NGHIÊN CỨU ẢNH HƯỞNG CỦA LƯỢNG PLATIN TRÊN LỚP XÚC TÁC TỚI HIỆU QUẢ LÀM VIỆC CỦA PIN NHIÊN LIỆU SỬ DỤNG MÀNG ĐIỆN PHÂN PHA TẠP AXÍT PHOTPHORIC HOẠT ĐỘNG Ở NHIỆT ĐỘ CAO

STUDY ON THE IMPACT OF PLATINUM LOADING ON THE CATALYST LAYER ON THE PERFORMANCE OF FUEL CELLS USING PHOSPHORIC ACID-DOPED ELECTROLYTE MEMBRANE OPERATING AT HIGH TEMPERATURES

Đỗ Văn Trấn^{1,*}, Nguyễn Tường Vi², Nguyễn Tiến Hán³

DOI: http://doi.org/10.57001/huih5804.2025.072

TÓM TẮT

Pin nhiên liệu sử dụng màng điện phân pha tạp axít photphoric có thể hoạt động ở nhiệt độ cao hơn, giúp cải thiện việc vận chuyển nước ra khỏi kênh dẫn khí. Điều này nâng cao hiệu suất của pin nhiên liệu, đặc biệt khi hoạt động ở mật độ dòng cao, nơi lượng nước tạo ra nhiều có thể gây ngập lụt màng điện phân và giảm hiệu suất. Bài báo này trình bày kết quả mô phỏng số đánh giá ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới hiệu quả vận hành của pin nhiên liệu sử dụng màng điện phân pha tạp axít photphoric. Kết quả cho thấy lượng Platin trên lớp xúc tác ảnh hưởng lớn đến hiệu suất của pin. Khi lượng Platin tăng, mật độ dòng và mật độ công suất của pin đều tăng. Mật độ công suất lớn nhất tăng từ 0,234W/cm² lên 0,478W/cm² khi lượng Platin tăng từ 0,056mg/cm² lên 1,950mg/cm². Tuy nhiên, mật độ công suất tăng chậm lại khi tiếp tục tăng lượng Platin trên lớp xúc tác. Ngoài ra, kết quả cũng chỉ ra ảnh hưởng của lượng Platin thấp, sự suy giảm nồng độ các chất phản ứng dọc theo kênh dẫn là nhỏ nhất, và sự suy giảm này tăng lên khi lượng Platin tăng. Sự phân bố mật độ dòng trên lớp xúc tác là không đồng đều, và mật độ dòng điện trên lớp xúc tác đạt giá trị lớn nhất là 0,7179A/cm² khi lượng Platin là 1,950mg/cm² và mật độ dòng điện nhỏ nhất là 0,1609A/cm² khi lượng Platin là 0,056mg/cm².

Từ khóa: HT-PEMFC, mô hình pin nhiên liệu, màng điện phân axít photphoric.

ABSTRACT

Fuel cells using phosphoric acid-doped electrolyte membranes can operate at higher temperatures, improving water transport from the gas channels. This enhances fuel cell performance, especially at high current densities where excess water production can flood the membrane, reducing efficiency. This paper presents numerical simulation results evaluating the impact of Platinum loading on the catalyst layer on the performance of fuel cells with phosphoric acid-doped electrolyte membranes. The results show that Platinum loading on the catalyst layer significantly affects fuel cell performance. As Platinum loading increases, both current density and power density increase. The maximum power density rises from 0.234W/cm² to 0.478W/cm² as Platinum loading increases from 0.056mg/cm² to 1.950mg/cm². However, the power density increase slows as Platinum loading, the decrease in reactant concentration along the gas channel is minimal, and this decrease increases with higher Platinum loading. The distribution of current density on the catalyst layer is uneven, and the current density layer reaches a maximum value of 0.7179A/cm² when the amount of platinum is 1.950mg/cm² and a minimum current density of 0.1609A/cm² when the amount of platinum is 0.056mg/cm².

Keywords: HT-PEMFC, model fuel cell, phosphoric acid electrolytic membrane.

¹Khoa Cơ khí, Trường Đại học Giao thông vận tải
²Khoa Cơ khí, Trường Đại học Kinh tế Kỹ thuật Công nghiệp
³Trung tâm Công nghệ Ô tô và Đào tạo lái xe, Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội
*Email: dotran@utc.edu.vn
Ngày nhận bài: 04/01/2025
Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 18/02/2025
Ngày chấp nhận đăng: 28/3/2025

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Ngày nay sự phát triển mạnh mẽ của phương tiện giao thông đặc biệt là phương tiện giao thông cá nhân đã tạo ra mối đe dọa lớn đến môi trường cũng như vấn đề an ninh năng lượng. Các phương tiện giao thông truyền thống sử dụng nguồn nhiên liệu hóa thạch phát thải ra môi trường nhiều khí độc hại gây ảnh hưởng trực tiếp đến sức khỏe con người. Do đó, với yêu cầu ngày càng khắt khe về phát thải đặc biệt là ở các thành phố lớn, việc sử dụng nguồn năng lượng xanh thay thế cho phương tiện giao thông truyền thống là cần thiết. Trong đó sử dụng pin nhiên liệu màng trao đổi làm nguồn động lực cho phương tiện giao thông đang là hướng đi có nhiều tiềm năng do mật độ công suất cao, hiệu quả năng lượng cao và thân thiện với môi trường [1, 2]. Nhiệt độ hoạt động của pin nhiên liệu màng trao đổi proton nhiệt độ thấp (LT-PEMFC) dưới 100°C. Nên màng trao đổi của LT-PEMFC phải duy trì mức độ hydrat hóa đủ để đảm bảo độ dẫn proton cao. Tuy nhiên, ngập nước có thể xảy ra bên trong pin nhiên liệu dẫn tới làm giảm hiệu suất của chúng. Do đó, các chiến lược quản lý nước và nhiệt của LT-PEMFC đã được nghiên cứu rộng rãi [3, 4]. Để đơn giản hóa việc quản lý nước và nhiệt, pin nhiên liệu màng trao đổi proton nhiệt độ cao (HT-PEMFC) có nhiệt độ hoạt động trên 100°C đã được đề xuất nghiên cứu. Ưu điểm của HT-PEMFC so với LT-PEMFC bao gồm khả năng chịu CO cao, động học phản ứng nhanh và quản lý nước dễ dàng [5]. Tuy nhiên, việc thương mại hóa HT-PEMFC vẫn bị cản trở bởi một số thách thức như chi phí của HT-PEMFC hơn 47% so với loại LT-PEMFC [6]. Vì chất xúc tác Platin được sử dụng trong lớp xúc tác chiếm một phần lớn trong tổng chi phí, nên chi phí pin nhiên liệu có thể được giảm bằng cách giảm lượng xúc tác hoặc giảm độ dày của lớp xúc tác mà không làm giảm hiệu suất của tế bào.

Trong thời gian gần đây có nhiều công trình nghiên cứu đề cập đến nâng cao hiệu suất vận hành và tuổi thọ của HT-PEMFC. Geng Cheng và cộng sự chỉ ra rằng khi hàm lượng pha tạp của SNW-1 đạt 30%, cho thấy độ dẫn proton cao hơn nhiều với sự hấp thu PA thấp hơn so với PBI nguyên sơ. Màng PBI/x%-SNW-1 cũng thể hiện độ ổn định dẫn proton tốt hơn và có nhiều tiềm năng phát triển màng trao đổi proton hiệu suất cao cho HT-PEMFC [7]. Lingchao Xia và cộng sự chỉ ra độ dày lớp xúc tác (CL) thích hợp cho cực dương và cực âm lần lượt là 10 - 17µm và 15 - 30µm. Chi phí của HT-PEMFC có thể giảm nhờ giảm chi phí của CL và duy trì hiệu suất pin nhiên liệu cao bằng cách kiểm soát chính xác độ dày của CL [8]. Taiming Huang và cộng sự chỉ ra độ dày lớp xúc tác phù hợp và nhỏ nhất cho HT-PEMFC là 0,03072mm. Độ dày của lớp xúc tác tại anode và cathode lần lượt là 0,0231mm và 0,0315mm. Hiệu suất của mô hình đã được tối ưu có thể cải thiện được khoảng 6,8% [9]. Lirong Fu và cộng sự chỉ ra được khả năng truyền khối lượng của các dạng kênh dẫn khí hình sin là vượt trội và nâng cao được hiệu suất so với loại kênh dẫn thẳng thông thường [10]. Funda Arslan và công sư chỉ ra rằng chất kết dính điên cực ionomeric PWN cải thiện đáng kể về hiệu suất, nhưng cần phải điều chỉnh chính xác mức độ phốt pho hóa để có được kết quả tối ưu [11]. Cristina Raga và cộng sự đã điều tra số toàn diện về cơ chế suy thoái của HT-PEMFC với trọng tâm là sự suy thoái lớp chất xúc tác [12]. Thomas Jarry và cộng chỉ ra các gợn sóng dòng điện tần số cao dường như không đẩy nhanh quá trình suy thoái của các tế bào đơn HT-PEMFC [13].

Nhiều nghiên cứu đã xem xét ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới hiệu suất của HT-PEMFC nhằm giảm chi phí sản xuất. Bevilacqua và cộng sự báo cáo hiệu suất tốt hơn với chất xúc tác Pt₃Co/C do kích thước lỗ trung bình lớn hơn [14]. Eirini và cộng sự nhận thấy hiệu suất thấp hơn với độ dày H₃PO₄/H₂O cao hơn do tốc độ khuếch tán thấp [15]. Martin và cộng sự đạt mật độ công suất cực đại 321mWcm-2 với tải Platin rất thấp ~0,1mg_{Pt}.cm⁻² và 346mWcm⁻² [16] khi giảm tải Platin anode xuống 0,5mg_{Pt}.cm⁻² [17]. Qiuwan Shen và cộng sự nhận thấy tăng lượng Platin gần màng cải thiện hiệu suất, nhưng tăng theo hướng dòng chảy tạo mật độ dòng đồng đều hơn nhưng hiệu suất thấp. Nghiên cứu phân bố hai chiều của tải platin cải thiện nhẹ hiệu suất và phân bố dòng đồng đều hơn [18]. Theo hiểu biết của nhóm nghiên cứu, chưa có nghiên cứu nào xem xét ảnh hưởng của lượng Platin khác nhau tới hiệu quả làm việc của HT-PEMFC. Vì vậy, trong nghiên cứu này, nhóm tác giả cứu tiến hành đánh giá ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới hiệu quả làm việc của HT-PEMFC. Kết quả nghiên cứu đánh giá được mật độ dòng, sự phân bố mật độ dòng, mật độ công suất của pin và sự thay đổi nồng độ các chất phản ứng trong pin khi hoạt động với nhiều lượng Platin khác nhau.

2. XÂY DỰNG MÔ HÌNH TÍNH TOÁN PIN NHIÊN LIỆU SỬ DỤNG CHẤT ĐIỆN PHÂN AXÍT PHOTPHORIC

2.1. Cơ sở lý thuyết về mô hình tính toán

2.1.1. Các phương trình chủ đạo

Mô hình tính toán được dựa trên các phương trình bảo toàn khối lượng, động lượng, năng lượng, điện tích và các loài trong pin [19, 20]. Phương trình bảo toàn khối lượng:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = \frac{\mathbf{Q}}{\rho} \tag{1}$$

Phương trình bảo toàn động lượng:

$$\rho \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = \nabla \left\{ -\rho \mathbf{I} + \mu [\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^{\mathsf{T}}] \right\}$$

$$\mu = \sum \mathbf{x}_{i} \cdot \mu_{i}$$
(2)

Trong đó, **u** là vận tốc hỗn hợp khí (m/s); ρ là mật độ hỗn hợp khí; Q là thuật ngữ nguồn [kg/(m³.s)]; p là áp suất (N/m²); μ là độ nhớt động lực của hỗn hợp [kg/(m.s)].

Trong lớp khí khuếch tán xốp, độ xụt áp tỷ lệ với tốc độ dòng khí trong trường hợp dòng chảy tầng, và được mô hình hóa theo phương trình (3).

$$\left(\frac{\mu}{\kappa}\right)\mathbf{u} = \nabla\left\{-\mathbf{p}\mathbf{I} + \frac{1}{\epsilon}\mu[\nabla\mathbf{u} + (\nabla\mathbf{u})^{\mathsf{T}}]\right\}$$
(3)

Trong đó, κ là độ thấm của lớp khí khuếch tán (m²); ϵ là độ xốp lớp khí khuếch tán.

Phương trình bảo toàn các loài: vận chuyển khối lượng đa loài trong toàn bộ miền tính toán bao gồm các kênh khí và lớp khí khuếch tán được mô tả bằng phương trình Maxwell-Stefan. Phương trình này giải quyết thông lượng của mỗi loài theo tỷ lệ khối lượng. Dạng chung của phương trình Maxwell-Stefan được thể hiện phương trình (4).

$$\nabla \cdot \left\{ -\rho w_{i} \sum_{j=1}^{N} D_{ij} \left[\frac{M}{M_{j}} \left(\nabla w_{j} + w_{j} \frac{\nabla M}{M} \right) + (x_{j} - w_{j}) \frac{\nabla p}{p} \right] + w_{i} \rho \mathbf{u} \right\} = R_{i} \qquad (4)$$

Trong đó: D_{ij} là hệ số khuếch tán nhị phân; x là phần mol các loài; w là phần theo khối lượng các loài; M là khối lượng phân tử; R = 8,314J/(mol.K) hằng số chất khí; T là nhiệt độ vận hành (K); ρ là mật độ hỗn hợp được tính toán theo phương trình (5).

$$\rho = \left(\sum_{i} x_{i} \cdot M_{i}\right) \frac{p}{R.T}$$
(5)

Các chỉ số dưới i và j đại diện cho các loài khác nhau. R_i là tốc độ phản ứng, tính đến mức tiêu thụ các chất phản ứng và tạo ra sản phẩm trong các phản ứng điện hóa trong lớp xúc tác, và R_i được tính theo phương trình (6).

$$R_{H_2} = -\frac{j_a}{2F}M_{H_2}; R_{O_2} = -\frac{|j_c|}{4F}M_{O_2}; R_{H_2O} = -\frac{|j_c|}{2F}M_{H_2O}$$
(6)

Tại bản cực âm, chỉ có oxy và nước được xét đến vì loài thứ ba có thể được tính toán thông qua phương trình cân bằng khối lượng, được thể hiện trong phương trình (7).

$$w_{N2} = 1 - w_{O2} - w_{H2O} \tag{7}$$

Tại cực dương, hydro được tính toán và phần khối lượng của nước được tính toán theo phương trình (8).

$$w_{H2O} = 1 - w_{H2}$$
 (8)

Hệ số khuếch tán nhị phân D_{ij} trong phương trình Maxwell-Stefan được tính toán theo phương trình (9) [21].

$$D_{ij} = D_{ij_0} \left(\frac{T}{T_o} \right)^{1,5}$$
(9)

Trong đó T₀ là nhiệt độ tham chiếu và D_{ij_0} là độ khuếch tán nhị phân tham chiếu các loài. Trong môi trường xốp, khả năng khuếch tán nhị phân được sửa đổi để giải thích ảnh hưởng của độ xốp của lớp khí khuếch tán [22].

$$\mathsf{D}_{ij_eff} = \mathsf{D}_{ij} \left(\epsilon \right)^{1.5} \tag{10}$$

Phương trình bảo toàn điện tích: trong pin nhiên liệu màng trao đổi, dòng điện gồm 2 thành phần là dòng điện ion và dòng điện tử. Các proton di chuyển qua màng dẫn ion để tạo thành dòng điện ion, trong khi các electron chỉ truyền qua các điện cực, dẫn đến dòng điện tử. Các phương trình dòng điện liên tục thu được bằng cách sử dụng định luật Ohm được thể hiện trong phương trình (11).

$$\nabla \cdot (-\sigma_{s} \nabla \cdot \phi_{s}) = S_{s}$$

$$\nabla \cdot (-\sigma_{m} \nabla \cdot \phi_{m}) = S_{m}$$
(11)

Trong đó, φ là điện thế pha, σ là độ dẫn điện hiệu dụng (S.m⁻¹), S là số hạng dòng (A.m⁻³) và chỉ số dưới s biểu thị tính chất của pha rắn, m biểu thị tính chất của pha màng. Các số hạng trong phương trình vận chuyển electron và proton là kết quả của phản ứng điện hóa, chỉ xảy ra trong các lớp xúc tác của các mặt cực dương và cực âm, và được tính như sau:

Trong đó, j_a và j_c là mật độ dòng truyền tương ứng với phản ứng điện hóa tại các lớp xúc tác cực dương và cực âm.

Các số hạng nguồn trong cả phương trình loài và điện tích có liên quan đến mật độ dòng truyền j_a và j_c, được tính bằng cách sử dụng phương trình Butler-Volmer đơn giản hóa được thể hiện trong phương trình (13).

$$\begin{split} \boldsymbol{j}_{a} &= \boldsymbol{i}_{0,a}^{ref} {\left(\frac{\boldsymbol{C}_{H_{2}}}{\boldsymbol{C}_{H_{2},ref}} \right)}^{0,5} {\left[e^{\frac{\boldsymbol{\alpha}_{a}\boldsymbol{F}\boldsymbol{\eta}_{a}}{\boldsymbol{R}\boldsymbol{T}}} - e^{\frac{-\boldsymbol{\alpha}_{c}\boldsymbol{F}\boldsymbol{\eta}_{a}}{\boldsymbol{R}\boldsymbol{T}}} \right]} \\ \boldsymbol{j}_{c} &= \boldsymbol{i}_{0,c}^{ref} {\left(\frac{\boldsymbol{C}_{O_{2}}}{\boldsymbol{C}_{O_{2},ref}} \right)} {\left[- e^{\frac{\boldsymbol{\alpha}_{a}\boldsymbol{F}\boldsymbol{\eta}_{c}}{\boldsymbol{R}\boldsymbol{T}}} + e^{\frac{-\boldsymbol{\alpha}_{c}\boldsymbol{F}\boldsymbol{\eta}_{c}}{\boldsymbol{R}\boldsymbol{T}}} \right]} \end{split}$$
(13)

Trong đó, η đại diện cho hiệu điện thế giữa pha rắn và pha điện phân và được tính toán theo phương trình (14).

$$\eta_a = \phi_s - \phi_e \tag{14}$$

$$\eta_c = \varphi_s - \varphi_{e^-} U_{oc}$$

2.1.2. Điều kiện biên tính toán

Để đảm bảo lượng khí cung cấp đầy đủ không bị thiếu hụt khi pin hoạt động thì cần phải xác định tỷ lệ cấp khí H₂ và O₂ vào đầu vào kênh dẫn khí. Tỷ lệ cấp H₂ và O₂ vào kênh dẫn khí được tính toán theo tỷ lệ phản ứng giữa H₂ và O₂. Lượng khí cấp vào kênh dẫn phụ thuộc vào kích thước kênh dẫn khí, nhiệt độ và áp suất khí. Trong nghiên cứu này, lượng khí cấp vào kênh dẫn được đặt theo vận tốc trung bình dòng khí đầu vào và được xác định theo công thức (15).

$$U_{in_cathode} = \lambda_{c} \frac{I}{4F} x_{O_{2}} \frac{RT}{P.A_{channel}.n_{channel}}$$

$$U_{in_anode} = \lambda_{a} \frac{I}{2F} x_{H_{2}} \frac{RT}{P.A_{channel}.n_{channel}}$$
(15)

trong đó, U_{in_cathode} và U_{in_anode} lần lượt là vận tốc đầu vào trung bình tại cực cathode và anode; A_{channel} là diện tích mặt cắt ngang kênh và n_{channel} là số kênh dẫn khí; I là cường độ dòng điện; x_{H2} và x₀₂ là phần trăm khối lượng của H₂ và O₂; P là áp suất khí đầu vào; R là hằng số chất khí; T là nhiệt độ vận hành; F là hằng số Faraday; λ_a và λ_c lần lượt là tỷ lệ cấp khí tại đầu vào anode và cathode.

Tại đầu vào kênh dẫn khí H₂ và O₂ giả thiết là vận tốc dòng khí đã phát triển đầy đủ, điều kiện biên tại các tường và bề mặt không thấm nước là không trượt. Áp suất tại đầu ra kênh dẫn khí được đặt bằng áp suất khí quyển. Một số tham số chính về điều kiện biên tính toán đã được liệt kê trong bảng 1.

Bảng 1. Điều kiện biên tính toán

Tham số	Giá trị
Điện thế tại anode, [V]	0
Điện thế tại cathode, [V]	V _{cell}
Tỷ lệ dòng khí cấp vào anode, λ_{a}	1,2
Tỷ lệ dòng khí cấp vào cathode, λ_c	2,0
Áp suất đầu ra, [atm]	1
Phần trăm khối lượng hydro cấp vào anode, x _{H2}	0,963
Phần trăm khối lượng oxy cấp vào cathode, $x_{ m 02}$	0,202
Nhiệt độ vận hành, [ºC]	180
Vận tốc dòng khí đầu vào anode, U _{in_anode} [m/s]	0,10352
Vận tốc dòng khí đầu vào cathode, U _{in_cathode} [m/s]	0,41078

2.2. Thiết lập mô hình tính toán

Cấu tạo của một pin nhiên liệu đơn được thể hiện trong hình 1, gồm các bộ phận chính: kênh dẫn khí, lớp khí khuếch tán, lớp xúc tác, màng điện phân trên hai bản cực anode và cathode. Các thông số cơ bản về kích thước và đặc tính của pin được cho bảng 2. Mô hình tính toán được giải bằng phương pháp phần tử hữu hạn và được kiểm chứng độ tin cậy thông qua các nghiên cứu thực nghiệm trước đó.

Bảng 2. Tham số cơ bản của pin [8, 18]

Tham số	Giá trị
Mức pha tạp axít photphoric	6,2
Độ xốp lớp khí khuếch tán	0,4
Tính thấm của lớp khí khuếch tán, [m²]	1,18×10 ⁻¹¹
Tính thấm của lớp xúc tác, [m²]	2,36×10 ⁻¹¹
Độ dẫn điện cực, [S/m]	222
Độ dẫn điện chất điện phân ở 180°C, [S/m]	9,825
Chiều dài kênh dẫn khí, [mm]	20
Chiều rộng kênh dẫn khí, [mm]	0,7874
Chiều cao kênh dẫn khí, [mm]	1
Chiều cao của màng trao đổi, [mm]	1
Độ dày màng trao đổi, [mm]	0.1
Mật độ dòng trao đổi tại anode, [A/m²]	100
Mật độ dòng trao đổi tại cathode, [A/m²]	0,001



Hình 1. Cấu tạo pin nhiên liệu dùng chất điện phân axit photphoric

Hình 2 thể hiện kết quả tính toán đường cong phân cực của pin dựa trên mô hình và kết quả thực nghiệm. Kết quả mô phỏng được tính toán dựa trên các điều kiện biên đầu vào tương tự các điều kiện thử nghiệm thực tế như đã được đề cập trong tài liệu [19]. Cả kết quả mô phỏng và thực nghiệm trên hình 2 đều được xác định tại cùng một điều kiện vận hành: nhiệt độ 180°C, lượng Platin trên lớp xúc tác là 0,557mg/cm², áp suất đầu ra là 1atm và lượng khí cấp vào kênh dẫn khí là như nhau. Kết quả cho thấy sự khác biệt giữa kết quả thực nghiệm và mô phỏng là khá nhỏ, chứng tỏ mô hình đủ tin cậy để mô phỏng và đánh giá hoạt động của pin.



Hình 2. Đường cong phân cực của pin mô phỏng và thực nghiệm

2.3. Chế độ tính toán

Trong nghiên cứu này xem xét ảnh hưởng của lượng chất xúc tác Platin đến hiệu quả làm việc của pin nhiên liệu hoạt động nhiệt độ cao (HT-PEMFC). Lượng chất xúc tác Platin trên lớp xúc tác được xem xét với 8 giá trị khác nhau lần lượt là: 0,056; 0,278; 0,557; 0,836; 1,114; 1,393; 1,671; 1,950 [mg/cm²]. Mật độ dòng, công suất và sự thay đổi nồng độ các chất điện phân trong kênh dẫn khí được khảo sát và đánh giá tại mỗi giá trị lượng Platin trên lớp xúc tác.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới đường cong phân cực



Hình 3. Ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới đường cong phân cực

Hình 3 thể hiện kết quả tính toán đường cong phân cực của pin khi thay đổi lượng Platin trên lớp xúc tác từ 0,056 đến 1,950mg/cm². Khi tăng lượng Platin, hiệu suất hoạt động của pin cải thiện và mật độ dòng tăng lên. Tuy nhiên, mức tăng mật độ dòng có xu hướng chậm lại khi lượng Platin đạt đến một giá trị giới hạn. Mức tăng của mật độ dòng đạt giá trị lớn nhất khi lượng Platin tăng từ 0,056 lên 0,279mg/cm², và mức tăng mật độ dòng nhỏ nhất khi lượng Platin tăng từ 1,671 lên 1,950mg/cm². Mật độ dòng có xu hướng tăng chậm khi tăng lượng Platin do sự suy giảm nồng độ chất điện phân trong kênh dẫn khí và trên lớp chất xúc tác. Khi tăng lượng Platin có thể tăng được mật độ dòng có thể được lý giải là do các phản ứng oxy hóa khử trên các bản cực diễn ra mạnh hơn, tạo ra nhiều electron và proton hơn. Do đó, để nâng cao hiệu quả vận hành của pin nhiên liệu sử dụng màng điện phân axít photphoric, cần gia tăng lượng Platin trên lớp xúc tác. Tuy nhiên, khi tải lượng Platin đạt đến một giá trị tới hạn, mật độ dòng tăng chậm lại, điều này có thể làm tăng chi phí sản xuất pin mà hiệu quả tăng không đáng kể.

3.2. Ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới mật độ công suất của pin



Hình 4. Ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới mật độ công suất của pin

Hình 4 trình bày kết quả tính toán mật độ công suất của pin nhiên liệu khi thay đổi tải lượng Platin trên lớp xúc tác. Kết quả cho thấy, mật độ công suất của pin tăng khi lượng Platin trên lớp xúc tác tăng. Mật độ công suất cực đại tương ứng với 8 giá trị lượng Platin tăng từ 0,056mg/cm² lên 1,950mg/cm² lần lượt là: 0,234; 0,353; 0,401; 0,427; 0,444; 0,456; 0,468; 0,477W/cm². Mật độ công suất cực đại tăng 51% khi lượng Platin tăng từ 0,056mg/cm² lên 1,950mg/cm². Tại lượng Platin 0,056mg/cm², pin hoạt động kém hiệu quả nhất, dẫn đến mật độ công suất thấp nhất so với các trường hợp lượng Platin lớn hơn. Mât đô công suất đat giá tri cao nhất khi lượng Platin là 1,950mg/cm². Tuy nhiên, sự gia tăng mật độ dòng không tuyến tính khi gia tăng lượng Platin với giá trị như nhau, và nó có xu hướng tăng chậm dần khi lượng Platin tăng dần đến giá trị giới hạn. Tại chế độ lượng Platin lớn nhất 1,950mg/cm², mật độ công suất đạt giá trị lớn nhất khi mật độ dòng là 1,06A/cm² và có xu

KHOA HỌC CÔNG NGHỆ

hướng giảm dần khi mật độ dòng tiếp tục tăng. Điều này cũng tương tự khi xét với lượng Platin khác nhỏ hơn. Điều này cho thấy pin có một điểm vận hành tối ưu tại đó mật độ công suất cao nhất. Do đó, để nâng cao công suất của pin, cần lựa chọn điều kiện vận hành phù hợp.

3.3. Ảnh hưởng của lượng Platin trên lớp xúc tác tới phần trăm khối lượng H₂ trên màng trao đổi



Hình 5. Phần trăm khối lượng H_2 trên màng trao đổi khi pin hoạt động tại điện thế 0,6V

Hình 5 trình bày kết quả tính toán phần trăm khối lượng H₂ trên màng trao đổi tại 8 mức tải lượng Platin khác nhau và điện áp hoạt động của pin là 0,6V. Kết quả cho thấy nồng độ H₂ trong kênh dẫn giảm dần khi tăng lượng Platin trong lớp xúc tác. Mức độ suy giảm nồng độ H₂ trong kênh dẫn chậm lại khi tiếp tục tăng lượng Platin. Điều này cũng giải thích được nguyên nhân mật độ công suất và mật độ dòng tăng nhẹ khi tiếp tục gia tăng lượng Platin trên lớp xúc tác. Khi so sánh mức suy giảm nồng độ H₂ tại đầu ra kênh dẫn khí ở các giá trị lượng Platin lớn so với giá tri lương Platin nhỏ nhất (0,056mg/cm²), nồng đô H₂ giảm lần lượt là: 5%, 8%, 11%, 12%, 14%, 15% và 16%. Khi so sánh chênh lệch nồng độ H₂ tại đầu vào và đầu ra của kênh dẫn khí ứng với các mức giá trị lượng Platin khác nhau, mức suy giảm lần lượt là: 4%, 9%, 12%, 14%, 15%, 17%, 18% và 19%, tương ứng với giá trị lượng Platin tăng dần từ 0,056 đến 1,950mg/cm². Sự giảm nồng độ H₂ trong kênh dẫn khi tăng lượng Platin cho thấy các phản ứng diễn ra mạnh mẽ hơn và tiêu thụ nhiều H₂ hơn. Mức độ suy giảm nồng độ H₂ tại đầu vào kênh dẫn là nhỏ nhất và giảm mạnh tại đầu ra kênh dẫn khí. Kết quả tính toán cho thấy rằng, để tăng mật độ công suất đầu ra, ngoài việc tăng lượng Platin, cần kết hợp với giải pháp thiết kế kênh dẫn khí tối ưu. Điều này giúp tránh hiện tượng suy giảm nồng độ khí phản ứng quá mức, từ đó ngăn ngừa suy giảm công suất của pin.

Hình 6 là kết quả tính toán phần trăm khối lượng O_2 trên lớp xúc tác với 8 giá trị lượng Platin khác nhau thay

đổi từ 0,056 - 1,950mg/cm² và điện áp vận hành là 0,6V. Kết quả cho thấy, nồng độ O₂ trong kênh dẫn giảm dần khi tăng lượng Platin trong lớp xúc tác. Mức độ suy giảm nồng độ O₂ trong kênh dẫn chậm lại khi tiếp tục tăng lượng Platin. Mức độ suy giảm nồng độ O₂ tại đầu vào kênh dẫn là nhỏ nhất và giảm mạnh tại đầu ra kênh dẫn khí. Khi so sánh mức suy giảm nồng độ O₂ tại đầu ra kênh dẫn khí ở các giá trị lượng Platin lớn so với giá trị lượng Platin nhỏ nhất (0,056mg/cm²), nồng độ O₂ giảm lần lượt là: 16%, 24%, 29%, 33%, 36%, 38% và 41%. Khi so sánh chênh lệch nồng độ O₂ tại đầu vào và đầu ra của kênh dẫn khí ứng với các mức giá trị lượng Platin khác nhau, mức suy giảm lần lượt là: 11%, 22%, 27%, 31%, 34%, 36%, 38% và 39%, tương ứng với giá trị lượng Platin tăng dần từ 0,056 đến 1,950mg/cm². Như vậy, tại giá trị lượng Platin cao nhất thì chênh lệch đầu vào và đầu ra lượng O₂ là cao nhất lên đến 39%. Sự giảm nồng độ O2 trong kênh dẫn khi tăng lượng Platin cho thấy các phản ứng diễn ra mạnh mẽ hơn và tiêu thụ nhiều O2 hơn.



Hình 6. Phần trăm khối lượng O_2 trên màng trao đổi khi pin hoạt động tại điên thế 0,6V

3.4. Phân bố nồng độ chất khí phản ứng trong kênh dẫn khí và mật độ dòng

Hình 7a là kết quả tính toán sự phân bố phần trăm khối lượng của H_2 trong kênh dẫn khí và lớp khí khuếch tán. Kết quả tính toán cho thấy nồng độ H_2 giảm dần từ đầu vào đến đầu ra của kênh dẫn khí. Nồng độ H_2 cao nhất tại đầu vào và thấp nhất tại đầu ra, chứng tỏ sự phân bố nồng độ H_2 trong kênh dẫn không đồng đều. Tương tự, hình 7b thể hiện kết quả tính toán phân bố nồng độ O_2 trong kênh dẫn khí và lớp khí khuếch tán. Nồng độ O_2 giảm dần từ đầu vào đến đầu ra của kênh dẫn khí, với mức giảm lớn nhất gần phía màng. Điều này cho thấy các phản ứng điện hóa diễn ra mạnh mẽ nhất tại vị trí gần màng trao đổi, dẫn đến sự suy giảm nồng độ O_2 nhiều nhất ở khu vực này. Kết quả từ hình 7 cho thấy, nồng độ chất điện phân giảm dần dọc theo kênh dẫn khí và giảm từ vị trí gần màng trao đổi đến vị trí xa màng trao đổi.



Hình 7. Phần trăm khối lượng H_2 và O_2 trong kênh dẫn khí tại giá trị Platin 1,671mg/cm², điện thế vận hành 0,6V

Hình 8 chỉ ra kết quả tính toán lượng nước hình thành trong pin ở điện áp vận hành 0,6V với các lượng Platin thay đổi từ 0,056 đến 1,950mg/cm². Khi tăng lượng Platin trên lớp xúc tác, lượng nước sinh ra cũng tăng. Tại lượng Pt = 0,056mg/cm², lượng nước tạo ra từ phản ứng điện hóa là nhỏ nhất và có xu hướng tăng dần khi lượng Platin tăng, đạt mức cao nhất ở 1,950mg/cm². Điều này có thể được giải thích do các phản ứng điện hóa xảy ra nhiều hơn, tạo ra mật độ dòng cao hơn, nên lượng nước sinh ra nhiều hơn. Thêm vào đó, lượng nước không phân bố đều trên toàn bộ màng trao đổi. Tại đầu vào kênh dẫn khí, lượng nước sinh ra nhiều nhất và giảm dần về phía đầu ra kênh dẫn khí. Nước có xu hướng tập trung nhiều ở mép bên ngoài của màng, trong khi ở phần giữa của màng, lượng nước có xu hướng giảm nhe.



Hình 8. Phần trăm khối lượng H_2O hình thành trong pin khi thay đổi lượng Platin từ 0,056 đến 1,950mg/cm² và điện thế pin 0,6V

Hình 9 là kết quả tính toán mật độ dòng điện trên lớp xúc tác khi thay đổi lượng Platin từ 0,056 đến 1,950mg/cm² và điện thế pin 0,6V. Kết quả cho thấy việc tăng lượng Platin trên lớp xúc tác làm tăng mật độ dòng điện. Cụ thể, khi lượng Platin là 0,056mg/cm², mật độ dòng điện là thấp nhất. Khi lượng Platin đạt mức 1,950mg/cm², mật độ dòng điện đạt mức cao nhất. Trên toàn bô bề mặt lớp xúc tác, sư phân bố mật đô dòng điện không đều, với mật độ dòng điện thấp nhất tại vị trí trung tâm của màng trao đổi. Quy luật phân bố này vẫn giữ nguyên khi điều chỉnh lượng Platin; tuy nhiên độ lớn của mật độ dòng điện tăng khi tăng lượng Platin trên lớp xúc tác. Mật độ dòng điện trên lớp xúc tác đạt giá trị lớn nhất là 0,7179A/cm² khi lượng Platin là 1,950mg/cm² và mật độ dòng điện nhỏ nhất là 0,1609A/cm² khi lượng Platin là $0,056 \text{mg/cm}^2$.



Hình 9. Phân bố mật độ dòng dọc theo kênh dẫn khi thay đổi lượng Platin từ 0,056 đến 1,950mg/cm² và điện thế pin 0,6V

4. KẾT LUẬN

Dựa trên kết quả mô phỏng số về pin nhiên liệu sử dụng màng điện phân pha tạp axít photphoric hoạt động ở nhiệt độ cao khi thay đổi lượng Platin trong lớp xúc tác, có thể rút ra một số kết luận sau:

• Mật độ dòng và mật độ công suất của HT-PEMFC có thể được cải thiện đáng kể bằng cách tăng lượng Platin trên lớp xúc tác.

• Khi tăng lượng Platin, mật độ dòng và công suất có xu hướng tăng mạnh, nhưng sau đó tăng chậm dần khi tiếp tục gia tăng lượng Platin.

• Việc tăng lượng Platin dẫn đến sự suy giảm nồng độ các chất điện phân trong kênh dẫn khí, với H₂ giảm tối đa 16% và O₂ giảm tối đa 41% so với trường hợp lượng Platin nhỏ nhất. Sự suy giảm nồng độ chất điện phân từ đầu vào đến đầu ra là lớn nhất ở chế độ lượng Platin cao nhất, với H₂ giảm tối đa 19% và O₂ giảm tối đa 39%. Sự phân bố nồng độ chất điện phân trong kênh dẫn khí không đồng nhất. Nồng độ chất điện phân giảm từ đầu vào đến đầu ra và giảm càng nhiều khi càng gần phía màng trao đổi.

• Mật độ dòng điện trong pin tăng lên khi tăng lượng Platin trên lớp xúc tác, và sự phân bố mật độ dòng là không đồng đều trên toàn bộ lớp xúc tác. Mật độ dòng điện trên lớp xúc tác đạt giá trị lớn nhất là 0,7179A/cm² khi lượng Platin là 1,950mg/cm² và mật độ dòng điện nhỏ nhất là 0,1609A/cm² khi lượng Platin là 0,056mg/cm².

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Giao thông vận tải trong đề tài mã số T2025-CK-003. Nhóm tác giả xin chân thành cảm ơn Trường Đại học Giao thông vận tải đã tài trợ kinh phí nghiên cứu này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. Dickinson E.J.F. G. Smith, "Modelling the Proton-Conductive Membrane in Practical Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell (PEMFC) Simulation: A Review," *Membranes*, 10(11): p. 310, 2020.

[2]. Sazali N., W.N. Wan Salleh, A.S. Jamaludin, M.N. Mhd Razali, "New Perspectives on Fuel Cell Technology: A Brief Review," *Membranes*, 10(5): p. 99, 2020.

[3]. Nguyen T.V., R.E. White, "A Water and Heat Management Model for Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells," *Journal of The Electrochemical Society*, 140(8): p. 2178, 1993

[4]. Wang Y., K.S. Chen, J. Mishler, S.C. Cho, X.C. Adroher, "A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: Technology, applications, and needs on fundamental research," *Applied Energy*, 88(4): 981-1007, 2011.

[5]. Abdul Rasheed R.K., Q. Liao, Z. Caizhi, S.H. Chan, "A review on modelling of high temperature proton exchange membrane fuel cells (HT-PEMFCs)," *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(5): 3142-3165, 2017.

[6]. Nadir Saggiorato M.W., Timothy Lipman, Ahmad Mayyas, Shuk Han Chan, Hanna Breunig, Thomas McKone, Paul Beattie, Patricia Chong, Whitney G. Colella, Brian D. James, *A total cost of ownership model for low temperature PEM fuel cells in combined heat and power and backup power applications*. Lawrence Berkeley National Lab. (LBNL), Berkeley, CA (United States), 2014.

[7]. Cheng G., Z. Li, E. Qu, S. Ren, D. Han, M. Xiao, S. Wang, Y. Meng, "N-H group-rich dendrimer doped polybenzimidazole composite membrane with consecutive proton transportation channels for HT-PEMFCs," *Electrochimica Acta*, 434, 2022.

[8]. Xia L., M. Ni, Q. Xu, H. Xu, K. Zheng, "Optimization of catalyst layer thickness for achieving high performance and low cost of high temperature proton exchange membrane fuel cell," *Applied Energy*, 294, 2021.

[9]. Huang T., J. Huang, M. Feng, D. Yi, X. Chen, C. Ou, J. Zhang, Y. Zhang, Z. Wan, "Optimization of the thickness of catalytic layer for HT-PEMFCs based on genetic algorithm," *Energy Reports*, 8: 12905-12915, 2022.

[10]. Fu L., H. Lin, J. Liu, Z. Hua, N. Qiu, "Optimization of sinusoidal wavelike channel design for HT-PEMFCs based on genetic algorithm," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 232, 2024.

[11]. Arslan F., J. Dirsch, M. Wagner, A.T.S. Freiberg, M. Komma, J. Kerres, S. Thiele, T. Böhm, "The influence of intrinsically proton conductive electrode binder materials on HT-PEMFC performance," *Journal of Power Sources*, 553, 2023.

[12]. Raga C., M. Montiel, R. Losantos, R. Mustata, L. Valiño, "Modeling degradation mechanisms of a platinum based catalyst layer in a HT-PEMFC: A 3D numerical study," *International Journal of Hydrogen Energy*, 83: 51-69, 2024.

[13]. Jarry T., A. Jaafar, C. Turpin, F. Lacressonniere, E. Bru, O. Rallieres, M. Scohy, "Impact of high frequency current ripples on the degradation of high-temperature PEM fuel cells (HT-PEMFC)," *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(54): p. 20734-20742, 2023.

[14]. Bevilacqua N., T. Asset, M.A. Schmid, H. Markötter, I. Manke, P. Atanassov, R. Zeis, "Impact of catalyst layer morphology on the operation of high temperature PEM fuel cells," *Journal of Power Sources Advances*, 7: 100042, 2021.

[15]. Zagoraiou E., F. Paloukis, S.G. Neophytides, M.K. Daletou, "The electrochemical interface of the cathode in high temperature PEM fuel cells," *Electrochimica Acta*, 356: 136778, 2020.

[16]. Martin S., J.O. Jensen, Q. Li, P.L. Garcia-Ybarra, J.L. Castillo, "Feasibility of ultra-low Pt loading electrodes for high temperature proton exchange membrane fuel cells based in phosphoric acid-doped membrane," *International Journal of Hydrogen Energy*, 44(52): 28273-28282, 2019.

[17]. Martin S., Q. Li, J.O. Jensen, "Lowering the platinum loading of high temperature polymer electrolyte membrane fuel cells with acid doped polybenzimidazole membranes," *Journal of Power Sources*, 293: 51-56, 2015.

[18]. Shen Q., S. Dong, S. Li, G. Yang, "Numerical study on performance of HT-PEMFC with gradient design of Pt loading," *Electrochimica Acta*, 454, 2023.

[19]. E. U. Ubong, Z. Shi, X. Wang, "Three-Dimensional Modeling and Experimental Study of a High Temperature PBI-Based PEM Fuel Cell," *Journal of The Electrochemical Society*, 156(10): B1276-B1282, 2009.

[20]. Li S., C. Peng, Q. Shen, C. Wang, Y. Cheng, G. Yang, "Impact of Membrane Phosphoric Acid Doping Level on Transport Phenomena and Performance in High Temperature PEM Fuel Cells," *Membranes*, 11(11), 2021.

[21]. R. B. Bird, W.E.S., E. N. Lightfoot, *Transport Phenomena*. John Wiley & Sons, New York, 1960.

[22]. Jacob Bear, J-M. Buchlin, *Modeling and Applications of Transport Phenomena in Porous Media*. Kluwer Academic: Boston, 1991.

AUTHORS INFORMATION

Do Van Tran¹, Nguyen Tuong Vi², Nguyen Tien Han³

¹Faculty of Mechanical Engineering, University of Transport and Communications, Vietnam

²Faculty of Mechanical Engineering, University of Economics - Technology for Industries, Vietnam

³Center for Automotive Technology and Driver Training, Hanoi University of Industry, Vietnam