

DMFC 两相流及其对传质影响的研究

郭 航 贾杰林 汪茂海 刘 璿 马重芳

(北京工业大学环境与能源工程学院传热强化与过程节能教育部重点实验室, 北京 100022)

摘 要 采用自制的实验系统对液态进料直接甲醇燃料电池 (DMFC) 阳极交叉指状流道内的两相流动特性进行了可视化实验研究。自制的 DMFC 单电池带有透明窗口, 采用镀金的不锈钢阴极极板和透明的聚碳酸酯阳极流场板, 电解质为 Nafion117 膜。实验过程中燃料电池的进口总管和出口总管是水平的, 进口流道和出口流道是竖直的。实验发现, 出口流道中典型的两相流型是泡状流, 而出口总管中的典型流型是弹状流。进口流道中的气弹和气柱导致了阳极传质恶化。

关键词 直接甲醇燃料电池; 传质; 两相流; 可视化

中图分类号: TM911.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-231X(2007)01-0101-03

TWO-PHASE FLOW AND ITS INFLUENCE ON MASS TRANSFER IN DMFC

GUO Hang JIA Jie-Lin WANG Mao-Hai LIU Xuan MA Chong-Fang

(Key Laboratory of Enhanced Heat Transfer and Energy Conservation, Ministry of Education of China, College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100022, China)

Abstract Visualization study of two-phase flow in anode interdigital flow bed of a liquid-fed direct methanol fuel cell (DMFC) was performed in a home-made experimental system. A self-made DMFC consisted of a Nafion 117 membrane electrode assembly, a gold-plated stainless steel cathode polar plate and a polycarbonate anode flow field plate, which forms a transparent window for observation. The inlet and outlet manifold were horizontal in all experiments. Meanwhile, the inlet and outlet flow channels were vertical. The experimental results indicated that the typical flow pattern in outlet channels was bubbly flow and in outlet manifold was slug flow. Gas slugs and gas columns in the inlet channels lead to block of mass transfer in the anode.

Key words direct methanol fuel cells; mass transfer; two-phase flow; visualization

1 前 言

液态进料直接甲醇燃料电池 (DMFC) 因其采用甲醇直接参与电池反应, 不需要重整及净化, 使系统简单, 尺寸和重量减小, 燃料易于储存和分装, 补充便捷等特点有望在便携式设备电源、短时航空航天电源等领域得到广泛应用。

在液态进料 DMFC 中, 阳极的反应物是液态的甲醇和水, 反应产物则为气态的二氧化碳, 因此阳极通道内存在两相流动。CO₂ 气泡的生成及变化规律不但影响着阳极通道中的两相流动, 而且直接影响阳极传质特性, 进而影响燃料电池的性能^[1]。

Scott 等对 DMFC 阳极平行流道流床、点状流床以及金属网流床中的两相流动做了相当多的研究

工作^[2~4]。Lu 也利用可视化技术研究了 DMFC 阳极平行流道中的气液两相流动^[5]。Nordlund 等对阳极不锈钢镀金网流床中的 CO₂ 气泡进行了可视化研究^[6]。Yang 等分别研究了蛇形流道两相水平流动和竖直向上流动时的流型变化^[7], 还实验研究了单电池直立和水平放置时电池性能的差别^[8]。

在公开发表的文献当中, 尚未见对 DMFC 交叉指状流道流场中的两相流动研究的公开报道。本文即对此开展实验研究工作。

2 实验系统

自行设计的实验系统如图 1 所示。

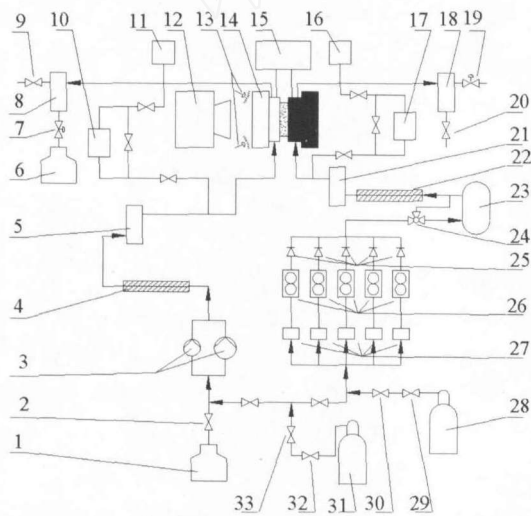
自制的液态进料 DMFC 单电池采用镀金不锈钢

收稿日期: 2006-01-23; 修订日期: 2006-10-30

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (No.50406010; No.50236010)

作者简介: 郭 航 (1970-), 男, 北京人, 副教授, 博士, 主要从事燃料电池热物理、制冷空调方面的研究。

阴极极板, 透明聚碳酸脂阳极流场板。阴极和阳极极板上均加工有如图 2 所示的交叉指状流道, 每条流道宽 2 mm, 深 2 mm, 相邻两条流道之间的脊的宽度为 2 mm。在整个流场中, 进口流道(与进口总管相连的流道)与出口流道(与出口总管相连的流道)之间并不直接连通。这样的结构使得流体在流入进口流道后被强制通过与极板相接触的多孔介质电极中的催化层, 然后进入出口流道。实验过程中进口流道和出口流道是竖直的, 进口总管和出口总管是水平的。为方便 CO_2 气体排出, 出口总管在上, 进口总管在下(图 2)。



1. 甲醇溶液供液罐 2. 30. 33. 截止阀 3. 蠕动泵
4. 22. 加热带 5. 阳极入口缓冲器 6. 甲醇溶液回收罐
7. 19. 背压调节阀 8. 18. 气液分离器 9. 排气阀
10. 17. 差压变送器 11. 16. 压力变送器 12. 拍摄系统
13. 冷光源 14. 直接甲醇燃料电池 15. 电子负载
20. 排水阀 21. 阴极入口缓冲器 23. 气体加湿器
24. 三通换向阀 25. 单向阀 26. 质量流量控制器
27. 过滤器 28. 氧气瓶 29. 32. 减压阀 31. 氮气瓶
图 1 直接甲醇燃料电池阳极两相流实验系统示意图

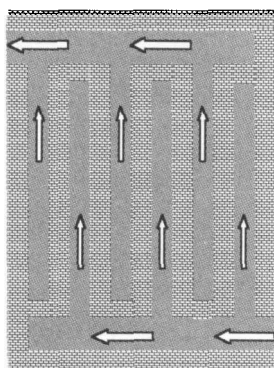


图 2 交叉指状流道示意图

实验电池选用 Nafion 117 膜作固体电解质, 阳极催化剂为载量为 4 mg/cm^2 的 PtRu, 阴极催化剂为载量为 4 mg/cm^2 的 Pt, 膜电极组件的有效面积为 50 cm^2 。实验中采用纯度为分析纯的甲醇 (CH_3OH 含量不低于 99.5%) 与去离子水配制成浓度为 1.0 kmol/m^3 的甲醇水溶液作为阳极燃料。阴极的氧化剂采用高纯氧气 (O_2 含量不低于 99.995%)。

3 结果与讨论

3.1 阳极两相流可视化

通过可视化实验发现, 交叉指状流道内的 CO_2 气泡和气液两相流流动随着电流密度的变化呈现出不同的特点。在低电流密度时, 在流道内出现小的气泡并附着在流道壁上。因为在低电流密度时电化学反应生成的气体量非常少且部分被溶解在甲醇溶液中, 所以流道内的气泡较少。附着在流道壁上的气泡会缓慢生长变大而后脱离流道壁进入溶液中。在出口流道内离散小气泡会快速向上移动进入出口总管, 而在进口流道中气泡会积聚在流道上部形成气弹进而形成气柱(图 3), 气柱以很慢的速度向下延伸。这是由于交错流场本身的结构所造成的。因为交错流场中进口流道与出口总管并不直接相通, 这就使得反应生成的 CO_2 气体无法顺利进入出口总管被排出电池。随着电流密度的增大, 电池反应生成气体量增多, 气泡尺寸也逐渐变大, 尤其在出口流道上部可见大量的小气泡, 这些小气泡在出口流道与出口总管连接处不断结合形成连续的大气泡, 然后进入出口总管排出电池。在进口流道内, 占据流道的气柱向下延伸的速度加快, 有的会占据整条流道, 被气体占据的流道内壁会出现一层小液滴(图 4)。当电流密度继续增大, CO_2 气体在气液两相流

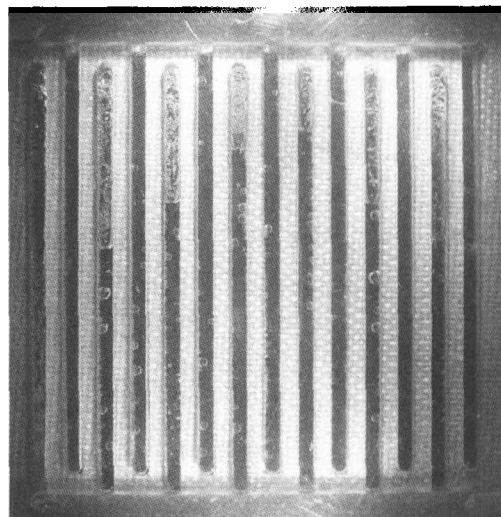
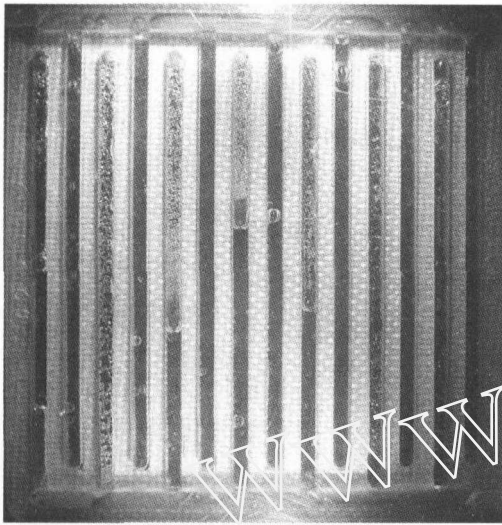


图 3 阳极流道内的两相流动 (10 mA/cm^2)

图 4 阳极流道内的两相流动 (100 mA/cm²)

中的体积比也越来越大。出口流道内气泡尺寸明显变大,同时气体在出口流道与出口总管连接处结合形成大气泡的频率加快,但在出口流道中很少看到阻塞流道的大气泡,大部分气泡仍然较小。虽然在出口流道中典型的两相流流型是细泡流,在高电流密度下只是气泡变大,并没有出现气弹,但出口总管中的典型流型是弹状流(图 4)。

3.2 阳极两相流对燃料电池内部传质的影响

图 5 为可视化实验时不同电流密度下 DMFC 的电性能。从图中可以看到,电流密度大于 120 mA/cm² 时,电池性能出现大幅度的下降。这是传质受阻的结果。随着电流密度的升高,DMFC 电化学反应产生的 CO₂ 也随之增加,通过多孔介质电极进入阳极流道内的气体量增多。由于交叉指状流道的封闭结构,造成大量的 CO₂ 气体占据进口流道,增加了甲醇溶液向催化层的传质阻力,导致传质不足产生,致使燃料电池的部分催化面积不能得到有效利用,从而加剧浓差极化,导致当电流密度高于 120 mA/cm² 时,DMFC 的性能出现大幅度下降。本文的实验结果表明,交叉指状流道的结构使得在高电流密度下进口流道中的 CO₂ 气弹和气柱不能及时排出,导致了液态进料 DMFC 阳极燃料传质的恶化,这与气态进料 DMFC 或氢质子交换膜燃料电池中的情况是截然不同的。

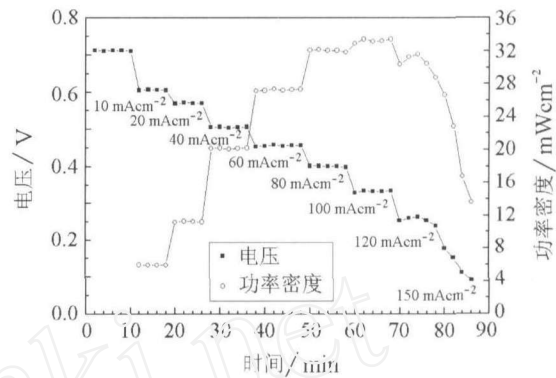


图 5 交叉指状流道透明电池的性能

4 结 论

本文对液态进料 DMFC 的阳极交叉指状流道内的气液两相流进行了可视化实验研究,实验发现,出口流道中典型的两相流流型是泡状流,而出口总管中的典型流型是弹状流。进口流道中的气弹和气柱导致了液态进料 DMFC 的阳极传质恶化。

参 考 文 献

- [1] 郭航, 马重芳, 汪茂海, 等. 热物理参数对燃料电池内传质过程的影响. 工程热物理学报, 2004, 25(1): 148-150
- [2] Scott K, Argyropoulos P, Yiannopoulos P, et al. Electrochemical and Gas Evolution Characteristics of Direct Methanol Fuel Cells with Stainless Steel Mesh Flow Beds. Journal of Applied Electrochemistry, 2001, 31(8): 823-832
- [3] Argyropoulos P, Scott K, Taama W M. Carbon Dioxide Evolution Patterns in Direct Methanol Fuel Cells. Electrochimica Acta, 1999, 44(20): 3575-3584
- [4] Argyropoulos P, Scott K, Taama W M. Gas Evolution and Power Performance in Direct Methanol Fuel Cells. Journal of Applied Electrochemistry, 1999, 29(6): 661-669
- [5] Lu G Q, Wang C Y. Electrochemical and Flow Characterization of a Direct Methanol Fuel Cell. Journal of Power Sources, 2004, 134(1): 33-40
- [6] Nordlund J, Picard C, Birgersson E, et al. The Design and Usage of a Visual Direct Methanol Fuel Cell. Journal of Applied Electrochemistry, 2004, 34(8): 763-770
- [7] Yang H, Zhao T S, Cheng P. Gas Liquid Two-Phase Flow Patterns in a Miniature Square Channel with a Gas Permeable Sidewall. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2004, 47(26): 5725-5739
- [8] Yang H, Zhao T S, Ye Q. In Situ Visualization Study of CO₂ Gas Bubble Behavior in DMFC Anode Flow Fields. Journal of Power Sources, 2005, 139(1-2): 79-90