

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

Selahattin ÇELİK¹ (ORCID: 0000-0002-7306-9784)*
Mahmut ALKAN¹ (ORCID: 0000-0003-3846-0689)

¹Makine Mühendisliği Bölümü, Mühendislik Fakültesi, Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi, Niğde, Türkiye

Geliş / Received: 26.03.2018
Kabul / Accepted: 02.05.2018

ÖZ

Katı oksit yakıt pilleri (KOYP) yüksek enerji dönüşüm verimlerine sahip enerji üreteçleridir. Yakıt pillerine gönderilen hidrojen ve hava miktarının artırılması performansı iyileştirmektedir. Bununla birlikte, kullanılmayan yakıt miktarı da arttığından yakıt kullanım verimliliği düşmektedir. Bu çalışmada farklı debi değerlerinde bir katı oksit yakıt pilinin yakıt kullanım verimi araştırılmıştır. Debi değişimi yakıt kullanım verimini önemli derecede etkilediği gibi sabit debilerde çalışma potansiyelinin de yakıt kullanım verimini etkilediği görülmüştür. Literatürde geliştirilen KOYP pillere ait yakıt kullanım verimi değerlerinin, genelde hangi voltaj ve debide elde edildiği yazmamaktadır. Bu durum güce endeksli olmayıp sonuçların yanıltıcı olmasına neden olabilmektedir. Bu çalışmada güce endeksli yakıt pili verimleri karşılaştırmalı olarak gösterilmiştir. Yüksek voltaj aralığında yakıt kullanım veriminin %85'lere kadar çıktığı gözlemlenmiş olup bu verimlilikte 90 mW.cm⁻² güç yoğunluğuna ulaşılmıştır. Yüksek güç yoğunluklarında (225 mW.cm⁻²) ise yakıt kullanım veriminin oldukça düştüğü (%30 verim) tespit edilmiştir.

Anahtar kelimeler: Katı oksit yakıt pili, yakıt kullanım verimi, performans

EXPERIMENTAL INVESTIGATION OF FUEL UTILIZATION IN SOLID OXIDE FUEL CELL

ABSTRACT

Solid oxide fuel cells (SOFCs) are energy generators with high energy conversion efficiencies. Increasing the amount of hydrogen and air sent to the fuel cells improves performance. However, since the amount of unused fuel increases as a result of the increase in the hydrogen supply, the fuel utilization efficiency decreases. In this study, the fuel utilization efficiency of a solid oxide fuel cell at different flow rates is investigated. It is found that the change in flow rate has a significant effect on the fuel utilization efficiency and the fuel utilization is also affected by operating voltage at constant flowrates. The literature on SOFCs do not generally describe the voltage and flowrate values where the resultant fuel utilization is obtained. This situation is based on the power but it can cause the results to be misleading. In this study, the power based fuel cell efficiencies are compared. It is observed that up to 85% of the fuel utilization efficiency can be achieved in the high operating voltage range and 90 mW.cm⁻² peak power density is obtained at this efficiency. At high operating power densities (225 mW.cm⁻²), on the other hand, the fuel utilization efficiency was found to be very low (30%).

Keywords: Solid oxide fuel cells, fuel utilization efficiency, performance

1. GİRİŞ

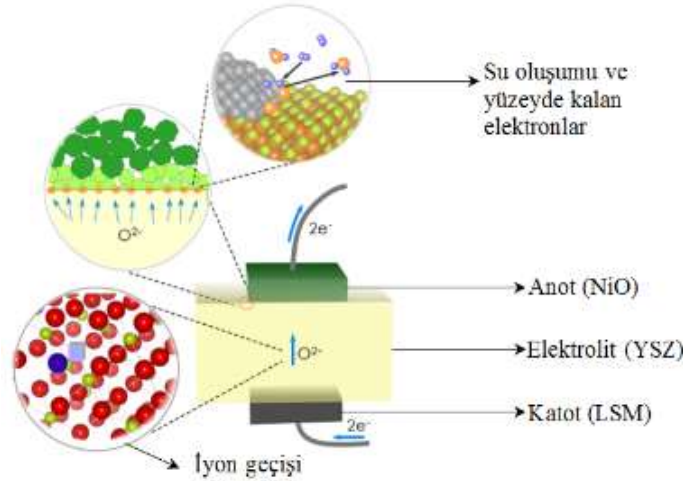
Katı oksit yakıt pilleri (KOYP) elektrokimyasal reaksiyon temelli yüksek elektrik enerjisi dönüşüm verimine sahip popüler bir teknolojidir. Ancak KOYP'nin ticarileşmesinin önünde çözümlenmesi gereken teknolojik

*Corresponding author / Sorumlu yazar. Tel.: +90 388 225 24 50; e-mail / e-posta: scelik@ohu.edu.tr

S. ÇELİK, M. ALKAN

problemler bulunmaktadır. Şekil 1'de KOYP'ye ait temel elemanlar ve çalışma prensibi gösterilmiştir. Bir KOYP hücresi seramik temelli (Yttria-stabilized zirconia (YSZ)) elektrolit ile ayrılmış iki elektrottan oluşmaktadır. Katot bölgesinde havadan veya direk olarak sağlanan oksijen, oksijen iyonuna indirgenmektedir. Seramik tabanlı elektrolit bu iyonların iki elektrot arasında geçişine izin vermektedir. Anot bölgesinde ise hidrojen, katottan gelen oksijen iyonu ile oksitlenmektedir. KOYP elektrotlarına sağlanan hidrojen ve havanın elektrokimyasal reaksiyon ile elektriğe dönüşüm miktarı yakıt kullanım verimi olarak adlandırılır ve araştırmacılar bu elektrotların iyileştirilmesi üzerine yoğun çaba sarf etmektedirler.

KOYP'de verimi etkileyen birçok parametre bulunmaktadır. Membran elektrot grubunun (MEG) imalat prosesi ve kullanılan malzemelerin dışında çalışma sıcaklığı ve basıncı da performansı etkilemektedir. Bu fiziksel değişimler elektrokimyasal aktiviteyi arttırmakta ve sonuç olarak yakıt pilinin verimi artmaktadır. Aynı sıcaklık ve basınç değerlerinde yüksek verim elde edebilmek için yakıt pilini oluşturan elektrot ve elektrolitin geliştirilmesi gerekmektedir. Bu nedenle pil için elektrot/elektrolit geliştiren araştırmacılar performansları aynı şartlarda karşılaştırmaktadırlar. Aynı sıcaklık ve basınç değerlerinde yakıt piline gönderilen hidrojen ve hava miktarı da performansı doğrudan etkilemektedir. Yakıt ve oksidant debilerinin arttırılması ile yakıt pilinin birim alanından elde edilen güç değeri artarken kullanılmadan dışarı atılan yakıt miktarı da artacağı için yakıt kullanım verimi de düşmektedir. Ayrıca yakıt debisinin doğrudan hücreye gönderildiği tasarımlarda yakıt pilinde soğuma etkisi yapacağı için performansı da düşürebilmektedir [1]. Literatürde yapılan çalışmalarda KOYP için hücre geliştiren araştırmacılar genellikle performans değerlerini normal gerekenden daha fazla yakıt göndererek elde etmekte ve bu yakıt fazlalığı stikometri olarak ifade edilmektedir. Bazı çalışmalarda ise geliştirilen hücrelerin yakıt kullanım verimleri yüzde olarak ifade edilmekte fakat hangi güç yoğunluğunda ya da potansiyelde bu değer elde edildiği üzerinde detaylı bilgi verilmeyerek bu alanda yapılan çalışmalarda soru işaretlerine neden olmaktadır.



Şekil 1. Katı oksit yakıt pili (KOYP)'nin temel elemanları ve çalışma prensibi [1]

Literatürde KOYP'de yakıt kullanımının performans etkilerinin incelendiği sınırlı sayıda çalışma bulunmaktadır. Fang ve ark. [2] farklı tasarımlardan oluşan iki KOYP stağını % 90'a varan oranlarda yüksek yakıt kullanımı altında bir fırın ortamında test etmişlerdir. Her iki stakta, yaklaşık % 80'lik bir yakıt kullanımında konsantrasyon polarizasyonunun artışına rağmen, 750 °C'lik bir sıcaklıkta % 85'lik bir yakıt kullanımına kadar sorunsuz bir şekilde çalıştırabilmişlerdir. % 90 yakıt kullanımı ile yapılan çalışma, daha yüksek konsantrasyon polarizasyonuna ve yakıtın hücrelerde dağılım noktasında yetersiz kaldığı deney sonrası fotoğraflarla belirlenmiştir. Basit bir boyutlu sayısal model ile yapılan ön hesaplamaların yerel yakıt kullanımının sıcaklık dağılımı ile kuvvetli bir şekilde etkilendiğini ve 20 °C'lik bir sıcaklık farkı bile yakıt çıkışında yakıt kullanımında %10'luk bir değişime yol açabileceğini rapor etmişlerdir. Bu nedenle, yakıt pili stak tasarımlarının normal çalışması için yakıt kullanım veriminin üst noktasını %85 ile sınırlamışlardır.

Esposito ve ark. [3] KOYP'de bölgesel olarak artan yakıt kullanımı sonucunda anot oksidasyonu için teşhis araçlarının geliştirilmesine odaklanmıştır. Bu kapsamda Sürekli Dalgacık Dönüşümü (Continuous Wavelet Transform-CWT) metodu kullanılarak deneysel sonuçlardan elde edilen veriler üzerinde data analizi yapılmıştır. Geliştirilen algoritma yaklaşımı sayesinde %76'nın üzerinde başarılı bir tespit oranı gösteren KOYP'de yakıt kullanım miktarlarının tanısı için uygun olduğu kanıtlanmıştır. Sonuçlar, CWT metodolojisini hücrelerden stak

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

seviyesine KOYP'lerin yakıt kullanım miktarlarının teşhis araçları olarak kullanılmasının mümkün olacağını göstermiştir.

Lee ve ark. [4] anot destekli KOYP hücresinde yakıt kullanımının ısı ve kütle transferine etkilerini incelemek için 3 boyutlu matematiksel bir model geliştirmiş ve bu model sayısal olarak çözümlenmiştir. Ayrıca deneysel çalışma yaparak bazı sayısal sonuçlar doğrulanmıştır. Sayısal model sonuçlarına göre, yüksek yakıt kullanımında, yakıt girişinin yakınında dar ve düzenli dağılmayan bir reaksiyon bölgesinin oluştuğu ve bu bölgenin hücre boyunca reaksiyona giren maddelerin konsantrasyon gradyanlarını indüklediğini, bunun ardından da oksijenin kısmi basıncını arttırdığını ve dolayısıyla elektrolit boyunca elektrokimyasal potansiyel gradyanını azalttığını tespit etmişlerdir. Bu durumun, hücre üzerindeki mekanik stresleri ve hücredeki elektrot/elektrolit ara yüzeyini etkileyebileceği ve ısı aktarımının (ara bağlantılar yoluyla iletme, gazların taşınması ve elektrokimyasal reaksiyonlardan üretilen ısı) bu durumdan etkileneceğini, bu ara bağlantıların termal iletkenliği ve lokal sıcaklık artışlarını ve maksimum sıcaklığın konumunu belirlemede önemli bir rol oynayacağı bunların tümünün malzemelere uygulanan termal gerilmeleri etkileyebileceği rapor edilmiştir. Hücre üzerine uygulanan kimyasal, mekanik ve termal stresler ve yakıt kullanımı değişiminin etkilerinin malzemenin dayanıklılığını tahmin etmek için ayrıntılı bir araştırmaya ihtiyaç duyduğu sonucu belirtilmiştir.

Hornes ve ark. [5] taşıyıcı bir gazın mikro tüp KOYP hücresinde kullanılması durumu için performans ve verimliliğin etkilerini deneysel olarak incelemiştir. Sonuçlarına göre, yakıt hücresi bozulma oranı üzerinde taşıyıcı gazın güçlü bir şekilde etkisinin olduğu ve düşük yakıt tüketimi (FU) koşullarının düşük toplam akış koşulları altında kullanıldığında daha yüksek bir bozulma oranı gösterdiğini ortaya çıkarmıştır. Bu deneyler, kütle taşınımından doğan kısıtlamaları önlemek için uygun bir yakıt-taşıyıcı gaz oranının karşılanması gerektiğini kanıtlamıştır. Bu durumda, gaz taşıyıcı madde miktarındaki bir artışla elde edilen bu ilişkinin azalması, yüksek yakıt kullanım koşullarında bile (%80) bozulma oranını azaltmaya ve geleneksel olarak gözlemlenen sınırlamaların aşılmasına izin verdiği rapor edilmiştir.

Literatürdeki yakıt kullanım deneyleri genellikle farklı bir çalışmaya ek olarak yapılmış olup amaçları genellikle yüksek yakıt kullanım değerlerini elde edebilmek ve yüksek yakıt kullanım verimlerinin etkilerinin incelenmesine yöneliktir. Literatürde yüksek yakıt kullanım veriminin hangi güç yoğunluğunda elde edildiği rapor edilmemiştir. Bu çalışmada yakıt kullanımının güç yoğunluğuna ve debi değişimine göre değişimlerinin etkileri deneysel olarak araştırılmıştır.

2. MATERYAL VE METOT**2.1. Teorik Alt Yapı**

Yakıt pillerinin enerji dönüşüm verimleri Carnot verimi ile sınırlı olmayıp birleşik ısı ve güç sistemi ile %90'a kadar çıkabilmektedir. Yakıt pilleri için verim ifadesinden bir tanesi teorik verimdir. Teorik verim bir yakıt pilinin erişebileceği maksimum verimin ifadesidir ve aşağıdaki gibi ifade edilir;

$$\varepsilon_{ideal} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = 1 - T \frac{\Delta S}{\Delta H} \quad (1)$$

Burada ΔG , ΔH ve ΔS sırasıyla gibbs serbest enerjisini, entalpiyi ve entropiyi temsil etmektedir. Yakıt pilleri için tüm Gibbs Serbest enerjisinin elektriğe dönüştüğünü kabul edersek mümkün olan maksimum teorik verim (ideal veya tersinir verim) aşağıda gibi hesaplanabilir;

$$\varepsilon_{ideal} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{237,34 \text{ kJ/kg}}{286,02 \text{ kJ/kg}} = 83 \% \quad (2)$$

Genellikle teorik yakıt pili verim hesaplamalarında hidrojenin alt ısıl değeri kullanılmaktadır. Bu sayede verim %83'den daha fazla olmaktadır. Bu sonucun amacı verimi rakamsal olarak büyütme değil, içten yanmalı motorlarla karşılaştırılması için kullanılmaktadır.

$$\varepsilon_{ideal} = \frac{\Delta G}{\Delta H_{altısıl}} = \frac{228,74 \text{ kJ/kg}}{241,98 \text{ kJ/kg}} = 94,5\% \quad (3)$$

Yakıt pillerinde çalışma esnasında hücre potansiyelinde polarizasyonlardan dolayı düşmeler olmaktadır. Bundan dolayı net verim hücre potansiyeli $V_{hücre}$ 'ye bağlıdır. Voltaj verimi aşağıdaki gibi tanımlanabilir;

S. ÇELİK, M. ALKAN

$$\varepsilon_{\text{voltaj}} = \frac{V_{\text{hücre}}}{V_{\text{maks}}} \quad (4)$$

Burada V_{maks} tersinir (Nernst potansiyeli veya ideal, maksimum voltaj) potansiyel, $V_{\text{hücre}}$ gerçek hücre potansiyelidir. Katı oksit yakıt pillerinde ideal voltaj aşağıdaki denklem yardımıyla bulunabilir [6];

$$V_{\text{maks}} = \frac{RT}{2F} \ln(K) + \frac{RT}{2F} \ln\left(\frac{p_{\text{H}_2, \text{anot}} \cdot p_{\text{O}_2, \text{katot}}^{1/2}}{p_{\text{H}_2\text{O}, \text{anot}} \cdot p_{\text{ref}}^{1/2}}\right) \quad (5)$$

Burada R gaz sabiti, T sıcaklık, F faraday sabiti, p kısmi basınç, K ise kimyasal denge sabitini temsil etmektedir ve aşağıdaki gibi ifade edilmektedir;

$$K = f(T) = A \cdot e^{\frac{-E_0}{RT}} \quad (6)$$

K denklemindeki A faktörü ve E_0 termodinamik sabitler olup hidrojen ve hava ile çalışan katı oksit yakıt pili için sırasıyla 0,00144 ve -246 kJ/mol'dur [6].

$$V_{\text{maks}} = \frac{-E_0}{2F} + \frac{RT}{2F} \ln(A) + \frac{RT}{2F} \ln\left(\frac{p_{\text{H}_2, \text{anot}} \cdot p_{\text{O}_2, \text{katot}}^{1/2}}{p_{\text{H}_2\text{O}, \text{anot}} \cdot p_{\text{ref}}^{1/2}}\right) \quad (7)$$

Yakıt pillerinde diğer bir verim ifadesi ise yakıt kullanım verimidir. Yakıt kullanımı (fuel utilization) sisteme sağlanan yakıt ve oksidantın enerjiye dönüşmesi esnasında ne kadarının kullanıldığının bir ifadesidir. Gerçek çalışma şartlarında yakıt piline gönderilen yakıtın tamamı enerjiye dönüştürülemez. Bu durumda sisteme sağlanan yakıt ve oksidantın bir kısmı enerjiye dönüşmeden yakıt pilinden çıkmaktadır. Buna göre yakıt kullanımı, sistemde üretilen elektrik akımına denk gelen yakıt debisinin aynı akımı oluşturmak için gönderilen gerçek yakıt debisine oranı olarak ifade edilmektedir. Teorik olarak oluşması gereken akım için tüketilen veya üretilen türler Faraday kanunu ile belirlenmektedir. Bu sebeple yakıt kullanım verimi faradik verim olarak da ifade edilmektedir. Aşağıda Faraday kanunu ve yakıt kullanım verimi arasındaki bağlantılar gösterilmiştir.

$$\dot{n}_x = \frac{iA}{nF} = \frac{I}{nF} \quad (8)$$

Burada \dot{n}_x üretilen yada tüketilen türlerin miktarıdır (x/s'nin mol cinsinden ifadesi); I, toplam akım; A, yüzeyel elektrot alanı(cm²); i, akım yoğunluğu (A/cm²); n, x reaktantının her bir mol değeri için eşdeğer elektron sayısı; F, Faraday sayısıdır (96485 C/eq).

Yakıt kullanım verimi ise benzer olarak aşağıdaki şekilde ifade edilebilir;

$$\varepsilon_f = \frac{\text{teorik olarak gerekli olan yakıt miktarı}}{\text{gerçekte gönderilen yakıt miktarı}} \quad (9)$$

Yakıt kullanımı doğrudan gerçek verimi etkilediği için oldukça önemlidir. Ayrıca fazladan yakıt göndermenin parazitik kayıpları (hava ve yakıt pompa gücü) artırarak yakıt pili sisteminin veriminin düşmesine neden olmaktadır.

Elektrolitik bir süreç için, bazı yan reaksiyonlar ve verimsizlik oluşabilir ve tam dönüşümün daha az olmasına neden olabilir. Buna göre akım verimi aşağıdaki gibi tanımlanabilir;

$$\varepsilon_{\text{kullanım}} = \frac{\text{türlerden üretilen gerçek akım}}{\text{teorik olarak üretilmesi gereken akım}} \quad (10)$$

Tablo 1'de yakıtın hepsinin kullanılması durumunda Faradik olarak hesaplanan yakıt ihtiyaçları hesaplanmıştır. Deneysel çalışma kapsamında yapılan yakıt kullanım verimleri denklem 10'da verilen ifadeye göre elde edilmiştir.

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ**Tablo 1.** Reaktant tüketimleri ve Su üretimi (bir amper ve bir hücre için) [7]

Birim	Hidrojen Tüketimi	Oksijen Tüketimi	Su Üretimi
mol/s	5.18x10 ⁻⁶	2.59x10 ⁻⁶	5.18x10 ⁻⁶
g/s	10.4x10 ⁻⁶	82.9x10 ⁻⁶	93.3x10 ⁻⁶
cm ³ /s	0.1225	0.06125	93.3x10 ⁻⁶
litre/dk	0.00735	0.003675	N/A

Yakıt pilleri için üç farklı verim ifade edilmektedir. Bu verim ifadeleri toplamda yakıt pilinin çalışma durumunu etkilemektedirler. Bu sebeple yakıt pilinin gerçek verimi üç verim ifadesi olan teorik verim, voltaj verimi ve yakıt kullanım veriminin çarpımına eşittir [8].

$$\varepsilon_{gerçek} = \varepsilon_{ideal} \cdot \varepsilon_{voltaj} \cdot \varepsilon_{kullanım} \quad (11)$$

Yakıt pilleri için faradik verimin tersi olan stikometrik oran tanımlanmıştır. Stikometrik oran genellikle elektrokimyasal reaksiyon sırasında fazla oksitleyici gönderilmesini engellemek için kullanılan bir ifade türüdür:

$$\lambda_k = \frac{1}{\varepsilon_k} = \frac{\text{katoda sağlanan gerçek oksitleyici}}{\text{katoda sağlanması gereken teorik oksitleyici}} \quad (12)$$

$$\lambda_a = \frac{1}{\varepsilon_a} = \frac{\text{anoda sağlanan gerçek yakıt}}{\text{anoda sağlanması gereken teorik yakıt}} \quad (13)$$

Yakıt pilleri için anot ve katot stikometrisi genellikle 1'den fazla olmaktadır [9]. Yani %100 yakıt kullanım değerinin üzerinde fazla yakıt ve oksidant sağlanmaktadır. Literatürde hidrojenin stikometrik oranı 1.2 ile 2 arasında iken havanın stikometrisi 1.5 ile 4 arasında değişmektedir. Bunun yanı sıra literatürde yakıt kullanım verimleri ile ilgili birçok yanıltıcı veriler bulunmaktadır. Yakıt kullanım verimleri gönderilen debi miktarı ve yakıt pili çalışma voltajına göre farklılıklar göstermektedir.

2.2. Deneysel Çalışma

2.2.1. Membran Elektrot Grubu (MEG) İmalatı

Deneysel çalışmada kullanılmak üzere elektrolit destekli ve aktif alanı 81 cm² olan katı oksit yakıt pili membran elektrot grubu (MEG) imal edilmiştir. Ticari olarak satılmakta olan YSZ tozları şerit döküm metodu kullanılarak elektrolit yaprakları haline dönüştürülmektedir. Şekil 2'de laboratuvarında kullanılmakta olan şerit döküm cihazının fotoğrafı gösterilmiştir. Bu döküm için öncelikle 20 g YSZ tozu ((Y₂O₃)_{0.08} (ZrO₂)_{0.92}) (Nextech Materials, Ohio, USA) kullanılmıştır. Bu tozlar karıştırma topları (zirkonyum topları) ile değirmende 24 saat süreyle 1 g dispersent (balık yağı, Sigma Aldrich, Münih, Almanya) ve 20 g solvent (etanol, Sigma Aldrich) ile karıştırılmıştır. İkinci aşamada 5 g plastikleştirici (polietilen glikol, Sigma Aldrich) ve 5 g bağlayıcı (butvar, Sigma Aldrich) eklenerek 24 saat daha karıştırılmıştır. 48 saat sonunda elde edilen çamur laboratuvar ortamında 190 µm döküm kalınlığına sahip bıçak yardımı ile şerit döküm tezgahında mylar (şeffaf ince ve pürüzsüz plastik) üzerine dökülmüştür. Döküm malzemesi atmosferik havada 30 dakika kuruduktan sonra 35 µm kalınlığına düşmüştür.

Elektrolit, altı adet dökülmüş YSZ yaprağının üst üste konulup hidrolik baskı presi ile birbirlerine yapıştırılmasıyla oluşturulmuştur (Şekil 3). Baskı cihazından çıkarılan döküm numunesi lazer kesici ile son hali verildikten sonra izostatik pres ile daha homojen bir şekilde 50 °C'de 100 MPa basınçta 15 dakika boyunca preslenmiştir (Şekil 4). Presten çıkan numuneler 1100 °C'de 2 saat ve 1450 °C'de 5 saat boyunca iki aşamada sinterlenmiştir. Sinterleme sonucunda elektrolit kalınlığı 200 µm'ye düşmüştür.

S. ÇELİK, M. ALKAN



Şekil 2. Şerit döküm cihazı



Şekil 3. MEG yapraklarının laminasyonunda kullanılan hidrolik baskı cihazı



Şekil 4. Son baskı için kullanılan ısıtmalı izostatik baskı cihazı

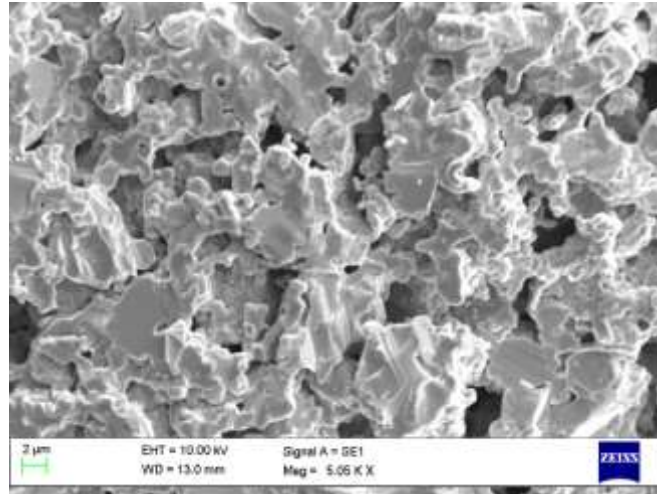
Elektrolit sinterleme sonunda, elektrolitin her iki yüzüne anot ve katot tabakaları sürülerek tekrar sinterlenmektedir. Anot tarafında Nikel Oksit-F (Novamet, New Jersey, USA)/ YSZ (wt.:%60/40) oranda fonksiyonel tabaka ve Nikel Oksit-A akım toplama tabakaları ipek baskı metodu ile uygulanarak 1300 °C'de 3 saat sinterlenmiştir. Benzer olarak katot tarafına LSM ((La_{0.80}Sr_{0.20})_{0,95}MnO_{3-x}, Nextech Materials)/YSZ (wt.:%: 50/50) fonksiyonel tabaka ve akım toplama tabakası uygulanmış ve 1100 °C'de 3 saat sinterlenmiştir. Sinterlenen seramik tabakalar, ortada iyon geçirgen elektrolit (membran) ve her iki tarafında bulunan elektrotlardan dolayı Membran Elektrot Grubu (MEG) olarak adlandırılmıştır. Şekil 5'de sinterleme sonunda

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

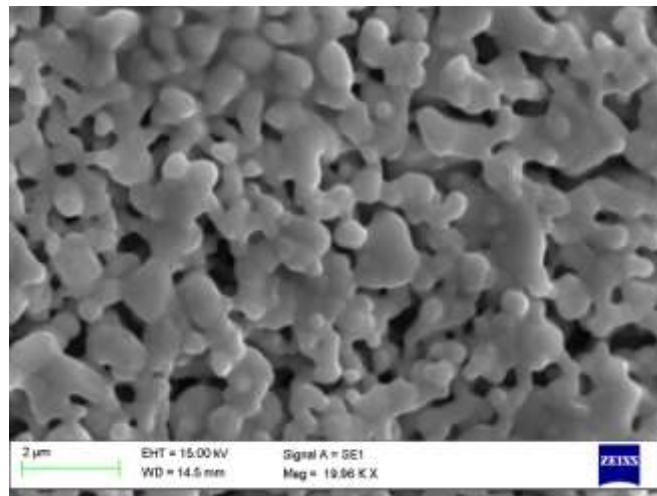
elde edilen 81 cm² aktif alana sahip membran elektrot grubu gösterilmiştir. Şekil 6, 7 ve 8'de sırası ile anot elektrotu, katot elektrodu ve elektrolite ait taramalı elektron mikroskobu (SEM) fotoğrafları gösterilmiştir. Fotoğraflardan da anlaşılacağı üzere elektrotlar gözenekli bir yapıya, elektrolit ise yoğun bir yapıya sahip olup istenen görünümüdür. Tablo 2'de üretilen membran elektrot grubunun özellikleri listelenmiştir.



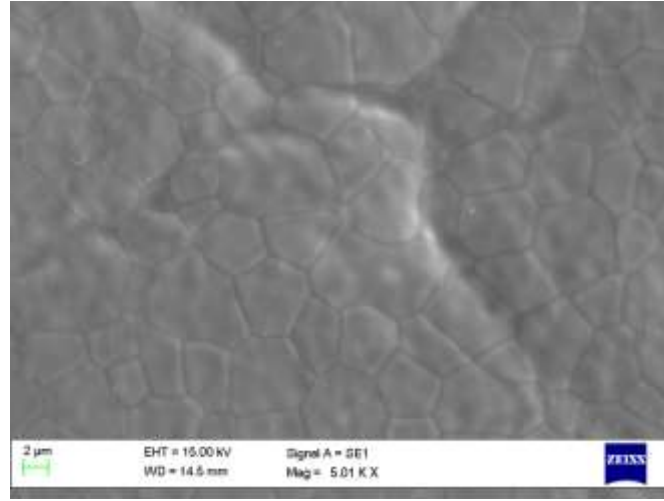
Şekil 5. Katı oksit yakıt pili membran elektrot grubu (aktif alan 81 cm²)



Şekil 6. KOYP anot elektrotunun SEM görüntüsü



Şekil 7. KOYP katot elektrotunun SEM görüntüsü



Şekil 8. KOYP elektrolitinin SEM görüntüsü

Tablo 2. Membran Elektrot Grubuna ait teknik özellikler

Tabaka	Parametre	Çalışma aralığı	Optimum değer
Elektrolit	Sinterleme sıcaklığı (°C)	1350-1425	1400
	Sinterleme süresi (saat)	3-7	5
	Kalınlık (µm)	160-280	200
Anot	Sinterleme sıcaklığı (°C)	1200-1300	1250
	Sinterleme süresi (saat)	2-3,5	2,5
	Anot İT kalınlığı (µm)	10-30	20
	AAT kalınlığı (µm)	10-30	20
	AİT gözenek yapıcı oranı (kütlece %)	0-15	0
	AAT gözenek yapıcı oranı (kütlece %)	10-20	15
	AİT toz içeriği (%NiO-%YSZ)	50-70;50-30	50-50
Katot	Sinterleme sıcaklığı (°C)	950-1100	1050
	Sinterleme süresi (saat)	2-3,5	2,5
	KİT kalınlığı (µm)	10-30	10
	KAT kalınlığı (µm)	10-30	20
	KİT gözenek yapıcı oranı (kütlece %)	5-15	5
	KAT gözenek yapıcı oranı (kütlece %)	10-20	20
	KİT toz içeriği (%NiO-%YSZ)	50-50;70-30	50-50

2.2.1. Performans Ölçüm Deneyleri

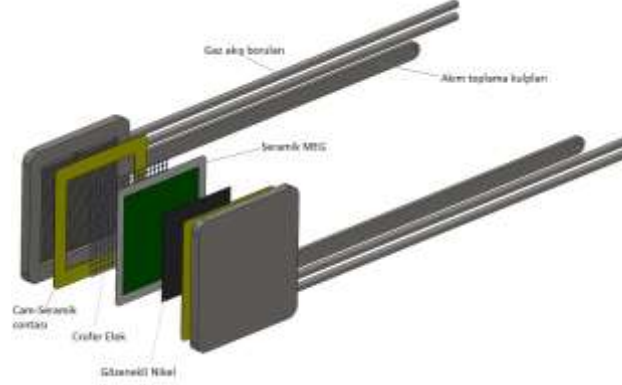
Deneyel çalışma kapsamında 81 cm² aktif alanlı elektrolit destekli katı oksit yakıt pili membran elektrot grubu (MEG) kullanılmıştır. MEG yukarıda imalat detayları açıklandığı gibi elektrolit olarak YSZ, anot elektrotu NiO, katot elektrotu LSM'den oluşmaktadır. Deneyel çalışmada paralel akış alanı kullanılmıştır. Membran elektrot grubu iki adet interkonnektör arasında cam-seramik sızdırmazlık elemanı kullanılarak test edilmiştir. İnterkonnetör malzemesi olarak Crofer 22 APU (ThyssenKrupp, Almanya), cam seramik malzemesi olarak Schott G018-354 (SCHOTT, Almanya) kullanılmıştır. Deney 800 °C'de hidrojen ve hava gönderilerek yapılmıştır. Sonuçların doğruluğundan emin olunabilmesi için iyi bir sızdırmazlık sağlanmış olması gerekmektedir. Sızdırmazlığın iyi olduğu tespit edildikten sonra deneyel çalışma yapılmıştır. Sızdırmazlık testi debi ölçüm metodu kullanılarak yapılmıştır [10].

Deneylerin başarılı bir şekilde gerçekleştirilebilmesi için (kullanılan) Crofer malzemesinden imal edilen ön ısıtma özelliğine sahip akış plakası tasarımı Şekil 9'da gösterilmiştir. Ön ısıtma detayları da Şekil 10'da verilmiştir. Tasarımın en önemli özelliği ısıtma ünitesinin ara yüzeyde olmasıdır. Bu sayede hücre gönderilen hidrojen ve hava, MEG ile temas etmeden ön ısıtmaya tabi tutularak MEG'de olabilecek termal şokların önüne geçilmiş olacaktır. Kompakt yapısı ile deneyel çalışmalarda kullanım kolaylığı sağlaması da önemli bir özelliğidir. Akış plakasının üzerinde kaynaksız tek parça olacak şekilde akım toplama kulpu tasarlanmış olup, bu

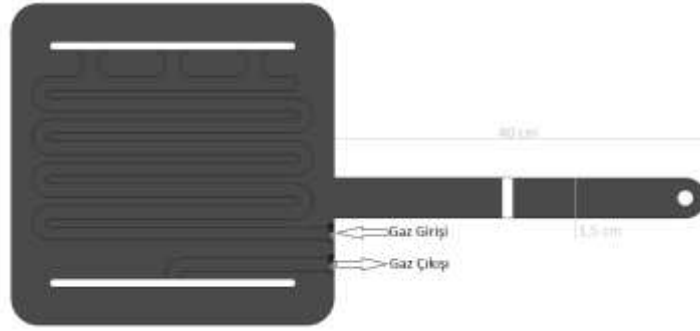
KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

kulp yardımı ile elektrotta oluşan elektronlar en az kayıp ile fırın dışındaki test istasyonuna aktarılabilir. Tasarımın teknik çizimi Şekil 11’de verilmiştir.

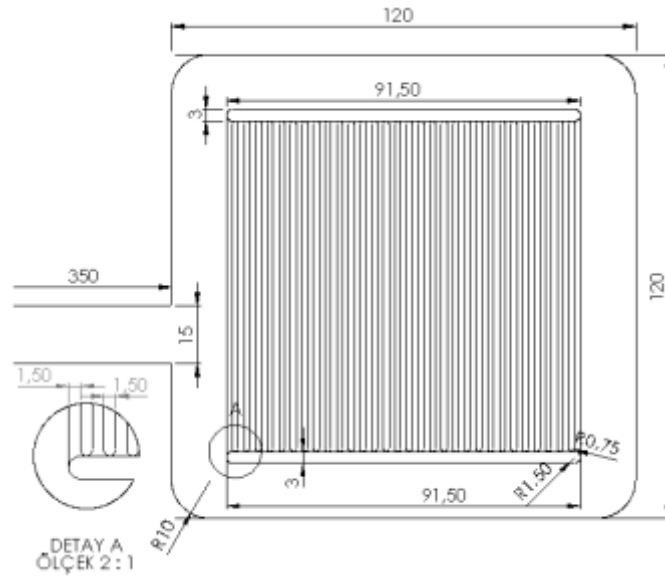
Deneysel çalışmalar Niğde Ömer Halisdemir Üniversitesi Prof. Dr. T. Nejat Veziroğlu Temiz Enerji Uygulama ve Araştırma Merkezinde yapılmıştır. Deneysel çalışmada Arbin FC800 (Arbin, Almanya) model yakıt pili test istasyonu kullanılmıştır. Deneysel düzeneğe ait laboratuvar görüntüsü Şekil 12’de verilmiştir.



Şekil 9. KOYP testi için tasarlanmış ön ısıtmalı test aparatı katı model görünümü



Şekil 10. KOYP testi için geliştirilmiş ön ısıtmalı test aparatının ara ısıtma bölgesi



Şekil 11. KOYP testi için geliştirilmiş test aparatının teknik çizimi

S. ÇELİK, M. ALKAN



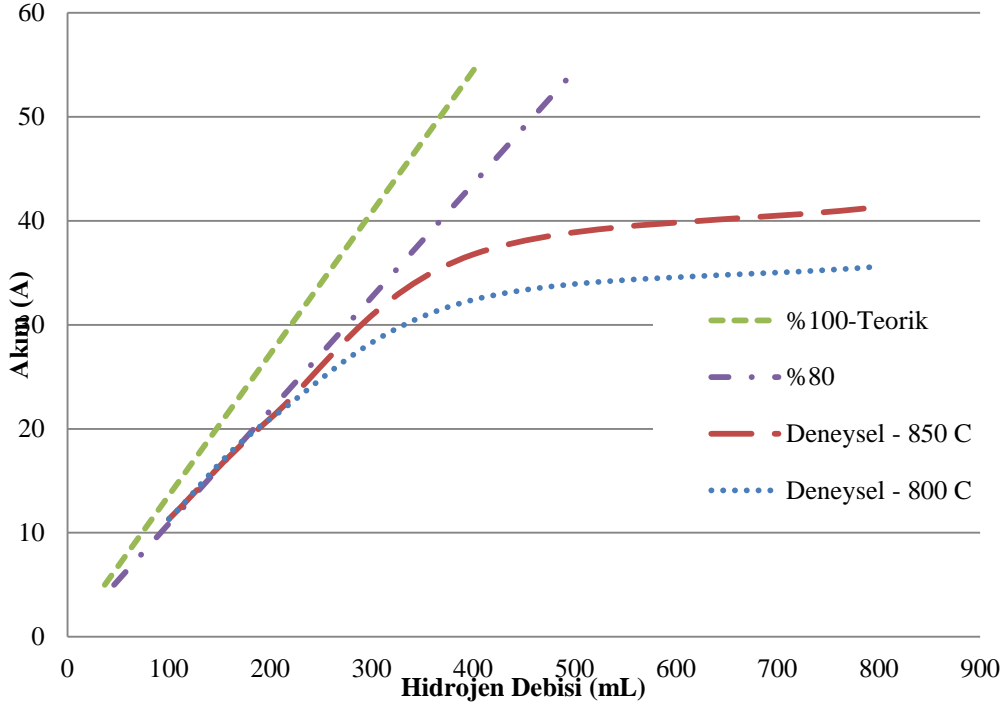
Şekil 12. Deneysel düzeneğin fotoğrafı

3. BULGULAR

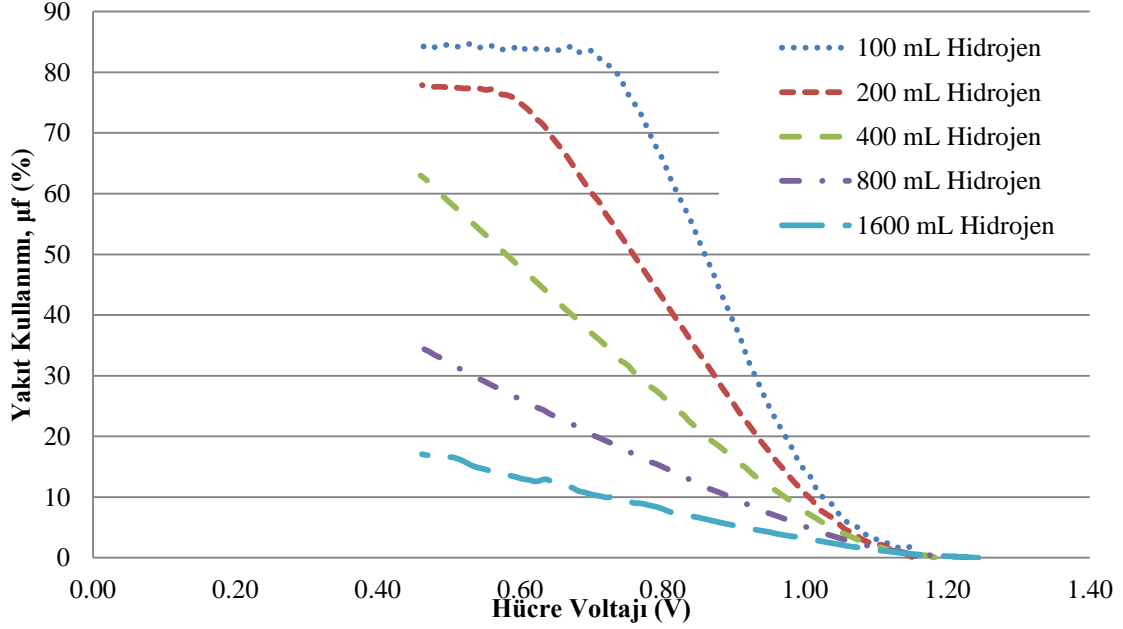
Deneysel çalışma sonucunda yakıtın debisine göre sabit 0,5 voltta alınan akım değerleri Şekil 13'de gösterilmiştir. Görüldüğü üzere deneysel grafiklerin yanı sıra teorik olarak hesaplanan %100 ve %80 kullanım eğrileri de karşılaştırma yapabilmek için grafik üzerine eklenmiştir. Deneysel çalışmada iki farklı sıcaklıkta yakıt kullanım değerinin daha da iyileştiği görülmektedir. Sıcaklık artışı ile beraber akım değerinin arttığı ve teorik değere biraz daha yaklaştığı gözlemlenmiştir. Ayrıca 400 mL/dk yakıt debisinden sonra akım değerinde herhangi bir artışın olmadığı gözlemlenmiştir. Yakıt pilinin, bu debi değerinin üstündeki değerlerde çalıştırılması durumunda yakıt kullanım verimi düşecek ve dolayısı ile yakıt pilinin toplam verimi de düşecektir.

Şekil 14'de farklı voltaj değerlerindeki yakıt kullanım veriminin değişimi hidrojen debisine göre karşılaştırılmıştır. Beklendiği gibi düşük debi değerlerinde ve yüksek voltaj değerinde yakıt kullanım veriminin arttığı gözlemlenmiştir. KOYP'nin verimli çalışması için potansiyelinin 0,6 – 0,8 Volt aralığında olması gerektiği belirlenmiştir. Yakıt pilinin 0,5 Voltta çalışması durumunda yakıt kullanım veriminin maksimum %60 olabileceği görülmüştür. Fakat 0,8 Voltta çalıştırılması durumunda ise yakıt kullanım veriminin %80'lere çıktığı tespit edilmiştir. Verimin artmasına karşın akım yoğunluğu düşmekte olup, çekilen toplam güç azalmaktadır. Dolayısı ile yakıt pilinin W/kg ve W/m³ cinsinden enerji yoğunluğu azalmaktadır. Bu güç düşüşünün karşılaştırması ise Şekil 15'de gösterilmiştir. Buna göre yakıt pilinden 225 mW.cm⁻² maksimum güç elde edilirken yakıt kullanım verimi %10 seviyelerine kadar gerilemektedir. Fakat güç yoğunluğu 100-150 mW.cm⁻² aralığında olduğunda yakıt kullanım verimi %80'lere çıkabilmektedir.

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

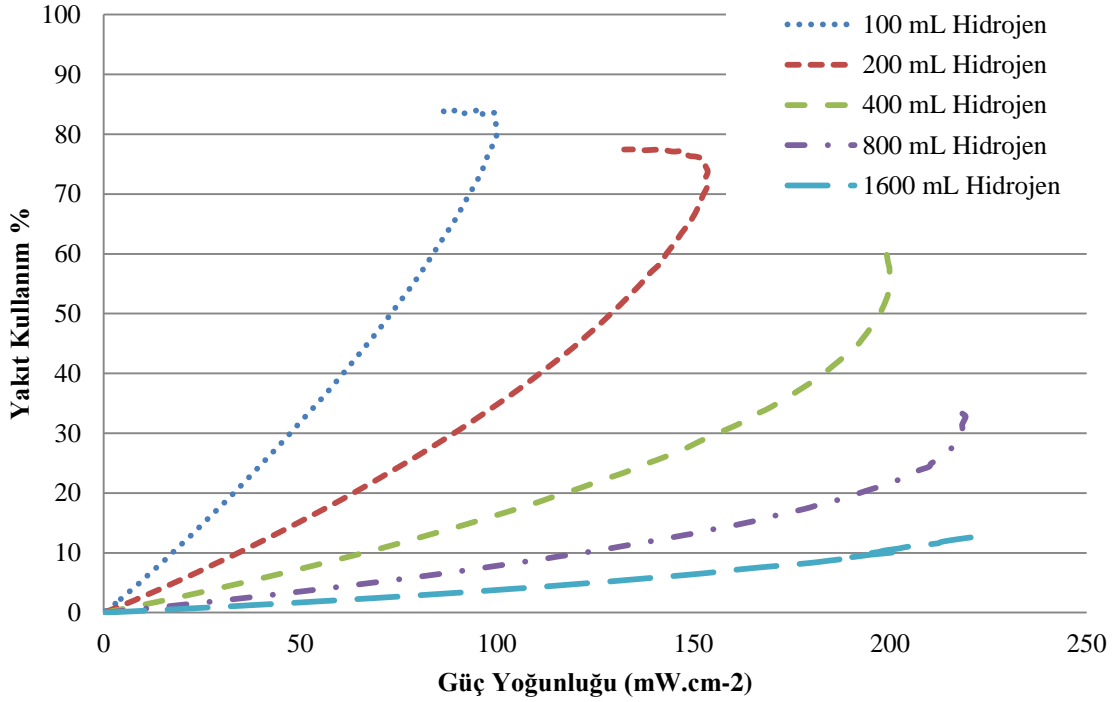


Şekil 13. Sabit 0.5 Volttaki akım değerinin debiye göre değişimi



Şekil 14. Farklı debide gönderilen hidrojenin yakıt kullanım verimi ve voltaj değerine göre karşılaştırılması (debiler birim dakika cinsinden)

S. ÇELİK, M. ALKAN



Şekil 15. Farklı debide gönderilen hidrojenin yakıt kullanım verimi ve güç yoğunluğu değerine göre karşılaştırılması (debiler birim dakika cinsinden)

4. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

DeneySEL çalışmada, Prof. Dr. T. Nejat Veziroğlu Temiz Enerji Uygulama ve Araştırma Merkezinde geliştirilen 81 cm² aktif alana sahip ticari boyuttaki bir KOYP hücresinin performans değerleri incelenmiştir. DeneySEL çalışma 800 °C'de farklı hidrojen gazı debilerinde gerçekleştirilmiştir. DeneySEL çalışma sonunda KOYP hücresinden 800 mL/dk hidrojen debisinde maksimum 225 mW.cm⁻² güç yoğunluğu elde edilebildiği belirlenmiştir. Debinin artırılması ile bu güç yoğunluğunda bir artışın olmadığı görülmüştür. Bu noktada yakıt pilinin yakıt kullanım veriminin %30 olduğu belirlenmiştir. Aynı debide (800 mL/dk) düşük güç yoğunluklarında ise verimin daha da düşük çıktığı belirlenmiştir. Güç yoğunluğu ile beraber gönderilen yakıt miktarı azaltıldığı zaman yakıt kullanım veriminin %85'lere kadar çıktığı gözlemlenmiştir.

Bu çalışma ile yakıt pili sisteminin otonom olarak çalıştırılması durumunda hidrojen debisinin maksimum güç modu ve verimlilik moduna göre ayarlanması için sayısal grafikler elde edilmiştir. Böylece otonom sistem hangi güç gereksinimi için ne kadar yakıt göndereceğini ve hangi verimlilikte çalışabileceğini belirleyebilecektir. Sonuç olarak KOYP hücresi maksimum güçte %30 verimde ve 225 mW.cm⁻² güç yoğunluğunda çalışabilmektedir. Bu noktadan sonra debi artışı performansı arttırmamakta olup fazla giden yakıttan dolayı verimi %10'a kadar düşürmektedir. KOYP hücresinden maksimum verim olarak %85 değeri elde edilmiş olup bu verimlilikte 90 mW.cm⁻² güç yoğunluğuna sahiptir. Verimlilik değerleri literatürdeki iyi sonuçlar ile benzer değerlere sahip olup üretilen pilin yeterliliğini göstermektedir. Ayrıca üretilen hücrenin ticari boyutlarda olması, YSZ elektrolit kullanılmış olması ve 800 °C'de test edilmiş olması en büyük katkıları olduğu değerlendirilmiştir.

TEŞEKKÜR

Bu çalışmanın gerçekleştirilmesinde alt yapı ve desteklerinden dolayı Vestel Savunma Sanayi A.Ş.'ye teşekkür ederiz.

KATI OKSİT YAKIT PİLİNDE YAKIT KULLANIM VERİMİNİN DENEYSEL OLARAK İNCELENMESİ

KAYNAKLAR

- [1] ÇELİK, S. “Katı Oksit Yakıt Pillerinde Elektrot/Elektrolit Arayüzey Dinamiğinin İncelenmesi” Doktora Tezi, Gazi Üniversitesi, Makine Mühendisliği Bölümü, 2013.
- [2] FANG Q., BLUM L., PETERS R., PEKSEN M., BATFALSKY P., STOLTEN D., “SOFC Stack Performance Under High Fuel Utilization”, International Journal of Hydrogen Energy, 40, 1128-1136, 2015.
- [3] ESPOSITO A., RUSSO L., KANDLER C., PIANESE C., LUDWIG B., STEINER N. Y., “High Fuel Utilization in Solid Oxide Fuel Cells: Experimental Characterization and Data Analysis with Continuous Wavelet Transform”, Journal of Power Sources, 317, 159-168, 2016.
- [4] LEE S., KİM H., YOON K. J., SON J. W., LEE J. H., CHOI W., HONG J., KİM B.K, “The Effect of Fuel Utilization on Heat and Mass Transfer within Solid Oxide Fuel Cells Examined by Three-Dimensional Numerical Simulations”, International Journal of Heat and Mass Transfer, 97, 77-93, 2016.
- [5] HORNES A., TORRELL M., MORATA A., KENDALL M., KENDALL K., TARANCON A., “Towards a High Fuel Utilization and Low Degradation of Micro-Tubular Solid Oxide Fuel Cells”, International Journal of Hydrogen Energy, 47, 13889-13901, 2017.
- [6] MILEWSKI J., ŚWIRSKI K., SANTARELLI M., LEONE P., Advanced Methods of Solid Oxide Fuel Cell Modeling, Springer-Verlag London, 2011.
- [7] BARBİR F., PEM Fuel Cell Theory and Practice (1st ed.), Elsevier, 2005.
- [8] THORSTENSEN B., “A Parametric Study of Fuel Cell System Efficiency Under Full and Part Load Operation”, Journal of Power Sources, 92, 9-16, 2001.
- [9] MENCH M. M., Fuel Cell Engines, Wiley, 2008.
- [10] ERTUGRUL T.Y., CELİK S., MAT M.D., “Effect of Binder Burnout on the Sealing Performance of Glass Ceramics for Solid Oxide Fuel Cells”, Journal of Power Sources, 242, 775-783, 2013.