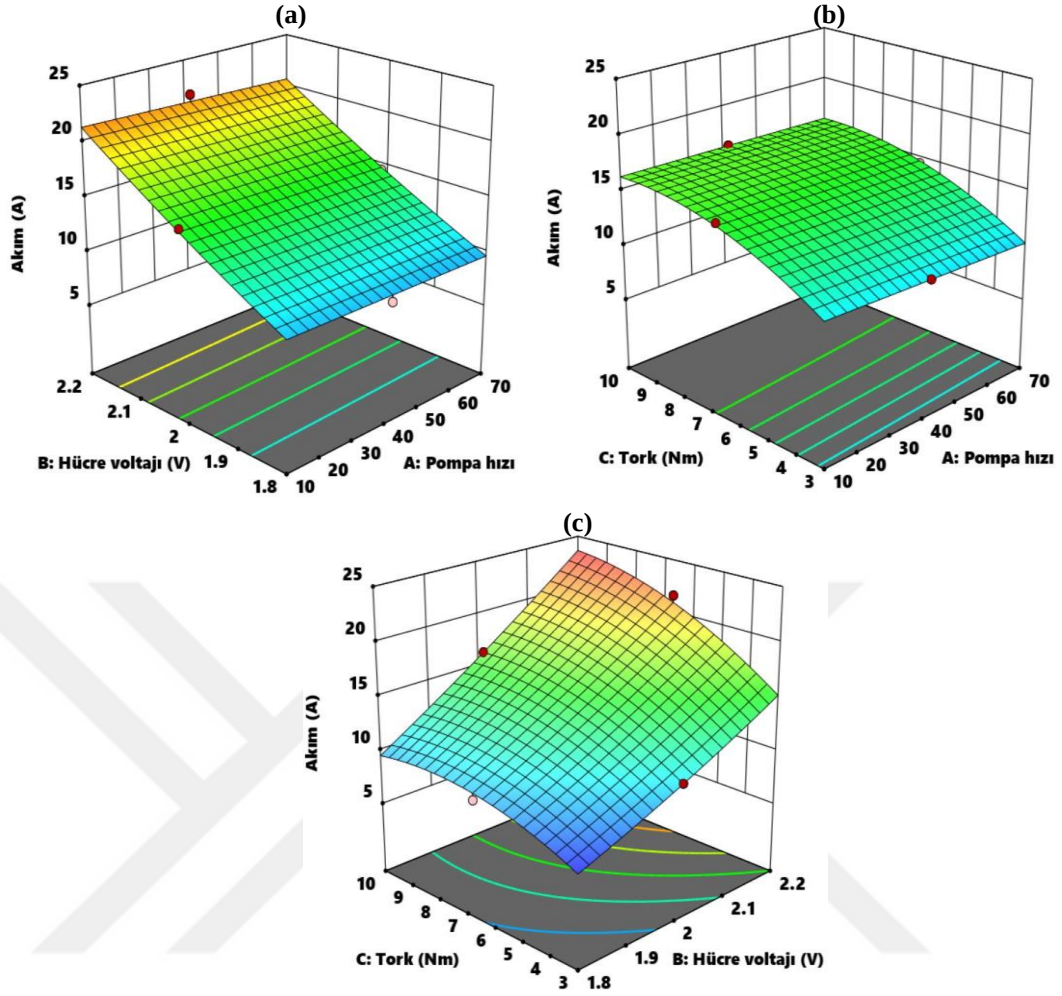


Şekil 5.3. Akım (a) ve hidrojen akış hızı (b) için kalıntı grafikleri.

5.1.4. Yüzey grafikleri

Bağımlı değişkenin girdi faktörleriyle olan fonksiyonel ilişkisinin üç boyutlu yüzey çizimleriyle görselleştirilmesi istatistiksel modelin anlaşılmasını daha kolay hale getirecektir. Girdi faktörlerinin PEM elektrolizörden elde edilen akım üzerindeki etkisi Şekil 5.4'te gösterilmektedir. Sonuçlar, akımın sıkıştırma torku veya hücre voltajıyla

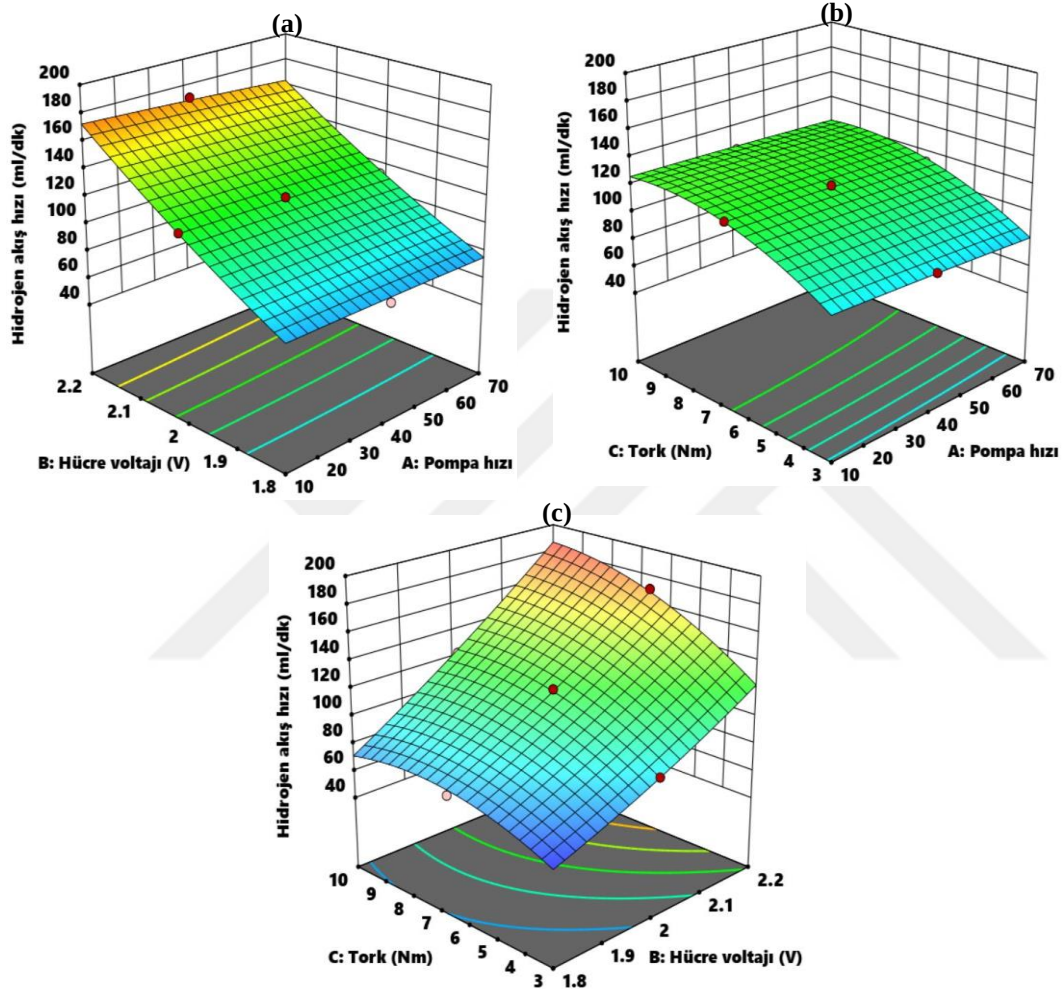
arttığını göstermektedir. Önemli bir yeşil hidrojen üretim kapasitesine ulaşmak için hücre voltajının 1.8-2.0 V arasında çalıştırılması gerekir, bu da enerji dönüşüm verimliliğinin 1'den az olmasını sağlar [125]. Aktif alanı 9 cm² olan tek hücreden oluşan PEM elektrolizör deneyleri 1.8-2.2 V çalışma voltajı aralığında gerçekleştirilmiştir. Ohm kanunundan akım ile voltaj doğru orantılıdır, dolayısıyla hücre voltajı arttıkça akım değerlerinin arttığı gözlemlenmiştir. Hücre bileşenlerinin arayüzlerindeki temas direncini azaltmak, kütle transferi sınırlamasını engellemek ve hücreden gaz/sıvı sızıntısını önlemek için elektrolizörün optimum sıkıştırma torkuyla sıkılması gerekir [126]. Sıkıştırma torku arttıkça hücre performansı artar. Ancak sıkıştırma torkunun belirli bir değerin üzerinde olması MEÜ'nün mekanik yapısına ve contalara zarar verecektir. Bu durum, kütle transfer hızını yavaşlatır ve hücre performansının düşmesine neden olur [127]. Optimum sıkıştırma torku, kütle transferi ile temas direnci arasında önemli bir uzlaşma sağlandığında maksimum hücre performansının elde edildiği değerdir, PEM elektrolizör hücresi için bu değer 10 Nm'dir [128].



Şekil 5.4. 80°C çalışma sıcaklığında hücre voltajı, pompa hızı ve sıkıştırma torkunun bir fonksiyonu olarak 3 boyutlu akım grafikleri.

Bu çalışmada PEM elektrolizörün anot uç plakasında bulunan 8 adet civata sırasıyla 3, 6.5 ve 10 Nm tork ile bir kez sıkılmış ve sıkıştırma torku 3 Nm'den 10 Nm'ye çıktıkça hücre performansının arttığı gözlemlenmiştir. Sıcaklığın artırılması elektrokimyasal reaksiyon kinetiğini artırır ve suyun elektroliz etkisini güçlendirir. Özdemir ve ark. [129] sıcaklığın hücre performansı üzerindeki etkisini deneysel olarak incelediler. Çalışmaları, artan sıcaklıkla birlikte kütle transferi ve reaksiyon hızındaki artış nedeniyle 80°C sıcaklıkta maksimum akım yoğunluğu ve hidrojen akış hızı elde etti. Bu nedenle hücre performansı üzerinde etkili bir çalışma parametresi olan sıcaklık bu bölümde ele alınmamıştır. PEMEL'in performans testleri 80°C'lik sabit bir sıcaklıkta gerçekleştirilmiş ve su debisinin akım üzerindeki etkisinin minimum düzeyde olduğu gözlemlenmiştir. Deneylerde suyun debisi 2.45 ile 16.8 ml/dk aralığındadır. Tek hücreli PEMEL'den çekilen akımda su debisinin hayati bir rol oynamadığı görülmektedir. Bu nedenle, su akış hızı veya pompa hızı hücre

performansını doğrudan etkilemez; suyun elektrolizörde soğutucu rolü vardır. Girdi faktörlerinin akım olarak bilinen birinci yanıt parametresi üzerindeki etkileri, ikinci parametre olan hidrojen akış hızında benzer bir eğilim göstermektedir. Sıkıştırma torkunun ve hücre voltajının belirli bir aralıkta arttırılması, hidrojen debisini arttıracaktır.



Şekil 5.5. 80°C çalışma sıcaklığında hücre voltajı, pompa hızı ve sıkıştırma torkunun bir fonksiyonu olarak 3 boyutlu hidrojen akış hızı grafikleri.

5.1.5. Optimizasyon sonuçları

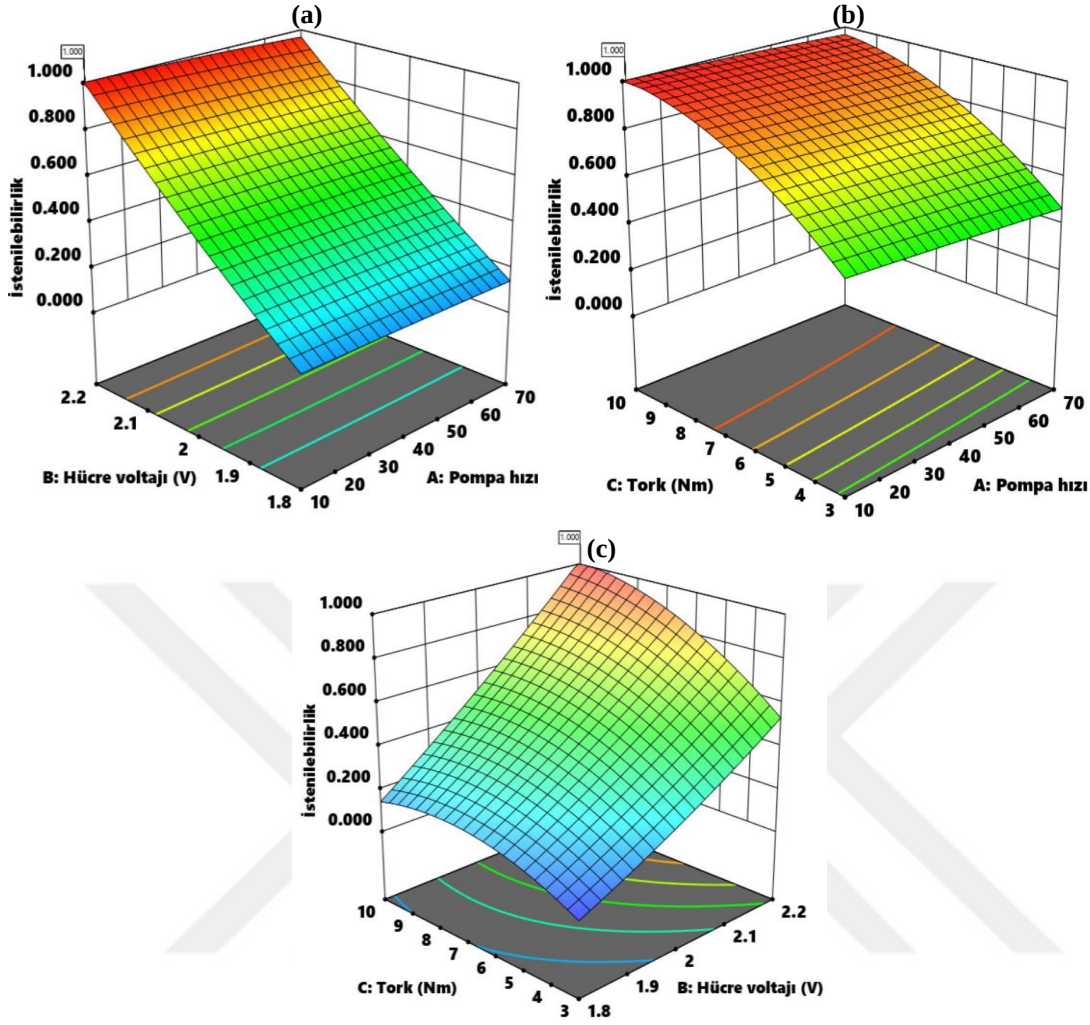
DeneySEL yaklaşımın son aşamasında regresyon modelinin sayısal optimizasyonu yapılmış ve maksimum yanıtı (response) elde etmek için optimum koşullar araştırılmıştır. Optimizasyon işlemi için istenirlik fonksiyonu kullanılmış; her bir yanıt parametresinin istenirlik değeri d_i olarak gösterilmiş ve bunların geometrik ortalamaları istenirlik (desirability) fonksiyonunu oluşturmaktadır (Denklem 5.3).

$$D = \left(\prod_{i=1}^n d_i \right)^{1/n} \quad (5.3)$$

burada n, bağımlı değişkenlerin sayısıdır. Tezdeki optimizasyon çalışması, bağımlı değişkenleri (akım ve hidrojen akış hızı) maksimuma çıkaran en iyi çalışma koşullarını bulmayı amaçlamaktadır.

Tablo 5.4. Optimizasyon sonuçları.

Deneme sayısı	A: Pompa hızı	B: Hücre voltajı (V)	C: Tork (Nm)	R1: Akım (A)	R2: Hidrojen akış hızı (ml/dk)	İstenirlik
1	10.000	2.200	10.000	23.821	189.972	1.000
2	10.851	2.199	9.914	23.760	189.503	1.000
3	11.167	2.200	9.968	23.805	189.815	1.000
4	17.075	2.200	10.000	23.773	189.246	0.999
5	17.484	2.200	10.000	23.770	189.200	0.999
6	10.000	2.200	9.515	23.667	189.165	0.999
7	18.877	2.200	10.000	23.761	189.052	0.998
8	16.156	2.200	9.748	23.705	188.982	0.998
9	21.313	2.200	9.982	23.739	188.765	0.997
10	22.218	2.200	10.000	23.737	188.686	0.997
11	24.645	2.200	10.000	23.720	188.412	0.996
12	27.575	2.200	9.999	23.700	188.073	0.995
13	31.365	2.200	10.000	23.673	187.623	0.993
14	32.842	2.200	9.995	23.661	187.437	0.992
15	37.622	2.200	10.000	23.627	186.846	0.990
16	39.855	2.200	10.000	23.610	186.552	0.989
17	43.398	2.200	10.000	23.584	186.093	0.987
18	47.210	2.200	10.000	23.556	185.577	0.985
19	49.108	2.200	10.000	23.541	185.314	0.984
20	53.185	2.200	10.000	23.510	184.738	0.981
21	55.393	2.200	10.000	23.493	184.419	0.979
22	10.002	2.200	8.553	23.179	186.020	0.976
23	10.000	2.200	8.245	22.972	184.581	0.965
24	70.000	2.200	9.750	23.290	181.755	0.963



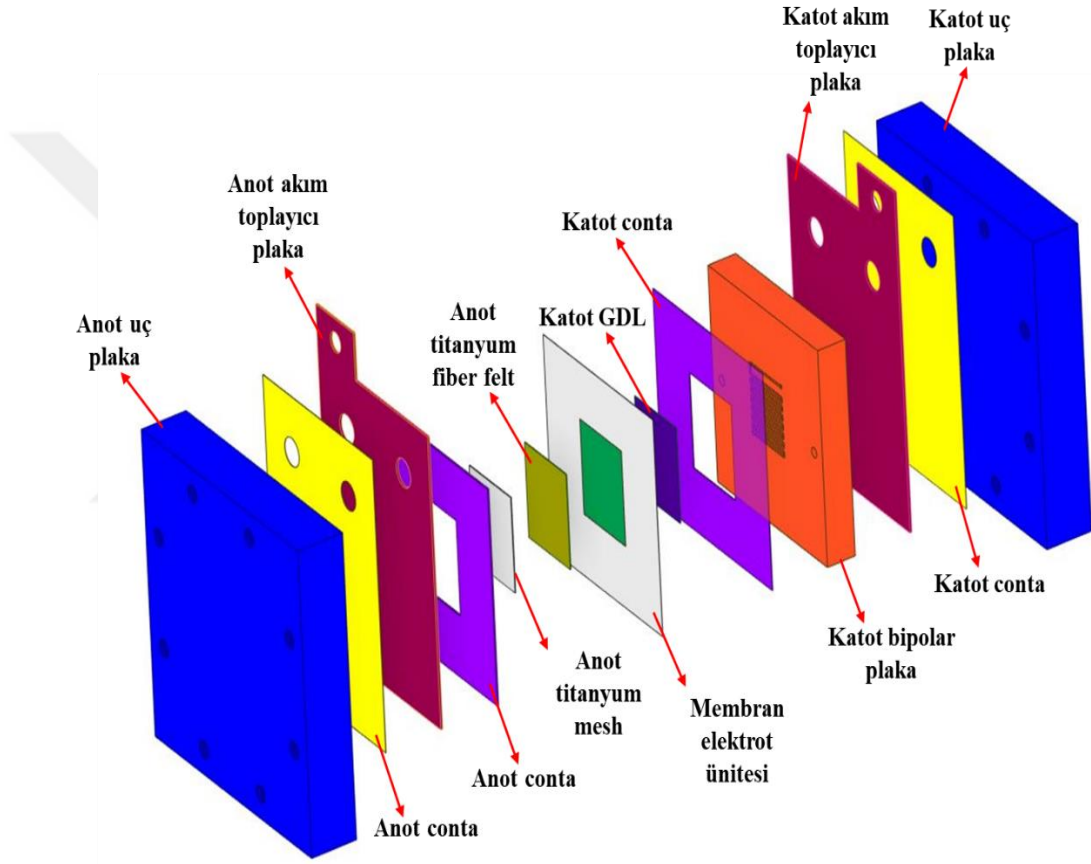
Şekil 5.6. Yanıt fonksiyonlarının optimizasyonu için istenirlik grafikleri.

Design-Expert yazılımı tarafından RSM yöntemine göre en iyi yanıt faktörlerine sahip tüm çalışma koşulları Tablo 5.4'te verilmiştir. İstenirlik değerleri 0 ile 1 arasında değişmektedir. İstenirlik değeri 0 ise yanıt reddedilmelidir, 1 ise en iyi yanıtı göstermektedir. 0.963'ten büyük veya eşit istenirlik değerleri Tablo 5.4'te gösterilmektedir. Maksimum akım (23.821 A) ve hidrojen akış hızına (189.972 ml/dk), 10 pompa hızı, 2.2 V hücre voltajı ve 10 Nm tork ile ulaşılmıştır. Şekil 5.6, optimum çözüm için 3B istenirlik yüzey çizimlerini göstermektedir. İstenirlik değerlerinin 1'e yakın olması deneysel ve istatistiksel değerlerin tamamen uyumlu olduğunu göstermektedir.

5.2. Sayısal Yaklaşım

5.2.1. Model geometrisi ve mesh yapısı

Tek hücreden oluşan PEM elektrolizör, uç plakalar, contalar, akım toplayıcı plakalar, katalizör kaplı membran, gaz akışı nedeniyle katot tarafında bipolar plaka, sıvı akışı nedeniyle anot tarafında titanyum mesh+titanyum fiber felt grubundan oluşur. Sayısal modellemenin ilk aşamasında, Tübitak MAM Enerji Laboratuvarı'nda performans testleri için kullanılan gerçek PEM elektrolizörünün üç boyutlu (3B) sayısal model geometrisi ANSYS SpaceClaim'de geliştirilmiştir (Şekil 5.7).



Şekil 5.7. Deneysel PEM elektrolizörün detaylı görünümü.

PEM elektrolizör bileşenlerinin geometrik boyutları Tablo 5.5'te verilmiştir. Yapısal özellikler de Tablo 5.6'da listelenmiştir.

Tablo 5.5. Boyutsal özellikler.

Bileşenler	Genişlik/mm	Uzunluk/mm	Kalınlık/mm
Uç plaka	108	108	20.5
Conta	75.7	103	0.2
Akım toplayıcı plaka	75.7	103	0.85
Titanyum mesh	28.7	33.5	0.1
Titanyum fiber felt	28.7	33.5	0.3
Membran elektrot ünitesi (MEÜ)	75.7	76.2	0.174
Bipolar plaka	75.7	76.2	12.7

Tablo 5.6. Yapısal özellikler.

Bileşenler	Malzeme	Yoğunluk (kg/mm ³)	Poisson oranı	Young modülü (MPa)
Uç plaka	Alüminyum alaşım	2.7e-06	0.35	70000
Conta	Cam elyaf/Silikon	2.55e-06/2.33e-06	0.21/0.3	540/540
Akım toplayıcı plaka	Bakır	8.7e-06	0.35	110000
Titanyum mesh	Titanyum	4.51e-06	0.35	110000
Bipolar plaka	Grafit	1.8e-06	0.25	10000
Gaz difüzyon tabakası (GDL)	Karbon kağıdı	4e-07	0.25	10000
Membran	Nafion	2.0e-06	0.25	121000
Anot katalizör tabaka	İridyum	2.265e-05	0.26	5.24e+05
Katot katalizör tabaka	Platin	2.15e-05	0.385	1.54e+05

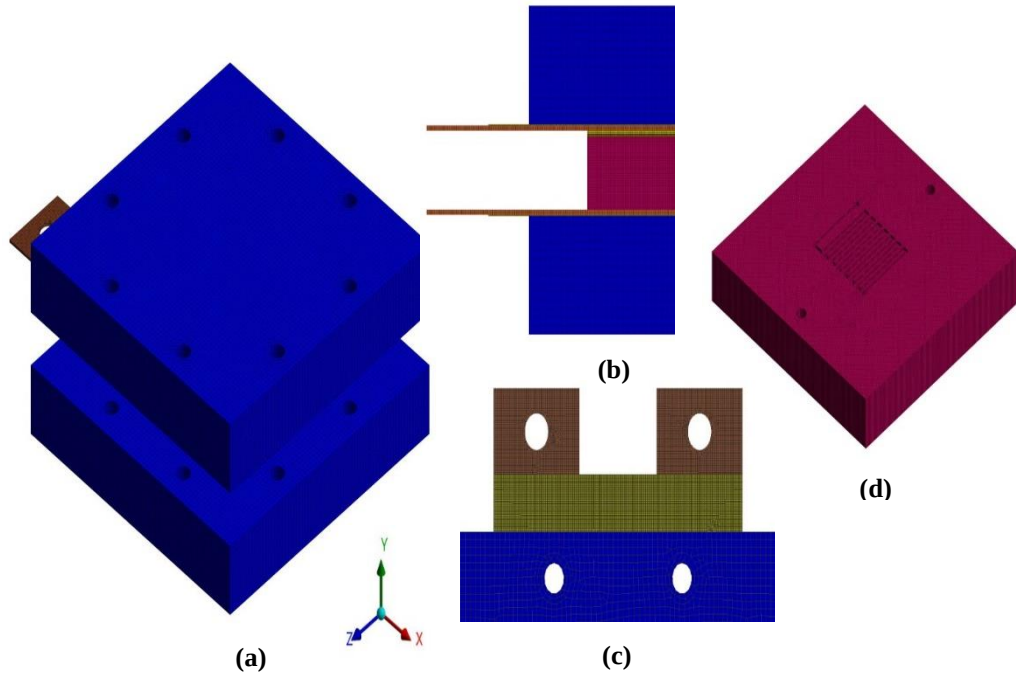
Bu çalışmada yüksek kalitede mesh yapısı oluşturmak için ANSYS Mechanical Mesh kullanılmıştır (Şekil 5.8). Modelin mesh yapısı sekiz düğümlü Solid185 eleman tiplerinden oluşmaktadır. Tüm modelin hesaplama alanı, hex-dominant mesh yöntemiyle oluşturulmuştur. Doğru ve hassas sonuçlar elde etmek için bir mesh bağımsızlık (mesh independency) testi gereklidir. Bu test, mevcut çalışma için optimum eleman ve düğüm sayısını bulmak için yapılmıştır. Mesh bağımsızlık testi

için beş farklı mesh yapısı oluşturulmuş, her bir mesh yapısının eleman ve düğüm sayıları Tablo 5.7’de listelenmiştir.

Tablo 5.7. Mesh bağımsızlık testi.

Mesh No	Toplam eleman sayısı	Toplam düğüm sayısı	MEÜ üzerinde üretilen maksimum gerilme (MPa)	Bağıl hata (%)
M1	286309	325126	20.715	-
M2	350416	408629	29.128	40.613
M3	1246211	1456945	34.742	19.274
M4	2059886	2379594	34.891	0.429
M5	4204869	4768223	34.995	0.298

Sayısal modelin doğruluğu, eleman sayısına bağlı olarak değişebilir. Bu nedenle, tüm sayısal simülasyonları, değerlerin neredeyse sabit kaldığı eleman sayısı üzerinde yapmak gerekir. Modelin tamamı, toplam eleman sayısı sırasıyla 286309, 350416, 1246211, 2059886 ve 4204869 olacak şekilde çözdürülmüştür. Model doğruluğu ile çözüm süresi arasında optimum bir geçiş göz önüne alındığında, minimum %0.429 değişimle M4 mesh yapısı (eleman sayısı: 2059886, düğüm sayısı: 2379594) bu çalışma için en uygun mesh yapısıdır.



Şekil 5.8. Tüm simülasyon modelinin mesh yapısı (a), x-y düzlem kesiti (b), x-z düzlem kesiti (c), grafit bipolar plakanın mesh geometrisi (d).

5.2.2. Katı cisimler mekaniğinde kullanılan korunum denklemleri

Sayısal analizde, tüm malzemelerin izotropik olduğu ve herhangi bir başlangıç veya termal gerilmeye sahip olmadığı varsayılmıştır. Deney hücresinde 80°C'de performans testleri gerçekleştirilmiş ve matematiksel modeldeki malzeme özellikleri oda sıcaklığı referans alınarak modele uygulanmıştır. Malzemedeki gerilme (stress) Denklem 5.4'e göre hesaplanır.

$$\sigma = \sigma_{ij} = \begin{bmatrix} \sigma_x & \tau_{xy} & \tau_{xz} \\ \tau_{yx} & \sigma_y & \tau_{yz} \\ \tau_{zx} & \tau_{zy} & \sigma_z \end{bmatrix} \quad (5.4)$$

Dengedeki sistem için Denklem 5.5'deki eşitlik yazılabilir.

$$\text{div}\sigma = 0 \quad (5.5)$$

Gerilme ve gerinim arasındaki ilişki Hooke yasası ile ifade edilir (Denklem 5.6).

$$\sigma_{ij} = \lambda \varepsilon_{kk} \delta_{ij} + 2G e_{ij} \quad (5.6)$$

$$G = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (5.7)$$

$$\lambda = \frac{2G\nu}{1 - 2\nu} \quad (5.8)$$

Kesme modülü G ile ifade edilmiş (Denklem 5.7), lame sabiti Denklem 5.8'de λ olarak gösterilmiştir. Katı cisim mekaniğinde kullanılan tüm korunum denklemleri sonlu elemanlar yöntemi (FEM) ile ayrıştırılmıştır.

5.2.3. Sınır koşulları

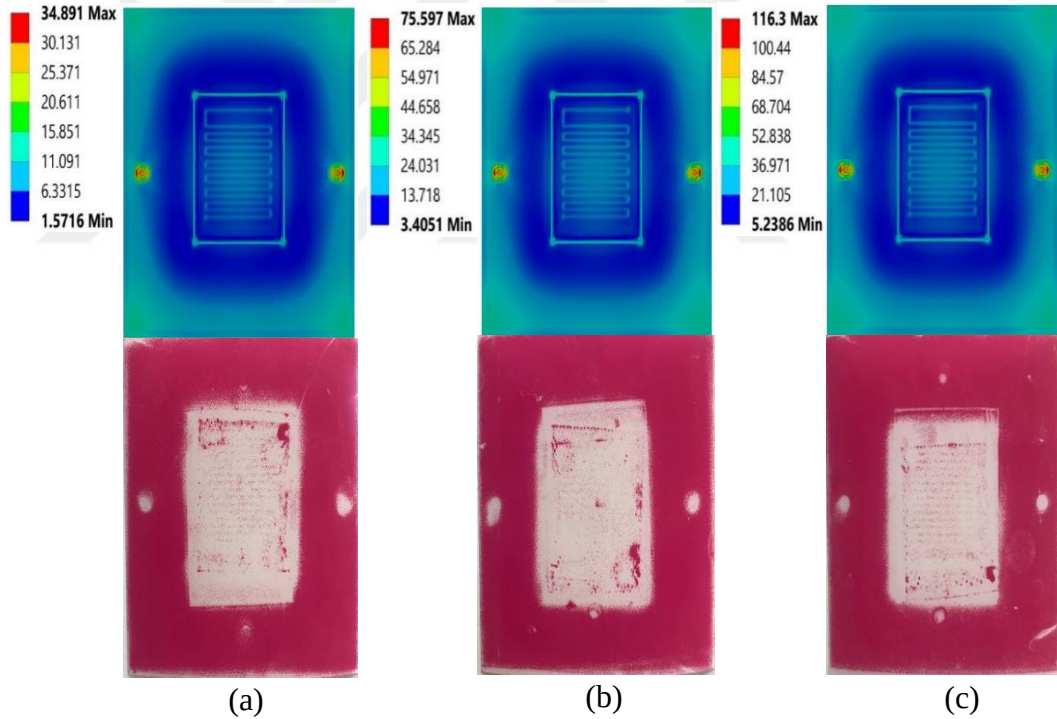
Katı cisimler mekaniğinde kullanılan korunum denklemleri ANSYS Mechanical yazılımında tanımlanan uygun sınır koşullarıyla çözülmüştür. PEM elektrolizörün katot uç plakasındaki cıvata delikleri x, y ve z yönlerinde sabitlenmiştir. Eksenel kuvvet anot uç plakasının cıvata deliklerine -y yönünde uygulanmıştır. Anot uç plakasındaki cıvata deliklerinde yer değiştirme x ve z yönlerinde sabit, y yönünde serbesttir. Tüm arayüzler kontakt olarak tanımlanır ve teğetsel sürtünme katsayısı 0.2'dir. Sıkıştırma torku, deneylerde uç plakalardaki cıvataları sıkmak için kullanılır. Eksenel kuvvet ile sıkıştırma torku arasındaki ilişki Denlem 5.9'da verilmiştir.

$$T = \frac{F \cdot C \cdot D}{N} \quad (5.9)$$

T (Nm) bir cıvataya uygulanan sıkıştırma torku, C teğetsel sürtünme katsayısı, F (N) eksenel kuvvet, D (mm) cıvatanın nominal çapı ve N cıvata sayısıdır.

5.2.4. Simülasyon sonuçları

3 Nm, 6.5 Nm ve 10 Nm olmak üzere üç farklı sıkıştırma torkunda basınç ölçüm filmlerinden elde edilen deneysel sonuçlar ve MEÜ üzerinde üretilen von Mises gerilmesinin sayısal sonuçları Şekil 5.9'da karşılaştırılmıştır. Deneysel yaklaşımda, PEM elektrolizörünün anot uç plakası üzerindeki cıvatalara tork ölçer veya tork anahtarları ile birer kez 3, 6.5 ve 10 Nm sıkıştırma torkları uygulanmıştır (Şekil 5.10). Sıkıştırma torkunun deneysel testi, elektrolizör hücresinde MEÜ yerine bir basınç ölçüm filmi kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

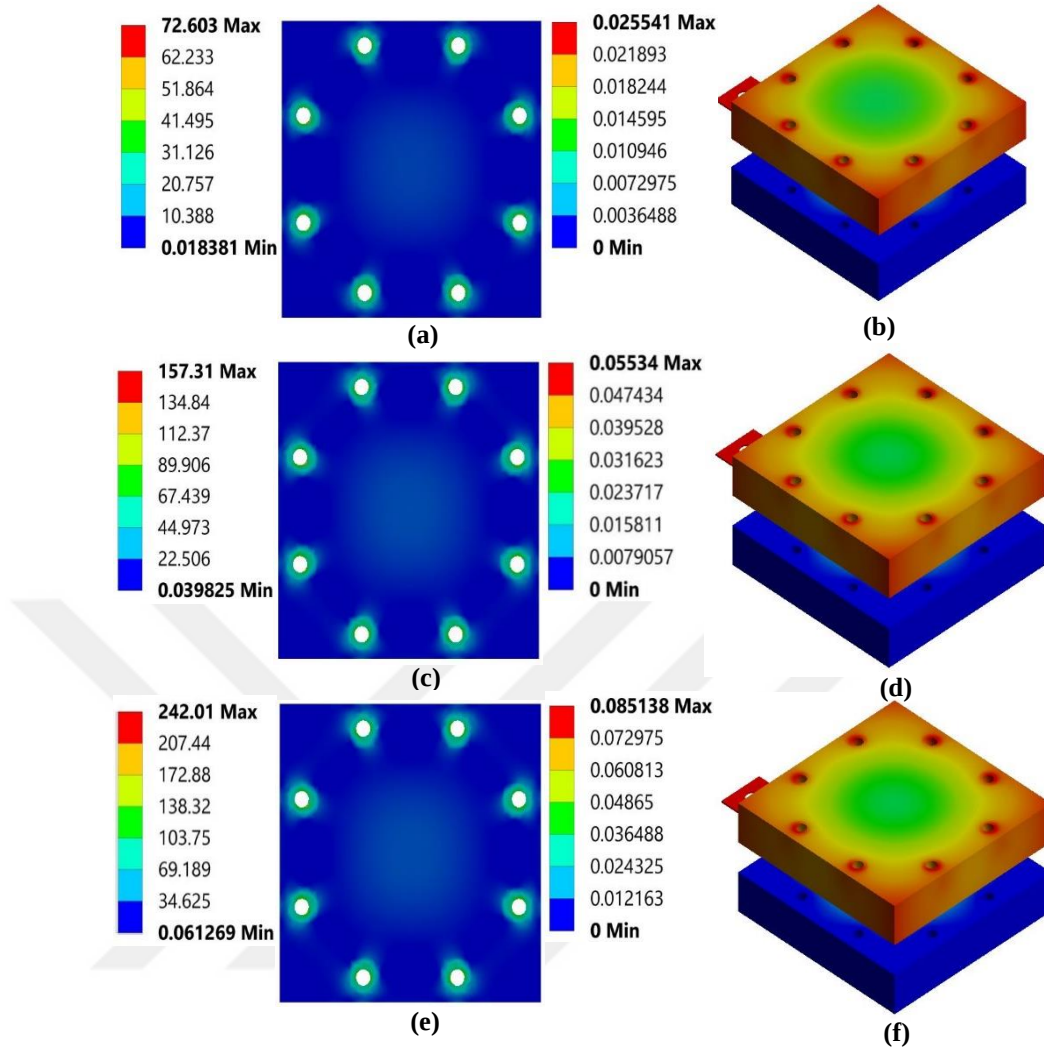


Şekil 5.9. MEÜ'de 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) farklı sıkıştırma torklarında üretilen von Mises gerilmelerinin sayısal ve deneysel karşılaştırılması.



Şekil 5.10. Torkmetre ile PEM elektrolizör hücresine sıkıştırma torkunun uygulanması.

Sıkıştırma torku arttıkça, basınç ölçüm filmindeki mikrokapsüller patlayarak beyazdan kırmızıya renk değişimine neden olur. Basınç ölçüm filmi üzerindeki basınç arttıkça kırmızı rengin yoğunluğu artacaktır. Basınç ölçüm filminin orta bölgesinde kırmızı yoğunluğunun nispeten düşük olması ve bipolar plaka akış kanalı tasarımının daha az görünür olması, MEÜ üzerindeki basıncın merkeze doğru azaldığını göstermektedir.

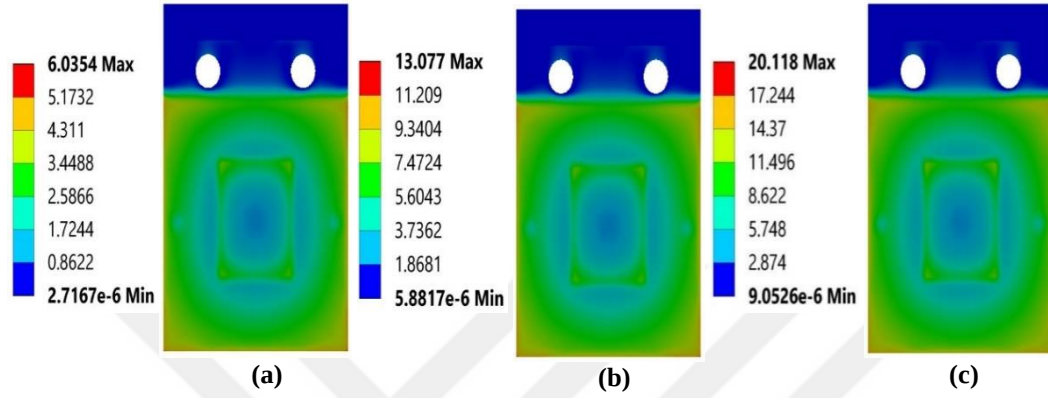


Şekil 5.11. Anot uç plakasının ve tüm PEM elektrolizörün farklı sıkıştırma torkları altında gerilme (MPa) ve toplam deformasyon (mm) dağılımları sırasıyla (a,b) 3 Nm, (c,d) 6.5 Nm ve (e,f) 10 Nm.

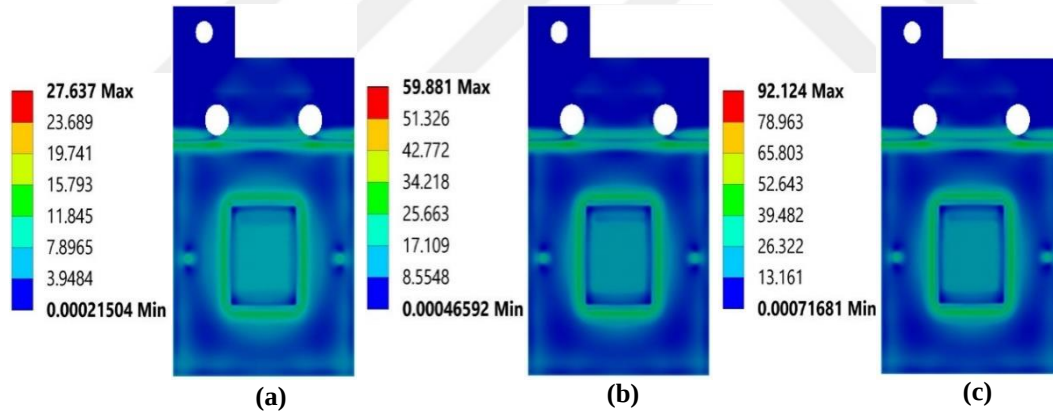
Simülasyon sonuçları, MEÜ merkezinde nispeten düşük von Mises gerilme değerleri göstermiştir. MEÜ köşelerindeki von Mises gerilme dağılımları, uç plaka köşelerine uygulanan sıkıştırma torku nedeniyle merkezdekenden daha yoğundur. FEM analizinden MEÜ üzerindeki maksimum gerilme değeri 116.3 MPa olup, en yüksek sıkıştırma torku değerinde (10 Nm) elde edilmiştir.

Şekil 5.11 (a), (c) ve (e), sırasıyla 3, 6.5 ve 10 Nm tork değerlerinde tek hücreli PEM elektrolizörün anot uç plakaları üzerindeki gerilme (von Mises stress) grafiklerini göstermektedir. Anot uç plakasının civata deliklerinde maksimum gerilmeler görülmüştür. Sıkıştırma tork değeri 3, 6.5 ve 10 Nm olduğunda maksimum gerilme değerleri sırasıyla 72.60, 157.31 ve 242.01 MPa'dır. Anot uç plakasında herhangi bir plastik deformasyon gözlenmezken, maksimum gerilme 242.01 MPa olup, alüminyum

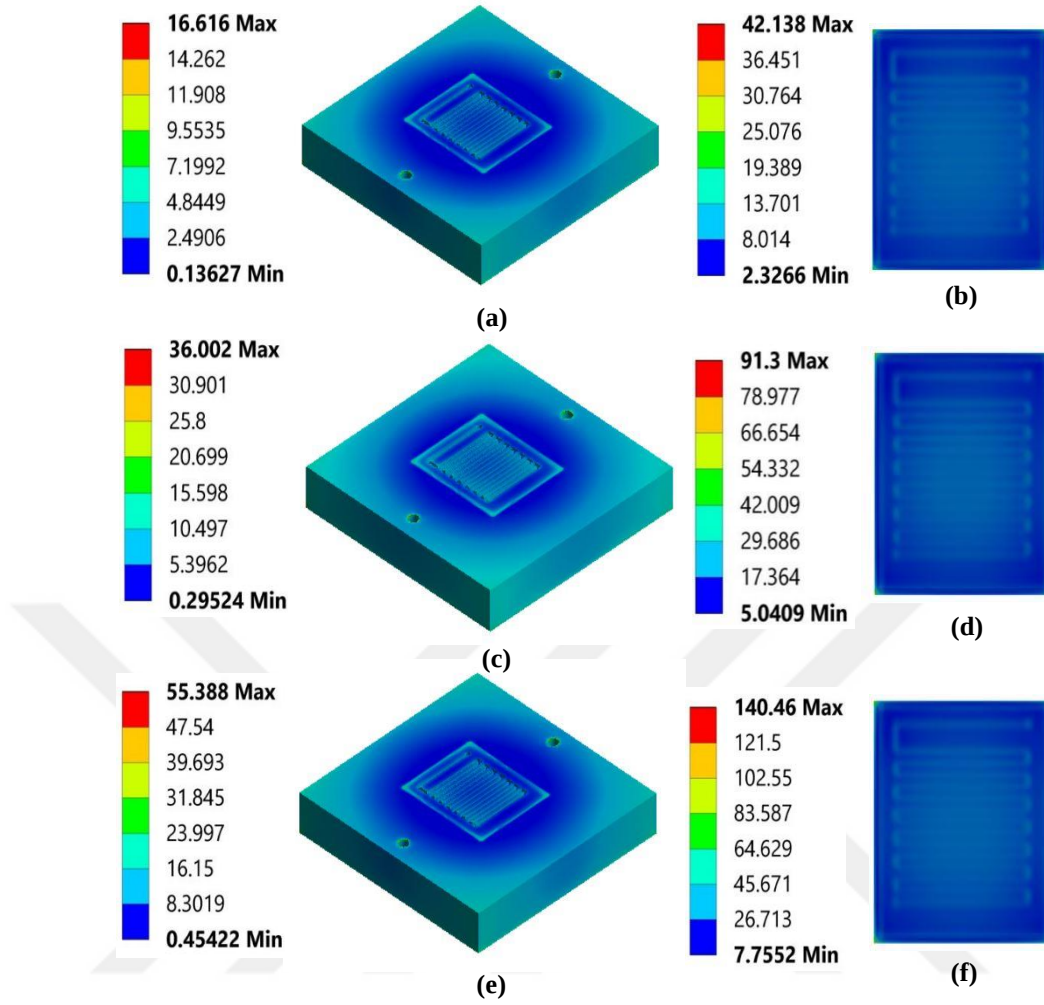
alaşımlı malzemenin akma mukavemeti değerini (310 MPa) aşmamıştır [130]. Şekil 5.11 (b), (d) ve (f), PEMEL modelinin 3.5 Nm'lik artışlarla 3-10 Nm sıkıştırma torku değerlerinde deformasyon dağılımlarını göstermektedir. Tork değeri düştükçe toplam deformasyon miktarı azalır. 10 Nm sıkıştırma torku değerinde indüklenen maksimum toplam deformasyon 0.085 mm'dir. Burada belirtilen gerilme ve toplam deformasyon dağılımları beklendiği gibi sonuçlanmıştır.



Şekil 5.12. Anot cam elyaf conta üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkıştırma torklarındaki 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) simülasyon sonuçları.



Şekil 5.13. Anot akım toplayıcı plaka üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkıştırma torklarındaki 3 Nm (a), 6.5 Nm (b) ve 10 Nm (c) simülasyon sonuçları.



Şekil 5.14. Katot bipolar plaka ve anot titanyum fiber felt üzerindeki von Mises geriliminin farklı sıkma torklarındaki 3 Nm (a,b), 6.5 Nm (c,d) ve 10 Nm (e,f) simülasyon sonuçları.

PEMEL montajında genel olarak bipolar plakadaki akış kanalı tasarımının etrafına ve uç plaka ile akım toplayıcı plaka arasına sızdırmazlık contaları yerleştirilmektedir. Yüksek hücre performansı ve sızdırmazlık için contaların yüksek kimyasal ve mekanik dirence sahip olması gerekir. Hücreden su/gaz sızıntısını önlemek için sızdırmazlık contasının belirli bir miktar sıkıştırılması gerekir. PEM elektrolizörünün anot uç plakası ile akım toplayıcı plakası arasına yerleştirilen cam elyaf contanın üç farklı sıkıştırma torku altındaki mekanik davranışı Şekil 5.12’de simüle edilmiştir. Geleneksel sıkıştırma mekanizması prensibi nedeniyle cıvata deliklerine yakın bölgelerde mekanik gerilmeler daha yüksek değerlerdedir. Sıkıştırma torku 10 Nm olduğunda maksimum von Mises gerilimi 20.118 MPa’dır. Sıkıştırma torkunun anot akım toplayıcı plaka üzerindeki etkileri sonlu elemanlar yöntemiyle analiz edilmiş, Şekil 5.13’de simüle edilmiştir. Sıkıştırma torku 3 Nm’den 10 Nm’ye çıkarıldığında

maksimum gerilme deęiřimi 64.487 MPa'dır. PEM elektrolizörün katot tarafında hidrojen gaz akıřı için serpantin kanallı bir bipolar plaka kullanılmıřtır. Bipolar plakanın mukavemeti olduka yüksektir ve sıkıřtırma torku genel olarak mekanik hasara neden olmamaktadır. Bipolar plaka ile GDL arasındaki sıkı temas, kaplamaya veya kanal tasarımına baęlı olan temas direncini önemli ölçüde azaltabilir. řekil 5.14 (a), (c) ve (e), üç farklı montaj yüklemesinde PEMEL'in katot bipolar plakası üzerinde üretilen mekanik gerilmelerin kontur grafiklerini göstermektedir. PEM elektrolizörünün anot tarafında suyun elektroliz reaksiyonu için genellikle titanyum kee tercih edilir. Titanyum kee, karbon kaęıdına göre daha yüksek ısı ve elektrik iletkenlięine sahiptir ve mekanik olarak daha dayanıklıdır. řekil 5.14 (b), (d) ve (f), üç farklı sıkıřtırma torku yükünde anot titanyum fiber felt (titanyum elyaf kee) üzerindeki gerilme daęılımlarının simülasyon sonuçlarını göstermektedir. Anot titanyum elyaf kee üzerinde katot bipolar plaka akıř tasarımının izleri gözlemlenmiřtir.

6. SONUÇLAR, TARTIŞMA VE ÖNERİLER

Sayısal modelleme, elektrolizör hücresi veya yığın üreticisine ürün geliştirmeden önce bir ön bakış açısı sağlar. PEM elektrolizörlerin matematiksel modellerinin geliştirildiği sayısal çalışma sayısı oldukça yetersizdir; bunların da büyük bir çoğunluğu karmaşık formülasyonlarla karakterize edilmiştir. Tezin ilk bölümünde elektrolizörün anot akış alanı tasarlanmıştır. Akış alanındaki gaz-sıvı akışının hidrodinamiği, üç boyutlu anot akış alanı plakasının HAD modellemesine dayanan bir karışım modeli (mixture model) uygulanarak incelenmiştir. Bipolar plaka tasarımında yüksek basınç düşüşünü önlemek için optimum kanal sayısının belirlenmesi gerekmektedir ve literatürdeki benzer çalışmalardan farklı olarak tezde bu kritik parametre vurgulanmıştır. Akış alanının mesh yapısı esas olarak hexa elemanlardan oluşmaktadır ve yönetici denklemler, sonlu hacim yöntemi kullanılarak kararsız koşullar altında ayrıklaştırılmıştır. HAD sonuçlarından elde edilen bulgular şu şekildedir;

- Anot bipolar plakasının merkezinde en yüksek olan oksijen hacmi fraksiyonu, kanal girişinden kanal çıkışına kadar artar. Oksijen üretim hızı arttıkça basınç düşüşü akış alanının giriş portundan çıkış portuna doğru çapraz olarak artmıştır.
- Kanal sayısı 4'ten 14'e çıkarılarak basınç kaybı azaltılmıştır.
- Hız dağılımının homojen olmayan bir dağılım gösterdiği sonucuna varılmıştır. Giriş ve çıkış manifoldlarında akış hızı yüksektir, akış alanı bölgesinin ortasında ise hız azalmıştır.
- Kanal sayısı 4'ten 10'a çıkarıldığında maksimum akış hızının 5 s'de yaklaşık %43.5 azaldığı görülmüştür.

Bipolar plakalar PEMEL'in önemli bir bileşenidir ve reaktanların membranın reaksiyon yüzeyi üzerinde çoklu kanallarda taşınmasında hayati bir rol oynamaktadır. Sayısal simülasyon sonuçları, karmaşık çift fazlı akış hidrodinamiğini görselleştirir ve akış alanı plakasındaki su/oksijen kabarcıkları akışının dağılımını önizler. Bu elektrolizör üreticileri için önemli bir kılavuz olacaktır. HAD modelleme yöntemi, yüksek verimli bir elektrolizör geliştirmek için bipolar plakaların tasarlanmasında

oldukça işlevsel ve ekonomik bir uygulamadır. Karışım modeli yaklaşımıyla HAD modeli için çift fazlı hesaplamaların simülasyon sonuçları kabul edilebilir düzeydedir. Tez çalışmasında mevcut kaynaklar oksijen kabarcığı tuzağı (oxygen bubble entrapment) gibi yerel bir olguyu ele almamıştır. Bunun nedeni, bölgesel akış simülasyonlarının yüksek hassasiyetli bir mesh yapısı gerektirmesi ve dolayısıyla yüksek hesaplama gücüne ihtiyaç duymasıdır.

Tasarım ve işletme sürecinde ele alınması gereken öncelikli konular, PEM elektrolizörün çalışma koşulları, dayanıklılığı ve maliyetidir. PEM elektroliz hücresinin çalışma koşulları cihazın performansı açısından hayati öneme sahiptir. PEM elektrolizör sıcaklığının artırılması, aşırı potansiyeli azaltarak hidrojen üretim kapasitesini artırır. Ancak hücrenin 80°C'nin üzerindeki sıcaklıklarda çalıştırılması membranın ömrüne ciddi zararlar verecektir. Öte yandan PEM elektroliz hücresinin anot akış alanındaki oksijen kabarcıklarını temizlemek için optimum su akış hızının veya pompa hızının belirlenmesi önemlidir. Su aynı zamanda elektroliz hücresi için uygun bir soğutucudur. Aşırı ısınmayı önlemek için su akış hızının belirli bir sınırın altına düşmemesi gerekir. Maksimum akımı ve hidrojen akış hızını elde etmek için PEM elektroliz hücresi çalışma haritasının tamamının bilinmesi önerilir. Tezin ikinci bölümü PEM elektrolizör hücresi üzerindeki üç çalışma kısıtlamasının etkisine odaklanmıştır: su akış hızı (16.5-30.6 ml/dk), hücre sıcaklığı (40-80°C) ve hücre voltajı (1.6-2.4V). PEM elektrolizörünün akım ve hidrojen akış hızının artırılması için bahsedilen parametrelerin optimum değerlerinin belirlenmesi amaçlanmaktadır. Önerilen prosedür Deneysel ve Taguchi yöntemi olmak üzere iki aşamadan oluşmaktadır. Bu tezin özgünlüğü, PEM elektrolizörünün çıkış özelliklerini (akım ve hidrojen akış hızı), Taguchi metodolojisini kullanarak giriş faktörlerinin deneysel çalışması yoluyla araştırmaktır. En iyi hücre performansının elde edildiği çalışma koşullarında AID ve ÜID enerji verimlilikleri sırasıyla %59.6 ve %70.4 olarak hesaplanmıştır. Ayrıca hücre voltajı yaklaşık %91'lik bir katkı ile akım ve hidrojen akış hızını önemli ölçüde etkilerken, hücre sıcaklığı ve su akış hızının değişimi sırasıyla yaklaşık %3 ve %1'lik bir katkı ile yanıt parametrelerini çok az etkilemiştir.

Bir sonraki aşamada, PEM elektrolizör performansı yeni bir optimizasyon yöntemiyle incelenmiştir. Akım ve hidrojen akış hızını maksimize etmek için optimum çalışma koşulları RSM yöntemiyle belirlenecektir. Sıcaklık, su akış hızı veya pompa hızı ve hücre voltajı kontrol faktörleri olarak tanımlanmıştır. RSM optimizasyon

yönteminden, hücre voltajındaki değişikliklerin PEM elektroliz hücresinin performansı üzerinde diğer giriş parametrelerine göre daha önemli bir etkiye sahip olduğu gözlemlenmiştir. Makul bir doğrulukla geliştirilen ikinci mertebeden modeller, akımı ve hidrojen akış hızını tahmin edecektir. Maksimum akım ve hidrojen debisi için optimum sıcaklık, su akış hızı ve hücre voltajı değerleri sırasıyla 80 °C, 9.7 ml/dk ve 2.3 V'dir. İkinci dereceden model tarafından tahmin edilen maksimum akımın (13.897 A), deneysel verilerle (13.84 A) karşılaştırıldığında makul bir hataya (%0.412) sahip olduğu bulunmuştur. Kuadratik modelin öngördüğü maksimum hidrojen akış hızının (118.458 ml/dk), deneysel verilere (117.65 ml/dk) kıyasla makul bir hataya (%0.687) sahip olduğu gözlemlenmiştir. RSM ile elde edilen modelin PEM elektroliz hücresinin çalışma koşullarını optimize etmek, dolayısıyla maliyet ve zamandan tasarruf sağlamak için uygun ve yeterli bir model olduğu sonucuna varılmıştır. PEM elektrolizör performansını deneysel olarak inceleyen yayınlanmış makalelerin toplam sayısı, PEM yakıt pilleri üzerine yapılan çalışmaların sayısından çok daha azdır. Yine de yeşil hidrojen üretme çabalarının önümüzdeki on yılda önemli ölçüde artması bekleniyor. Literatürde yeşil hidrojen üretimi için gelecek vaat eden bir PEM elektroliz hücresinin Taguchi yöntemi ve makine öğrenimi ile optimize edildiği birkaç çalışma olmasına rağmen çalışma parametrelerinin hücre performansı üzerindeki etkisinin üç boyutlu yüzey grafikleri yöntemiyle görselleştirildiği bir çalışmanın bulunmadığını gözlemledik. Literatürde RSM yöntemini kullanarak elektroliz hücresi performansını ve hücre performansında kritik rol oynayan çalışma parametrelerinin bireysel ve birleşik etkilerini inceleyen bir çalışmaya rastlanılmamıştır. Tez çalışmasında yakıt pillerinde optimizasyon çalışmalarında sıklıkla kullanılan RSM yöntemi ilk kez PEM elektroliz hücresi performans optimizasyonunda uygulanacak ve literatüre kazandırılacaktır. Tez kapsamında aktif alanı 9 cm² olan tek hücreli PEM elektroliz hücresinden elde edilen deneysel sonuçlar, elektrolizör yığını üreticileri, tasarımcıları, kontrol stratejisi geliştiricileri ve akademisyenler için önemli bir rehber niteliğindedir.

Tezin son bölümünde, PEM elektrolizörünün yanıt parametreleri (akım ve hidrojen akış hızı) ile üç bağımsız değişken (su akış hızı, tork ve hücre voltajı) arasındaki ilişkiyi ortaya çıkarmak için RSM yöntemiyle istatistiksel bir model geliştirilmiştir. Deney sayısı önemli ölçüde azaltılmış ve maksimum yanıt parametresi sonucunu veren en uygun parametre kombinasyonu daha az maliyetle RSM yöntemi ile bulunmuştur. Gerçek tek hücreli PEM elektrolizöründe farklı sıkıştırma torklarında meydana gelen

toplam deformasyon dağılımlarının ve hücrenin MEÜ ve diğer hücre bileşenleri üzerindeki gerilme dağılımlarının üç boyutlu simülasyonları tez kapsamında detaylıca incelenmiştir. Tezin literatüre bir diğer katkısı ve yeniliği ise bir PEM elektrolizör hücresinin performansını sıkıştırma torkunun etkisini de dahil olmak üzere bir optimizasyon yöntemiyle incelemek ve mekanik davranışını FEM modelleme ile analiz etmektir. Belirli bir aralıkta sıkıştırma torkunun arttırılması, hücre voltajının arttırılması ve su akış hızının azaltılması, akım yoğunluğunun ve hidrojen akış hızının arttırılmasına ve PEMEL'in performansının iyileştirilmesine yardımcı olabilir. PEMEL mekanik davranışının tüm simülasyonları için ticari sonlu elemanlar sayısal kodu ANSYS Mechanical kullanılmıştır. Hücrenin merkezine yerleştirilen basınç ölçüm filmleri sırasıyla 3, 6.5 ve 10 Nm'lik üç farklı eksenel yüklemede sıkılmıştır. Deney sonuçları simülasyon sonuçlarıyla karşılaştırıldığında iyi bir korelasyon olduğu sonucuna varılmıştır. Simülasyon sonuçları, sıkıştırma torku 10 Nm olduğunda, MEÜ ve uç plaka üzerindeki maksimum gerilmenin 116.3 MPa ve 242.01 MPa, maksimum deformasyon değerinin ise 0.085138 mm olduğunu göstermektedir. İstatistiksel bulgular, PEMEL'in en iyi performansı gösterdiği deneysel çalışmaya göre optimize edilmiş sıkıştırma torkunun, hücre voltajının ve su akış hızının sırasıyla 10 Nm, 2.2 V ve 2.45 ml/dk olduğunu göstermektedir. Maksimum akım 23.821 A, maksimum hidrojen akış hızı ise 189.972 mL/dk olarak bulunmuştur.

KAYNAKLAR

- [1] Kebede, A. A., Kalogiannis, T., van Mierlo, J., & Berecibar, M. (2022). A comprehensive review of stationary energy storage devices for large scale renewable energy sources grid integration. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 159, 112213. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2022.112213>
- [2] Sinsel, S. R., Riemke, R. L., & Hoffmann, V. H. (2020). Challenges and solution technologies for the integration of variable renewable energy sources—a review. *Renewable Energy*, 145, 2271–2285. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2019.06.147>
- [3] Saboori, B., Gholipour, H. F., Rasoulinezhad, E., & Ranjbar, O. (2022). Renewable energy sources and unemployment rate: Evidence from the US states. *Energy Policy*, 168, 113155. <https://doi.org/10.1016/j.enpol.2022.113155>
- [4] Li, G., Wang, J., Yu, J., Liu, H., Cao, Q., Du, J., Zhao, L., Jia, J., Liu, H., & Zhou, W. (2020). Ni-Ni₃P nanoparticles embedded into N, P-doped carbon on 3D graphene frameworks via in situ phosphatization of saccharomycetes with multifunctional electrodes for electrocatalytic hydrogen production and anodic degradation. *Applied Catalysis B: Environmental*, 261, 118147 <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2019.118147>
- [5] Fan, L., Tu, Z., & Chan, S. H. (2021). Recent development of hydrogen and fuel cell technologies: A review. *Energy Reports*, 7, 8421–8446. <https://doi.org/10.1016/j.egyr.2021.08.003>
- [6] Nikolaidis, P., & Poullikkas, A. (2017). A comparative overview of hydrogen production processes. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 67, 597–611. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.09.044>
- [7] Barbir, F. (2005). PEM electrolysis for production of hydrogen from renewable energy sources. *Solar Energy*, 78(5), 661–669. <https://doi.org/10.1016/j.solener.2004.09.003>
- [8] Millet, P., Mbemba, N., Grigoriev, S. A., Fateev, V. N., Aukauloo, A., & Etiévant, C. (2011). Electrochemical performances of PEM water electrolysis cells and perspectives. *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(6), 4134–4142. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.06.105>
- [9] Holladay, J. D., Hu, J., King, D. L., & Wang, Y. (2009). An overview of hydrogen production technologies. *Catalysis Today*, 139(4), 244–260. <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2008.08.039>
- [10] Schmidt, O., Gambhir, A., Staffell, I., Hawkes, A., Nelson, J., & Few, S. (2017). Future cost and performance of water electrolysis: An expert elicitation study. *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(52), 30470–30492. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2017.10.045>

- [11] Carcadea, E., Varlam, M., Ismail, M., Ingham, D. B., Marinoiu, A., Raceanu, M., Jianu, C., Patularu, L., & Ion-Ebrasu, D. (2020). PEM fuel cell performance improvement through numerical optimization of the parameters of the porous layers. *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(14), 7968–7980. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.08.219>
- [12] Chang, W. R., Hwang, J. J., Weng, F. B., & Chan, S. H. (2007). Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 166(1), 149–154. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2007.01.015>
- [13] Cha, D., Ahn, J. H., Kim, H. S., & Kim, Y. (2015). Effects of clamping force on the water transport and performance of a PEM (proton electrolyte membrane) fuel cell with relative humidity and current density. *Energy*, 93, 1338–1344. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2015.10.045>
- [14] Ma Majasan, J. O., Cho, J. I. S., Dedigama, I., Tsaoulidis, D., Shearing, P., & Brett, D. J. L. (2018). Two-phase flow behaviour and performance of polymer electrolyte membrane electrolyzers: Electrochemical and optical characterisation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 43(33), 15659–15672. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.07.003>
- [15] Pushkareva, I. v., Solovyev, M. A., Butrim, S. I., Kozlova, M. v., Simkin, D. A., & Pushkarev, A. S. (2023). On the Operational Conditions' Effect on the Performance of an Anion Exchange Membrane Water Electrolyzer: Electrochemical Impedance Spectroscopy Study. *Membranes*, 13(2). <https://doi.org/10.3390/membranes13020192>
- [16] Wang, L., Husar, A., Zhou, T., & Liu, H. (2003). A parametric study of PEM fuel cell performances. *International Journal of Hydrogen Energy*, 28(11), 1263–1272. [https://doi.org/10.1016/S0360-3199\(02\)00284-7](https://doi.org/10.1016/S0360-3199(02)00284-7)
- [17] Grigoriev, S. A., & Kalinnikov, A. A. (2017). Mathematical modeling and experimental study of the performance of PEM water electrolysis cell with different loadings of platinum metals in electrocatalytic layers. *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(3), 1590–1597. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.09.058>
- [18] Zhang, S., Ma, X., He, Y., Zhu, Y., & Wang, Z. (2023). Amorphous mixed Ir–Mn oxide catalysts for the oxygen evolution reaction in PEM water electrolysis for H₂ production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(28), 10532–10544. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2022.11.316>
- [19] Briguglio, N., Pantò, F., Siracusano, S., & Aricò, A. S. (2020). Enhanced performance of a PtCo recombination catalyst for reducing the H₂ concentration in the O₂ stream of a PEM electrolysis cell in the presence of a thin membrane and a high differential pressure. *Electrochimica Acta*, 344. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2020.136153>
- [20] Rocha, A. G., Ferreira, R., Falcão, D., & Pinto, A. M. F. R. (2022). Experimental Study on the Catalyst-Coated Membrane of a Proton Exchange Membrane Electrolyzer. *Energies*, 15(21), 7937. <https://doi.org/10.3390/en15217937>
- [21] Gielen, D., Boshell, F., Saygin, D., Bazilian, M. D., Wagner, N., & Gorini, R. (2019). The role of renewable energy in the global energy transformation. *Energy Strategy Reviews*, 24, 38–50. <https://doi.org/10.1016/j.esr.2019.01.006>

- [22] Kötter, E., Schneider, L., Sehnke, F., Ohnmeiss, K., & Schröer, R. (2016). The future electric power system: Impact of Power-to-Gas by interacting with other renewable energy components. *Journal of Energy Storage*, 5, 113–119. <https://doi.org/10.1016/j.est.2015.11.012>
- [23] Milani, D., Kiani, A., & McNaughton, R. (2020). Renewable-powered hydrogen economy from Australia's perspective. *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(46), 24125–24145. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2020.06.041>
- [24] Dawood, F., Anda, M., & Shafiullah, G. M. (2020). Hydrogen production for energy: An overview. *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(7), 3847–3869. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.12.059>
- [25] Mazloomi, K., & Gomes, C. (2012). Hydrogen as an energy carrier: Prospects and challenges. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 16(5), 3024–3033. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2012.02.028>
- [26] Hermesmann, M., & Müller, T. E. (2022). Green, Turquoise, Blue, or Grey? Environmentally friendly Hydrogen Production in Transforming Energy Systems. *Progress in Energy and Combustion Science*, 90, 100996. <https://doi.org/10.1016/j.pecs.2022.100996>
- [27] Nikolaidis, P., & Poullikkas, A. (2017). A comparative overview of hydrogen production processes. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 67, 597–611. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.09.044>
- [28] Shiva Kumar, S., & Lim, H. (2022). An overview of water electrolysis technologies for green hydrogen production. *Energy Reports*, 8, 13793–13813. <https://doi.org/10.1016/j.egyr.2022.10.127>
- [29] Rasul, M. G., Hazrat, M. A., Sattar, M. A., Jahirul, M. I., & Shearer, M. J. (2022). The future of hydrogen: Challenges on production, storage and applications. *Energy Conversion and Management*, 272, 116326. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2022.116326>
- [30] Singh, S., Jain, S., Ps, V., Tiwari, A. K., Nouni, M. R., Pandey, J. K., & Goel, S. (2015). Hydrogen: A sustainable fuel for future of the transport sector. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 51, 623–633. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2015.06.040>
- [31] Veziroğlu, A. (2021). Hidrojen neden potansiyel bir ulaşım yakıtı olarak seçilmelidir? *Ömer Halisdemir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 10(1), 404-411. <https://doi.org/10.28948/ngumuh.819048>
- [32] Veziroğlu, T. N., & Şahin, S. (2008). 21st Century's energy: Hydrogen energy system. *Energy Conversion and Management*, 49(7), 1820–1831. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2007.08.015>
- [33] Yolcular, S. (2009). Hydrogen production for energy use in European Union Countries and Turkey. *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization and Environmental Effects*, 31(15), 1329–1337. <https://doi.org/10.1080/15567030802089615>
- [34] Balat, M. (2008). Potential importance of hydrogen as a future solution to environmental and transportation problems. *International Journal of Hydrogen Energy*, 33(15), 4013–4029. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2008.05.047>

- [35] Chen, L., Qi, Z., Zhang, S., Su, J., & Somorjai, G. A. (2020). Catalytic hydrogen production from methane: A review on recent progress and prospect. *Catalysts*, 10(8), 858. <https://doi.org/10.3390/catal10080858>
- [36] Simpson, A. P., & Lutz, A. E. (2007). Exergy analysis of hydrogen production via steam methane reforming. *International Journal of Hydrogen Energy*, 32(18), 4811–4820. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2007.08.025>
- [37] Sengodan, S., Lan, R., Humphreys, J., Du, D., Xu, W., Wang, H., & Tao, S. (2018). Advances in reforming and partial oxidation of hydrocarbons for hydrogen production and fuel cell applications. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 82, 761–780. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2017.09.071>
- [38] Chaubey, R., Sahu, S., James, O. O., & Maity, S. (2013). A review on development of industrial processes and emerging techniques for production of hydrogen from renewable and sustainable sources. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 23, 443–462. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2013.02.019>
- [39] Pal, D. B., Singh, A., & Bhatnagar, A. (2022). A review on biomass based hydrogen production technologies. *International Journal of Hydrogen Energy*, 47(3), 1461–1480. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.10.124>
- [40] Ursúa, A., Barrios, E. L., Pascual, J., San Martín, I., & Sanchis, P. (2016). Integration of commercial alkaline water electrolyzers with renewable energies: Limitations and improvements. *International Journal of Hydrogen Energy*, 41(30), 12852–12861. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.06.071>
- [41] Ishaq, H., Dincer, I., & Crawford, C. (2022). A review on hydrogen production and utilization: Challenges and opportunities. *International Journal of Hydrogen Energy*, 47(62), 26238–26264. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.11.149>
- [42] Rosen, M. A. (2010). Advances in hydrogen production by thermochemical water decomposition: A review. *Energy*, 35(2), 1068–1076. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2009.06.018>
- [43] Siripala, W., & Siripala, W. P. (2004). Hydrogen Energy and Photoelectrolysis of Water Interfacial properties of Cu₂O junctions View project Hydrogen Energy and Photoelectrolysis of Water. *Proceedings of the Technical Sessions*, 20, 67-73. <https://www.researchgate.net/publication/237549114>
- [44] Mohammadi, A., & Mehrpooya, M. (2018). A comprehensive review on coupling different types of electrolyzer to renewable energy sources. *Energy*, 158, 632–655. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2018.06.073>
- [45] Dincer, I., & Acar, C. (2014). Review and evaluation of hydrogen production methods for better sustainability. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(34), 11094–11111. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2014.12.035>
- [46] Chi, J., & Yu, H. (2018). Water electrolysis based on renewable energy for hydrogen production. *Chinese Journal of Catalysis*, 39(3), 390–394. [https://doi.org/10.1016/S1872-2067\(17\)62949-8](https://doi.org/10.1016/S1872-2067(17)62949-8)
- [47] Brauns, J., & Turek, T. (2020). Alkaline water electrolysis powered by renewable energy: A review. *Processes*, 8(2), 248. <https://doi.org/10.3390/pr8020248>

- [48] Shiva Kumar, S., & Lim, H. (2022). An overview of water electrolysis technologies for green hydrogen production. *Energy Reports*, 8, 13793–13813. <https://doi.org/10.1016/j.egy.2022.10.127>
- [49] David, M., Ocampo-Martínez, C., & Sánchez-Peña, R. (2019). Advances in alkaline water electrolyzers: A review. *Journal of Energy Storage*, 23, 392–403. <https://doi.org/10.1016/j.est.2019.03.001>
- [50] Shiva Kumar, S., & Himabindu, V. (2019). Hydrogen production by PEM water electrolysis – A review. *Materials Science for Energy Technologies*, 2(3), 442–454. <https://doi.org/10.1016/j.mset.2019.03.002>
- [51] Carmo, M., Fritz, D. L., Mergel, J., & Stolten, D. (2013). A comprehensive review on PEM water electrolysis. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(12), 4901–4934. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.01.151>
- [52] Lamiel, C., Hussain, I., Ma, X., & Zhang, K. (2022). Properties, functions, and challenges: current collectors. *Materials Today Chemistry*, 26, 101152. <https://doi.org/10.1016/j.mtchem.2022.101152>
- [53] Lin, R., Lu, Y., Xu, J., Huo, J., & Cai, X. (2022). Investigation on performance of proton exchange membrane electrolyzer with different flow field structures. *Applied Energy*, 326, 120011. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2022.120011>
- [54] Wei, Q., Fan, L., & Tu, Z. (2023). Hydrogen production in a proton exchange membrane electrolysis cell (PEMEC) with titanium meshes as flow distributors. *International Journal of Hydrogen Energy*. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2023.06.052>
- [55] Elberry, A. M., Thakur, J., Santasalo-Aarnio, A., & Larmi, M. (2021). Large-scale compressed hydrogen storage as part of renewable electricity storage systems. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(29), 15671–15690. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.02.080>
- [56] Fuel Cell Technologies Office Hydrogen Storage (2017). <https://www.energy.gov/sites/prod/files/2017/03/f34/fcto-h2-storage-fact-sheet.pdf>
- [57] Florida's Premier Energy Research Center at the University of Central Florida. <https://energyresearch.ucf.edu/research/hydrogen/liquid-hydrogen-storage/>
- [58] Wang, Z. M., Xu, C., Wang, X. Y., Liao, Z. R., & Du, X. Z. (2021). Numerical investigation of water and temperature distributions in a proton exchange membrane electrolysis cell. *Science China Technological Sciences*, 64(7), 1555–1566. <https://doi.org/10.1007/s11431-021-1810-9>
- [59] Ma, Z., Witteman, L., Wrubel, J. A., & Bender, G. (2021). A comprehensive modeling method for proton exchange membrane electrolyzer development. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(34), 17627–17643. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.02.170>
- [60] Nie, J., & Chen, Y. (2010). Numerical modeling of three-dimensional two-phase gas-liquid flow in the flow field plate of a PEM electrolysis cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(8), 3183–3197. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.01.050>

- [61] Toghyani, S., Afshari, E., Baniasadi, E., Atyabi, S. A., & Naterer, G. F. (2018). Thermal and electrochemical performance assessment of a high temperature PEM electrolyzer. *Energy*, 152, 237–246. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2018.03.140>
- [62] Olesen, A. C., Rømer, C., & Kær, S. K. (2016). A numerical study of the gas-liquid, two-phase flow maldistribution in the anode of a high pressure PEM water electrolysis cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 41(1), 52–68. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.09.140>
- [63] Toghyani, S., Afshari, E., & Baniasadi, E. (2019). Three-dimensional computational fluid dynamics modeling of proton exchange membrane electrolyzer with new flow field pattern. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 135(3), 1911–1919. <https://doi.org/10.1007/s10973-018-7236-5>
- [64] Ruiz, D. D. H., Sasmito, A. P., & Shamim, T. (2013). Numerical Investigation of the High Temperature PEM Electrolyzer: Effect of Flow Channel Configurations. *ECS Transactions*, 58(2), 99–112. <https://doi.org/10.1149/05802.0099ecst>
- [65] Su, X., Xu, L., & Hu, B. (2022). Simulation of proton exchange membrane electrolyzer: Influence of bubble covering. *International Journal of Hydrogen Energy*, 47(46), 20027–20039. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2022.04.154>
- [66] Kaya, M. F., & Demir, N. (2017). Numerical Investigation of PEM water electrolysis performance for different oxygen evolution electrocatalysts. *Fuel Cells*, 17(1), 37–47. <https://doi.org/10.1002/fuce.201600216>
- [67] Toghyani, S., Afshari, E., Baniasadi, E., & Atyabi, S. A. (2018). Thermal and electrochemical analysis of different flow field patterns in a PEM electrolyzer. *Electrochimica Acta*, 267, 234–245. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2018.02.078>
- [68] Upadhyay, M., Kim, A., Paramanantham, S. S. S., Kim, H., Lim, D., Lee, S., Moon, S., & Lim, H. (2022). Three-dimensional CFD simulation of proton exchange membrane water electrolyser: Performance assessment under different condition. *Applied Energy*, 306, 118016. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2021.118016>
- [69] Toghyani, S., Afshari, E., & Baniasadi, E. (2018). Metal foams as flow distributors in comparison with serpentine and parallel flow fields in proton exchange membrane electrolyzer cells. *Electrochimica Acta*, 290, 506–519. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2018.09.106>
- [70] Lin, R., Lu, Y., Xu, J., Huo, J., Cai, X. (2022). Investigation on performance of proton exchange membrane electrolyzer with different flow field structures. *Applied Energy*, 326, 120011. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2022.120011>
- [71] Tijani, A. S., Ghani, M. F. A., Rahim, A. H. A., Muritala, I. K., & Binti Mazlan, F. A. (2019). Electrochemical characteristics of (PEM) electrolyzer under influence of charge transfer coefficient. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(50), 27177–27189. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.08.188>

- [72] Xu, Y., Zhang, G., Wu, L., Bao, Z., Zu, B., & Jiao, K. (2021). A 3-D multiphase model of proton exchange membrane electrolyzer based on open-source CFD. *Digital Chemical Engineering*, 1, 100004. <https://doi.org/10.1016/j.dche.2021.100004>
- [73] Ni, M. (2009). Computational fluid dynamics modeling of a solid oxide electrolyzer cell for hydrogen production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(18), 7795–7806. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2009.07.080>
- [74] Arbabi, F., Montazeri, H., Abouatallah, R., Wang, R., & Bazylak, A. (2016). Three-dimensional computational fluid dynamics modelling of oxygen bubble transport in polymer electrolyte membrane electrolyzer porous transport layers. *Journal of The Electrochemical Society*, 163(11), F3062–F3069. <https://doi.org/10.1149/2.0091611jes>
- [75] Lee, C. H., Lee, J. K., Zhao, B., Fahy, K. F., LaManna, J. M., Baltic, E., Hussey, D. S., Jacobson, D. L., Schulz, V. P., & Bazylak, A. (2020). Temperature-dependent gas accumulation in polymer electrolyte membrane electrolyzer porous transport layers. *Journal of Power Sources*, 446, 227312. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.227312>
- [76] Afshari, E., Khodabakhsh, S., Jahantigh, N., & Toghyani, S. (2021). Performance assessment of gas crossover phenomenon and water transport mechanism in high pressure PEM electrolyzer. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(19), 11029–11040. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2020.10.180>
- [77] Kim, H., Park, M., & Lee, K. S. (2013). One-dimensional dynamic modeling of a high-pressure water electrolysis system for hydrogen production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(6), 2596–2609. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2012.12.006>
- [78] Falcão, D. S., & Pinto, A. M. F. R. (2020). A review on PEM electrolyzer modelling: Guidelines for beginners. *Journal of Cleaner Production*, 261, 121184. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.121184>
- [79] Grigoriev, S. A., Kalinnikov, A. A., Millet, P., Porembsky, V. I., & Fateev, V. N. (2010). Mathematical modeling of high-pressure PEM water electrolysis. *Journal of Applied Electrochemistry*, 40(5), 921–932. <https://doi.org/10.1007/s10800-009-0031-z>
- [80] Han, B., Steen, S. M., Mo, J., & Zhang, F. Y. (2015). Electrochemical performance modeling of a proton exchange membrane electrolyzer cell for hydrogen energy. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(22), 7006–7016. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.03.164>
- [81] Selamat, Ö. F., Becerikli, F., Mat, M. D., & Kaplan, Y. (2011). Development and testing of a highly efficient proton exchange membrane (PEM) electrolyzer stack. *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(17), 11480–11487. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2011.01.129>
- [82] Briguglio, N., Brunaccini, G., Siracusano, S., Randazzo, N., Dispenza, G., Ferraro, M., Ornelas, R., Aricò, A. S., & Antonucci, V. (2013). Design and testing of a compact PEM electrolyzer system. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(26), 11519–11529. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.04.091>

- [83] Medina, P., & Santarelli, M. (2010). Analysis of water transport in a high pressure PEM electrolyzer. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(11), 5173–5186. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.02.130>
- [84] Millet, P., Ngameni, R., Grigoriev, S. A., Mbemba, N., Brisset, F., Ranjbari, A., & Etiévant, C. (2010). PEM water electrolyzers: From electrocatalysis to stack development. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(10), 5043–5052. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2009.09.015>
- [85] Lickert, T., Kiermaier, M., Bromberger, K., Ghinaiya, J., Metz, S., Fallisch, A., Smolinka, T. (2020). On the influence of the anodic porous transport layer on PEM electrolysis performance at high current densities. *International Journal of Hydrogen Energy*, 45(11), 6047–6058. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.12.204>
- [86] Kang, Z., Schuler, T., Chen, Y., Wang, M., Zhang, F. Y., & Bender, G. (2022). Effects of interfacial contact under different operating conditions in proton exchange membrane water electrolysis. *Electrochimica Acta*, 429, 140942. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2022.140942>
- [87] Hu, B., He, S., Su, X., Xu, L., & Zhu, D. (2023). Experimental study of the effect of fastening bolts on PEMEC performance. *International Journal of Hydrogen Energy*. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2023.05.116>
- [88] Selamet, O. F., & Ergoktas, M. S. (2015). Effects of bolt torque and contact resistance on the performance of the polymer electrolyte membrane electrolyzers. *Journal of Power Sources*, 281, 103–113. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2015.01.162>
- [89] Moreno Soriano, R., Rojas, N., Nieto, E., de Guadalupe González-Huerta, R., & Sandoval-Pineda, J. M. (2021). Influence of the gasket materials on the clamping pressure distribution in a PEM water electrolyzer: Bolt torques and operation mode in pre-conditioning. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(51), 25944–25953. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.03.076>
- [90] Borgardt, E., Giesenberger, L., Reska, M., Müller, M., Wippermann, K., Langemann, M., Lehnert, W., & Stolten, D. (2019). Impact of clamping pressure and stress relaxation on the performance of different polymer electrolyte membrane water electrolysis cell designs. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(42), 23556–23567. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.07.075>
- [91] Toghyani, S., Fakhradini, S., Afshari, E., Baniasadi, E., Abdollahzadeh Jamalabadi, M. Y., & Safdari Shadloo, M. (2019). Optimization of operating parameters of a polymer exchange membrane electrolyzer. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(13), 6403–6414. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.01.186>
- [92] Boyacı San, F. G., & Okur, O. (2017). The effect of compression molding parameters on the electrical and physical properties of polymer composite bipolar plates. *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(36), 23054–23069. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2017.07.175>

- [93] Kanani, H., Shams, M., Hasheminasab, M., & Bozorgnezhad, A. (2015). Model development and optimization of operating conditions to maximize PEMFC performance by response surface methodology. *Energy Conversion and Management*, 93, 9–22. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2014.12.093>
- [94] Taymaz, I., Akgun, F., & Benli, M. (2011). Application of response surface methodology to optimize and investigate the effects of operating conditions on the performance of DMFC. *Energy*, 36(2), 1155–1160. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2010.11.034>
- [95] Karimi, A., Kalfati, M. S., & Rowshanzamir, S. (2019). Investigation, modeling, and optimization of parameters affecting sulfonated polyether ether ketone membrane-electrode assembly. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(2), 1096–1109. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.10.225>
- [96] Cha, D., Jeon, S. W., Yang, W., Kim, D., & Kim, Y. (2018). Comparative performance evaluation of self-humidifying PEMFCs with short-side-chain and long-side-chain membranes under various operating conditions. *Energy*, 150, 320–328. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2018.02.133>
- [97] Boyaci San, F. G., Isik-Gulsac, I., & Okur, O. (2013). Analysis of the polymer composite bipolar plate properties on the performance of PEMFC (polymer electrolyte membrane fuel cells) by RSM (response surface methodology). *Energy*, 55, 1067–1075. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2013.03.076>
- [98] Xuan, D., Li, Z., Kim, J., & Kim, Y. (2009). Optimal operating points of PEM fuel cell model with RSM. *Journal of Mechanical Science and Technology*, 23(3), 717–728. <https://doi.org/10.1007/s12206-009-0205-y>
- [99] Silva, V. B., & Rouboa, A. (2012). Optimizing the DMFC operating conditions using a response surface method. *Applied Mathematics and Computation*, 218(12), 6733–6743. <https://doi.org/10.1016/j.amc.2011.12.039>
- [100] Hossain, M. S., Rahim, N. A., Aman, M. M., & Selvaraj, J. (2019). Application of ANOVA method to study solar energy for hydrogen production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(29), 14571–14579. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.04.028>
- [101] Jeon, S. W., Cha, D., Kim, H. S., & Kim, Y. (2016). Analysis of the system efficiency of an intermediate temperature proton exchange membrane fuel cell at elevated temperature and relative humidity conditions. *Applied Energy*, 166, 165–173. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2015.12.123>
- [102] Haas, T., & Sander, H. (2020). Decarbonizing transport in the European Union: Emission performance standards and the perspectives for a European green deal. *Sustainability*, 12(20), 1–15. <https://doi.org/10.3390/su12208381>
- [103] Yue, M., Lambert, H., Pahon, E., Roche, R., Jemei, S., & Hissel, D. (2021). Hydrogen energy systems: A critical review of technologies, applications, trends and challenges. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 146, 111180. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2021.111180>
- [104] Ahmadi, P., Dincer, I., & Rosen, M. A. (2013). Energy and exergy analyses of hydrogen production via solar-boosted ocean thermal energy conversion and PEM electrolysis. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(4), 1795–1805. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2012.11.025>

- [105] LaConti, A.B. & Swette, L. (2010). *Special applications using PEM-technology*. Handbook of Fuel Cells, John Wiley & Sons, Ltd.
- [106] Li, X., Qu, S., Yu, H., Hou, M., Shao, Z., & Yi, B. (2009). Membrane water-flow rate in electrolyzer cells with a solid polymer electrolyte (SPE). *Journal of Power Sources*, 190(2), 534–537. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2008.12.147>
- [107] Dale, N. v., Mann, M. D., & Salehfar, H. (2008). Semiempirical model based on thermodynamic principles for determining 6 kW proton exchange membrane electrolyzer stack characteristics. *Journal of Power Sources*, 185(2), 1348–1353. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2008.08.054>
- [108] Springer, T.E., Zawodzinski, T.A. & Gottesfeld, S. (1991). Polymer electrolyte fuel cell model. *Journal of the Electrochemical Society*, 138(8), 2334–2342.
- [109] Marangio, F., Santarelli, M., & Cali, M. (2009). Theoretical model and experimental analysis of a high pressure PEM water electrolyser for hydrogen production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(3), 1143–1158. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2008.11.083>
- [110] Biaku, C. Y., Dale, N. v., Mann, M. D., Salehfar, H., Peters, A. J., & Han, T. (2008). A semiempirical study of the temperature dependence of the anode charge transfer coefficient of a 6 kW PEM electrolyzer. *International Journal of Hydrogen Energy*, 33(16), 4247–4254. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2008.06.006>
- [111] Barnoon, P., Toghraie, D., Salarnia, M., & Karimipour, A. (2021). Mixed thermomagnetic convection of ferrofluid in a porous cavity equipped with rotating cylinders: LTE and LTNE models. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 146(1), 187–226. <https://doi.org/10.1007/s10973-020-09866-7>
- [112] El-Batsh El-Batsh, H. M., Doheim, M. A., & Hassan, A. F. (2012). On the application of mixture model for two-phase flow induced corrosion in a complex pipeline configuration. *Applied Mathematical Modelling*, 36(11), 5686–5699. <https://doi.org/10.1016/j.apm.2012.01.017>
- [113] Pang, M. J., & Wei, J. J. (2011). Analysis of drag and lift coefficient expressions of bubbly flow system for low to medium Reynolds number. *Nuclear Engineering and Design*, 241(6), 2204–2213. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2011.03.046>
- [114] Tijani, A. S., Barr, D., & Rahim, A. H. A. (2015). Computational Modelling of the Flow Field of An Electrolyzer System using CFD. *Energy Procedia*, 79, 195–203. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2015.11.462>
- [115] Barreras, F., Lozano, A., Valiño, L., Marín, C., & Pascau, A. (2005). Flow distribution in a bipolar plate of a proton exchange membrane fuel cell: Experiments and numerical simulation studies. *Journal of Power Sources*, 144(1), 54–66. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2004.11.066>
- [116] Brezak, D., Kovač, A., & Firak, M. (2023). MATLAB/Simulink simulation of low-pressure PEM electrolyzer stack. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(16), 6158–6173. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2022.03.092>

- [117] Li, N., Araya, S. S., Kær, S. K. (2014). Effect of Current Density, Temperature and Pressure on Proton Exchange Membrane Electrolyser Stack. *Int. J. Energy Power Eng*, 15(1), 15–18.
- [118] Cho Choi, Y., Lee, W., & Na, Y. (2021). Effect of gravity and various operating conditions on proton exchange membrane water electrolysis cell performance. *Membranes*, 11(11), 822. <https://doi.org/10.3390/membranes11110822>
- [119] Noor Azam, A. M. I., Li, N. K., Zulkefli, N. N., Masdar, M. S., Majlan, E. H., Baharuddin, N. A., Mohd Zainoodin, A., Mohamad Yunus, R., Shamsul, N. S., Husaini, T., & Shaffee, S. N. A. (2023). Parametric Study and Electrocatalyst of Polymer Electrolyte Membrane (PEM) Electrolysis Performance. *Polymers*, 15(3), 560. <https://doi.org/10.3390/polym15030560>
- [120] Sasmito, A. P., Kurnia, J. C., Shamim, T., & Mujumdar, A. S. (2017). Optimization of an open-cathode polymer electrolyte fuel cells stack utilizing Taguchi method. *Applied Energy*, 185, 1225–1232. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2015.12.098>
- [121] Okur, O. (2012). *Doğrudan sodyum borhidrürlü yakıt pili anot ve katot elektrokatalizörünün sentezi ve karakterizasyonu* [Doktora Tezi] Hacettepe Üniversitesi.
- [122] Lee, B., Park, K., & Kim, H.-M. (2013). Dynamic Simulation of PEM Water Electrolysis and Comparison with Experiments. *Int. J. Electrochem. Sci*, 8, 235–248. www.electrochemsci.org
- [123] Myers, R. H., Montgomery, D. C., Geoffrey Vining, G., Borrer, C. M., & Kowalski, S. M. (2004). Response Surface Methodology: A Retrospective and Literature Survey. *Journal of Quality Technology*, 36(1), 53–78. <https://doi.org/10.1080/00224065.2004.11980252>
- [124] Elkelawy, M., el Shenawy, E. A., Alm-Eldin Bastawissi, H., Shams, M. M., & Panchal, H. (2022). A comprehensive review on the effects of diesel/biofuel blends with nanofluid additives on compression ignition engine by response surface methodology. *Energy Conversion and Management*, 14, 100177. <https://doi.org/10.1016/j.ecmx.2021.100177>
- [125] Lamy, C., & Millet, P. (2020). A critical review on the definitions used to calculate the energy efficiency coefficients of water electrolysis cells working under near ambient temperature conditions. *Journal of Power Sources*, 447, 227350. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.227350>
- [126] Xing S, Zhao C, Xing, S., Zhao, C., Liu, W., Zou, J., Chen, M., & Wang, H. (2021). Effects of bolt torque and gasket geometric parameters on open-cathode polymer electrolyte fuel cells. *Applied Energy*, 303, 117632. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2021.117632>
- [127] Zhao, C., Li, B., Xing, S., Wei, R., Song, H., & Wang, H. (2022). Performance and design optimization of different numbers and bolt torque for air-cooled open-cathode proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 530, 231322. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.231322>

- [128] Gatto, I., Urbani, F., Giacoppo, G., Barbera, O., & Passalacqua, E. (2011). Influence of the bolt torque on PEFC performance with different gasket materials. *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(20), 13043–13050. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2011.07.066>
- [129] Ozdemir, S., Taymaz, I., Okumuş, E., Gül Boyacı San, F., & Akgün, F. (2023). Experimental investigation on performance evaluation of PEM electrolysis cell by using a Taguchi method. *Fuel*, 344, 128021. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2023.128021>
- [130] Asghari, S., Shahsamandi, M. H., & Ashraf Khorasani, M. R. (2010). Design and manufacturing of end plates of a 5 kW PEM fuel cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(17), 9291–9297. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.02.135>



ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad

:Safiye Nur ÖZDEMİR

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2016, Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi, Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesi, Makine Mühendisliği Bölümü (İngilizce)
- **Yükseklisans** : 2019, Sakarya Üniversitesi, Makine Mühendisliği Anabilim Dalı, Enerji Bilim Dalı

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER:

- 2017 yılından itibaren Sakarya Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Makine Mühendisliği Bölümü'nde araştırma görevlisi olarak çalışmaktayım.

TEZDEN TÜRETİLEN ESERLER:

- Ozdemir, S.N., Taymaz, I., Okumuş, E., Boyacı San, F.G. ve Akgün, F. 2023. Experimental investigation on performance evaluation of PEM electrolysis cell by using a Taguchi method, *Fuel*, 344, 128021.
- Ozdemir, S. N., Taymaz, I., Okumuş, E., Boyacı San, F. G., & Akgün, F. 2023. Optimization of operating parameters for boosting the performance of the PEMEC by the response surface methodology. *International Journal of Green Energy*, 20(15), 1861-1872.
- Ozdemir, S.N., Taymaz, I., Okumuş, E. ve Boyacı San, F.G. 2023. PEMEC performance evaluation through experimental analysis of operating conditions by response surface methodology (RSM), *European Mechanical Science*, 7(1), 16–21.
- Ozdemir, S. N. ve Taymaz, I. 2022. Three-dimensional modeling of gas–liquid flow in the anode bipolar plate of a PEM electrolyzer, *Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering*, 44(8), 354.

DİĞER ESERLER:

- Ozdemir, S.N. ve Taymaz, I. 2022. Assessment of the PEMFC performance: a CFD study based on channel width to rib width ratio effect, *International Journal of Environmental Science and Technology*, 19(12), 12329–12344.
- Ozdemir, S.N. ve Taymaz, I. 2021. Numerical investigation of the effect of blocked gas flow field on PEM fuel cell performance, *International Journal of Environmental Science and Technology*, 18(11), 3581–3596.
- Ozdemir, S.N. ve Taymaz, I. 2021. CFD Investigation of Different Flow Field Designs for Efficient PEMFC Performance, *Sakarya University Journal of Science*, 25(3), 690-698.
- Ozdemir, S.N. ve Taymaz, I. 2021. A CFD Modeling Study Based on Relative Humidity Effect on PEMFC Performance, *International Journal of Automotive Science And Technology*, 5(3), 192–198.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2021, 6-7, Aralık). A CFD Modeling of Pin-Type Flow Channel PEMFC Performance. *8th International Congress on Engineering, Architecture, and Design*, İstanbul, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2019, 25-29, Ekim). Numerical Investigation of the Effects of Operating Conditions on Counter-flow PEM Fuel Cell Performance. *3rd International Conference on Innovations in Natural Science and Engineering*, Sakarya, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2018, 22-23, Kasım). Effects of Gas Flow Channels with Rectangular Obstacles on PEM Fuel Cell Performance. *International Eurasian Conference on Science, Engineering and Technology*, Ankara, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2018, 31 Ekim-2 Kasım). Numerical analysis of performance of single-channel PEM fuel cell model with various channel shapes developed by CFD. *International conference on energy research*, Alanya, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2019, 26-28, Nisan). Investigation of the Effects of Operating Conditions on Pem Fuel Cell Performance Using Cfd Modeling. *4th International Conference on Viable Energy Trends*, İstanbul, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2019, 24-25, Ekim). Thickness Effect of Membrane and Catalyst Layer on the Pem Fuel Cell Performance. *4th International Energy Engineering Congress*, Gaziantep, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2021, 26-27, Ekim). A Numerical Simulation of Serpentine Flow Channel PEMFC Performance. *13th. International Congress on Mathematics, Engineering, Natural and Medical Sciences*, Nevşehir, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I. (2018, 30 Kasım-2 Aralık). Effects of gas flow field with wave-like form obstacles on PEM fuel cell performance. *2nd International symposium on innovative approaches in scientific studies*, Samsun, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz I., Kurt E. (2023, 10-12, Mayıs). Numerical Effects of Axial Force on the Structural Behavior of PEMFC by Finite Element Method. *7 th International Hydrogen Technologies Congress*, Elazığ, Türkiye.
- Ozdemir S.N., Taymaz, I., Boyacı San F.G., Okumuş E. (2023, 10-12, Mayıs). Parameter Optimization for PEM Electrolysis Cell Including Bolt Torque Effects. *7 th International Hydrogen Technologies Congress*, Elazığ, Türkiye.