



Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg
Hamburg University of Applied Sciences

Bachelorarbeit

Duc Hai Tran

Fluid-Flow-Modellierung zur Auslegung von Flow-By-Elektroden in elektrochemischen Energiewandlern

*Fakultät Technik und Informatik
Department Maschinenbau und Produktion*

*Faculty of Engineering and Computer Science
Department of Mechanical Engineering and
Production Management*

Duc Hai Tran

**Fluid-Flow-Modellierung zur Auslegung von
Flow-By-Elektroden in elektrochemischen
Energiewandlern**

Bachelorarbeit eingereicht im Rahmen der Bachelorprüfung

im Studiengang Bachelor of Science Maschinenbau/ Energie- und Anlagensysteme
am Department Maschinenbau und Produktion
der Fakultät Technik und Informatik
der Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg

Erstprüfer/in: Prof. Dr. Thorsten Struckmann
Zweitprüfer/in : Prof. Dr. Peter Wulf

Abgabedatum: 13.08.2020

Zusammenfassung

Duc Hai Tran

Thema der Bachelorthesis

Fluid-Flow-Modellierung zur Auslegung von Flow-By-Elektroden in elektrochemischen Energiewandlern

Stichworte

Redox-Flow-Batterie, Protonaustauschmembran-Elektrolysezelle, Flow-By-Elektrode, Fluid-Flow-Modell, CFD-Modell, ANSYS Fluent

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit werden Fluid-Flow-Modelle für zwei VRFB-Typen und die Anode eines PEMEC-Typs unter Verwendung von ANSYS Fluent 19.1 entwickelt. Die Modelle für VRFB lassen sich mit den anderen Referenzmodelle validieren und anschließende Strömungsanalysen werden durchgeführt. Für PEMEC müssen die vorhandenen Modelle noch verbessert und erweitert werden.

Duc Hai Tran

Title of the paper

Fluid flow modelling for the design of flow-by electrodes in electrochemical energy converters

Keywords

Redox flow battery, proton exchange membrane electrolytic cell, flow-by electrode, fluid flow model, CFD model, ANSYS Fluent

Abstract

In this work, fluid flow models for two VRFB types and the anode side of a PEMEC type are developed using ANSYS Fluent 19.1. The models for VRFB can be validated with the other reference models and subsequent flow analysis are carried out. For PEMEC, the existing models still have to be improved and expanded.

Inhaltsverzeichnis

Symbolverzeichnis	III
Abkürzungsverzeichnis	V
Tabellenverzeichnis	VI
Abbildungsverzeichnis.....	VIII
1 Einleitung	1
2 Ziel	3
3 Grundlage.....	4
3.1 Grundgleichungen in der Strömungsmechanik	4
3.2 Strömung im porösen Medium	8
3.3 Mehrphasenströmung	13
3.4 VRFB.....	31
3.5 PEMEC.....	34
4 Fluid-Flow-Modell für planare VRFB-Halbzellen	37
4.1 Modellannahme	37
4.2 2D-Modell	38
4.3 3D-Modell	42
5 Fluid-Flow-Modell für tubuläre VRFB-Halbzellen	48
5.1 Modellannahme	48
5.2 Umsetzung in ANSYS Fluent	48
5.3 Validierung	51
6 Fluid-Flow-Modell für PEMEC-Anode.....	56
6.1 Modellannahme	56
6.2 Simulationsparameter	56
6.3 Mixture-Modell	57
6.4 VOF-Modell	67
6.5 Diskussion über die Modelleinstellungen	75
7 Zusammenfassung und Ausblick	79
7.1 Zusammenfassung	79
7.2 Ausblick.....	80

Literaturverzeichnis	83
A-1. Dichte und Viskosität der Elektrolytlösung in VRFB.....	ii
A-2. Simulationsparameter	iii
A-3. Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären Zelle	v
A-4. Fotos und Daten aus dem experimentellen Test der HAW-planaren PEM-Elektrolysezelle	vi
A-5. Grundgleichungen des stationären Mixtur-Modells	vii
A-6. Grundgleichungen des instationären Mixtur-Modells.....	ix
A-7. Grundgleichungen des instationären VOF-Modells.....	xi
A-8. Validierungsergebnis des 2D-Modells für planare VRFB-Halbzellen .	xiii
A-9. Validierungsergebnis des 3D-Modells für planare VRFB-Halbzellen ..	xv
A-10. Simulationsergebnis des instationären Mixture-Modells	xvii
A-11. Simulationsergebnis des instationären VOF-Modells.....	xx
A-12. Vergleich zwischen den Formulierungen mit Oberflächengeschwindigkeit und physikalischer Geschwindigkeit.....	xxi

Symbolverzeichnis

lateinisch. Alphabet	Einheit	Beschreibung
A	[mm ²]	Fläche
C_1	[kg/m ²]	Koeffizient für den Viskositätsverlustterm
C_2	[–]	Koeffizient für den Trägheitsverlustterm
C_D	[–]	Widerstandbeiwert
F	[mol/s]	Faraday-Konstante
\vec{F}	[N]	Kraft
\vec{F}_{vol}	[N/m ³]	Volumenkraft
\vec{F}_{st}	[N/m ³]	Oberflächenspannungskraft
I	[A]	Stromstärke
\bar{I}	[–]	Einheitstensor
\vec{I}	[kg·m/s]	Impulsvektor
J	[–]	empirische J-Funktion
K	[m ²]	Permeabilität
K_b	[m ²]	Basis-Permeabilität
K_e	[m ²]	effektive Permeabilität
K_r	[–]	relative Permeabilität
K_r^0	[–]	referenzielle relative Permeabilität
\vec{M}	[N/m ³]	Quellterm des PM-Modells
N	[mol/s]	Stoffmenge
Q	[ml/min]	Volumenstrom
Re	[–]	Reynoldszahl
S	[N/m ³]	Quellterm
\bar{T}	[N/m ²]	Cauchy-Spannungstensor
V	[m ³]	Volumen
V_M	[Litter/mol]	Molvolumen
a	[°]	Winkel
\vec{a}	[m/s ²]	Beschleunigung
c	[–]	Massenanteil
d	[mm]	Durchmesser
de	[mm]	Tiefe
f, f_{drag}	[–]	Widerstandsfunktion
$\vec{g} = (g_x, g_y, g_z)$	[m/s ²]	Gravitation und ihre Komponente
l	[mm]	Länge
m	[kg]	Masse
\dot{m}	[mg/s]	Massenstrom
n	[–]	Phasenanzahl
\vec{n}	[1/m]	Oberflächennormale
\hat{n}	[–]	Einheitsvektor normal zu einer Fläche bzw. Oberflächeneinheitsnormale
p	[Pa]	Druck
p_c	[Pa]	Kapillardruck
r	[mm]	Radius
s	[–]	Sättigung
t	[s]	Zeit

\hat{t}	[–]	Einheitsvektor tangential zu einer Fläche
t_r	[s]	Partikelrelaxationszeit
th	[mm]	Dicke
u_s	[m/s]	Oberflächengeschwindigkeit
\vec{v}_{dr}	[m/s]	Driftgeschwindigkeit
\vec{v}_{pq}	[m/s]	relative Geschwindigkeit zwischen Phase p und Phase q
$\vec{v} = (u, v, w)$	[m/s]	Geschwindigkeitsvektor und seine Komponente
w	[mm]	Breite
z	[–]	Anzahl

griechisch. Alphabet	Einheit	Beschreibung
Δ	[–]	Differenz
∇	[1/m]	Nabla-Operator
Λ	[Pa. s]	viskoser Volumen-Faktor
α	[–]	Volumenanteil
γ	[N/m]	Oberflächenspannung
ε	[–]	Porosität
$\bar{\varepsilon}$	[1/s]	Formänderungstensor
θ	[°]	Kontaktwinkel
κ	[1/m]	Oberflächenkrümmung
μ	[Pa. s]	dynamische Viskosität
μ_e	[Pa. s]	effektive Viskosität
μ_r	[–]	relative Viskosität
ρ	[kg/m ³]	Dichte
σ	[N/m ²]	Normalspannung
τ	[N/m ²]	Schubspannung
$\bar{\tau}$	[N/m ²]	deviatorischer Spannungstensor
∂	[–]	partielle Ableitung

Index	Beschreibung
<i>cc</i>	Stromsammler
<i>e</i>	effektiv
<i>fc</i>	Strömungskanal
<i>g</i>	Gas
<i>in</i>	Bedingung am Einlass
<i>l</i>	Flüssigkeit
<i>lgdl</i>	Flüssigkeits-Gas-Diffusionsschicht
<i>m</i>	Gemisch
<i>non-wetting</i>	nicht benetzte Phase
<i>o, O₂</i>	Sauerstoff
<i>p, q, k, i, j</i>	Phase
<i>pe</i>	poröse Elektrode
<i>r</i>	relativ
<i>vol</i>	Volumen
<i>w, H₂O</i>	Wasser
<i>wetting</i>	benetzte Phase

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Beschreibung
ALD	Atomlagenabscheidung (atomic layer deposition)
CAD	rechnergestütztes Design (Computer-aided design)
CCM	katalysatorbeschichtete Membran (catalyst coated membrane)
CFD	numerische Strömungssimulation (computational fluid dynamics)
CL	Katalysatorschicht (catalyst layer)
CSF	Kontinuum-Oberflächenkraft (continuum surface force)
CSS	Kontinuum-Oberflächenspannung (Continuum Surface Stress)
D	Dimension/-en
DMFC	Direktmethanol-Brennstoffzelle (Direct methanol fuel cell)
ESS	Energiespeicherungssystem
FC	Strömungskanal (flow channel)
FEM	Finiten-Element-Methode
FVM	Finiten-Volumen-Methode
HAW	Hochschule für angewandte Wissenschaft
IAC	Grenzflächenkonzentration (interfacial area concentration)
LGDL	Flüssigkeits-Gas-Diffusionsschicht (liquid gas diffusion layer)
MEA	Membranelektrodenanordnung (membrane electrode assembly)
SVA	Sauerstoffvolumenanteil
PE	poröse Elektrode (porous electrode)
PEM	Protonaustauschmembran (proton exchange membran)
PEMEC	Protonaustauschmembran-Elektrolysezelle (proton exchange membran electrolysure cell)
PEMFC	Protonaustauschmembran-Brennstoffzelle (proton exchange membran fuel cell)
PM	poröses Medium (porous media)
PRESTO	Pressure Staggering Option
QUICK	Quadratic Upstream Interpolation for Convective Kinematics
RFB	Redox-Flow-Batterie
SIMPLE	Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equations
SOC	state of charge
VOF	Volume of fluid
VRFB	Vanadium-Redox-Flow-Batterie

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Vergleich zwischen der allgemeinen Transportgleichung und den Grundgleichungen der Strömungsmechanik [5]	8
Tabelle 2: Reaktionen beim Laden und Entladen von VRFB	32
Tabelle 3: Reaktionen in einer PEM-Elektrolysezelle.....	35
Tabelle 4: grundlegende Modelleinstellungen vom Modell für planaren VRFB-Halbzellen	39
Tabelle 5: Randbedingungen vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	40
Tabelle 6: numerische Einstellungen vom Modell für planaren VRFB-Halbzellen	41
Tabelle 7: Randbedingungen vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	43
Tabelle 8: Simulationsergebnisse bei der Variierung der Permeabilität.....	45
Tabelle 9: Simulationsergebnisse bei der Variierung des Volumenstroms	45
Tabelle 10: Simulationsergebnisse bei der Variierung der Geometrie	46
Tabelle 11: Ergebnisvergleich zwischen dem äußeren Halbzelle-Modell für tubuläre VRFB-Zelle (a) und dem geometrischen äquivalenten 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	51
Tabelle 12: Simulationsergebnisse der äußeren Halbzelle bei der Validierung mit den Druckverlust-Messdaten	53
Tabelle 13: Simulationsergebnisse der inneren Halbzelle bei der Validierung mit den Druckverlust-Messdaten	53
Tabelle 14: grundlegende Einstellungen vom stationären Mixture-Modell	60
Tabelle 15: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom stationären Mixture-Modell...	61
Tabelle 16: Randbedingungen vom stationären Mixture-Modell.....	61
Tabelle 17: numerische Einstellungen vom stationären Mixture-Modell	62
Tabelle 18: grundlegende Modelleinstellungen vom instationären Mixture-Modell	65
Tabelle 19: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom instationären Mixture-Modell	65
Tabelle 20: numerische Einstellungen vom instationären Mixture-Modell	66
Tabelle 21: grundlegende Einstellungen vom instationären VOF-Modell.....	71
Tabelle 22: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom instationären VOF-Modell	72
Tabelle 23: Randbedingungen vom instationären VOF-Modell.....	73
Tabelle 24: Gemessene Viskositätswerte für die Elektrolytlösungen von 1,6 MV in 2,6 M H ₂ SO ₄ bei verschiedenen SOCs und Temperaturen [33]	ii
Tabelle 25: Gemessene Viskositätswerte für die Elektrolytlösungen von 1,8 MV in 2,7 M H ₂ SO ₄ bei verschiedenen SOCs und Temperaturen [33]	ii
Tabelle 26: Simulationsparameter zur Validierung der Modelle für planaren VRFB-Halbzellen	iii
Tabelle 27: Simulationsparameter zur Analyse der DECHEMA-Zelle mit dem 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	iii
Tabelle 28: Simulationsparameter zur Validierung der Modelle für tubuläre VRFB-Zelle mit den Druckverlust-Messdaten	iv

Tabelle 29: Simulationsparameter der Modelle für die HAW-planare PEM-Elektrolysezelle	iv
Tabelle 30: Druckverluste mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xiv
Tabelle 31: normierte Geschwindigkeiten mit den Parametern $K2, \varepsilon2$	xiv
Tabelle 32: Druckverluste mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xvi
Tabelle 33: normierte Geschwindigkeiten mit den Parametern $K2, \varepsilon2$	xvi
Tabelle 34: Volumenströme mit den Parametern $K2, \varepsilon2$	xvi

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Infinitesimal kleines Volumenelement mit den Massenströmen [4] ...	5
Abbildung 2: Kräfte in x-Richtung an einem infinitesimal kleinen Volumenelement [4]	6
Abbildung 3: Zusammensetzung der Kraft für Fluide [4]	6
Abbildung 4: Titanfilz für die Diffusionsschicht in PEMEC-Anode	9
Abbildung 5: Strömungsregimes für die Gas-Flüssigkeits-Strömung [12]	14
Abbildung 6: Strömungsregimes für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen Rohr [10]	15
Abbildung 7: Einfluss von Gasvolumenstrom auf die Strömungsregime für Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen Rohr [14]. Der Gasvolumenstrom steigt von links nach rechts auf.	16
Abbildung 8: Einfluss der Wandbenetzbarkeit auf das Strömungsregime für die Luft-Wasser-Strömung in einem quadratischen Kanal mit $d_h = 525\mu\text{m}$ [15]. Die hydrophilen Strömungen werden in einem Siliziumkanal mit Glasplatte realisiert ($\theta \approx 9^\circ$ für Silizium und $\theta \approx 25^\circ$ für Glas); Die hydrophoben Strömungen werden im gleichen Kanal mit Teflon-Beschichtung ($\theta \sim 120^\circ$) realisiert.....	16
Abbildung 9: Strömungsregime-Karte für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen dreieckigen Mikrokanal mit dem Größe von 0,866 mm [16]	17
Abbildung 10: Darstellung für die Anziehungskräfte auf die Wassermoleküle in einem Wasser-Luft-System, wobei ein Molekül weit entfernt von der Oberfläche sich befindet (a) und das andere Molekül an der Oberfläche liegt (b,c). (in Anlehnung an [18])	18
Abbildung 11: Darstellung eines Flüssigkeits-Luft-Wand-Systems [17].....	19
Abbildung 12: Darstellung von einer hydrophilen Oberfläche und einer hydrophoben Oberfläche [20]	20
Abbildung 13: Schema einer Redox-Flow Batterie [28]	31
Abbildung 14: Schemen von Serpentin-Strömungskanal (a), parallelen Strömungskanäle (b) und Interdigitalisiert-Strömungskanäle (c) [3]	33
Abbildung 15: A: Schema einer planaren Zelle, die aus Anoden- und Kathodenplatten (1), Strömungsrahmen (2), porösen Elektroden (4) und einer ionenselektiven Membran (3) besteht. B: Schema einer tubulären Zelle, die aus einem inneren Stromsammler (5), einer porösen inneren Elektrode (6), einer röhrenförmigen Membran (7), einer porösen äußeren Elektrode (8) und einem äußeren Stromsammler (9) besteht. [34]	34
Abbildung 16: Schema einer PEM-Elektrolysezelle [19].....	35
Abbildung 17: Geometrie des 2D- und des 3D-Modells für planare VRFB-Halbzellen [3].....	37
Abbildung 18: Geometrie und Randbedingungen vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	38
Abbildung 19: strukturiertes Netz vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen	39

Abbildung 20: Geometrie und Randbedingungen vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen.....	42
Abbildung 21: strukturiertes Netz vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen	43
Abbildung 22: linearer Zusammenhang zwischen dem Druckverlust und dem PE-Volumenstrom bei der Variierung der Geometrie	46
Abbildung 23: Geschwindigkeitsverlauf v_x (a) und v_y (b) entlang Zellenlänge und y-Geschwindigkeitsverteilung auf der Grenzfläche (c).....	47
Abbildung 24: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ für den gesamten Querschnitt (a), den PE-Querschnitt (b) und die Mittellinie im PE-Querschnitt (c)	47
Abbildung 25: 3D-Geometrie von der äußeren Halbzelle (links) und der inneren Halbzelle (rechts) der HAW-tubulären VRFB-Zelle [9]	48
Abbildung 26: Geometrie und parametrisierte Abmessungen von dem äußeren Halbzelle-Modell (a) und dem inneren Halbzelle-Modell (b) für tubuläre VRFB-Zelle.....	49
Abbildung 27: strukturiertes Netz von dem äußeren Halbzelle-Modell (a) und dem inneren Halbzelle-Modell (b) für tubuläre VRFB-Zelle	50
Abbildung 28: Position der Randbedingungen des äußeren Halbzelle-Modells für tubuläre VRFB-Zelle (für die innere Halbzelle ist ähnlich)	50
Abbildung 29: Geometrie von dem äußeren Halbzelle-Modell für tubuläre VRFB-Zelle (a) und dem geometrischen äquivalenten 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (b).....	51
Abbildung 30: Geometrie der äußeren Halbzelle bei der Eindringtiefe von 0.45 mm (a) und der inneren Halbzelle bei der Eindringtiefe von 0.6 mm (b).....	54
Abbildung 31: Verlauf entlang Zellenlänge (a) und Verteilung auf Grenzfläche (b) der y-Geschwindigkeitskomponente.....	54
Abbildung 32: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ für den gesamten Querschnitt (a), den PE-Querschnitt (b) und die Mittellinie im PE-Querschnitt (c)	55
Abbildung 33: Berechnungsdomäne (a) und Auswertungspositionen (b) des Modells von Nie [41]	57
Abbildung 34: Vergleich der SVA-Verteilung zwischen den Ergebnissen in der Nie-Studie (a,c) und den resultierenden Ergebnissen vom Nachbaumodell (b,d)	58
Abbildung 35: SVA-Verteilung vom Nachbaumodell in Seitenansicht.....	59
Abbildung 36: Geometrie, Randbedingungen (a) und Schema (b) vom 3D-Modell für planare PEM-Elektrolysezelle.....	59
Abbildung 37: Residuum-Verlauf (a) und relevante messbare Größen (b,c,d) während der Iteration beim Sauerstoffmassenstrom von 0,01 mg/s.	63
Abbildung 38: SVA-Verteilung (a) und Geschwindigkeitsvektor des Gemisches (b) bei einem hohen Sauerstoffmassenstrom ($mO_2 \geq 0,02 \text{ mg/s}$)	63
Abbildung 39: Druckverlauf (a) und Dichteverlauf (b) des Gemisches bei einem hohen Sauerstoffmassenstrom ($mO_2 \geq 0,02 \text{ mg/s}$).....	64

Abbildung 40: SVA-Verteilung bei einem niedrigen Sauerstoffmassenstrom ($mO_2 < 0,02 \text{ mg/s}$).....	64
Abbildung 41: Berechnungsdomänen des Modells (a) und Geometrie der ganzen Zelle (b) [10]	68
Abbildung 42: Iso-Fläche des Luftvolumenanteils von 0,5 im Ausgangskanal (a,b); Geschwindigkeitsverteilung in der mittleren Ebene von LGDL (c,d); Iso-Fläche des Luftvolumenanteils von 0,5 im Ausgangskanal und Geschwindigkeitsverteilung auf der Grenzfläche zwischen den Eingangskanälen und LGDL (e,f).....	69
Abbildung 43: Strömungslinien des eingehenden Wassers beim Nachbaumodell..	70
Abbildung 44: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt	74
Abbildung 45: Oberflächengeschwindigkeiten der betrachteten Strömung (a) und die referenzielle Strömungskarte (b).....	76
Abbildung 46: SOC- und Dichteverlauf in der negativen Halbzelle einer VRFB-Zelle [31].....	ii
Abbildung 47: Druckverlust-Messdaten von der äußeren Halbzelle (a) und der inneren Halbzelle (b) der HAW-Zelle	v
Abbildung 48: Fotos der Sauerstoffblasen im Ausgangsschlauch direkt nach der Zelle (a) und weit entfernt von der Zelle (b)	vi
Abbildung 49: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xiii
Abbildung 50: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern $K2, \varepsilon2$	xiii
Abbildung 51: Druckverlauf in FC mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xiv
Abbildung 52: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xv
Abbildung 53: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern $K2, \varepsilon2$	xv
Abbildung 54: Druckverlauf in FC mit den Parametern $K1, \varepsilon1$	xvi
Abbildung 55: Residuum-Verlauf während der Iteration	xvii
Abbildung 56: Volumenströme (a) und Drücke (b) in verschiedenen Positionen während der Zeit	xvii
Abbildung 57: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms.....	xviii
Abbildung 58: Druckverteilung (a) und -verlauf entlang FC (b) für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms	xviii
Abbildung 59: Geschwindigkeitsverteilungen des Wassers (a) und des Sauerstoffes (b) in FC für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms	xix
Abbildung 60: Geschwindigkeitsverteilungen des Wassers (a) und des Sauerstoffes (b) in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms	xix
Abbildung 61: Reynoldszahl-Verteilung des Gemisches für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen der Sauerstofffilms.....	xix

Abbildung 62: Geschwindigkeitsverteilung in FC (a) und in LGDL (b) für einen bestimmten Zeitpunkt	xx
Abbildung 63: Druckverteilung in FC (a) und in LGDL (b) für einen bestimmten Zeitpunkt	xx
Abbildung 64: Volumenströme während der Zeit	xxi
Abbildung 65: Drücke während der Zeit	xxi
Abbildung 66: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt	xxi
Abbildung 67: Wassergeschwindigkeitsverteilung in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt	xxii
Abbildung 68: Sauerstoffgeschwindigkeitsverteilung in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt	xxii

1 Einleitung

In den letzten Jahrzehnten steigt der weltweite Energieverbrauch aus verschiebenden Faktoren stets an. Daher muss in der Zukunft eine höhere Menge am Strom bereitgestellt werden. Auf der anderen Seite muss die Abhängigkeit von der fossilen Energie aufgrund der durch Treibhausgase verursachten globalen Erwärmung reduziert werden. Aus diesen Gründen spielen die erneuerbaren Energiequellen heutzutage und zukünftig eine wichtige Rolle. Die meisten verwendeten erneuerbaren Energiequellen sind Solar- und Windenergie, die grundsätzlich überall auf der Welt vorhanden sind. Trotz ihrer vielseitigen Vorteile hat die Stromerzeugung mit diesen zwei Energiequellen einen großen Nachteil, dass sie entweder nicht oder nur zum Teil geregelt werden kann. Aufgrund dieser Tatsachen arbeiten viele Forscher und Unternehmen daran, verschiedene Energiespeicherungs-Systeme (EES) zu entwickeln und optimieren.

Eine der vielversprechenden ESS-Technologien ist die Vanadium-Redox-Flow-Batterie (VRFB), die den mittleren und hohen Bedarf an der Energiespeicherung decken kann. Der grundlegende Vorteil einer Redox-Flow-Batterie (RFB) ist die Entkopplung von Leistung und Kapazität, wobei eine nachträgliche Kapazitätserweiterung sogar möglich ist. Auch weist diese Technologie eine hohe Zyklenzahl und eine hohe Energieeffizienz auf.

Hinzukommend bietet das sogenannte Power2Gas-Konzept, im Vergleich zu den anderen EES-Technologien, einen einzigartigen Vorteil, dass das gespeicherte Medium als Gas vielseitig verwendet werden kann. Für dieses Konzept ist die Elektrolyse ein der wichtigsten Bauteile, bei dem die Stromenergie in das speicherbare Wasserstoffgas umgewandelt wird. In den verschiedenen Elektrolyse-Typen wird die Protonaustauschmembran-Elektrolysezelle (PEMEC) aufgrund mehrerer Vorteile meist verwendet. Zu ihren Vorteilen zählen die hohe Stromdichte, der hohe Gasreinheitsgrad, das hohe Sicherheitsniveau und die niedrige Anforderung am Massen-Volumen-Verhältnis [1].

Trotz der Vorteile von VRFB und PEMEC im Power2Gas-System müssen diese Systeme noch weiter untersucht werden, um ihre Effizienz zu verbessern und ihre Kosten zu erniedrigen. Wegen der Fluidströmung innerhalb der Zellen und ihrem Einfluss auf die Zelleistung benötigen die beiden Systeme ein Fluid-Flow-Modell, um das Strömungsverhalten vernünftig zu untersuchen. Außerdem haben diese Systeme viele Gemeinsamkeiten hinsichtlich der Geometrie und der Komponenten. Aufgrund der

genannten Tatsachen ist es sinnvoll, dass Fluid-Flow-Modelle der beiden Systeme gemeinsam in einer Arbeit entwickelt werden sollen.

Im anschließenden Kapitel (Kap. 2) werden die Ziele sowie die zugehörigen Teilziele dieser Arbeit erläutert. Als Nächstes (Kap. 3) werden die relevanten Grundlagen über die Strömungsmechanik, die betrachteten Systeme und die verwendeten Ansätze bereitgestellt. In den weiteren Kapiteln (Kap. 4, 5, 6) werden die Ziele nacheinander bearbeitet, wobei jedes Kapitel um die Strömung eines Systems geht. Zum Schluss (Kap. 7) werden die Modelle, das Vorgehen und die Analyseergebnisse zusammengefasst und ein Ausblick für weitere Untersuchungen und Arbeitspakete gegeben.

2 Ziel

Das Ziel dieser Arbeit ist die Implementierung von Fluid-Flow-Modelle für die betrachteten VRFB- und PEMEC-Systeme. Im Folgenden werden drei Hauptziele und die zugehörigen Teilziele erläutert, wobei jedes Hauptziel einem System zugeordnet wird.

- Ein Fluid-Flow-Modell soll für die Elektrolytströmung in einer planaren VRFB-Halbzelle mit Flow-By-poröser Elektrode (PE) und parallelen Strömungskanälen (FC) umgesetzt werden (Kap. 4). Zuerst erfolgt die Umsetzung eines parametrisierten Modells in ANSYS Fluent. Anschließend wird dieses Modell mit den Modellen von Ke [2], Kanitz [3] und Struckmann validiert. Zum Schluss soll eine Strömungsanalyse für die planare VRFB-Zelle vom DECHEMA-Forschungszentrum durchgeführt werden.
- Ein Fluid-Flow-Modell soll für die Elektrolytströmung in einer tubulären VRFB-Halbzelle mit Flow-By-poröser Elektrode und parallelen Strömungskanälen umgesetzt werden (Kap. 5). Zuerst erfolgt die Umsetzung eines parametrisierten Modells in ANSYS Fluent. Anschließend wird dieses Modell mit dem 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen und den Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären VRFB-Zelle validiert. Bei der Validierung mit den Druckverlust-Messdaten sind die auffälligen unterschiedlichen Druckverluste der beiden Halbzellen zu erklären.
- Ein Fluid-Flow-Modell soll für die Wasser-Sauerstoff-Strömung in der Anoden-Halbzelle einer planaren PEM-Elektrolysezelle mit poröser Flüssigkeits-Gas-Diffusionsschicht (LGDL) und parallelen Strömungskanälen umgesetzt werden (Kap. 6). Zuerst ist eine Literatur-Untersuchung nach vorhandenen Fluid-Flow-Modellen für die PEMEC-Anode durchzuführen. Anschließend sollen die ausgewählten Modelle gemäß den Studien nachgebaut werden. Soweit die Nachbauten erfolgreich sind, erfolgen dann die Umsetzungen auf die betrachte Zelle und die anschließenden Simulationen. Zum Schluss werden anhand der Simulationsergebnisse und der anderen Faktoren die passenden Modelleinstellungen diskutiert.

3 Grundlage

In diesem Kapitel werden die relevanten Grundlagen über die Strömungsmechanik, die verwendeten Ansätze und die betrachteten Systeme bereitgestellt.

3.1 Grundgleichungen in der Strömungsmechanik

Die in diesem Abschnitt beschriebenen Gleichungen beziehen sich auf eine einphasige laminare Strömung. Die Energiegleichung und das turbulente Modell werden in diesem Abschnitt nicht beschrieben.

3.1.1 Kontinuitätsgleichung

Die Kontinuitätsgleichung basiert auf dem Grundkenntnis, dass die Masse weder erzeugt noch zerstört werden kann. In der Strömungsmechanik wird es unter der eulerschen Betrachtung für ein festes Kontrollvolumen so umgesetzt, dass die zeitliche Massenänderung in einem Kontrollvolumen gleich der Differenz zwischen den ein- und ausströmenden Massen ist. In der Abbildung 1 werden die sämtlichen Massenströme an einem infinitesimal kleinen Volumenelement dargestellt. Nach dem Aufstellen der zeitlichen Masseänderung und der sämtlichen Massenströme wird die Kontinuitätsgleichung wie folgt abgekürzt:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho w)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho v)}{\partial z} = 0 \quad (3.1)$$

wobei ρ die Dichte eines Fluids, t die Zeit, u, w, v die Geschwindigkeitskomponenten des Fluids und x, y, z die kartesischen Raumrichtungen sind. Die Gleichung (3.1) wird außerdem in der Vektorschreibweise (konservative Form) mit dem Nabla-Operator $\left(\nabla = \left(\frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, \frac{\partial}{\partial z}\right)\right)$ geschrieben:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho \vec{v}) = 0 \quad (3.2)$$

wobei $\frac{\partial \rho}{\partial t}$ die zeitliche Massenänderung und $\nabla(\rho \vec{v})$ die Differenz zwischen den ein- und ausströmenden Massenströmen darstellen.

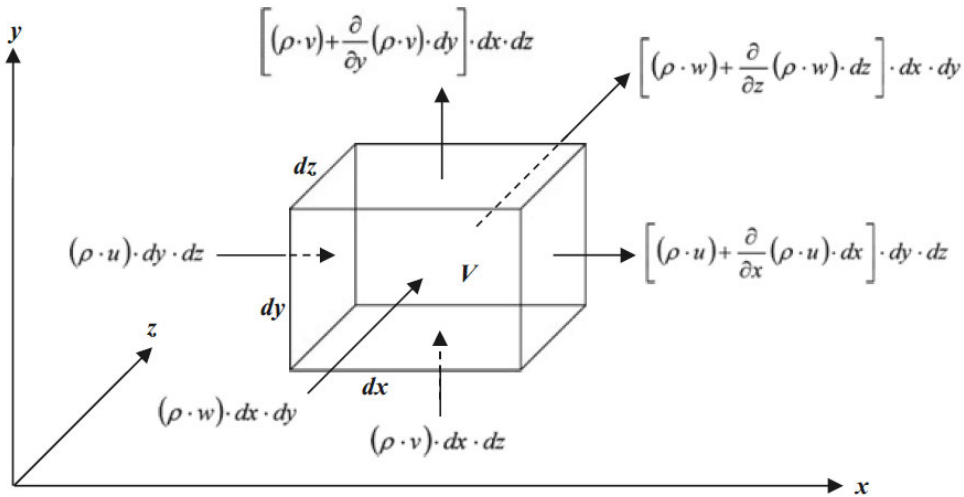


Abbildung 1: Infinitesimal kleines Volumenelement mit den Massenströmen [4]

3.1.2 Impulsgleichung

Die Impulsgleichung basiert auf dem zweiten Newtonschen Axiom, was besagt, dass die zeitliche Impulsänderung $\left(\frac{d\vec{I}}{dt}\right)$ einer Masse (m) gleich die Summe der angreifenden Kräfte (\vec{F}) ist.

$$\frac{d\vec{I}}{dt} = \frac{d}{dt}(m\vec{v}) = \sum \vec{F} \quad (3.3)$$

Im Kontinuum oder Strömungsfeld wird die Impulsgleichung unter der eulerschen Betrachtung so definiert, dass die zeitliche Impulsänderung in einem Kontrollvolumen gleich die Differenz zwischen den ein- und austretenden Impulsströmen und die Summe der angreifenden äußeren Kräfte ist. In der Abbildung 2 werden die Oberflächenkräfte in der x-Richtung an einem infinitesimal kleinen Volumenelement dargestellt und in der Abbildung 3 wird ihre Zusammensetzung klassifiziert. Nach dem Aufstellen der Impulsänderung, der sämtlichen Impulsströme und der äußeren Kräfte (Volumen- und Oberflächenkräfte) werden die Impulsgleichungen, die auch als Cauchy-Bewegungsgleichungen genannt werden, wie folgt abgekürzt:

$$\frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v u)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w u)}{\partial z} = \rho g_x + \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial y} + \frac{\partial \tau_{zx}}{\partial z} \quad (3.4)$$

$$\frac{\partial(\rho v)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u v)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v v)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w v)}{\partial z} = \rho g_y + \frac{\partial \tau_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} + \frac{\partial \tau_{zy}}{\partial z} \quad (3.5)$$

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u w)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v w)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w w)}{\partial z} = \rho g_z + \frac{\partial \tau_{xz}}{\partial x} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} \quad (3.6)$$

wobei σ_{ij}, τ_{ij} die Normal- und die Schubspannungen am Kontrollvolumen und g_i die Erdbeschleunigungen sind. Die Gleichungen (3.4)(3.5)(3.6) werden außerdem in der

Vektorschreibweise (konservative Form) mit dem Nabla-Operator und dem Cauchy-

Spannungstensor $\left(\bar{T} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \tau_{xy} & \tau_{xz} \\ \tau_{yx} & \sigma_{yy} & \tau_{yz} \\ \tau_{zx} & \tau_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \right)$ geschrieben:

$$\frac{\partial(\rho\vec{v})}{\partial t} + \nabla(\rho\vec{v}\vec{v}) = \rho\vec{g} + \nabla\bar{T} \quad (3.7)$$

wobei $\frac{\partial(\rho\vec{v})}{\partial t}$ die zeitliche Impulsänderung, $\nabla(\rho\vec{v}\vec{v})$ die Impulsströme, $\rho\vec{g}$ die Gravitationskraft, die einer Volumenkraft entspricht, und $\nabla\bar{T}$ die Oberflächenkräfte darstellen.

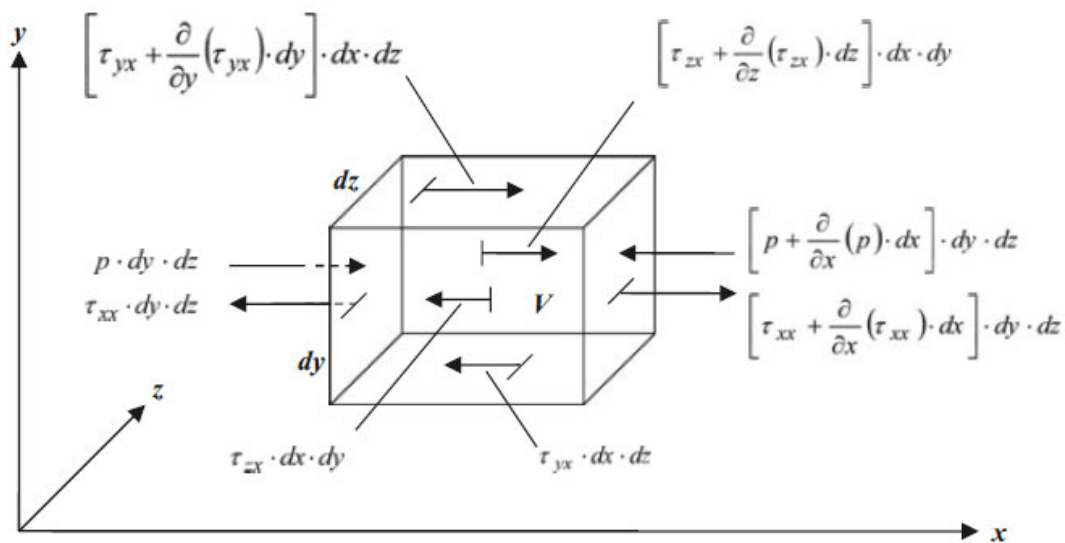


Abbildung 2: Kräfte in x-Richtung an einem infinitesimal kleinen Volumenelement [4]

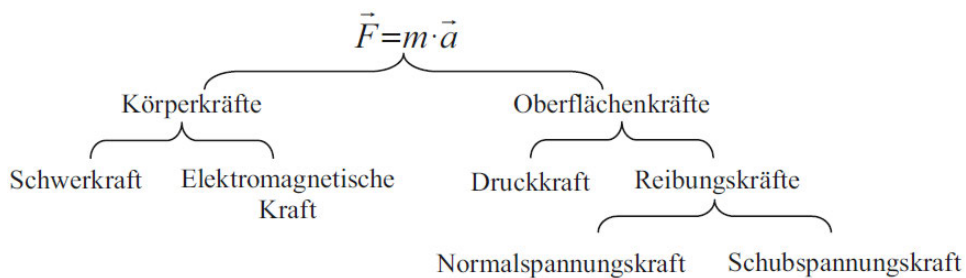


Abbildung 3: Zusammensetzung der Kraft für Fluide [4]

3.1.3 Navier-Stokes-Gleichungen

Der Ansatz von Stokes für Newtonsche Fluide wird wie folgt formuliert:

- Die Normalspannungen sind neben einem Druckanteil proportional zu den Form- und Volumenänderungen.

- Die Schubspannungen sind proportional zur Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}(\tau \sim \dot{\gamma})$.
- Die Proportionalitätskonstante ist die dynamische Viskosität μ .

Die Cauchy-Bewegungsgleichungen (3.4)(3.5)(3.6) mit dem Ansatz von Stokes, der auf den Cauchy-Spannungstensor $\bar{\bar{T}}$ angewendet wird, liefern dann den Navier-Stokes-Gleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v u)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w u)}{\partial z} \\ = \rho g_x - \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left(2\mu \frac{\partial u}{\partial x} + \Lambda(\nabla \vec{v}) \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\mu \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \right) \\ + \frac{\partial}{\partial z} \left(\mu \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \right) \end{aligned} \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho v)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u v)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v v)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w v)}{\partial z} \\ = \rho g_y - \frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\mu \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(2\mu \frac{\partial v}{\partial y} + \Lambda(\nabla \vec{v}) \right) \\ + \frac{\partial}{\partial z} \left(\mu \left(\frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z} \right) \right) \end{aligned} \quad (3.9)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u w)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v w)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho w w)}{\partial z} \\ = \rho g_z - \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\mu \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\mu \left(\frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z} \right) \right) \\ + \frac{\partial}{\partial z} \left(2\mu \frac{\partial w}{\partial z} + \Lambda(\nabla \vec{v}) \right) \end{aligned} \quad (3.10)$$

wobei Λ den viskosen Volumen-Faktor ($\Lambda = \hat{\mu} - \frac{2}{3}\mu$), $\nabla \vec{v}$ die Volumenänderung, μ die dynamische Viskosität und $\bar{\bar{\epsilon}}$ den Formänderungstensor darstellen. Die Navier-Stokes-Gleichungen werden außerdem in der Vektorschreibweise (konservative Form) mit dem Nabla-Operator und dem deviatorischen Spannungstensor $\bar{\bar{\tau}}$, der dem Viskositätsterm des Cauchy-Spannungstensors entspricht, geschrieben:

$$\frac{\partial(\rho \vec{v})}{\partial t} + \nabla(\rho \vec{v} \vec{v}) = \rho \vec{g} - \nabla p + \nabla \bar{\bar{\tau}} \quad (3.11)$$

wobei ∇p die Druckkraft und $\nabla \bar{\bar{\tau}}$ die Reibungskräfte (Normalspannungskraft, Schubspannungskraft) darstellen. Für inkompressible viskose Fluide, die den betrachten

Fluiden entsprechen, gilt die folgenden Stokes-Spannungs-Konstitutivgleichung (Stokes's stress constitutive equation):

$$\bar{\tau} = \mu(\nabla\vec{v} + \nabla\vec{v}^T) \quad (3.12)$$

wobei \vec{v}^T der transponierte Vektor von \vec{v} ist. Durch Einsetzen der Gleichung (3.12) in die Gleichung (3.11) ergibt sich die folgende Impulsgleichung für inkompressible viskose Fluide:

$$\frac{\partial(\rho\vec{v})}{\partial t} + \nabla(\rho\vec{v}\vec{v}) = \rho\vec{g} - \nabla p + \nabla(\mu(\nabla\vec{v} + \nabla\vec{v}^T)) \quad (3.13)$$

3.1.4 Transportgleichung

Bei der Anwendung der Finiten-Volumen-Methode (FVM), die dem Kern von ANSYS Fluent entspricht, ist es hilfreich, eine allgemeine Transportgleichung zu betrachten. Die Transportgleichung für eine beliebige (skalare) Größe ϕ wird wie folgt formuliert:

$$\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} + \nabla(\rho\phi\vec{v}) = \nabla(\Gamma\nabla\phi) + S_\phi \quad (3.14)$$

wobei $\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t}$ den instationären Term, $\nabla(\rho\phi\vec{v})$ den Konvektionsterm, $\nabla(\Gamma\nabla\phi)$ den Diffusionsterm und S_ϕ den Quellterm darstellen. In der Tabelle 1 werden die allgemeine Transportgleichung und die Grundgleichungen der Strömungsmechanik verglichen.

Gleichung	ϕ	Γ	S_ϕ
Kontinuität	1	1 (beliebig)	0
NS-x	u	μ	$-\partial p/\partial x + \rho g_x$
NS-y	v	μ	$-\partial p/\partial y + \rho g_y$
NS-z	w	μ	$-\partial p/\partial z + \rho g_z$
Energie	T	λ/c_p	q_T/c_p

Tabelle 1: Vergleich zwischen der allgemeinen Transportgleichung und den Grundgleichungen der Strömungsmechanik [5]

3.2 Strömung im porösen Medium

3.2.1 Poröses Medium (PM) und seine Eigenschaft

Poröse Struktur befindet sich sowohl in vielen technischen Anwendungen (Filter in Klimaanlage, Rohrbündel in Wärmetauscher) als auch in der Natur (Erdboden, Sandboden). Innerhalb eines Materials mit der porösen Struktur verteilen sich

Hohlräume, die die Fluide durchströmen lassen. Die betrachteten porösen Komponenten in dieser Arbeit sind die poröse Elektrode (PE) in der VRFB und die poröse Flüssigkeits-Gas-Diffusionsschicht (LGDL) in der PEMEC-Anode (Abbildung 4).

Für die Charakterisierung eines porösen Mediums ist die sogenannte Porosität (ε) zuständig. Sie ist eine geometrische Eigenschaft und entspricht dem Verhältnis zwischen dem Hohlraumvolumen (V_p) und dem gesamten Volumen (V) eines porösen Materials.

$$\varepsilon = \frac{V_p}{V} \quad (3.15)$$

Im Rahmen der betrachteten porösen Komponenten wird die Porosität meist rechnerisch mit den anderen Materialangaben bestimmt. Wenn es beispielweise um eine faserbasierte poröse Elektrode geht, wird die Porosität durch das PE-Flächengewicht (m_{PE}/A_{PE}), die PE-Dicke (th_{PE}) und die Faserdichte (ρ_{Faser}) berechnet.

$$\varepsilon_{PE} = 1 - \frac{\rho_{PE}}{\rho_{Faser}} = 1 - \frac{m_{PE}/A_{PE}}{th_{PE} \rho_{Faser}} \quad (3.16)$$

Neben der Porosität ist der durchschnittliche Faser- oder Partikeldurchmesser auch eine relevante Größe. Wenn der Hersteller diesen Durchmesser nicht angibt, kann er beispielweise mithilfe der Röntgen-Computer-Tomografie (μ CT-Scan) und einer Bildbearbeitungssoftware bestimmt werden [6].



Abbildung 4: Titanfilz für die Diffusionsschicht in PEMEC-Anode

3.2.2 Ansätze zur Strömungsmodellierung im porösen Medium

Zur Modellierung der Strömung im porösen Medium gibt es zwei grundlegende Ansätze:

- Mikro-Modellierung, bei der die wahre Geometrie des porösen Mediums näherungsweise abgebildet wird.
- Makro-Modellierung, bei der die grundlegenden Wirkungen des porösen Mediums auf die Strömung berücksichtigt und abgebildet werden.

Bei der Mikro-Modellierung wird durch die abgebildete Porennetz-Struktur die reale physikalische Strömung dargestellt. Diese Struktur muss entweder gescannt [6] und modelliert, oder mit einer angenäherten Geometrie abgebildet werden [7]. Eine andere Herausforderung bei diesem Ansatz ist die Vernetzung, wobei ein ausreichendes feines Netz für die ganze Berechnungsdomäne einschließlich aller Poren gewährleistet werden muss. Neben dem Divergenz-Problem muss für solches Netz eine sehr hohe Rechenzeit mitgerechnet werden, auch wenn die poröse Komponente separat betrachtet wird. Trotz dieses Aufwands wird tatsächlich für manche Untersuchungen dieser Ansatz genutzt, wenn die Wirkung der Mikrostruktur der porösen Komponente von besonderem Interesse ist. Als Beispiel ist die Untersuchung von Yin [8] über den Einfluss des LGDL-Kontaktwinkels auf den Wassertransport in PEM-Brennstoffzelle (PEMFC).

Bei der Makro-Modellierung wird der ganze Bereich des porösen Mediums zu einer Domäne zusammengefasst und auf dieser Domäne wird ein modifiziertes Navier-Stokes-Gleichungssystem angewendet, um die Wirkung des porösen Mediums auf die Strömung abzubilden. Mit diesem Ansatz werden der ganze Aufwand bei der Geometrieerzeugung und die hohe Rechenzeit vermieden. Die Schwierigkeit besteht jedoch darin, die passenden Parameter für das modifizierte Navier-Stokes-Gleichungssystem festzulegen. Dieser Ansatz ist für Untersuchungen, bei denen der Simulationsaufwand begrenzt ist und die poröse Komponente nur ein Teil des betrachteten Objektes ist, geeignet. Aufgrund der genannten Kriterien wird dieser Ansatz für die Strömungssimulation in dieser Arbeit, sowohl für die VRFB als auch für die PEMEC, ausgewählt. Auch wird dieser Ansatz in der Bachelorarbeit vom Vorgänger Nix [9] und den anderen Fluid-Flow-Untersuchungen für PEMEC [10] und VRFB genutzt. Die Makro-Modellierung wird im folgenden Abschnitt genauer beschrieben und als poröses Medium-Modell (PM-Modell) genannt.

3.2.3 PM-Modell in ANSYS Fluent

Oberflächengeschwindigkeit

Da in der Berechnungsdomäne die Porennetz-Struktur nicht abgebildet wird, wird standardmäßig die sogenannten Oberflächengeschwindigkeit (superficial velocity) für die

Grundgleichungen innerhalb der porösen Domäne verwendet. Diese Geschwindigkeit basiert auf dem Volumenstrom der betrachteten Phase und wird so berechnet, als ob diese Phase die einzige Substanz in der Berechnungsdomäne wäre.

$$u_{s,p} = \frac{Q_p}{A} \quad (3.17)$$

wobei $u_{s,p}$ die Oberflächengeschwindigkeit einer Phase p , Q_p der Volumenstrom der Phase p und A die gesamte verfügbare Querschnittsfläche sind. Beim porösen Medium wird die Beziehung zwischen der Oberflächengeschwindigkeit und der physikalischen Geschwindigkeit (für 1D-Strömung) so ausgedrückt:

$$u = \frac{u_s}{\varepsilon} \quad (3.18)$$

wobei u die gemittelte physikalische Geschwindigkeit ist. Durch Verwendung dieser Oberflächengeschwindigkeit wird die Kontinuität der Geschwindigkeitsvektoren über die Grenzfläche des porösen Mediums sichergestellt. Im Vergleich zur Formulierung mit physikalischer Geschwindigkeit liefert diese Formulierung zwar eine gute Darstellung für den Druckverlust durch einen porösen Bereich, aber sie kann den Geschwindigkeitsanstieg in der porösen Zone nicht vorhersagen und schränkt daher die Genauigkeit des Modells ein.

Bei der Verwendung von Oberflächengeschwindigkeit muss das PM-Modell die Geschwindigkeit in den Grundgleichungen nicht modifizieren, da die Porosität nicht mitgerechnet wird und die Berechnungsdomäne gleichbleibt. Demzufolge werden die in Grundgleichungen verwendeten Geschwindigkeiten wie normal (\vec{v}) gekennzeichnet, obwohl sie mit der Oberflächengeschwindigkeit gemeint werden können.

Ansatz und Quellterm vom PM-Modell

Wenn ein Fluid durch ein poröses Medium strömt, geht ein Teil der kinetischen Energie verloren. Um diesen Verlust nachzubilden, wird ein empirischer Strömungswiderstand in der Domäne mit dem porösen Medium eingesetzt. Im Grunde fügt das Modell den herkömmlichen Impulsgleichungen eine Impulssenke bzw. einen Quellterm hinzu.

$$M_i = - \left(\frac{\mu}{K_i} v_i + C_{2,i} \frac{\rho}{2} |v| v_i \right) \quad (3.19)$$

wobei M_i den Quellterm für i -Richtung (x, y, z), $\frac{\mu}{K_i} v_i$ den Viskositätsverlustterm (Darcy-Gesetz) und $C_{2,i} \frac{\rho}{2} |v| v_i$ den Trägheitsverlustterm darstellen. Diese Impulssenke trägt zum Druckgradienten in der porösen Domäne bei und erzeugt einen Druckabfall, der proportional zur Geschwindigkeit bzw. Quadratgeschwindigkeit eines Fluids ist. Dieser Ansatz stimmt wiederum mit der Grundkenntnis, bei der der Druckverlust mit steigender

Strömungsgeschwindigkeit wächst, überein. Für den Fall eines homogen porösen Mediums ($K_i = K$ und $C_{2,i} = C_2$) wird der Quellterm aus der Gleichung (3.19) in der Vektorschreibweise wie folgt geschrieben:

$$\vec{M} = -\left(\frac{\mu}{K}\vec{v} + C_2\frac{\rho}{2}|\vec{v}|\vec{v}\right) \quad (3.20)$$

Darcy-Gesetz und Permeabilität

In einer laminaren Strömung (niedrige Reynoldszahl) ist der Druckverlust proportional zur Geschwindigkeit und die Konstante C_2 kann zu Null gesetzt werden. Für diesen Fall kann das PM-Modell zum Darcy-Gesetz vereinfacht werden.

$$\vec{M} = \nabla p = -\frac{\mu}{K}\vec{v} \quad (3.21)$$

wobei K die Permeabilität ist. Diese Permeabilität und die Porosität sind die wichtigsten Eingabeparameter für das PM-Modell in ANSYS Fluent. Die Bestimmung dieser Permeabilität erfolgt entweder experimental oder rechnerisch beispielweise mit dem Carman-Kozeny-Ansatz, der in der Bachelorarbeit von Nix [9] verwendet wird. Die experimentale Bestimmung basiert auf einer Druckverlust-Messung, bei der das betrachtete Fluid durch das betrachtete poröse Material fließt. Die Permeabilität wird dann mit der folgenden Gleichung, die ursprünglich aus der Beziehung zwischen dem Darcy-Gesetz und der Druck-Geschwindigkeitskurve stammt, berechnet:

$$K = \frac{\mu \cdot th}{C_1} \quad (3.22)$$

wobei th die Dicke des porösen Materials in Strömungsrichtung und C_1 die Steigung der Druck-Geschwindigkeits-Kurve ($\Delta p = C_1 u$) sind.

Anders als die Porosität hängt die Permeabilität nicht nur mit dem porösen Material, sondern auch mit dem durchgeströmten Fluid ab. Aus diesem Grund wird diese Größe in Flüssigkeits- und Gaspermeabilität unterteilt. Weiterhin wird die Permeabilität anhand der Strömungsrichtung unterteilt: In-Plane- und Through-Plane-Permeabilität. Diese Unterteilung bezieht sich auf die Geometrie des porösen Materials der betrachten elektrochemische Energiesysteme, die im Allgemein plattenförmig ist. In-Plane entspricht nämlich der tangentialen Richtung zu dem plattenförmigen porösen Material und Through-Plane der Normalrichtung. Im PM-Modell von ANSYS Fluent können die In-Plane- und die Through-Plane-Permeabilität separat eingestellt werden. Unter der Annahme eines homogenen porösen Mediums stimmen jedoch In-Plane- und Through-Plane-Permeabilität überein.

Die SI-Einheit für die Permeabilität ist gleich wie die für die Fläche (m^2). Aber in technischen Anwendungen wird meist Darcy (D) als Einheit verwendet.

$$1 D \approx 10^{-12} m^2$$

Relative Viskosität

Für viskose Strömungen wird die sogenannte effektive Viskosität eingeführt, um die Wirkung des porösen Mediums auf den Diffusionsterm in den Impulsgleichungen zu berücksichtigen.

$$\mu_e = \mu \mu_r \quad (3.23)$$

wobei μ_e die effektive Viskosität, μ die herkömmliche Viskosität eines Fluids und μ_r die relative Viskosität sind. In ANSYS Fluent werden die folgenden Untermodelle implementiert, um die relative Viskosität in Abhängigkeit mit der Porosität zu berechnen.

- Brinkman-Korrektur
- Einstein Formel
- Breugem-Korrelation

Gemäß der Veröffentlichung von Lafmejani [10] wird für das instationäre VOF-Modell im Abschnitt 6.4.2 die Breugem-Korrelation [11] ausgewählt.

$$\mu_r = \begin{cases} \frac{1}{2} \left(\varepsilon - \frac{3}{7} \right) & \text{für } \varepsilon \geq \frac{3}{7} \\ 0 & \text{für } \varepsilon < \frac{3}{7} \end{cases} \quad (3.24)$$

Diese effektive Viskosität ist ebenfalls in den Modellen für VRFB anwendbar, aber es ist noch unbekannt, ob sie eine positive oder eine negative Wirkung auf die Genauigkeit des Modells hat. Demzufolge wird diese effektive Viskosität lediglich in den Modellen für die PEMEC-Anode verwendet.

3.3 Mehrphasenströmung

3.3.1 Strömungsregime

Für die numerische Berechnung von Mehrphasenströmungen ist es wichtig, wie das Strömungsregime bzw. das -muster grob aussieht. Die Mehrphasenströmungsregimes können hinsichtlich des Phasenzustands in vier Kategorien eingeteilt werden [12]:

- Gas-Flüssigkeits- oder Flüssigkeits-Flüssigkeits-Strömung (gas-liquid / liquid-liquid-flow).
- Gas-Feststoff-Strömung (gas-solid-flow).

- Flüssigkeits-Feststoff-Strömung (liquid-solid-flow).
- Dreiphasen-Strömung (three phase-flow).

wobei die Gas-Flüssigkeits-Strömung, die der betrachteten Strömung dieser Arbeit entspricht, die folgenden Hauptregimes für einen allgemeinen Fall hat (siehe Abbildung 5) [12]:

- Blasenströmung (bubbly flow), bei der diskrete Gasblasen in einer kontinuierlichen Flüssigkeit strömen.
- Tropfenströmung (droplet flow), bei der diskrete Flüssigkeitstropfen in einem kontinuierlichen Gas strömen.
- Schwall-Strömung (slug flow), bei der große Blasen in einer kontinuierlichen Flüssigkeit strömen.
- Geschichtete oder freie Oberflächenströmung (stratified/free-surface flow), bei der unmischbare Fluide eine klar definierte Grenzfläche bilden.

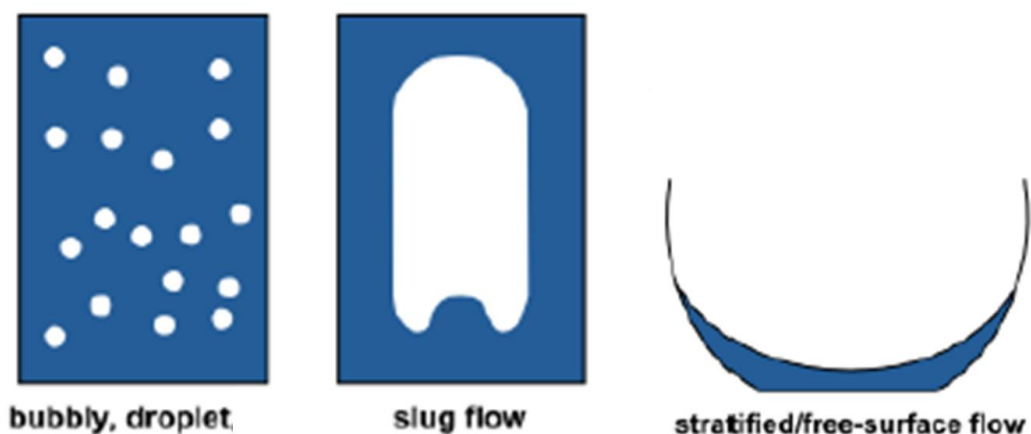


Abbildung 5: Strömungsregimes für die Gas-Flüssigkeits-Strömung [12]

Neben den genannten Regimes existieren noch weitere Strömungsregimes, die jedoch für spezielle Geometrien oder Situationen gelten. In der Studie von Shao [13] werden anhand der verschiedenen Studien sechs Strömungsregimes für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in Mikrokanälen identifiziert (Abbildung 6):

- Die **Blasen-** und **Taylor-**Strömungen (bubbly and Taylor flows), bei denen die Wirkung von Oberflächenspannung dominant ist.
- Die **Abwanderungs-** und **Taylor-Ring-**Strömungen (churn and Taylor-annular flows), bei denen die Oberflächenspannung und die Trägheitskraft gleiche Wirkungen haben.

- Die **dispergierten** und **ringförmigen** Strömungen (dispersed and annular flows), bei denen die Wirkung von Trägheitskraft dominant ist.

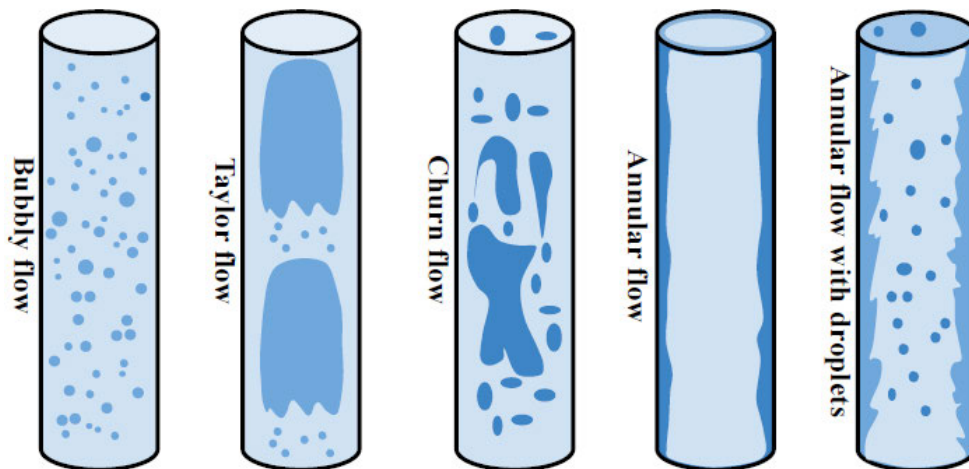


Abbildung 6: Strömungsregimes für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen Rohr [10]

Diese Studie zeigt ebenfalls eine Vielzahl von Parameter, die das Strömungsregime beeinflussen können: die Kanalgröße, die Oberflächengeschwindigkeit der Phasen (Bsp. In der Abbildung 7), die Oberflächenspannung der Flüssigphase und die Benetzbarkeit der Kanalwand (Bsp. in der Abbildung 8). Mit dem aufgenommenen Video von Shaban und Tavoularis [14] kann der Einfluss vom Gas-Volumenstrom, der mit der Oberflächengeschwindigkeit der Gasphase zusammenhängt, deutlich erkannt werden. Weiterhin wird es bei der Studie von Shao [13] beschlossen, dass die Oberflächengeschwindigkeit, im Vergleich zu der Reynolds- und der Weberzahl, den Übergang von Regime am besten repräsentieren kann.

Für den Zusammenhang mit der Oberflächengeschwindigkeit wird die sogenannte Strömungsregime-Karte bzw. die Strömungskarte, die die Oberflächengeschwindigkeit von Gas- und Flüssigphase (u_{GS} , u_{LS}) als Koordinaten verwendet, eingeführt (Bsp.: Abbildung 9). Mit dieser Karte kann anhand der Oberflächengeschwindigkeiten das auftretende Strömungsregime vorhergesagt werden. Das Vorhersagen von Strömungsregime ist wichtig dafür, ein passendes Mehrphasenmodell auszuwählen. Eine universelle Strömungskarte existiert leider nicht, weil die restlichen Einflussfaktoren (Wandbenetzbarkeit, Oberflächenspannung, Kanalgröße) vom betrachteten System abhängig sind.

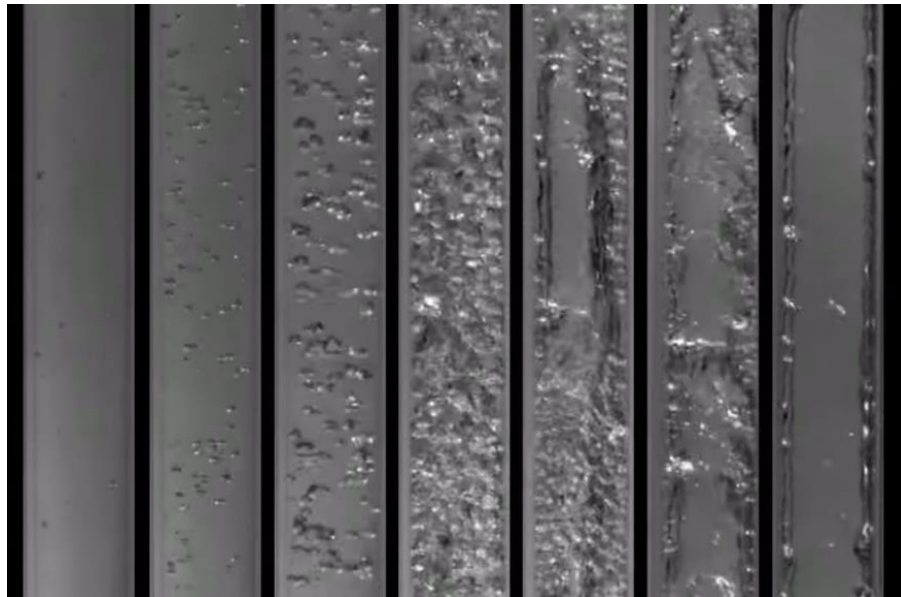


Abbildung 7: Einfluss von Gasvolumenstrom auf die Strömungsregime für Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen Rohr [14]. Der Gasvolumenstrom steigt von links nach rechts auf.

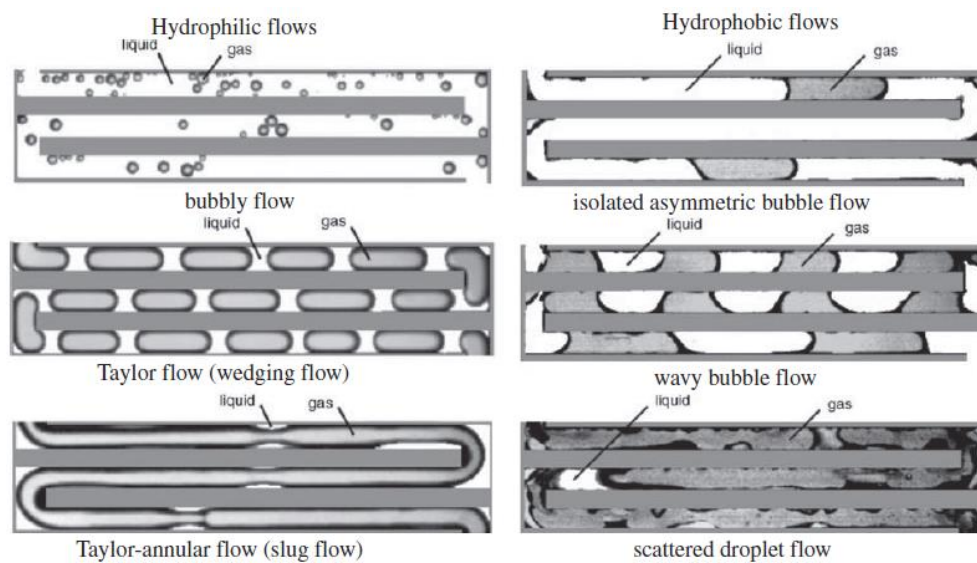


Abbildung 8: Einfluss der Wandbenetzbarkeit auf das Strömungsregime für die Luft-Wasser-Strömung in einem quadratischen Kanal mit $d_h = 525\mu\text{m}$ [15]. Die hydrophilen Strömungen werden in einem Siliziumkanal mit Glasplatte realisiert ($\theta \approx 9^\circ$ für Silizium und $\theta \approx 25^\circ$ für Glas); Die hydrophoben Strömungen werden im gleichen Kanal mit Teflon-Beschichtung ($\theta \sim 120^\circ$) realisiert.

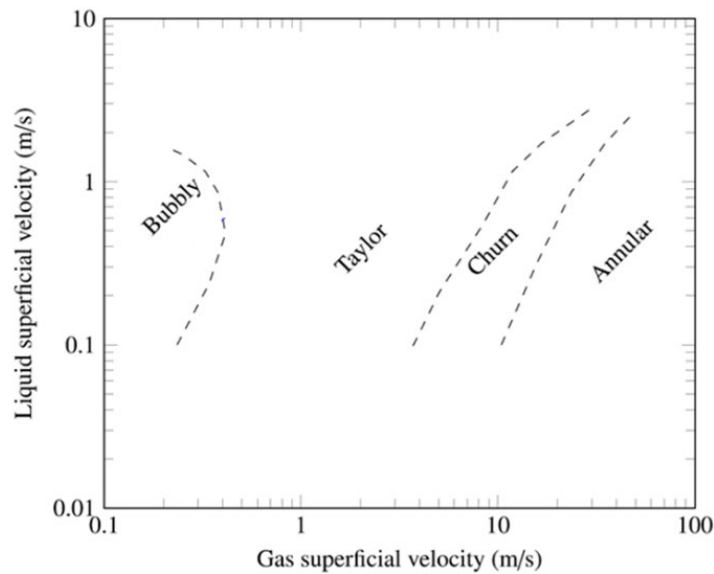


Abbildung 9: Strömungsregime-Karte für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen dreieckigen Mikrokanal mit dem Größe von 0,866 mm [16]

3.3.2 Oberflächenspannung, Grenzflächenspannung und Kontaktwinkel

In diesem Abschnitt werden die relevanten physikalischen Größen für die Mehrphasenströmung vorgestellt und erklärt.

Oberflächenspannung

Die Anziehungskräfte zwischen den Bausteinen eines Stoffes (Atome, Moleküle, Ionen) werden Kohäsionskräfte genannt. Entsprechend gibt es an Grenzflächen verschiedener Stoffe ebenfalls Anziehungskräfte, die zwischen deren (verschiedenen) Bausteinen wirken. Diese Kräfte werden als Adhäsionskräfte bezeichnet und durch ihre Wirkungen in Flüssigkeiten entsteht die sogenannte Oberflächenspannung. Als Beispiel ist bei Wasser-Luft-System die Netto-Anziehungskraft an einem Wassermolekül aufgrund seiner umhüllenden benachbarten Moleküle gleich null, wenn dieses Wassermolekül sich weit genug entfernt von der Wasseroberfläche befindet (Abbildung 10a). Bei einem Wassermolekül an der Wasseroberfläche ist jedoch wegen der fehlenden Nachbarn die Netto-Anziehungskraft normal zur Oberfläche und mit gewisser Kraft nach innen gerichtet (Abbildung 10b). Es gibt zwar Luftmoleküle auf der anderen Seite der Grenzfläche, aber ihre Anziehungskräfte können aufgrund der geringen Luftdichte vernachlässigt werden. Wenn ein Wassermolekül aus dem Inneren an die Wasseroberfläche sich bewegen möchte (Abbildung 10c), dann muss eine Arbeit gegen die genannte Kraft des Moleküls an der Oberfläche verrichtet werden. Demzufolge besitzen die Moleküle an der Oberfläche eine um diesen Arbeitsbetrag höhere Energie als die im Inneren, wobei diese Art von potenzieller Energie als Oberflächenenergie genannt

wird. Es ist also energetisch günstiger, wenn das flüssige Wasser ihre Oberfläche bzw. Grenzfläche minimiert. Da die geringste Oberfläche für einen Körper im dreidimensionalen Raum eine Kugeloberfläche ist, wird entweder der kugelförmige Wassertropfen oder die kugelförmige Luftblase gebildet. Dieses Phänomen gilt auch für andere Flüssigkeits-Gas-Systeme. [17] [18]

Bei der Vergrößerung einer Flüssigkeitsoberfläche A um ΔA müssen mehr Moleküle zur Oberfläche oder in oberflächennahe Bereiche gebracht werden, was eine zur Oberflächenänderung proportionale Arbeit ΔW erfordert. Der Proportionalitätsfaktor

$$\gamma = \frac{\Delta W}{\Delta A} \tag{3.25}$$

ist die spezifische Oberflächenenergie, die meist als Oberflächenspannung bezeichnet wird.

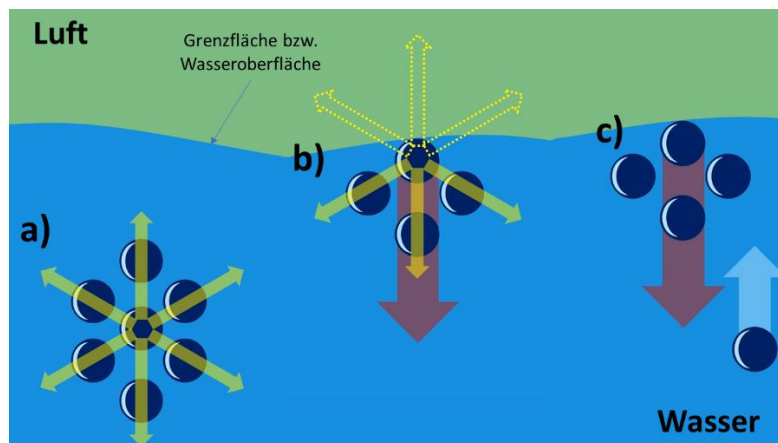


Abbildung 10: Darstellung für die Anziehungskräfte auf die Wassermoleküle in einem Wasser-Luft-System, wobei ein Molekül weit entfernt von der Oberfläche sich befindet (a) und das andere Molekül an der Oberfläche liegt (b,c). (in Anlehnung an [18])

Grenzflächenspannung

Von Oberflächenspannung wird im engeren Sinn nur dann gesprochen, wenn die Flüssigkeit an ihren eigenen gesättigten Dampf grenzt. In allen anderen Fällen handelt es sich korrekterweise um Grenzflächenspannungen. Auf ein Randmolekül wirken dann sowohl Kohäsionskräfte in die Flüssigkeit hinein als auch Adhäsionskräfte in Richtung des angrenzenden Mediums.

Im Weiteren wird die Gestalt der Grenzfläche betrachtet, wenn eine Flüssigkeit in einem Gefäß im Schwerfeld sich befindet. Dabei tritt unter der Wirkung der Oberflächenspannung die sogenannte Randkrümmung auf. Am Molekül M der

Flüssigkeit grenzen die drei Medien Wand (1), Luft (2) und Flüssigkeit (3) aneinander (Abbildung 11a). Es greifen daher am Molekül drei Grenzflächenspannungen an. Die beiden Grenzflächenspannungen γ_{12} und γ_{13} sind entgegengesetzt gerichtet und haben ungleiche Beträge. Die Grenzflächenspannung γ_{23} hat bei dieser Zeichnung keinen Einfluss auf das Gleichgewicht, da waagerechte Spannungen von der Wand kompensiert werden. Das System befindet sich also nicht im Gleichgewicht. Da hier γ_{12} größer ist als γ_{13} , wird das Molekül nach oben gezogen und somit die Flüssigkeitsoberfläche sich krümmt. Dadurch entsteht eine Komponente von γ_{23} , die nach unten gerichtet ist. Im Gleichgewicht gilt dann:

$$\gamma_{13} + \gamma_{23} \cdot \cos \theta = \gamma_{12} \quad \text{oder} \quad \cos \theta = \frac{\gamma_{12} - \gamma_{13}}{\gamma_{23}} \quad (3.26)$$

wobei θ der Kontaktwinkel, γ_{12} (γ_{13}) die Grenzflächenspannung zwischen Wand und Luft (Flüssigkeit), γ_{23} die Grenzflächenspannung zwischen Flüssigkeit und Luft, die meist näherungsweise mit der Oberflächenspannung γ der Flüssigkeit gleichgesetzt wird, sind. Für $\gamma_{12} > \gamma_{13}$ wird $\theta < 90^\circ$, d.h. die Oberfläche krümmt sich wie in der Abbildung 11b von oben gesehen konkav. Ist $\gamma_{12} < \gamma_{13}$, so wird $\theta > 90^\circ$, d.h. die Oberfläche krümmt sich konvex.

Die Oberflächenspannung einer Flüssigkeit bzw. die Grenzflächenspannung zwischen Gas und Flüssigkeit wird experimentell aus direkt messbaren Kräften oder Effekten der Kraftwirkung ermittelt. Für das Wasser-Sauerstoff-System in dieser Arbeit wird jedoch näherungsweise die Wasser-Luft-Grenzflächenspannung aus der Literatur genommen, die bei der Umgebungsbedingung (27°C, 1atm) 0.072 N/m beträgt. Auch in der Studie von Lafmejani [10] wird dieser Wert verwendet und in der Studie von Han [19] wird ein etwa gleicher Wert (0.0625 N/m) genutzt.

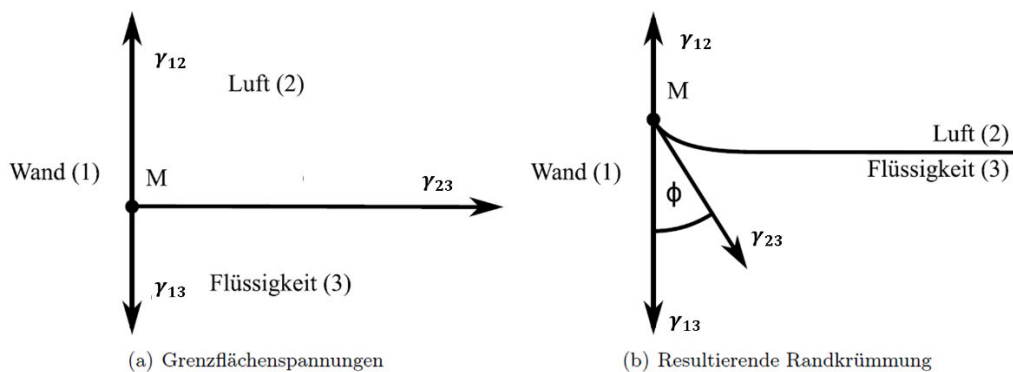


Abbildung 11: Darstellung eines Flüssigkeits-Luft-Wand-Systems [17]

Kontaktwinkel

Wie in der Abbildung 11b und in der Abbildung 12 dargestellt, ist der Kontaktwinkel gleich der Winkel zwischen einer festen Oberfläche und einer Gas-Flüssigkeits-Grenzfläche. Dieser Winkel wird auch als Wandhaftungswinkel genannt und er ist ein Maß für den Benetzungsgrad zwischen einer Flüssigkeit und einer festen Wand. Je stärker die Benetzung ist, desto kleiner ist der Winkel. Der Benetzungsgrad hängt von den Fluiden, dem Material der Wandoberfläche und ihrer Beschaffenheit (z.B. Rauheit) ab.

Hinzukommend werden für den Benetzungsgrad zwischen dem flüssigen Wasser und einer festen Wand die Begriffe Hydrophile und Hydrophobie eingeführt. Beim hydrophilen Wandmaterial ist der Kontaktwinkel kleiner 90° , damit das Wasser und das Wandmaterial stark vernetzt sind. Im Gegensatz dazu ist beim hydrophoben Wandmaterial der Kontaktwinkel größer als 90° , damit das Wasser und das Wandmaterial schwach vernetzt sind. Solche Wände mit dem hydrophoben Material weisen daher eine Undurchlässigkeit für Wasser auf.

Die Bestimmung dieses Kontaktwinkels erfolgt durch verschieden Messmethoden, bei denen der resultierende Kontaktwinkel direkt gemessen wird. Für den Wandhaftungswinkel im VOF-Modell für PEMEC-Anode (Abschnitt 6.4.2) wird der Wert in der Studie von Lafmejani [10] verwendet, daher der Kontaktwinkel zwischen der FC-Wand aus Titan und dem Wasser 70° beträgt.

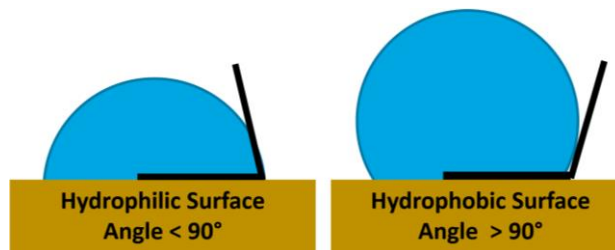


Abbildung 12: Darstellung von einer hydrophilen Oberfläche und einer hydrophoben Oberfläche [20]

3.3.3 Mehrphasenmodell: Euler-Euler-Ansatz, VOF- und Mixture-Modell

Zur numerischen Berechnung von Mehrphasenströmungen existieren derzeit zwei Ansätze:

- Euler-Lagrange-Ansatz
- Euler-Euler-Ansatz

In den meisten technischen Anwendungen inklusive der betrachteten Flüssigkeits-Gas-Strömung in PEMEC-Anode ist Euler-Euler ein passender günstiger Ansatz, deswegen wird er für diese Arbeit gewählt und im Folgenden beschrieben. Auch in der Doktorarbeit

von Nierhaus [21] wird der Ansatz für eine allgemeine dispergierte Zweiphasenströmung in elektrochemischen Prozessen gewählt.

Euler-Euler-Ansatz

Beim Euler-Euler-Ansatz werden die Phasen mathematisch als durchdringende Kontinua behandelt. Da das Volumen einer Phase nicht von den anderen Phasen besetzt werden kann, wird das Konzept des phasischen Volumenanteils eingeführt. Diese Volumenanteile werden als kontinuierliche Funktionen von Raum und Zeit angenommen und ihre Summe beträgt eins. Die Erhaltungsgleichungen für jede Phase weisen eine ähnliche Struktur auf und der Unterschied liegt meist nur am Wert des Volumenanteils. Diese Gleichungen werden gekoppelt, indem konstitutive Beziehungen, die aus empirischen Informationen erhalten werden, bereitgestellt werden.

In ANSYS Fluent stehen drei Euler-Euler-Mehrphasenmodelle zur Verfügung:

- Das Eulerian-Modell, bei dem die Erhaltungsgleichungen für jede Phase gelöst werden.
- Das VOF-Modell (Volume of fluid), bei dem die Erhaltungsgleichungen für das ganze Gemisch gelöst werden.
- Das Mixture-Modell, bei dem die Erhaltungsgleichungen für das ganze Gemisch gelöst werden.

Das Eulerian-Modell wird im Rahmen dieser Arbeit nicht betrachtet, da eine Referenzstudie über die Implementierung dieses Modells für die betrachtete Zweiphasenströmung noch nicht existiert.

VOF-Modell

Das VOF-Modell ist bekannt für seine Oberflächenverfolgungs-Technik, die auf ein festes Euler-Netz angewendet wird. Es ist für zwei oder mehrere unmischbare Fluide, bei denen die Grenzflächenform zwischen den Fluiden von Interesse ist, ausgelegt. Im VOF-Modell wird ein einziger Satz von Impulsgleichungen für die Fluide geteilt, und der Volumenanteil jeder der Fluide in jeder Rechenzelle wird in der gesamten Domäne verfolgt. Zu den Anwendungen des VOF-Modells zählen geschichtete Strömungen, Strömungen mit freier Oberfläche, Füllen, Schwappen und die Bewegung von großen Blasen in einer Flüssigkeit.

Beim VOF-Modell werden die folgenden Grundgleichungen für den Fall einer laminaren isothermen Mehrphasenströmung gelöst:

- Kontinuitätsgleichung für das ganze Gemisch.

- Impulsgleichung für das ganze Gemisch, wobei das Geschwindigkeits- und das Druckfeld gemeinsam von allen Phasen verwendet werden.
- Volumenanteilgleichung für jede Sekundärphase.

Die in den Grundgleichungen verwendeten Fluideigenschaften sind volumengemittelte Größen, die durch alle vorhandenen Phasen und für jedes Volumenelement bestimmt werden.

$$\rho = \rho_m = \sum_{q=1}^n \alpha_q \rho_q \quad (3.27)$$

$$\mu = \mu_m = \sum_{q=1}^n \alpha_q \mu_q \quad (3.28)$$

wobei n die Phasenanzahl, α_q der Volumenanteil der Phase q , ρ_m die volumengemittelte Dichte des Gemisches und μ_m die volumengemittelte Viskosität des Gemisches sind.

Die Volumenanteilgleichung für eine Sekundärphase q , die auf der Kontinuitätsgleichung für die Phase q basiert, wird wie folgt definiert:

$$\frac{1}{\rho_q} \left[\frac{\partial(\alpha_q \rho_q)}{\partial t} + \nabla(\alpha_q \rho_q \vec{v}_q) \right] = S_{\alpha_q} + \sum_{p=1}^n (\dot{m}_{pq} - \dot{m}_{qp}) \quad (3.29)$$

wobei $\sum_{p=1}^n (\dot{m}_{pq} - \dot{m}_{qp})$ den Massenaustausch und S_{α_q} den Quellterm, der bei Standardfall null ist, darstellen. Der Volumenanteil der Primärphase wird standardmäßig durch die grundlegende Gleichung, bei der die Summe aller Volumenanteile gleich eins ist ($\sum_{p=1}^n \alpha_q = 1$), bestimmt.

Die Kontinuitätsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Kontinuitätsgleichung für ein Fluid (3.2), wie folgt definiert:

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \vec{v}) = 0 \quad (3.30)$$

wobei \vec{v} das gemeinsame Geschwindigkeitsfeld ist.

Die Impulsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Impulsgleichung für ein inkompressibles viskoses Fluid (3.13), wie folgt definiert:

$$\frac{\partial(\rho_m \vec{v})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot [\mu_m (\nabla \vec{v} + \nabla \vec{v}^T)] + \rho_m \vec{g} + \vec{F}_{vol} \quad (3.31)$$

wobei p das gemeinsame Druckfeld und \vec{F}_{vol} eine zusätzliche Volumenkraft (z.B. die Oberflächenspannungskraft) darstellen.

Mixture-Modell

Das Mixture-Modell, das von Manninen [22] vorgestellt wurde, ist ein vereinfachtes Mehrphasenmodell, bei dem die Phasen als durchdringendes Kontinua behandelt werden. Es kann verwendet werden, um mehrphasige Strömungen zu simulieren, bei denen die Phasen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten sich bewegen, aber über kurze räumliche Längenskalen wird ein lokales Gleichgewicht angenommen. Es kann auch verwendet werden, um homogene Mehrphasenströmungen mit starker Kopplung und Phasen, die mit derselben Geschwindigkeit sich bewegen, zu modellieren. Typische Anwendungen sind Sedimentation, Zyklon-Abscheider, partikelbeladene Strömungen mit geringer Beladung und Blasenströmungen, bei denen der Gasvolumenanteil niedrig bleibt.

Bei Mixture-Modell werden die folgenden Grundgleichungen für den Fall einer laminaren isothermen Mehrphasenströmung gelöst:

- Kontinuitätsgleichung für das ganze Gemisch.
- Impulsgleichung für das ganze Gemisch, wobei das Druckfeld gemeinsam von allen Phasen verwendet wird.
- Volumenanteilgleichung für jede Sekundärphase.
- Algebraischer Ausdruck für die relative Geschwindigkeit, falls die Phasen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten fließen.

Neben der volumengemittelten Dichte (3.27) und der volumengemittelten Viskosität (3.28) wird eine massenschwerpunktbezogene Geschwindigkeit für die Grundgleichungen verwendet.

$$\vec{v}_m = \sum_{q=1}^n c_q \vec{v}_q \quad (3.32)$$

wobei \vec{v}_m die massenschwerpunktbezogene Geschwindigkeit des Gemisches und c_q der Massenanteil der Phase q ($c_q = \alpha_q \frac{\rho_q}{\rho_m}$) sind.

Die Volumenanteilgleichung für eine Sekundärphase p , die auf der Kontinuitätsgleichung für die Phase p basiert, wird wie folgt formuliert:

$$\frac{\partial(\alpha_p \rho_p)}{\partial t} + \nabla(\alpha_p \rho_p \vec{v}_m) = -\nabla(\alpha_p \rho_p \vec{v}_{dr,p}) + \sum_{q=1}^n (\dot{m}_{qp} - \dot{m}_{pq}) \quad (3.33)$$

Der Volumenanteil der Primärphase wird standardmäßig durch den grundlegenden Ansatz, bei dem die Summe aller Volumenanteile gleich eins ($\sum_{p=1}^n \alpha_p = 1$) ist, bestimmt.

Die Kontinuitätsgleichung für das ganze Gemisch wird, in Anlehnung an der Kontinuitätsgleichung für ein Fluid (3.2), wie folgt definiert:

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla(\rho_m \vec{v}_m) = 0 \quad (3.34)$$

Die Impulsgleichung für das ganze Gemisch wird, in Anlehnung an der Impulsgleichung für ein inkompressibles viskoses Fluid (3.13), wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho_m \vec{v}_m)}{\partial t} + \nabla(\rho_m \vec{v}_m \vec{v}_m) \\ = -\nabla p + \nabla[\mu_m(\nabla \vec{v}_m + \nabla \vec{v}_m^T)] + \rho_m \vec{g} + \vec{F}_{vol} \\ - \nabla \left(\sum_{k=1}^n \alpha_k \rho_k \vec{v}_{dr,k} \vec{v}_{dr,k} \right) \end{aligned} \quad (3.35)$$

wobei $\nabla(\sum_{k=1}^n \alpha_k \rho_k \vec{v}_{dr,k} \vec{v}_{dr,k})$ die Impulskorrektur der einzelnen Phasen und $\vec{v}_{dr,k}$ die Driftgeschwindigkeit, die der relativen Geschwindigkeit zwischen einer Phase k und dem Gemisch entspricht ($\vec{v}_{dr,k} = \vec{v}_k - \vec{v}_m$), darstellen.

Die Driftgeschwindigkeit und die relative Geschwindigkeit zwischen den Phasen werden durch den folgenden Ausdruck gekoppelt:

$$\vec{v}_{dr,p} = \vec{v}_{pq} - \sum_{k=1}^n c_k \vec{v}_{kq} \quad (3.36)$$

wobei \vec{v}_{pq} die relative Geschwindigkeit von der Sekundärphase p zur Primärphase q ($\vec{v}_{pq} = \vec{v}_p - \vec{v}_q$) und \vec{v}_{kq} die relative Geschwindigkeit von einer Phase k zur Primärphase q sind.

Unterschied zwischen VOF- und Mixture-Modell

Das VOF- und das Mixture-Modell unterscheiden sich im Wesentlichen in dem Volumenanteil und dem Geschwindigkeitsfeld. Hinsichtlich der Volumenanteil kann der Volumenanteil einer Phase beim Mixture-Modell irgendeinen Wert zwischen null und eins belegen. Im Gegensatz dazu muss der Volumenanteil beim VOF-Modell entweder null oder eins betragen, um eine eindeutige Grenzfläche zu erhalten. Dafür wird der Konvektionsterm in Volumenanteilgleichung ($\nabla \alpha \rho \vec{v}$) beim VOF-Modell mit speziellen Schemen (z.B. compressive interface capturing) diskretisiert, während der Konvektionsterm beim Mixture-Modell nur die herkömmlichen Schemen (z.B. First Oder Upwind, QUICK) verwendet. Hinsichtlich des Geschwindigkeitsfelds unterscheiden sich das VOF- und das Mixture-Modell darin, dass das Mixture-Modell eine relative Geschwindigkeit zwischen den Phasen erlaubt, während die Phasen beim VOF-Modell ein einziges Geschwindigkeitsfeld teilen.

3.3.4 Untermodelle im VOF-Modell

Die folgenden Untermodelle im VOF-Modell sind für die Abbildung der Wechselwirkungen zwischen den Phasen zuständig.

Oberflächenspannungs-Modell (Surface Tension)

In Ansys-Fluent existieren zwei Oberflächenspannungs-Modelle:

- Kontinuum-Oberflächenkraft-Modell (CSF-Modell)
- Kontinuum-Oberflächenspannung-Modell (CSS-Modell).

Gemäß der Studie von Lafmejani [10] wird das CSF-Modell, das durch Brackbill [23] vorgestellt wurde, aufgrund der höheren numerischen Stabilität ausgewählt. Bei diesem Modell kann die Oberflächenspannung als Drucksprung über die Oberfläche betrachtet werden. Die Kraft an der Oberfläche kann unter Verwendung des Divergenz-Satzes als Volumenkraft ausgedrückt werden. Diese Volumenkraft, die einem Quellterm in den Impulsgleichungen entspricht, hat die folgende Form für den Fall einer Zweiphasenströmung:

$$\vec{F}_{st} = \gamma_{ij} \frac{\rho \kappa_i \nabla \alpha_i}{0,5(\rho_i + \rho_j)} \quad (3.37)$$

wobei \vec{F}_{st} die Oberflächenspannungskraft, γ_{ij} die Oberflächenspannung zwischen einer Phase i und einer Phase j , ρ die volumengemittelte Dichte des Gemisches ($\rho = \rho_m$) und κ_i die Oberflächenkrümmung sind. Die Grundidee des CSF-Modells besteht darin, dass die Oberflächenkrümmung κ_w aus lokalen Gradienten der Oberflächennormalen an der Grenzfläche berechnet wird:

$$\kappa_w = \nabla \hat{n} = \nabla \left(\frac{\vec{n}}{|\vec{n}|} \right) \quad (3.38)$$

wobei die Oberflächennormale \vec{n} als Gradient vom Volumenanteil einer Phase q (α_q) definiert wird:

$$\vec{n} = \nabla \alpha_q \quad (3.39)$$

Wandhaftung (Wall Adhesion)

Dieses Untermodell von Brackbill [23], bei dem der Wandhaftungswinkel angegeben werden kann, ist eine zusätzliche Option im Rahmen des Oberflächenspannungs-Modells. Der Kontaktwinkel wird verwendet, um die Oberflächennormalen in den Wandnähe-Zellen zu bestimmen. Diese sogenannte dynamische Randbedingung führt zur Einstellung der Oberflächenkrümmung in der Wandnähe, die noch verwendet wird, um den Körperkraftterm bei der Berechnung der Oberflächenspannung anzupassen.

Wenn θ_{wand} der Wandhaftungswinkel ist, dann ist die Oberflächennormale an der Zelle neben der Wand gleich:

$$\hat{n} = \hat{n}_{wand} \cos \theta_{wand} + \hat{t}_{wand} \sin \theta_{wand} \quad (3.40)$$

wobei \hat{n}_{wand} und \hat{t}_{wand} die Einheitsvektoren normal bzw. tangential zur Wand sind.

Sprunghaftung (Jump Adhesion)

Dieses Untermodell ist, ähnlich wie die Wandhaftung, eine zusätzliche Option im Rahmen des Oberflächenspannungs-Modells, wobei eine Sprunghaftung (jump adhesion) bereitgestellt wird. Hier ist die Kontaktwinkel-Behandlung auf jeder Seite einer porösen Sprunggrenze (porous jump boundary) anwendbar, indem auf beiden Seiten der gleiche Kontaktwinkel angenommen wird.

Wenn θ_{sprung} der Kontaktwinkel an einem porösen Sprung ist, dann ist die Oberflächennormale an den benachbarten Zellen zum porösen Sprung gleich:

$$\hat{n} = \hat{n}_{sprung} \cos \theta_{sprung} + \hat{t}_{sprung} \sin \theta_{sprung} \quad (3.41)$$

wobei \hat{n}_{sprung} und \hat{t}_{sprung} die Einheitsvektoren normal und tangential zur Sprunggrenze sind.

ANSYS Fluent bietet zwei Methoden zur Behandlung der Sprunghaftung an einer porösen Sprunggrenze:

- Eingeschränkte zweiseitige Adhäsion (Constrained Two-Sided Adhesion), wobei die Kontaktwinkel-Behandlung auf die Seiten des porösen Sprunges, die an porösen Medienzonen angrenzen, nicht angewendet wird.
- Erzwungene zweiseitige Adhäsion (Forced Two-Sided Adhesion), wobei die erzwungene zweiseitige Kontaktwinkel-Behandlung für Fluidzonen ohne Einschränkungen verwendet wird.

Die eingeschränkte zweiseitige Adhäsion ist die Standardmethode und sie wird ebenfalls für diese Arbeit verwendet.

3.3.5 Untermodelle im Mixture-Modell

Die folgenden Untermodelle im Mixture-Modell sind für die Abbildung der Wechselwirkungen zwischen den Phasen zuständig.

Relative Geschwindigkeit (Slip)

ANSYS Fluent verwendet eine algebraische Slip-Formulierung, die von Manninen [22] vorgestellt wurde. Für diese Formulierung wird es angenommen, dass ein lokales Gleichgewicht zwischen den Phasen über eine kurze räumliche Längenskala erreicht

werden soll. Die relative Geschwindigkeit im Mixture-Modell wird dann wie folgt formuliert:

$$\vec{v}_{pq} = \frac{t_{r,p}}{f_{drag}} \frac{(\rho_p - \rho_m)}{\rho_p} \vec{a} \quad (3.42)$$

wobei $t_{r,p}$ die Partikelrelaxationszeit der Sekundärphase p , f_{drag} die Widerstandsfunktion, \vec{a} die Partikelbeschleunigung der Sekundärphase p sind. Die Partikelrelaxationszeit wird modifiziert, um das Vorhandensein von anderen Partikeln zu berücksichtigen. Sie wird durch den Partikeldurchmesser (d_p) und die Dichte der Sekundärphase p (ρ_p) und die Viskosität der Primärphase q (μ_q) berechnet

$$t_{r,p} = \frac{\rho_p d_p^2}{18\mu_q} \quad (3.43)$$

Die Partikelbeschleunigung ist durch die Schwerkraft und/oder eine Zentrifugalkraft gegeben.

$$\vec{a} = \vec{g} - (\vec{v}_m \cdot \nabla) \vec{v}_m - \frac{\partial \vec{v}_m}{\partial t} \quad (3.44)$$

Widerstand-Modell (Drag model)

Bei Fluid-Fluid-Strömungen wird es angenommen, dass jede Sekundärphase entweder Tröpfchen oder Blasen bildet. Beispielsweise soll in Strömungen mit ungleichen Mengen von zwei Fluiden das vorherrschende Fluid als Primärfluid modelliert werden, da das nicht vorherrschende Fluid eher Tropfen oder Blasen bildet. Für diese Arten von sprudelnden, flüssig-flüssigen oder gasförmig-flüssigen Gemischen ist die Widerstandsfunktion (f) ein wichtiger Parameter. Die meisten Definitionen von f enthalten einen Widerstandsbeiwert C_D , der auf die relative Reynoldszahl sich bezieht. Diese Widerstandsfunktionen unterscheiden sich zwischen den verschiedenen Widerstand-Modellen und die folgenden Modelle sind in ANSYS Fluent verfügbar:

- Schiller und Naumann Modell
- Morsi und Alexander Modell
- Symmetrisches Modell
- Grace et al. Modell
- Tomiyama et al. Modell
- Ishii-Modell
- Universelle Widerstandsgesetze für Blasen-Flüssigkeits- und Tröpfchen-Gas-Strömung

Für diese Arbeit wird das Schiller und Naumann Modell [24], das der Standardmethode für eine allgemeine Verwendung von allen Fluid-Fluid-Phasenpaaren entspricht, ausgewählt. Bei diesem Modell wird die Widerstandfunktion wie folgt bestimmt.

$$f = \frac{C_D Re}{24} = \begin{cases} 1 + 0,15Re^{0,687} & \text{für } Re \leq 1000 \\ 0,0183Re & \text{für } Re > 1000 \end{cases} \quad (3.45)$$

wobei Re die relative Reynoldszahl ist. Die relative Reynoldszahl für die Primärphase q und die Sekundärphase p ergibt sich aus:

$$Re = \frac{\rho_q |\vec{v}_p - \vec{v}_q| d_p}{\mu_q} = \frac{\rho_q |\vec{v}_{pq}| d_p}{\mu_q} \quad (3.46)$$

3.3.6 Mehrphasenströmung im porösen Medium

Die Grundlagen in diesem Abschnitt werden zwar nicht in den Mehrphasenmodelle im Kapitel 6 verwendet, aber sie sind relevant für eine anschließenden Arbeit, wenn die Modelle erweitert werden oder ein feineres Modell gewählt wird.

Effektive Permeabilität

Für eine Zweiphasenströmung durch ein poröses Medium wird der Volumenstrom jeder Phase durch ihren Querschnittsflächenanteil, der für diese Phase verfügbar ist, und die Permeabilität des Mediums bestimmt. Um diesen Querschnittsfläche-Anteil zu berücksichtigen, wird das Konzept der effektiven Permeabilität verwendet:

$$K_{e,q} = K A_q \quad (3.47)$$

wobei $K_{e,q}$ die effektive Permeabilität einer Phase q (oder Phase-Permeabilität), K die absolute Permeabilität, die für den Fall einer einphasigen Strömung ist, und A_q der Querschnittsflächenanteil der Phase q sind. Die effektive Permeabilität stellt die Durchlässigkeit eines porösen Mediums für eine Phase, deren Sättigung im porösen Medium weniger als 100% ist, dar. Ferner wird diese Permeabilität für die Bestimmung des Kapillardrucks verwendet. Neben den Struktureigenschaften vom porösen Medium und der absoluten Permeabilität hängt die effektive Permeabilität noch von der Sättigung des Fluids und der Benetzung-Priorität des Mediums ab.

Relative Permeabilität

In technischen Anwendungen ist der Querschnittsflächen-Anteil schwer zu bestimmen. Deswegen wird die relative Permeabilität eingeführt, um die effektive Permeabilität indirekt zu berechnen:

$$K_{e,q} = K_{r,q} K_b \quad (3.48)$$

wobei $K_{r,q}$ die relative Permeabilität der Phase q und K_b die Basis-Permeabilität sind. Die relative Permeabilität ist dimensionslos und variiert (zwischen 0 und 1) mit der Sättigung der benetzten Phase. Die Basis-Permeabilität ist frei wählbar zwischen der absoluten Permeabilität der beteiligten Phasen. Beispielweise ist im Öl-Wasser-Systemen K_b entweder $K_{e,\text{öl}}$ bei irreduzibler Wassersättigung oder $K_{e,\text{Wasser}}$ bei restlicher (irreduzibler) Ölsättigung.

Relative Permeabilität / Corey-Modell

In ANSYS Fluent steht das Corey-Potenzgesetz-Modell zur Verfügung, um die relative Permeabilität in der Gleichung (3.48) zu bestimmen:

$$K_{r,q} = K_{r,q}^0 \tilde{s}_q^{nq} \quad (3.49)$$

wobei $K_{r,q}^0$ die referenzielle relative Permeabilität einer Phase q , \tilde{s}_q die nominierte Sättigung der Phase q , nq der Corey-Exponent für die Phase q sind. In Fluent entspricht die Sättigung dem Volumenanteil und die nominierte Sättigung in der Gleichung (3.49) wird wie folgt berechnet:

$$\tilde{s}_q = \tilde{\alpha}_q = \frac{\alpha_q - \alpha_{qr}}{1 - \sum_{q=0}^{n-1} \alpha_{qr}} \quad (3.50)$$

wobei $\tilde{\alpha}_q$ der normierte Volumenanteil der Phase q , α_q der Volumenanteil der Phase q und α_{qr} der Restvolumenanteil der Phase q sind. Der Restvolumenanteil ist nämlich die minimale Menge einer Phase, die in einem porösen Mehrphasensystem vorhanden sein muss. Wenn diese minimale Menge in allen Phasen nicht vorhanden ist ($\sum_{q=0}^{n-1} \alpha_{qr} = 0$), dann entspricht die normierte Sättigung dem herkömmlichen Volumenanteil ($\tilde{s}_q = s_q = \alpha_q$).

Ein Beispiel ist die relative Permeabilität für das Öl-Wasser-System mit Wasser als benetzter Phase:

$$K_{r,w} = K_{r,w}^0 \tilde{\alpha}_w^{nw} \quad (3.51)$$

$$K_{r,o} = K_{r,o}^0 (1 - \tilde{\alpha}_w)^{no} \quad (3.52)$$

wobei $K_{r,w}^0$ ($K_{r,o}^0$) die referenzielle relative Permeabilität der Wasserphase (Ölphase), $\tilde{\alpha}_w$ der nominierte Volumenanteil der Wasserphase und nw (no) die Corey-Exponenten der Wasserphase (Ölphase) sind.

Kapillardruck

Kapillardruck ist die Druckdifferenz zwischen zwei unmischbaren Fluiden in Kapillaren-Röhrchen (sehr feiner, langgestreckter Hohlraum), die aus der Wechselwirkung der

Kräfte zwischen den Fluiden und den festen Kapillarwänden entsteht. Die Kapillaren-Röhrchen in den betrachteten porösen Komponenten sind nämlich die kleinen Poren, die über das gesamte Volumen des Materials sich verteilen. Dieser Kapillardruck zeigt sich eine signifikante treibende Kraft unter den Bedingungen eines niedrigen Strömungsdrucks und eines hohen Volumenverhältnisses. Gemäß der Definition wird der Kapillardruck wie folgt formuliert:

$$p_c = p_{non-wetting} - p_{wetting} \quad (3.53)$$

wobei p_c der Kapillardruck, $p_{non-wetting}$ der Druck der nicht benetzten Phase an der Grenzfläche und $p_{wetting}$ der Druck der benetzten Phase an der Grenzfläche sind. Die benetzte Phase wird durch ihre Fähigkeit, vorzugsweise an den Kapillarwänden zu diffundieren, identifiziert. Die Benetzbarkeit eines Fluids hängt von seiner Oberflächenspannung und wird durch den Kontaktwinkel bestimmt.

Auf der Porenskala hängt der Kapillardruck hauptsächlich von den geometrischen Eigenschaften der Poren (Größe und Verteilung), den Grenzflächenspannungen und der Benetzbarkeit (Kontaktwinkel) ab. Auf der Makroskala wird im Allgemeinen angenommen, dass der Kapillardruck eine Funktion von der Sättigung der benetzten Phase ist:

$$p_c = f(s_{wetting}) = f(\alpha_{wetting}) \quad (3.54)$$

Sein Wert wird oft entweder durch Messungen oder durch Korrelationen erhalten. In ANSYS Fluent wird der Kapillardruckeffekt als ein zusätzlicher Quellterm in der benetzten Phase unter Verwendung eines der folgenden Untermodelle modelliert.

- Brooks-Corey Modell
- Van-Genuchten Modell
- Leverett J-Funktion
- Skjaeveland Modell

Gemäß der Veröffentlichung von Han [19] und der von Ferreira [25] wird für die betrachte Zweiphasenströmung die Leverett J-Funktion ausgewählt.

Kapillardruck / Leverett J-Funktion

Die J-Funktion wurde von Leverett [26] entwickelt, um die Kapillardruck-Formulierung im Porenmaßstab von Washburn [27] auf ein Kapillardruck-Modell im Makromaßstab zu erweitern. Laut Leverett hängt der Kapillardruck von der Porosität und der Permeabilität ab. In Analogie zur Washburn-Gleichung entwickelte Leverett eine dimensionslose J-Funktion:

$$J(s_q) = \frac{p_{c,q}}{\gamma \cos \theta_q} \sqrt{\frac{K_{e,q}}{\varepsilon}} \Leftrightarrow p_{c,q} = \gamma \cos \theta_q \sqrt{\frac{\varepsilon}{K_{e,q}}} J(s_q) \quad (3.55)$$

wobei $K_{e,q}$ die genannte effektive Permeabilität und $J(s_q)$ eine empirische Funktion, die die Abhängigkeit mit der Sättigung darstellt, ist. Verschiedene empirische J-Funktionen können entwickelt werden, um den Kapillardruck abzuschätzen. In ANSYS Fluent wird die folgende Formulierung verwendet:

$$J(s_q) = \begin{cases} [1,417(1 - s_q) - 2,12(1 - s_q)^2 + 1,263(1 - s_q)^3] & \text{für } \theta_q \leq 90^\circ \\ [1,417s_q - 2,12s_q^2 + 1,263s_q^3] & \text{für } \theta_q > 90^\circ \end{cases} \quad (3.56)$$

3.4 VRFB

3.4.1 Grundlegende Bauteile und Funktionsweise einer Redox-Flow-Batterie

Die Redox-Flow-Batterie oder Flussbatterie speichert die elektrische Energie in chemischen Verbindungen, wobei die Reaktionspartner in einem Lösungsmittel in gelöster Form vorliegen. In der Abbildung 13 sind die grundlegenden Bauteile einer Redox-Flow-Batterie zu sehen. Die zwei energiespeichernden Elektrolytlösungen zirkulieren mithilfe der Pumpen durch die entsprechende Halbzelle und den entsprechenden Tank. In der galvanischen Zelle, wo die Elektrolytlösungen durch die Ionenaustausch-Membran getrennt gelagert werden, finden Reduktion und Oxidation der gelösten Stoffe statt. Die Elektroden werden auf den beiden Seiten der Membran angeordnet und stellen Reaktionsstellen für die elektrochemischen Reaktionen der Elektrolytlösungen bereit. Die Elektroden selbst sind jedoch nicht an den Redoxreaktionen beteiligt.

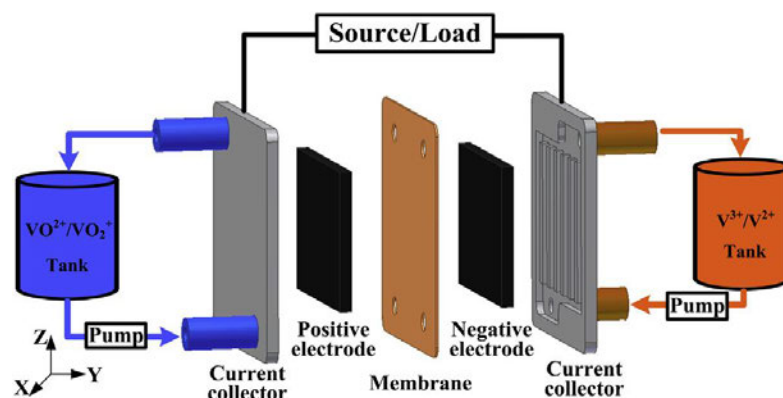


Abbildung 13: Schema einer Redox-Flow Batterie [28]

3.4.2 Vorteil und Elektrolytlösung von VRFB

Vorteil

Vanadium-Redox-Flow-Batterie (VRFB), die eine Vanadium-Lösung als Elektrolyt verwendet und erstmals von Skyllas-Kazacos-Gruppe [29] demonstriert wurde, ist die am weitesten verbreitete Redox-Flow-Batterie. Der einzigartige Vorteil von VRFB ist die Immunität gegen den Crossover-Effekt. Dieser Effekt verursacht eine Vermischung der beiden aktiven Materialien und erzeugt ein Kapazitäts-Ungleichgewicht zwischen der positiven und der negativen Elektrolytlösung, das nicht nur zu einem Effizienzverlust, sondern auch zu einem irreversiblen Kapazitätsverlust führt. In dieser Hinsicht ist die Verwendung der gleichen Vanadium-Elemente sowohl für positives als auch für negatives Elektrolyt sehr vorteilhaft. Der Vanadium-Crossover-Effekt verursacht zwar den Effizienzverlust, aber der Kapazitätsverlust kann durch geeignete Ausgleichstechniken gemindert werden. [30]

Elektrolytlösung

Die negative Halbzelle beinhaltet V^{2+} - und V^{3+} -Ionen (Oxidationszahlen +2 bzw. +3) und in der positiven Halbzelle lagern VO^{2+} - und VO_2^+ -Ionen (Oxidationszahlen +4 bzw. +5). Zum Laden oder Entladen von VRFB finden in den beiden Halbzellen elektrochemische Reaktionen (siehe Tabelle 2), an denen das jeweilige Re-Dox-Paar beteiligt ist, gleichzeitig statt.

	Positive Halbzelle	Negative Halbzelle
Laden	$VO^{2+} + H_2O \rightarrow VO_2^+ + 2H^+ + e^-$ (Reduktion)	$V^{3+} + e^- \rightarrow V^{2+}$ (Oxidation)
Entladen	$VO_2^+ + 2H^+ + e^- \rightarrow VO^{2+} + H_2O$ (Oxidation)	$V^{2+} \rightarrow V^{3+} + e^-$ (Reduktion)

Tabelle 2: Reaktionen beim Laden und Entladen von VRFB

3.4.3 Dichte und Viskosität der Elektrolytlösung in VRFB

Dichte

Gemäß einer Messung in der Studie von Ressel [31] variierte die Dichte der negativen Elektrolytlösung mit SOC (siehe Abbildung 46 im Anhang A-1) um den mittleren Wert von 1.3739 g/ml. In den Studien von Ke [2] [32] wird jedoch den Wert von 1.354 g/ml, der vermutlich der mittlere Wert von der positiven und der negativen Elektrolytlösung ist, verwendet.

Viskosität

Gemäß einer Messung in der Studie von Li [33] variierte die Elektrolytviskosität mit SOC und Temperatur (siehe Tabelle 24, Tabelle 25 im Anhang A-1). In dieser Arbeit werden der Wert 4.827 mPas für die positive Elektrolytlösung und der Wert 5.423 mPas für die negative Elektrolytlösung (Lösung von 1.6 MV in 2.6 M H₂SO₄, 20°C, 50%) verwendet. In den Studien von Ke [2] [32] wird jedoch für beiden Elektrolytlösungen den Wert 4.928 mPas, der nicht viel von den ausgewählten Werten abweichen ist, verwendet.

3.4.4 PE und Konfigurationen

Für das Elektrodenmaterial wird meist ein poröser Grafitfilz verwendet. Einerseits bietet die poröse Struktur ein hohes Oberflächen-Volumen-Verhältnis und somit eine hohe Reaktionsrate. Andererseits hat der Grafit ein hohes elektrochemisches Spannungsfenster in wässrigen Lösungen. Es gibt zwei PE-Konfigurationen für RFB:

- Flow-Through-Elektrode (ohne FC), wobei die Elektrolytlösung durch eine dicke PE-Schicht strömt.
- Flow-By-Elektrode (mit FC), wobei die Elektrolytlösung in FC strömt und durch Diffusion in eine dünne PE-Schicht eindringt.

Für Flow-By-Elektrode stehen weitere drei FC-Konfigurationen zur Verfügung (siehe Abbildung 14):

- Serpentin-Strömungskanal (Serpentine), wobei die Elektrolytlösung durch einen einzigen langen gefalteten Strömungskanal strömt.
- Parallele Strömungskanäle, wobei die Elektrolytlösung gleichzeitig durch parallel liegende Strömungskanäle strömt.
- Interdigitalisierte Strömungskanäle (Interdigitated), wobei die Elektrolytlösung gezwungen wird, durch die poröse Elektrode zwischen den Einlass- und Auslasskanälen mit „Dead-End“ zu strömen.

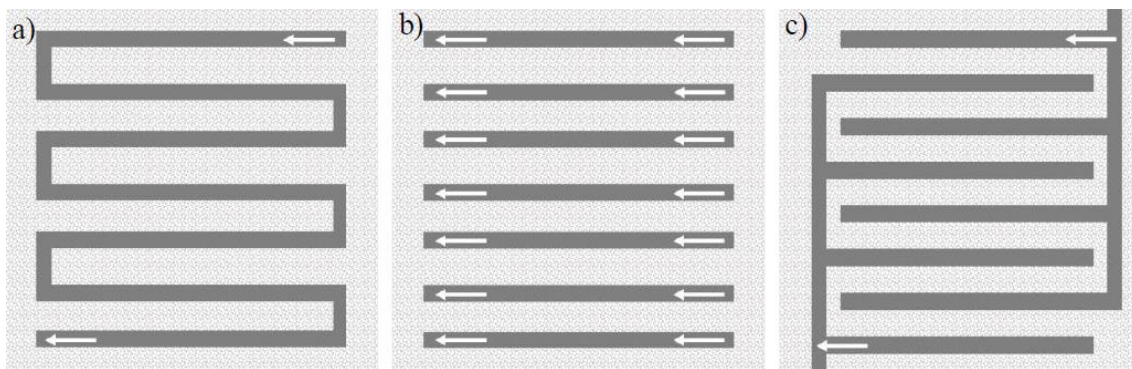


Abbildung 14: Schemen von Serpentin-Strömungskanal (a), parallelen Strömungskanäle (b) und Interdigitalisiert-Strömungskanäle (c) [3]

3.4.5 Zellendesign

Neben den klassischen planaren Zellen wird momentan die sogenannte tubuläre Zelle für VRFB, die von Ressel [34] vorgestellt wurde, untersucht und entwickelt. Die Kompetenz dieser tubulären Zelle liegt an den reduzierten Fertigungskosten und dem Zellstapel-Design für wenigen Shunt-Current-Verlust. Der Unterschied zwischen den beiden Aufbauten wird in der Abbildung 15 dargestellt.

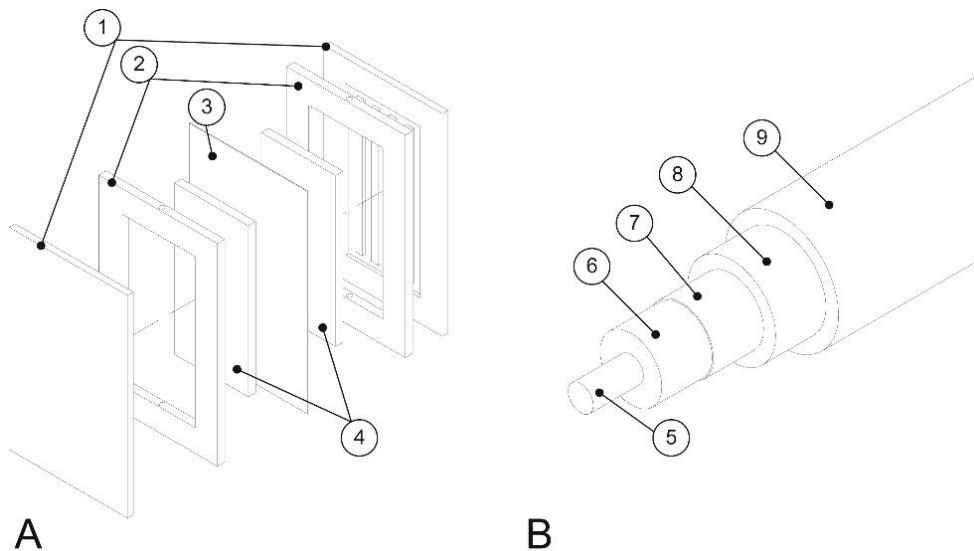


Abbildung 15:

A: Schema einer planaren Zelle, die aus Anoden- und Kathodenplatten (1), Strömungsrahmen (2), porösen Elektroden (4) und einer ionenselektiven Membran (3) besteht.

B: Schema einer tubulären Zelle, die aus einem inneren Stromsammler (5), einer porösen inneren Elektrode (6), einer röhrenförmigen Membran (7), einer porösen äußeren Elektrode (8) und einem äußeren Stromsammler (9) besteht. [34]

3.5 PEMEC

3.5.1 Grundlegende Bauteile und Funktionsweise einer PEMEC

In der Abbildung 16 werden die Grundbausteine und die Arbeitsprinzipien einer PEMEC dargestellt. Zu den grundlegenden Komponenten gehören die Protonaustauschmembran (PEM), die Katalysatorschicht (CL), die Flüssigkeits-Gas-Diffusionsschicht (LGDL) und die Bipolar-Platten mit den Strömungskanälen. Wasser wird in die Anoden-Halbzelle zugeführt und diffundiert weiter durch die LGDL in die Anoden-CL, wo das Wasser in Protonen, Elektronen und Sauerstoff gespalten wird. Das erzeugte Sauerstoffgas, das nur

ein Nebenprodukt der Wasserstoffproduktion von PEMEC ist, diffundiert durch die LGDL zurück in den Anoden-FC. Die Protonen werden durch die PEM geleitet und verbinden sich mit den Elektronen, die sich durch einen externen Kreislauf bewegen, um Wasserstoffgas an der Kathode-CL zu bilden. In der Tabelle 3 werden die Reaktionen aufgeschrieben.

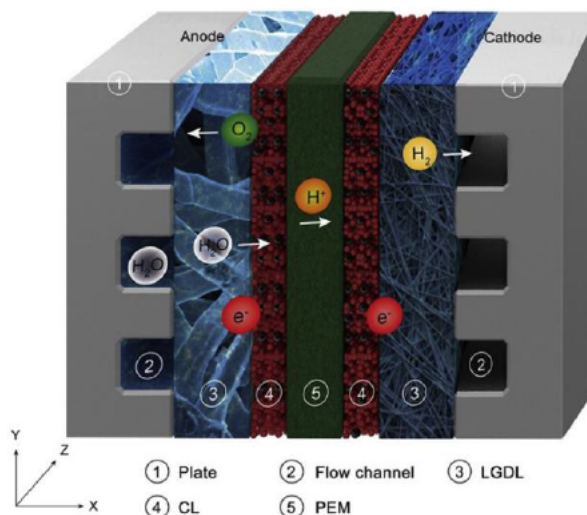


Abbildung 16: Schema einer PEM-Elektrolysezelle [19]

Anode	$H_2O \rightarrow 2H^+ + 2e^- + 0.5O_2$
Kathode	$2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2$
Insgesamt	$H_2O \rightarrow H_2 + 0.5O_2$

Tabelle 3: Reaktionen in einer PEM-Elektrolysezelle

3.5.2 Anodenseite einer PEMEC

Im Vergleich zur Kathodenseite ist die Zweiphasenströmung in der Anodenseite einigermaßen problematischer. Wenn das erzeugte Sauerstoffgas nicht effizient entfernt werden kann, wird der Anoden-FC blockiert und dadurch wird der Massentransport begrenzt. Daher ist ein effizienter Wasser-Sauerstoff-Transport durch die Anoden-LGDL entscheidend für einen stabilen PEMEC-Betrieb [35]. Zusätzlich wird die Wirkung des Kathodenstromsammlers auf die Zelleistung begrenzt, da die Aktivierungsspannung der Kathodenreaktion gering ist [36] [37]. Aus diesen Gründen ist es sinnvoll, die Zweiphasenströmung in der Anoden-Halbzelle separat zu untersuchen.

Die Anoden-Halbzelle befindet sich in einer rauen Umgebung, die aufgrund der hohen Überspannung und der hohen Feuchtigkeit stark korrosiv ist. Neben den funktionsrelevanten Eigenschaften, wie elektrische Leitfähigkeit und Fluiddurchlässigkeit, soll das Anoden-LGDL-Material eine hohe

Korrosionsbeständigkeit und eine gute mechanische Festigkeit aufweisen [38]. Ein Material mit solchen Eigenschaften ist Titan, deren gute Korrosionsbeständigkeit in vielen technischen Anwendungen nachgewiesen wird. Derzeit werden Titannetze/-filze/-schäume hauptsächlich für die Anoden-LGDL verwendet [39].

Für die CL existieren derzeit zwei Hauptkonfigurationen:

- katalysatorbeschichtete Membran (CCM), bei der das Katalysatormaterial auf der Membran-Oberfläche beschichtet wird.
- Atomlagenabscheidung (ALD), bei der das Katalysatormaterial mithilfe der ALD-Methode auf das gesamte LGDL-Volumen platziert wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wird erstmal die PEMEC-Anode mit CCM betrachtet.

4 Fluid-Flow-Modell für planare VRFB-Halbzellen

In diesem Kapitel werden Fluid-Flow-Modelle für die Elektrolytströmung in einer planaren VRFB-Halbzelle mit Flow-By-Elektrode und parallelen Strömungskanälen entwickelt. Zunächst werden Modellannahmen erläutert, dann wird ein 2D-Modell zur Validierung mit den Referenzmodellen umgesetzt. Nach der Validierung wird dieses Modell auf drei Dimensionen erweitert und mit den anderen 3D-Modellen validiert. Zum Schluss wird eine Strömungsanalyse mit dem 3D-Modell für die DECHEMA-Zelle durchgeführt. Die Geometrie des 2D- und des 3D-Modells wird in der Abbildung 17 dargestellt.

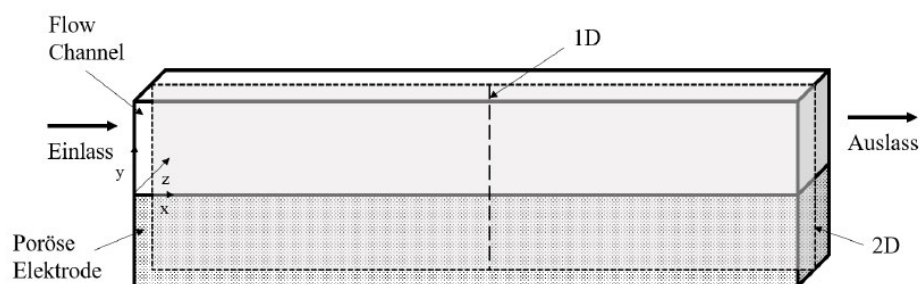


Abbildung 17: Geometrie des 2D- und des 3D-Modells für planare VRFB-Halbzellen

[3]

4.1 Modellannahme

Die folgenden Annahmen und Vereinfachungen werden für das Modell getroffen:

- Die Elektrolytlösung ist ein newtonsches Fluid und hat konstante Dichte und Viskosität. In der Realität variieren die Elektrolytdichte und -viskosität mit SOC und Temperatur (siehe Abschnitt 3.4.3).
- Eine isotherme Strömung durch die Halbzellen wird angenommen. Mit solchem kleinem Zellenmaßstab und laminarer Strömung ist die Temperaturänderung in der Realität ebenfalls gering.
- Eine laminare Strömung wird angenommen. Gemäß dem betrieblichen Eingangsvolumenstrom der Elektrolytlösung ist die Reynoldszahl gering und liegt niedriger als der Grenzwert.
- Eine stationäre Strömung wird angenommen.
- Die Gravitation wird vernachlässigt, somit die Ausrichtung der Zelle keine Rolle spielt.

- Beide Halbzellen von VRFB können separat modelliert werden, da ihre Elektrolytlösungen, abgesehen vom Cross-Over-Effekt, getrennt gelagert werden und aus Sicht der Strömungsdynamik keine Wechselwirkung aufeinander haben.
- Lediglich ein FC-Durchgang (ein Strömungskanal und der entsprechende PE-Abschnitt) wird modelliert, da die Strömungen in jedem Strömungskanal bei der parallelen Konfiguration im Wesentlichen ähnlich sind.

4.2 2D-Modell

4.2.1 Umsetzung des 2D-Modells in ANSYS Fluent

Geometrie

Das Modell wird in zwei Domänen eingeteilt: FC-Domäne für den Strömungskanal und PE-Domäne für die poröse Elektrode. Diese Domänen werden mit rechteckigen Schalen realisiert. Zu den parametrisierten Größen zählen die Kanallänge, die FC-Dicke und die PE-Dicke. Die Geometrie und die Randbedingungen für dieses Modell sind in der Abbildung 18 zu sehen.

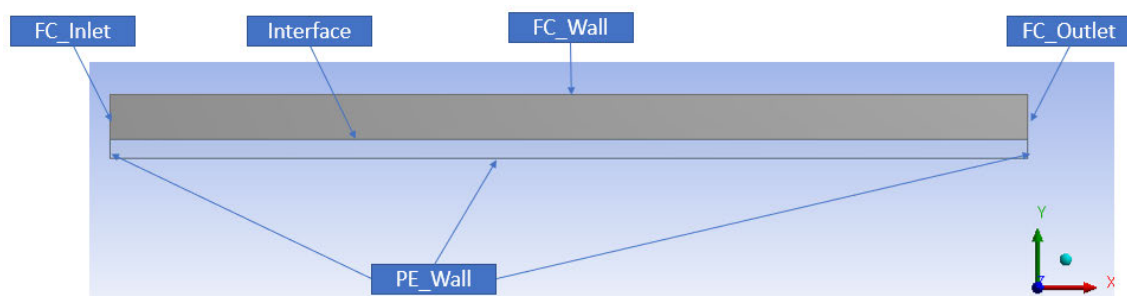


Abbildung 18: Geometrie und Randbedingungen vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Netz

Für die beiden Domänen wird ein strukturiertes Hexahedron-Netz, bei dem nur rechteckige Schalenelemente erzeugt werden, umgesetzt. Zusätzlich werden Prismenschichten (Inflation) für die Kanalwand (FC_Wall) und die Grenzfläche zwischen dem FC und der PE (Interface) implementiert, da der Geschwindigkeitsgradient in der entsprechenden Normalrichtung hoch ist. Die Standard-Elementgröße beträgt 0.02 mm. Das generierte Netz für dieses Modell ist in der Abbildung 19 zu sehen.

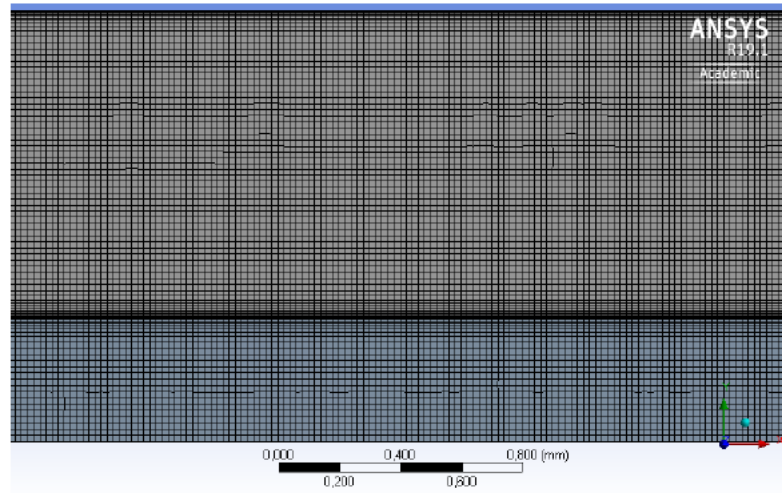


Abbildung 19: strukturiertes Netz vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Modelleinstellung

Die angegebenen Annahmen und Vereinfachungen werden mit den grundlegenden Fluent-Einstellungen in der Tabelle 4 realisiert. Hinzukommend werden die Einstellungen für die poröse PE-Domäne, deren Wirkung im Abschnitt 3.2.3 zu finden ist, am Ende der Tabelle 4 aufgelistet.

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Time	Steady	Instationäre Terme werden nicht mitgerechnet.
Gravity	Off	Gravitation wird nicht mitgerechnet.
Viscous	laminar	Turbulentes Modell wird nicht aktiviert.
Energy Equation	Off	Energiegleichung wird nicht aktiviert.
PE-Domäne/ Porous zone	On	PM-Modell wird für die PE-Domäne aktiviert.
PE-Domäne/ Porous zone/Relative Viscosity	1 (Off)	Relative Viskosität wird nicht aktiviert.

Tabelle 4: grundlegende Modelleinstellungen vom Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Grundgleichung

Die Kontinuitätsgleichung dieses Modells wird, in Anlehnung an der Kontinuitätsgleichung für ein Fluid (3.2), unter Annahme einer konstanten Elektrolytdichte ($\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$) wie folgt definiert:

$$\nabla(\rho\vec{v}) = 0 \quad (4.1)$$

Die Impulsgleichung des Modells wird, in Anlehnung an der Impulsgleichung für ein inkompressibles viskoses Fluid (3.13), unter Annahme einer stationären schwerelosen Elektrolytströmung ($\frac{\partial(\rho\vec{v})}{\partial t} = 0$, $\rho\vec{g} = 0$) und mit dem zusätzlichen Quellterm des PM-Modells (\vec{M}) wie folgt definiert:

$$\nabla(\rho\vec{v}\vec{v}) = -\nabla p + \nabla(\mu(\nabla\vec{v} + \nabla\vec{v}^T)) + \vec{M} \quad (4.2)$$

wobei \vec{M} den Druckverlust in der PE darstellt und, in Anlehnung an der Gleichung (3.21), wie folgt definiert wird:

$$\vec{M} = \begin{cases} 0 & \text{für FC Domäne} \\ -\frac{\mu}{K}\vec{v} & \text{für PE Domäne} \end{cases} \quad (4.3)$$

Randbedingung

Die folgenden Randbedingungen in der Tabelle 5 werden gemäß den neben liegenden Erläuterungen eingestellt. Die genaue Position dieser Ränder wird in der Abbildung 18 dargestellt.

Rand	Bedingung	Erläuterung
FC_Inlet	Velocity-Inlet (constant)	Durch diesen Rand strömt Elektrolyt mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die FC-Domäne hinein.
FC_Outlet	Pressure-Outlet (0 Pa)	Durch diesen Rand strömt Elektrolyt mit einem bestimmten Druck meist aus der FC-Domäne heraus.
Interface	Interface	Dieser Rand ist durchlässig für Elektrolyt.
FC_Wall, PE_Wall	Wall	Durch diesen Rand strömt nichts und Elektrolyt haftet an diesen Rändern.

Tabelle 5: Randbedingungen vom 2D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Numerischer Lösungsansatz

Für die Druck-Geschwindigkeits-Kopplung wird der gekoppelte Algorithmus (Coupled) gewählt, weil die Simulation mit diesem Algorithmus schneller als die mit den getrennten Algorithmen wie SIMPLE konvergiert. Die restlichen Einstellungen in der Tabelle 6 werden nicht begründet, weil entweder sie Standardeinstellungen sind oder ihre Erklärung zu detailliert für diese Arbeit ist.

Einstellung	Auswahl
Solver Type	Pressure-Based
pressure-velocity Coupling	Coupled
Pseudo Transient	on
Spatial Discretization / Gradient	Least Squares Cell Based
Spatial Discretization / Pressure	Second Order Upwind
Spatial Discretization / Momentum	Second Order Upwind

Tabelle 6: numerische Einstellungen vom Modell für planaren VRFB-Halbzellen

4.2.2 Validierung des 2D-Modells

Zur Validierung werden hauptsächlich das analytische 1D-Modell in der Veröffentlichung von Ke [2] und das numerische 2D-Modell im Masterprojekt von Kanitz [3] verwendet. Zusätzlich stehen die Werte aus dem numerischen 2D-Modell von Struckmann und dem von Ke [32] zur Verfügung.

1D-Modell in der Veröffentlichung von Ke

Das Modell in der Ke-Veröffentlichung ist ein analytisches 1D-Modell mit der Annahme einer ausgebildeten Strömung in dem FC und der PE. Diese Annahme führt dazu, dass die Geschwindigkeitskomponente quer zur Strömungsrichtung (y-Richtung) zu null wird und der Druckgradient entlang dem FC konstant bleibt. Dieses Modell basiert auf zwei Geschwindigkeitsprofile $(u_{fc}(y), u_{pe}(y))$, die aus Randbedingungen und Volumenstromerhaltung entstehen [40]. Zur Validierung wird dieses Modell mit einem anderen numerischen Modell von Ke [32], das bereits mit experimentellen Daten validiert wurde, verglichen und ihre Ergebnisse stimmen überein.

Modelle in dem Masterprojekt von Kanitz und Modelle von Struckmann

Die Modelle im Kanitz-Masterprojekt und die von Struckmann sind numerische 2D- und 3D-Modelle, die mithilfe der Simulationssoftware COMSOL erstellt werden. Im Gegensatz zu ANSYS Fluent, was auf der Finite-Volumen-Methode (FVM) basiert, verwendet COMSOL die Finite-Element-Methode (FEM) für den numerischen Lösungsansatz. Trotzdem unterscheiden sich diese Modelle und die Modelle dieser Arbeit hinsichtlich der physikalischen Grundgleichungen nicht wesentlich, deswegen sind ähnliche Simulationsergebnisse zu erwarten.

Simulationsparameter (siehe Anhang A-2)

Für die Validierung werden die geometrischen Parameter, die Randbedingungen und die restlichen Parameter wie die in der Veröffentlichung von Ke [32] verwendet und sie werden in der Tabelle 26 im Anhang aufgelistet.

Validierungsergebnis (siehe Anhang A-8)

In allen Kriterien stimmen die Simulationsergebnisse der betrachteten Modelle überein und somit wird das 2D-Modell validiert. Als Nächste kann das Modell auf drei Dimensionen erweitert werden.

4.3 3D-Modell

4.3.1 Umsetzung des 3D-Modells in ANSYS Fluent

Geometrie

Das Modell wird in zwei Domänen eingeteilt: FC-Domäne für den Strömungskanal und PE-Domäne für die poröse Elektrode. Diese Domänen werden mit quaderförmigen Körpern realisiert. Zu den parametrisierten Größen zählen die FC-Dicke, die FC-Breite, die PE-Dicke, die PE-Breite und die Kanallänge. Die Geometrie und die Randbedingungen für dieses Modell sind in der Abbildung 20 zu sehen.

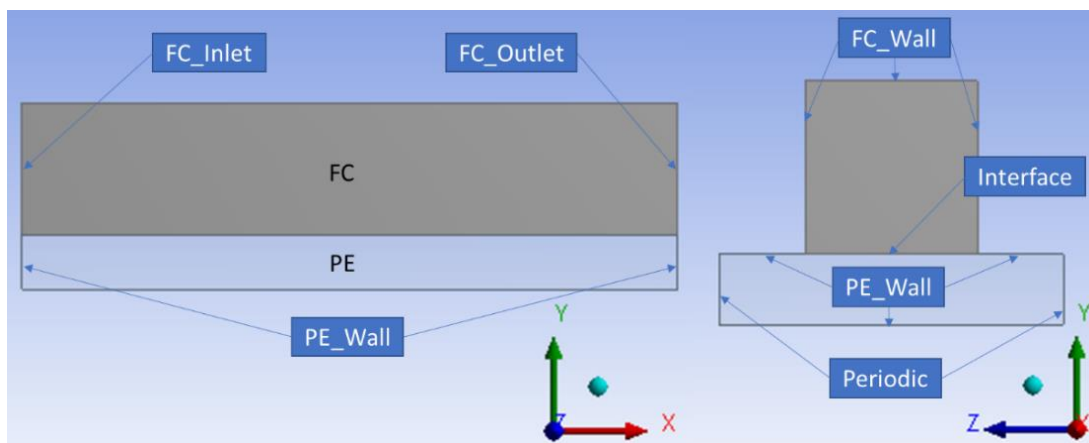


Abbildung 20: Geometrie und Randbedingungen vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Netz

Für die beiden Domänen wird ein strukturiertes Hexahedron-Netz, bei dem nur quaderförmige Volumenelemente erzeugt werden, umgesetzt. Zusätzlich werden Prismenschichten (Inflation) für die Kanalwände (FC_Wall) und die Grenzfläche zwischen dem FC und der PE (Interface) implementiert, da die Geschwindigkeitsgradient in der zugehörigen Normalrichtung relative hoch ist. Die Standard-Elementgröße beträgt 0.05 mm. Das generierte Netz für dieses Modell ist in der Abbildung 21 zu sehen.

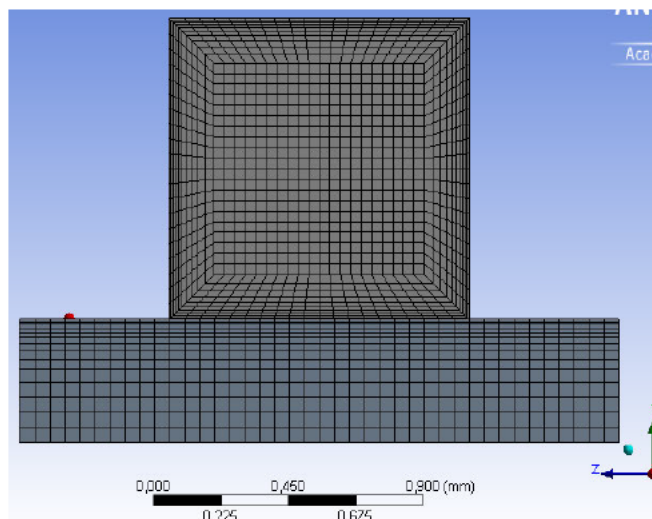


Abbildung 21: strukturiertes Netz vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Modelleinstellung, Grundgleichung

Die Modelleinstellungen und die Grundgleichungen sind identisch zu den vom 2D-Modell (Abschnitt 4.2.1).

Randbedingung

Die folgenden Randbedingungen in der Tabelle 7 werden gemäß den neben liegenden Erläuterungen eingestellt. Die genaue Position dieser Ränder wird in der Abbildung 20 dargestellt. Im Vergleich zum 2D-Modell werden zusätzlich die PE-Seitenflächen (*Periodic* in der Abbildung 20) den periodischen Rändern zugeordnet, um den Übergang mit den anderen FC-Durchgängen abzubilden.

Rand	Bedingung	Erläuterung
FC_Inlet	Velocity-Inlet (const)	Durch diesen Rand strömt Elektrolyt mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die FC-Domäne hinein.
FC_Outlet	Pressure-Outlet (0 Pa)	Durch diesen Rand strömt Elektrolyt mit einem bestimmten Druck meist aus der FC-Domäne heraus.
Interface	Interface	Dieser Rand ist durchlässig für Elektrolyt.
FC_Wall, PE_Wall	Wall	Durch diesen Rand strömt nichts und Elektrolyt haftet an diesen Rändern.
Periodic	Periodic	Dieser Rand ist zwar durchlässig für Fluide, aber der Nettomassenstrom durch diese Ränder ist gleich Null.

Tabelle 7: Randbedingungen vom 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Numerischer Lösungsansatz

Die numerischen Lösungsansätze sind identisch zu den vom 2D-Modell (siehe Tabelle 6).

4.3.2 Validierung des 3D-Modells

Zur Validierung werden hauptsächlich das numerische 3D-Modell im Masterprojekt von Kanitz [3] und das von Struckmann verwendet. Zusätzlich stehen die Ergebnisse aus dem 2D-Modell (Abschnitt 4.2) und dem analytischen 1D-Modell von Ke zum Vergleich. Der Ursprung dieser Modelle wird im Abschnitt 4.2.2 vorgestellt.

Simulationsparameter

Die Parameter aus der Validierung für das 2D-Modell (Tabelle 26) werden übernommen.

Validierungsergebnis (siehe Anhang A-9)

Beim Vergleich mit den 1D- und 2D-Modellen weichen zwar die Ergebnisse in allen Kriterien ab, aber diese Abweichung ist kein Modellfehler und akzeptierbar. Ihr Hintergrund ist die Reibung an den seitlichen FC-Wänden, die erst beim 3D-Modell abgebildet werden. Eine ausführliche Erklärung ist in dem Masterprojekt von Kanitz [3] zu finden. Beim Vergleich mit den betrachteten 3D-Modellen stimmen trotzdem die Ergebnisse in allen Kriterien überein und somit wird das 3D-Modell validiert.

4.3.3 Strömungsanalyse für die DECHEMA-Zelle

DECHEMA-Zelle ist eine planare VRFB-Zelle mit Flow-By-Elektrode und fünfzehn parallelen Strömungskanälen. Bei dieser Analyse wird zwar nur die positive Halbzelle durch Einsetzen der Viskosität von einer positiven Elektrolytlösung simuliert, aber das Simulationsergebnis der negativen Halbzelle wird nicht viel von dem der positiven Halbzelle abweichen.

Simulationsparameter (siehe Anhang A-2)

Für das PE-Material wird ECM80, was auf 500 μm komprimiert wird, verwendet. Mit den Herstellerangaben für ECM80 und der Gleichung (3.16) wird die Porosität berechnet. Für die Permeabilität stehen neben der Herstellerangabe die Werte aus einer HAW-Ermittlung und der Ke-Annahme zur Verfügung. Die verwendeten Parameter werden in der Tabelle 27 im Anhang aufgelistet.

Simulationsergebnis und Analyse

Bei der Variierung der Permeabilität (Ergebnis in der Tabelle 8) ändert sich der Druckverlust nicht wesentlich, da der Druckverlust hauptsächlich durch die Wandreibung

verursacht wird. Im Gegensatz dazu werden der PE-Volumenstrom und somit der Volumenstromanteil durch die Permeabilität stark beeinflusst.

Variante	K	Δp	Q _{fc} @x=0.5L	Q _{pe} @x=0.5L	(Q _{pe} /Q _{fc}) @x=0.5L
	[Darcy]	[Pa]	[ml/min]	[ml/min]	
K_ECM80_min * 0,1	7	164	6,39	0,01	0,11%
K_HAW	22	162	6,38	0,02	0,35%
K_ECM80_min	70	159	6,33	0,07	1,08%
K_ECM80_max	100	157	6,30	0,10	1,53%
K_Ke	231	151	6,19	0,21	3,40%
K_ECM80_max * 10	1000	130	5,67	0,73	12,86%

Tabelle 8: Simulationsergebnisse bei der Variierung der Permeabilität

Bei der Variierung des Volumenstroms (Ergebnis in der Tabelle 9) ist ein linearer Zusammenhang zwischen dem Eingangsvolumenstrom und dem Druckverlust, wie erwartet, zu erhalten. Außerdem wird es bestätigt, dass der Eingangsvolumenstrom den Volumenstromanteil (Q_{pe}/Q_{fc}) nicht beeinflusst.

Variante	Q-in	Δp	Q _{fc} @x=0.5L	Q _{pe} @x=0.5L	(Q _{pe} /Q _{fc}) @x=0.5L
	[ml/min]	[Pa]	[ml/min]	[ml/min]	
Q-betrieb * 0,1	0,64	15,7	0,63	0,01	1,53%
Q-betrieb	6,40	157,3	6,30	0,10	1,53%
Q-betrieb * 10	64,00	1573,2	63,03	0,97	1,53%

Tabelle 9: Simulationsergebnisse bei der Variierung des Volumenstroms

Bei der Variierung der Geometrie (Ergebnis in der Tabelle 10) ist ein linearer Zusammenhang zwischen dem Druckverlust und dem PE-Volumenstrom zu erkennen (siehe Abbildung 22), demzufolge muss eine geometrische Optimierung für einen geringeren Druckverlust immer mit einer Verringerung des PE-Volumenstroms gerechnet werden. Hinzukommend bewirkt die Verringerung der FC-Dicke eine deutliche Zunahme des PE-Volumenstroms sowie des Druckverlusts, daher werden Strömungskanäle meist mit einem kleinen Dicke-Breite-Verhältnis gestaltet. Weiterhin ist es festzulegen, dass eine Leistungsoptimierung für die Zelle allein durch die Strömungsanalyse nicht durchgeführt werden kann.

th_fc	w_fc	w_pe	n_fc	A_fc	A_pe	Δp	Q_fc @x=0.5L	Q_pe @x=0.5L	(Q_pe/Q_fc) @x=0.5L
[mm]	[mm]	[mm]		[mm ²]	[mm ²]	[Pa]	[ml/min]	[ml/min]	
0,5	1	2	15	0,50	1,00	156	6,30	0,10	1,52%
0,5	1,5	2	15	0,75	1,00	90	6,34	0,06	0,97%
0,33	1,5	2	15	0,49	1,00	274	6,23	0,17	2,79%
0,5	1	1,5	20	0,50	0,75	118	6,32	0,08	1,20%

Tabelle 10: Simulationsergebnisse bei der Variierung der Geometrie

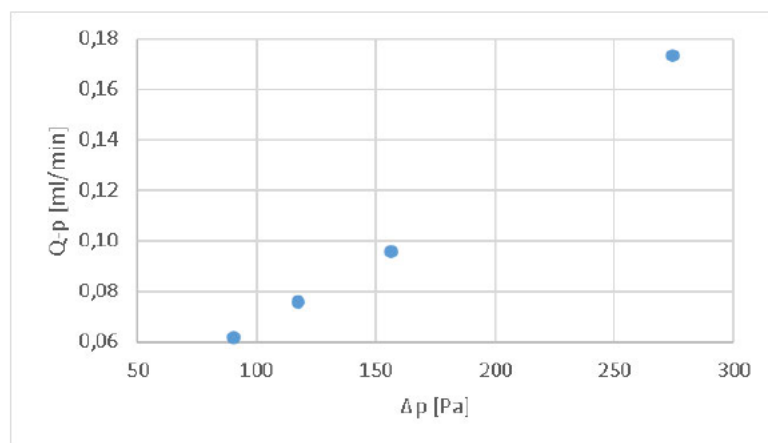


Abbildung 22: linearer Zusammenhang zwischen dem Druckverlust und dem PE-Volumenstrom bei der Variierung der Geometrie

Analyse für den Fall mit $K_{ECM80,min}$ und dem Betriebsvolumenstrom

In der Abbildung 23 wird es gezeigt, dass die Elektrolytlösung nur am Eingang in die Elektrode eindringt und am Ausgang aus der Elektrode ausströmt. Diese Bereiche sind kurz und in den restlichen Bereichen strömt in Wesentlich nichts in Normalrichtung ($v_y=0$) und durch die Grenzfläche zwischen dem FC und der PE. Demzufolge kann die Wirkung von der Through-Plane-Permeabilität für diesen VRFB-Typ vernachlässigt werden. In der Abbildung 24 (b,c) ist ein homogenes Geschwindigkeitsfeld in den meisten Flächen des PE-Querschnittes zu erkennen und die Strömungsgeschwindigkeit in der PE beträgt ca. 0,15 mm/s.

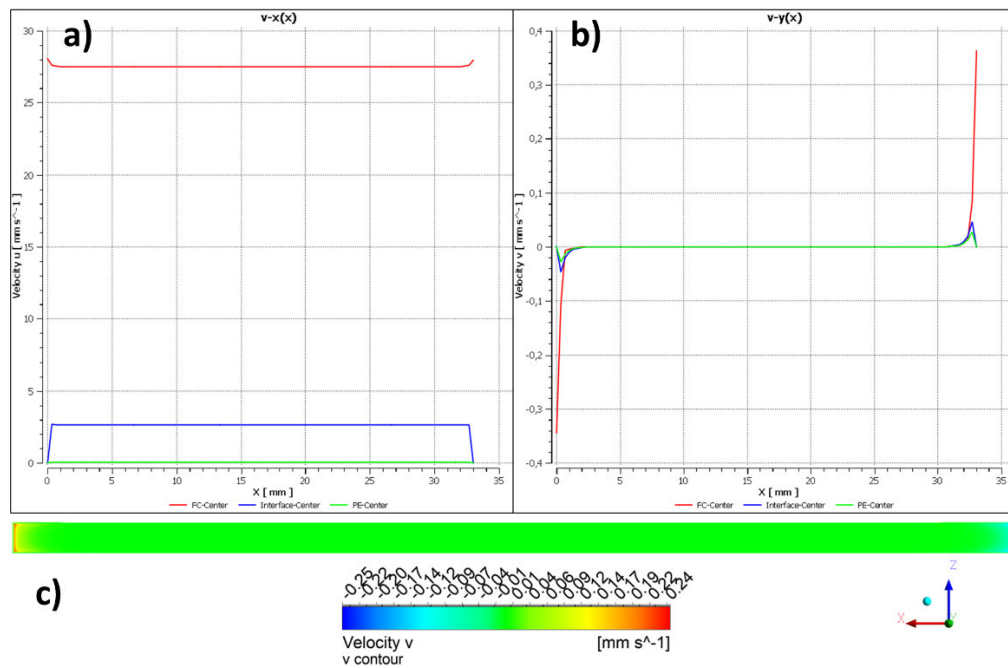


Abbildung 23: Geschwindigkeitsverlauf v_x (a) und v_y (b) entlang Zellenlänge und y-Geschwindigkeitsverteilung auf der Grenzfläche (c)

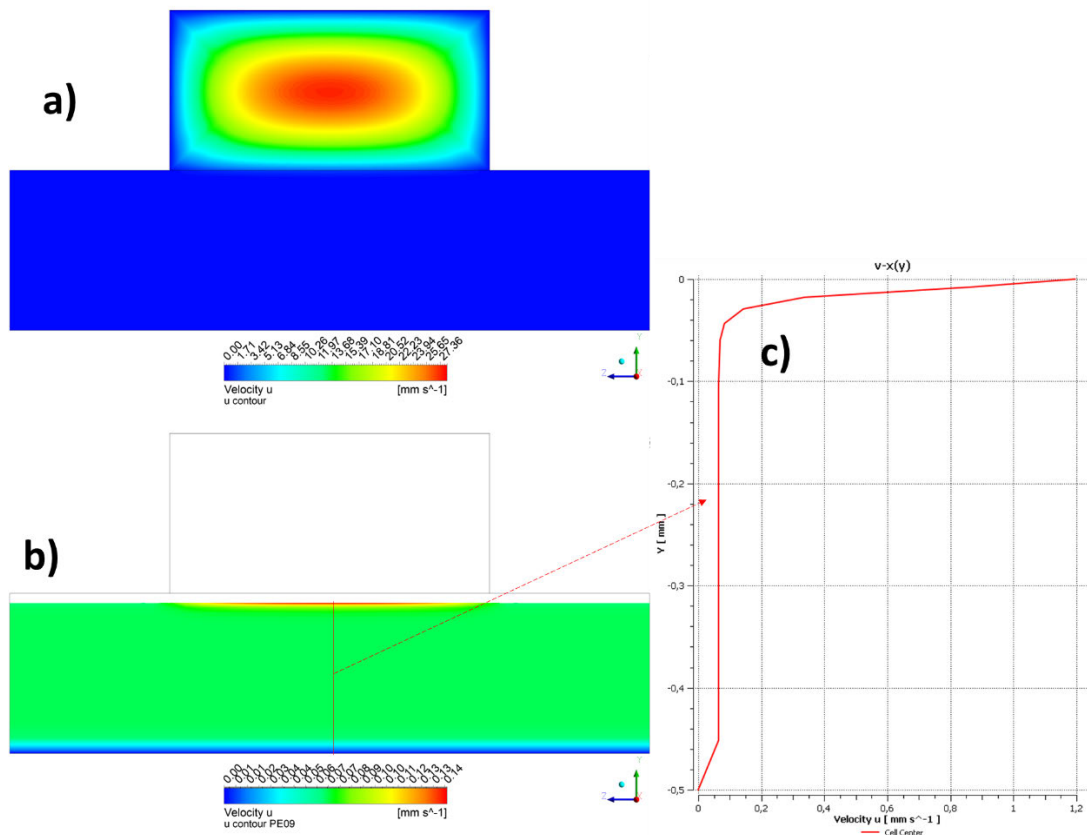


Abbildung 24: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ für den gesamten Querschnitt (a), den PE-Querschnitt (b) und die Mittellinie im PE-Querschnitt (c)

5 Fluid-Flow-Modell für tubuläre VRFB-Halbzellen

In diesem Kapitel wird ein Fluid-Flow-Modell für die Elektrolytströmung in tubulären VRFB-Halbzellen mit Flow-By-Elektrode und parallelen Strömungskanälen entwickelt. Zunächst werden die Modellannahmen erläutert. Anschließend wird die Modellumsetzung in Fluent beschrieben. Zum Schluss werden die Validationsergebnisse dargestellt und diskutiert.

Für diese Zelle befinden sich die positive Elektrolytlösung in der inneren Halbzelle und die negative Elektrolytlösung in der äußeren Halbzelle. Beim tubulären Zellendesign ist die Geometrie der Halbzellen unterschiedlich (siehe Abbildung 25), deswegen wird für jede Halbzelle ein separates Modell entwickelt. Die Umsetzungen unterscheiden sich jedoch lediglich in der Geometrieerzeugung und der Vernetzung.

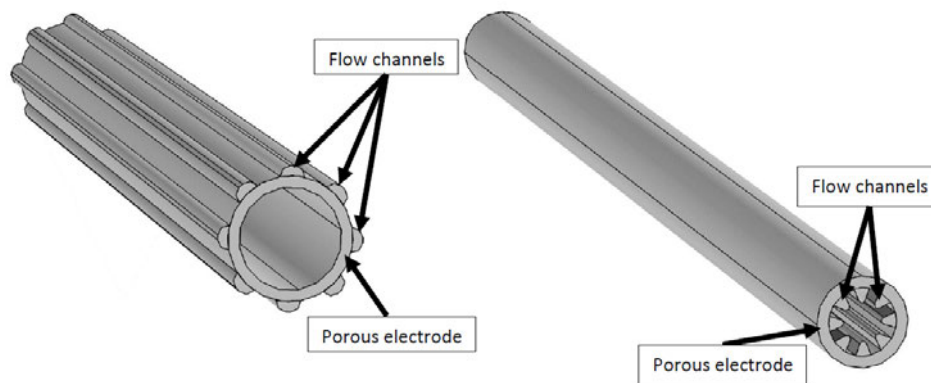


Abbildung 25: 3D-Geometrie von der äußeren Halbzelle (links) und der inneren Halbzelle (rechts) der HAW-tubulären VRFB-Zelle [9]

5.1 Modellannahme

Die Annahmen und die Vereinfachungen für dieses Modell sind identisch zu den vom Modell für planare VRFB-Halbzellen (siehe Abschnitt 4.1).

5.2 Umsetzung in ANSYS Fluent

Geometrie (für die beiden Halbzelle-Modelle)

Das Modell wird in zwei Domänen eingeteilt: FC-Domäne für den Strömungskanal und PE-Domäne für die poröse Elektrode. Diese Domänen werden anhand der Fertigungszeichnung der HAW-tubulären Zelle konstruiert. Zusätzlich wird das eingedrungene gewölbte PE-Volumen im FC durch eine gekrümmte Kurve in der Querebene abgebildet, wobei der Abstand zwischen dem Extrempunkt dieser Kurve und

seiner herkömmlichen Lage der Eindringtiefe entspricht. Zu den parametrisierten Abmessungen der äußeren Halbzelle (Abbildung 26a) zählen die Zellenlänge (l), der Stromsammler-Radius (r_{cc}), die E-Dicke (th_{pe}), FC-Radius (r_{fc}), die Eindringtiefe ($de_{eindring}$) und der PE-Öffnungswinkel (a_{pe}), der durch die Anzahl vom FC bestimmt wird. Zu den parametrisierten Abmessungen der inneren Halbzelle (Abbildung 26b) zählen die Zellenlänge (l), der Stromsammler-Radius (r_{cc}), die PE-Dicke (th_{pe}), die FC-Tiefe (de_{fc}), die FC-Rundungsradius (r_{fc}), die Eindringtiefe ($de_{eindring}$) und der PE-Öffnungswinkel (a_{pe}), der durch die Anzahl vom FC bestimmt wird.

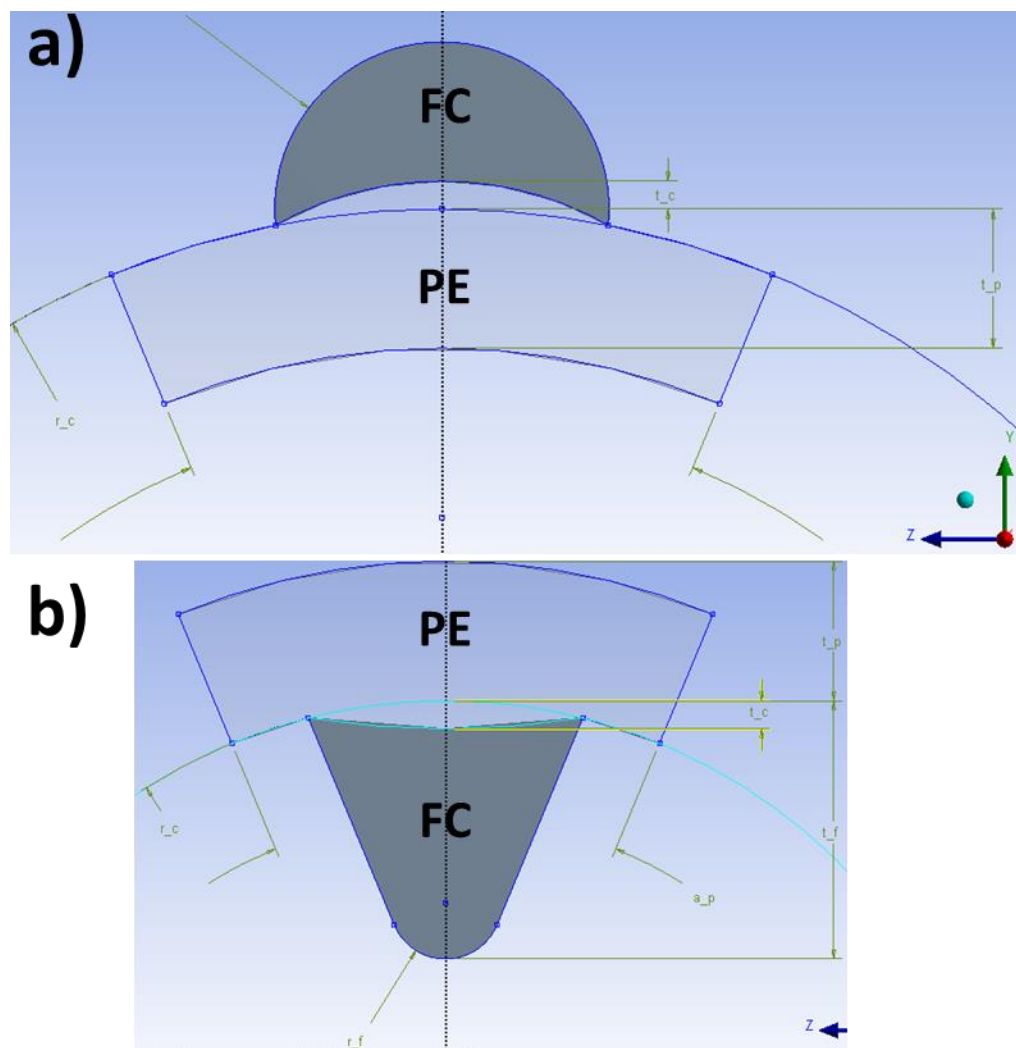


Abbildung 26: Geometrie und parametrisierte Abmessungen von dem äußeren Halbzelle-Modell (a) und dem inneren Halbzelle-Modell (b) für tubuläre VRFB-Zelle

Netz (für die beiden Halbzelle-Modelle)

Für die beiden Domänen wird ein strukturiertes Hexahedron-Netz, bei dem nur Hexahedron-Volumenelemente erzeugt werden, umgesetzt. Zusätzlich werden

Prismenschichten (Inflation) für die Kanalwand (FC_Wall) und die Grenzfläche zwischen dem FC und der PE (Interface) implementiert, da die Geschwindigkeitsgradient in der entsprechenden Normalrichtung relative hoch ist. Die Standard-Elementgröße beträgt 0.05 mm. Das generierte Netz für dieses Modell ist in der Abbildung 27 zu sehen.

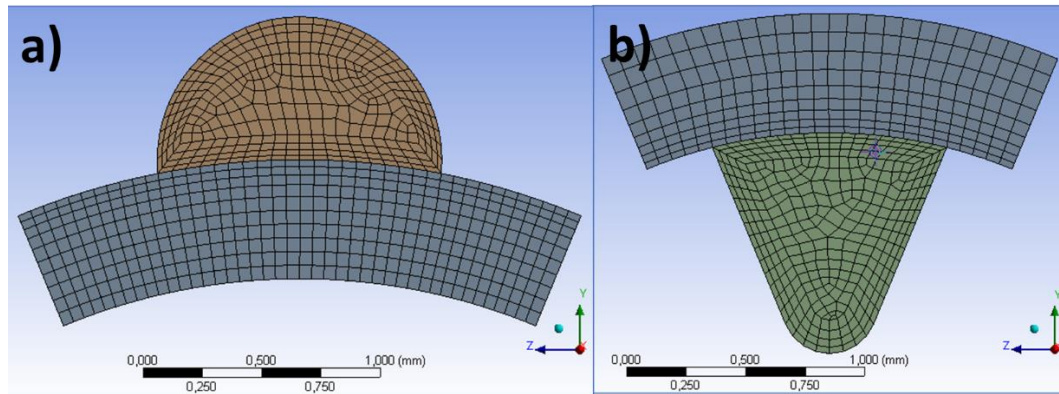


Abbildung 27: strukturiertes Netz von dem äußeren Halbzelle-Modell (a) und dem inneren Halbzelle-Modell (b) für tubuläre VRFB-Zelle

Modell, Grundgleichung (für die beiden Halbzelle-Modelle)

Die Modelleinstellungen und die Grundgleichungen sind identisch zu den vom 2D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (Abschnitt 4.2.1).

Randbedingung (für die beiden Halbzelle-Modelle)

Die Randbedingungen sind identisch zu den vom 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (Tabelle 7) und ihre Position wird in der Abbildung 28 dargestellt.

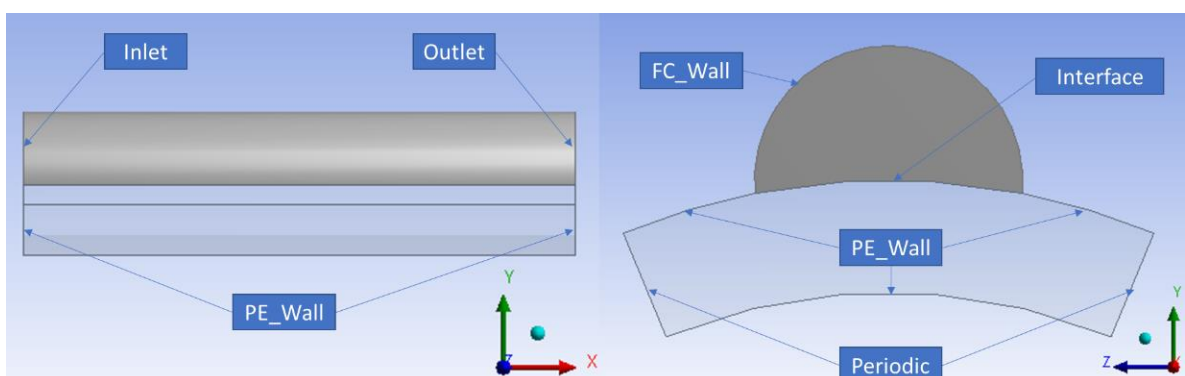


Abbildung 28: Position der Randbedingungen des äußeren Halbzelle-Modells für tubuläre VRFB-Zelle (für die innere Halbzelle ist ähnlich)

Numerischer Lösungsansatz (für die beiden Halbzelle-Modelle)

Die numerischen Lösungsansätze sind identisch zu den vom 2D-Modell für planare VRFB-Halbzelle (Tabelle 6).

5.3 Validierung

Zur Validierung werden hauptsächlich das 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (Abschnitt 4.3) und die Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären Zelle verwendet.

5.3.1 Validierung mit dem 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Hier wird das äußere Halbzelle-Modell mit einem geometrischen äquivalenten 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen verglichen. Die Ähnlichkeit der beiden Modelle hinsichtlich der Geometrie wird in der Abbildung 29 dargestellt. Abgesehen von den Abmessungen sind die restlichen Parameter der beiden Modelle identisch, daher wird sie im Folgenden nicht angegeben.

Abgesehen vom kleinen Unterschied beim Druckverlust sind die Simulationsergebnisse der beiden Modelle identisch (siehe Tabelle 11). Demzufolge wird es sichergestellt, dass kein Modellfehler bei dem Umbau von der planaren zu der tubulären Geometrie entsteht. Die beiden Simulationen werden mit der Permeabilität von 9700 Darcy durchgeführt, deswegen sind die resultierenden Ergebnisse nicht auszuwerten.

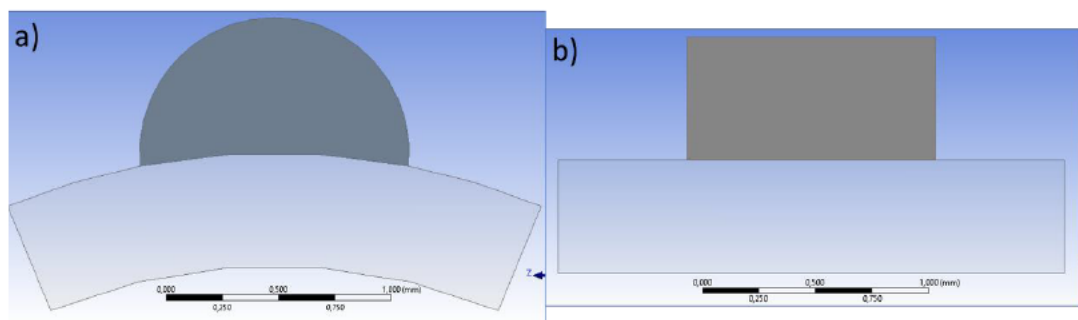


Abbildung 29: Geometrie von dem äußeren Halbzelle-Modell für tubuläre VRFB-Zelle (a) und dem geometrischen äquivalenten 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (b)

Modell	A _{fc} mm ²	A _{pe} mm ²	Δp Pa	Q _{fc@x=0.5L} m ³ /s	Q _{pe@x=0.5L} m ³ /s
VRFB_planar_3D	0,59	1,12	7241	2,09E-07	1,24E-07
VRFB_tubular	0,59	1,12	6961	2,10E-07	1,22E-07

Tabelle 11: Ergebnisvergleich zwischen dem äußeren Halbzelle-Modell für tubuläre VRFB-Zelle (a) und dem geometrischen äquivalenten 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

5.3.2 Validierung mit den Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären Zelle

Die HAW-Zelle ist eine tubuläre VRFB-Zelle mit Flow-By- Elektrode und acht parallelen Strömungskanälen. Die Druckverlust-Messung wurde für fünf gleiche HAW-Zellen durchgeführt, um eine Wiederholmessung zu repräsentieren. Die hohen Druckverluste in den beiden Halbzellen sind vermutlich auf das eindringende PE-Volumen im FC, die bei der Druckmessung unbestimmbar ist, zurückzuführen. Demzufolge wird bei der Validierung die Eindringtiefe variiert, um das eindringende PE-Volumen wie die Messung zu realisieren. In der Abbildung 47 im Anhang A-3 werden die sämtlichen gemessenen Druckverluste dargestellt, wobei VRFB001, VRFB002 usw. die Bezeichnungen der fünf gleichen Zellen sind. Für die Validierung wird der Volumenstrom von 10 ml/min gewählt, dabei der Druckverlust in der äußerer Halbzelle zwischen 200 und 400 hPa variiert und der in der innerer Halbzelle zwischen 100 und 150 hPa variiert.

Simulationsparameter (siehe Anhang A-2)

Die geometrischen Parameter werden anhand der Fertigungszeichnung der HAW-Zelle bestimmt und werden im Folgenden nicht explizit angegeben. Für das PE-Material wurde Pyron, was auf 500 μm komprimiert wurde, verwendet. Mit den Herstellerangaben für Pyron und der Gleichung (3.16) wird die Porosität berechnet. Für die Permeabilität werden jedoch der Wert von ECM80 und der aus der HAW-Ermittlung genommen. Die verwendeten Parameter werden in der Tabelle 28 im Anhang aufgelistet.

Validierungsergebnis

Beim Vergleich der Simulationsergebnisse der beiden Halbzelle-Modelle (Tabelle 12, Tabelle 13) wird es gezeigt, dass bei einer gleichen Eindringtiefe der Druckverlust in der äußeren Halbzelle immer größer als der in der inneren Halbzelle ist. Dieses Phänomen liegt an der FC-Geometrie der beiden Halbzelle. Einerseits wird der innere Strömungskanal tiefer als der äußere Strömungskanal konstruiert. Andererseits hat der äußere Strömungskanal bei steigender Eindringtiefe ein ungleichmäßiges Verhältnis zwischen der Breite und der Dicke (Breite größer als Dicke), währenddessen ist das Verhältnis des inneren Strömungskanals gleichmäßig. Anhand der Messdaten wird ebenfalls ein höherer Druckverlust in der äußeren Halbzelle beobachtet, deswegen könnten dieses Phänomen und das aus der Simulation resultierende Phänomen den gleichen Ursprung haben.

Für die innere Halbzelle erreicht der simulierte Druck den Referenzbereich bei der Eindringtiefe von 0,6 mm und für die äußere Halbzelle bei der Eindringtiefe von 0,45 mm. In der Abbildung 30 kann es gesehen werden, wie hoch diese Tiefen, im Vergleich

zu den FC-Tiefen, sind. In der Realität können noch andere Phänomene, die nicht im Modell berücksichtigt werden, zum hohen Druckverlust beitragen. Außerdem kann es sein, dass die verwendeten Parameter, wie Permeabilität, Dichte und Viskosität, nicht zu den in der Druckmessung passen. Weiterhin kann das abgebildete Eindringvolumen von der wahren Geometrie abweichen. Alle dieser genannten Erklärungen weisen darauf hin, dass die Eindringtiefen in der Realität niedriger sein können.

de_eindring [mm]	K [Darcy]	A_fc [mm ²]	A_pe [mm ²]	Δp [hPa]	(Q_pe/Q_fc)@x=0.5L
0,000	22	0,59	1,12	10	0,3%
0,200	22	0,42	1,29	29	0,8%
0,300	22	0,33	1,38	62	1,9%
0,350	22	0,28	1,43	102	3,2%
0,400	22	0,23	1,48	175	5,7%
0,425	22	0,20	1,51	245	8,2%
0,450	22	0,18	1,54	355	12,4%
0,000	100	0,59	1,12	10	1,2%
0,200	100	0,42	1,29	28	3,6%
0,300	100	0,33	1,38	56	8,0%
0,350	100	0,28	1,43	88	13,5%
0,400	100	0,23	1,48	142	24,1%
0,425	100	0,20	1,51	186	34,7%
0,450	100	0,18	1,54	246	52,1%

Tabelle 12: Simulationsergebnisse der äußeren Halbzelle bei der Validierung mit den Druckverlust-Messdaten

de_eindring [mm]	K [Darcy]	A_fc [mm ²]	A_pe [mm ²]	Δp [hPa]	(Q_pe/Q_fc)@x=0.5L
0,00	22	0,57	0,88	9	0,2%
0,20	22	0,44	1,00	17	0,4%
0,30	22	0,38	1,07	25	0,7%
0,40	22	0,31	1,14	40	1,1%
0,50	22	0,25	1,20	69	2,0%
0,55	22	0,21	1,23	95	2,8%
0,60	22	0,18	1,27	136	4,2%
0,00	100	0,57	0,88	9	0,9%
0,20	100	0,44	1,00	16	1,9%
0,30	100	0,38	1,07	24	2,9%
0,40	100	0,31	1,14	37	4,8%
0,50	100	0,25	1,20	63	8,7%
0,55	100	0,21	1,23	84	12,3%
0,60	100	0,18	1,27	116	18,2%

Tabelle 13: Simulationsergebnisse der inneren Halbzelle bei der Validierung mit den Druckverlust-Messdaten

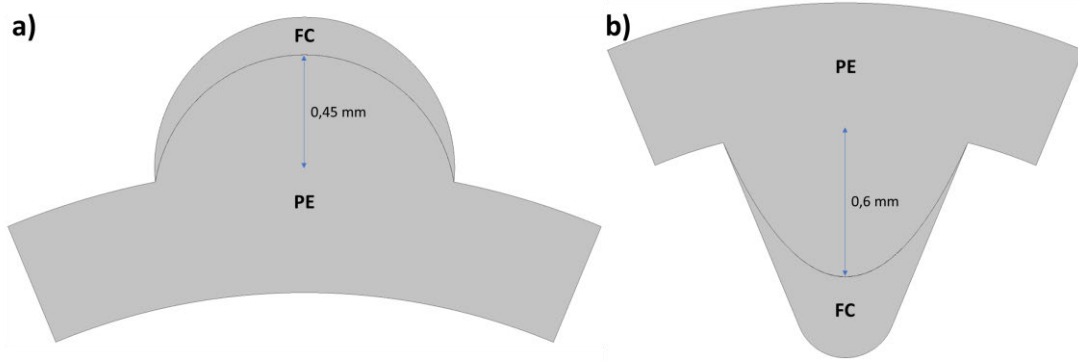


Abbildung 30: Geometrie der äußeren Halbzelle bei der Eindringtiefe von 0.45 mm (a) und der inneren Halbzelle bei der Eindringtiefe von 0.6 mm (b)

Strömungsanalyse

Für die folgende Strömungsanalyse wird die innere Halbzelle mit der Eindringtiefe von 0,6 mm und die Permeabilität von 100 Darcy gewählt. Im Grunde wird keine neue Erkenntnis im Vergleich zur Analyse der planaren DECHEMA-Zelle identifiziert. In der Abbildung 31 wird es wieder gezeigt, dass die Elektrolytlösung nur am Eingang in die Elektrode eindringt und am Ausgang aus der Elektrode auströmt. Außerdem ist ein homogenes Strömungsfeld in den meisten Flächen des PE-Querschnittes in der Abbildung 32 (b,c) zu erkennen und die Strömungsgeschwindigkeit in der PE beträgt ca. 2,5 mm/s. Bei der äußeren Halbzelle ergeben sich auch ähnliche Ergebnisse, deswegen werden sie im Folgenden nicht dargestellt.

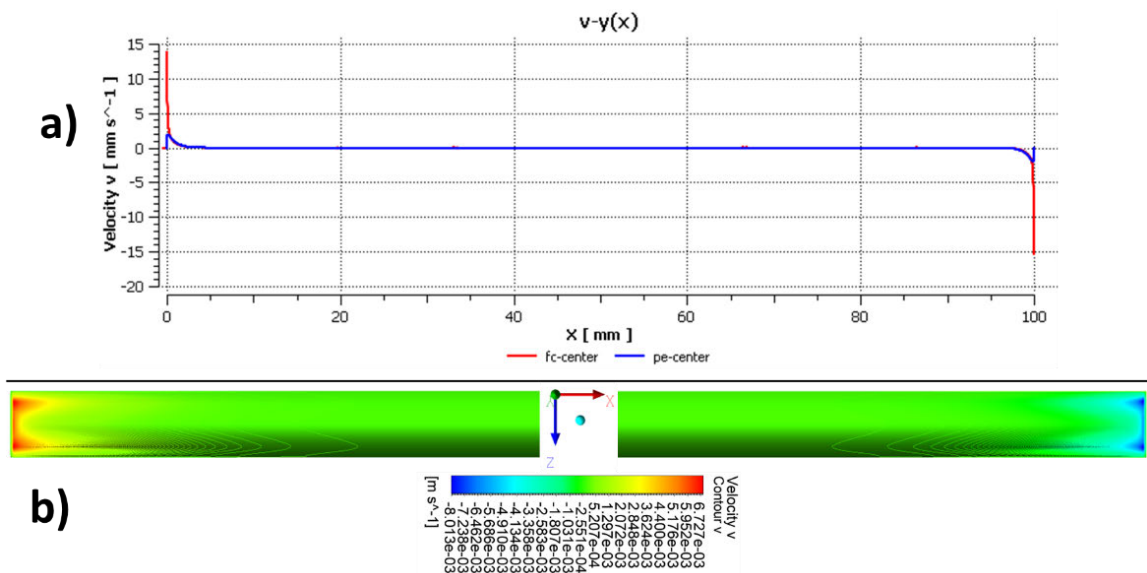


Abbildung 31: Verlauf entlang Zellenlänge (a) und Verteilung auf Grenzfläche (b) der y-Geschwindigkeitskomponente

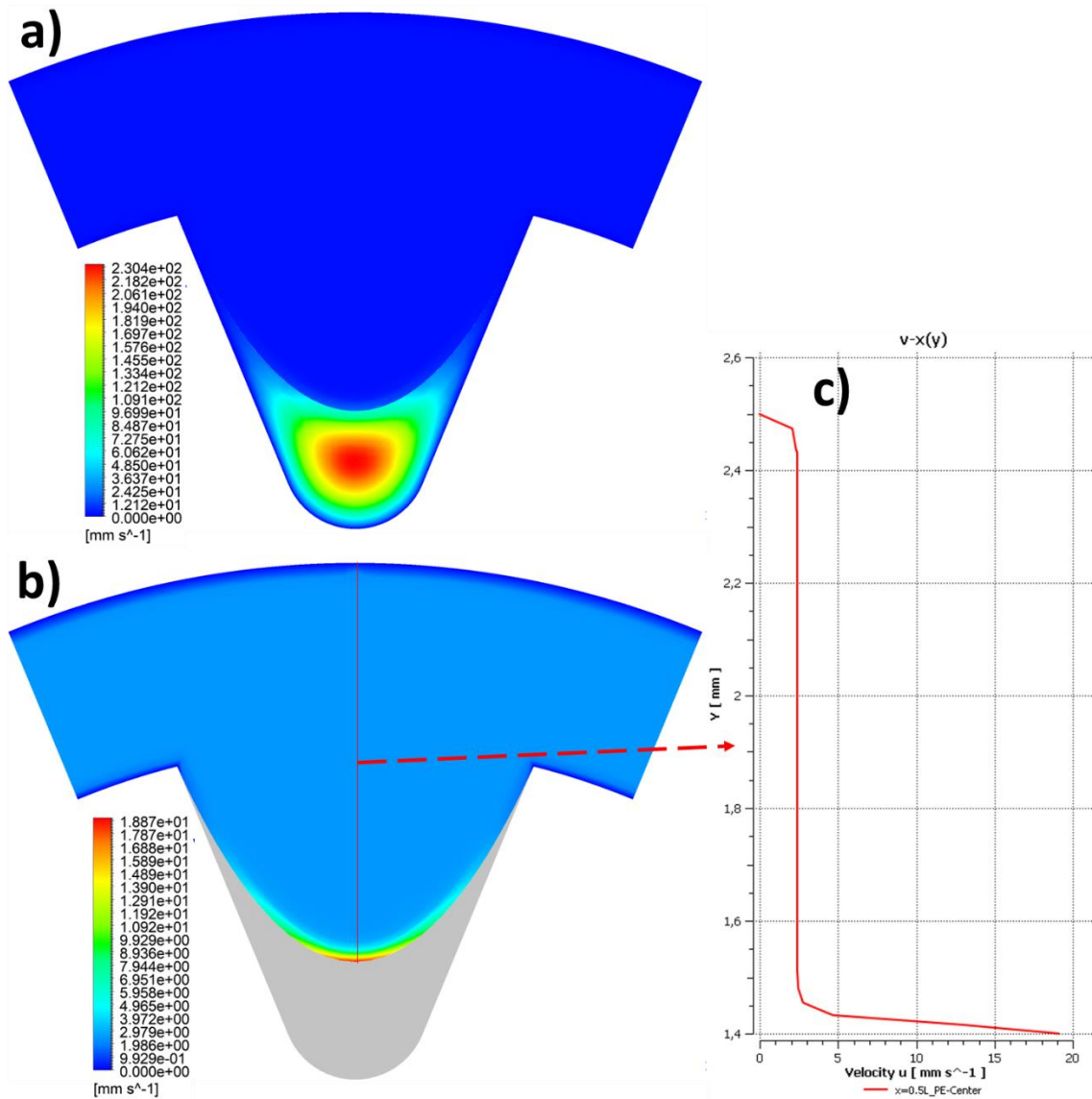


Abbildung 32: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ für den gesamten Querschnitt (a), den PE-Querschnitt (b) und die Mittellinie im PE-Querschnitt (c)

6 Fluid-Flow-Modell für PEMEC-Anode

In diesem Kapitel werden Modelle für die Wasser-Sauerstoff-Strömung in der Anodenseite einer planaren PEM-Elektrolysezelle mit parallelen Strömungskanälen entwickelt. Zunächst werden die allgemeine Modellannahmen erläutert. Anschließend werden zwei Mehrphasenmodelle in ANSYS Fluent vorgestellt: Mixture-Modell und VOF-Modell, die in der Veröffentlichung von Nie [41] und der von Lafmejani [10] verwendet werden. Zum Schluss werden die grundlegenden Modelleinstellungen diskutiert.

6.1 Modellannahme

Die folgenden allgemeinen Annahmen und Vereinfachungen werden für die Modelle in diesem Kapitel getroffen:

- Das flüssige Wasser und das Sauerstoffgas sind newtonsche Fluide und haben konstante Dichte, konstante Viskosität und keine Phasenänderung bzw. kein Massenaustausch.
- Eine isotherme Strömung durch die Anoden-Halbzelle wird angenommen. Mit solchem kleinem Zellenmaßstab soll die Temperaturänderung in der Realität auch gering sein.
- Lediglich ein FC-Durchgang (ein Strömungskanal und der entsprechende LGDL-Abschnitt) wird modelliert, da die Strömungen in jedem Strömungskanal bei der parallelen Konfiguration im Wesentlichen ähnlich sind.
- Die Sauerstoffgeneration (Menge und Position) wird vordefiniert.

6.2 Simulationsparameter

Die geometrischen Parameter werden anhand der Fertigungszeichnung von der HAW-planaren PEM-Elektrolysezelle bestimmt. Für das LGDL-Material wird Titanfilz verwendet. Der generierte Sauerstoffvolumenstrom kann mit der Stromstärke der Zelle und der folgenden Gleichung berechnet werden.

$$Q_{O_2} = N_{O_2} * V_M = \frac{I_{Zelle}}{4 * F} * V_M = f(I_{Zelle}) \quad (6.1)$$

wobei N_{O_2} die generierte Sauerstoff-Stoffmenge, V_M das Molvolumen ($V_{M,ideale Gas,0^\circ C} = 22,4 \text{ liter/mol}$), I_{Zelle} die Stromstärke der Zelle und F die Faraday-Konstante ($F = 96485 \text{ mol/s}$) sind. Außerdem stammt die Vier aus der Reaktionsgleichung ($2H_2O \rightarrow 4H^+ + 4e^- + O_2$). Beim experimentellen Test beträgt die Stromstärke ca. 1A,

somit ergeben sich ein Sauerstoffvolumenstrom von 3.17 ml/min und ein Sauerstoffmassenstrom von 0.07 mg/s.

Für die umgesetzten Modelle in diesem Kapitel, abgesehen von den Nachmodellen, werden die Parameter in der Tabelle 29 im Anhang A-2 verwendet. Die Parameter, die von der Temperatur abhängig sind, können sich eventuell nicht auf eine gleiche Temperatur beziehen. Deswegen sollen diese Parameter in einer anschließenden Arbeit, in der eine Strömungsanalyse durchzuführen ist, korrigiert werden.

6.3 Mixture-Modell

In diesem Abschnitt wird zunächst das Mixture-Modell in der Studie von Nie [41] nachgebaut und die resultierenden Ergebnisse werden mit den Ergebnissen in der Studie verglichen. Anschließend werden zwei Modelle, die auf dem Mixture-Modell in der Studie von Nie basieren, entwickelt.

6.3.1 Nachbau der Veröffentlichung von Nie

Das Modell in der Studie von Nie ist ein numerisches 3D-Modell, das unter Verwendung von ANSYS Fluent aufgestellt wird, für die Wasser-Sauerstoff-Strömung in der Anodenseite einer planaren PEM-Elektrolysezelle mit parallelen Strömungskanälen. Die Berechnungsdomäne dieses Modells (siehe Abbildung 33a) umfasst die ganze Anodenhälfte mit dreiundzwanzig Strömungskanälen und die Verteiler am Zelleneingang und -ausgang. Die Diffusionsschicht wird in diesem Modell jedoch nicht berücksichtigt.

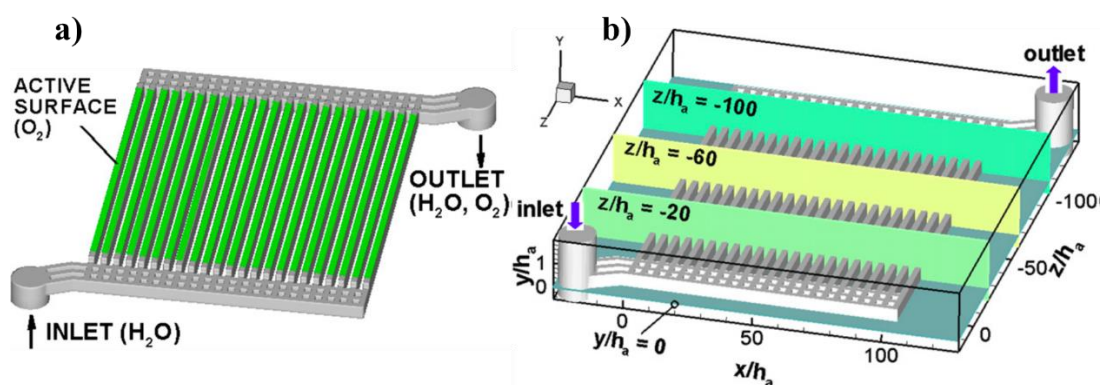


Abbildung 33: Berechnungsdomäne (a) und Auswertungspositionen (b) des Modells von Nie [41]

Die folgenden Annahmen und Vereinfachungen werden für das Modell getroffen:

- Ein stationärer Strömungszustand wird angenommen.
- Eine laminare Strömung für die ganze Berechnungsdomäne wird angenommen.
- Die Sauerstoffblasen haben einen konstanten Durchmesser.
- Die Sauerstoffgeneration wird durch eine gleichmäßige Gas-Injektion an der ganzen unteren Randfläche der Strömungskanäle realisiert.
- Die Gravitation wird vernachlässigt.

Simulationsergebnis und Vergleich

Aufgrund des begrenzten Aufwandes wird beim Nachbaumodell nur der Strömungskanal, der nah am Einlass liegt, modelliert. Außerdem steht nur der Sauerstoffvolumenanteil (SVA) zum Vergleich. In der Abbildung 34 wird es gezeigt, dass die SVA-Verteilungen der beiden Modelle im Wesentlichen übereinstimmen. Zur Veranschaulichung wird in der Abbildung 35 die Seitenansicht des Strömungskanals im Nachbaumodell dargestellt. Für die Abweichung am FC-Anfang kann die vereinfachte Berechnungsdomäne des Nachbaumodells verantwortlich sein. Mit diesen Ergebnissen kann es festgelegt werden, dass das Modell in der Studie von Nie korrekt nachgebaut wird.

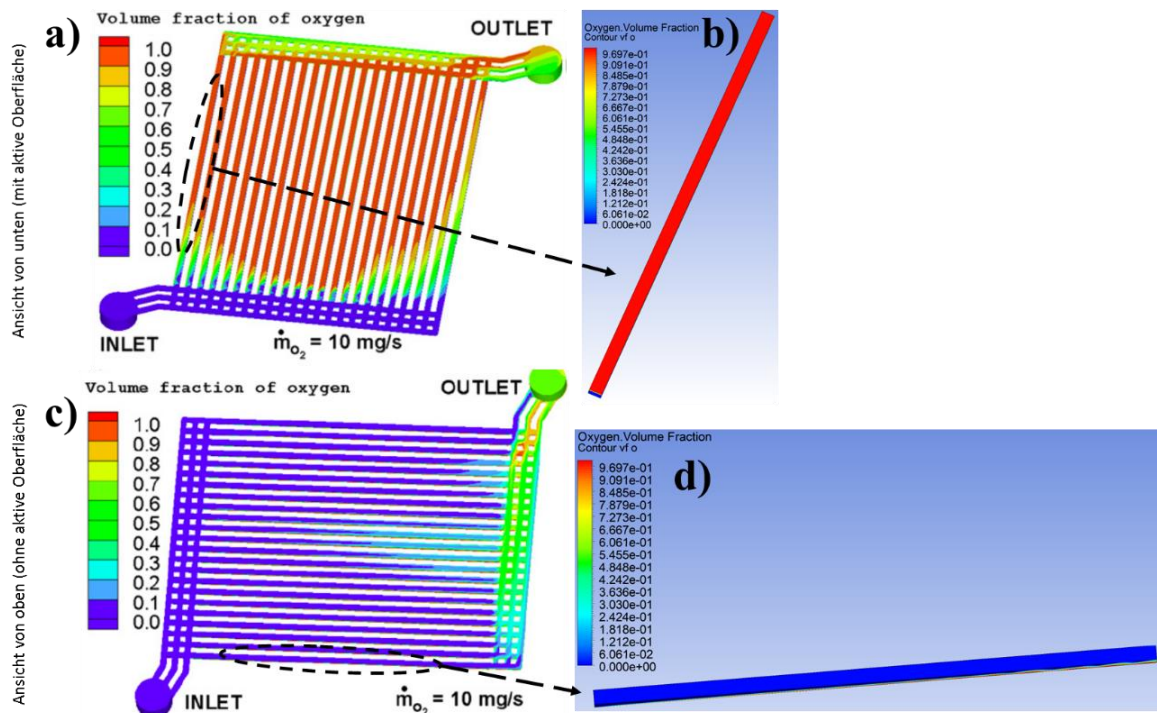


Abbildung 34: Vergleich der SVA-Verteilung zwischen den Ergebnissen in der Nie-Studie (a,c) und den resultierenden Ergebnissen vom Nachbaumodell (b,d)

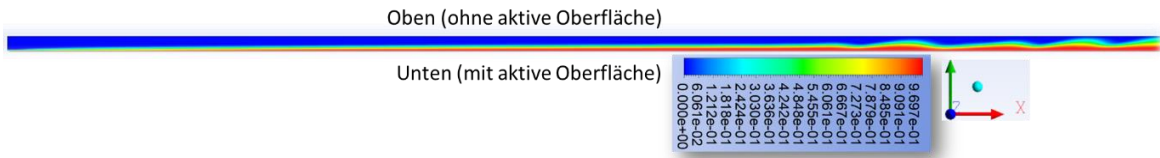


Abbildung 35: SVA-Verteilung vom Nachbaumodell in Seitenansicht

6.3.2 Umsetzung des stationären Mixture-Modells

Für dieses Modell werden die genannten Annahmen und Vereinfachungen des Modells von Nie (Abschnitt 6.3.1) übernommen. Im Gegensatz zur Berechnungsdomäne des Nie-Modells wird bei diesem Modell die poröse Diffusionsschicht berücksichtigt und abgebildet.

Geometrie

Das Modell wird in zwei Domänen eingeteilt: FC-Domäne für den Strömungskanal und LGDL-Domäne für die poröse Diffusionsschicht. Diese Domänen werden mit quaderförmigem Körper realisiert. Zu den parametrisierten Größen zählen die FC-Dicke, die FC-Breite, die LGDL-Dicke, die LGDL-Breite und die Kanallänge. Die Geometrie, die Randbedingungen und das vereinfachte Schema für dieses Modell sind in der Abbildung 36 zu sehen.

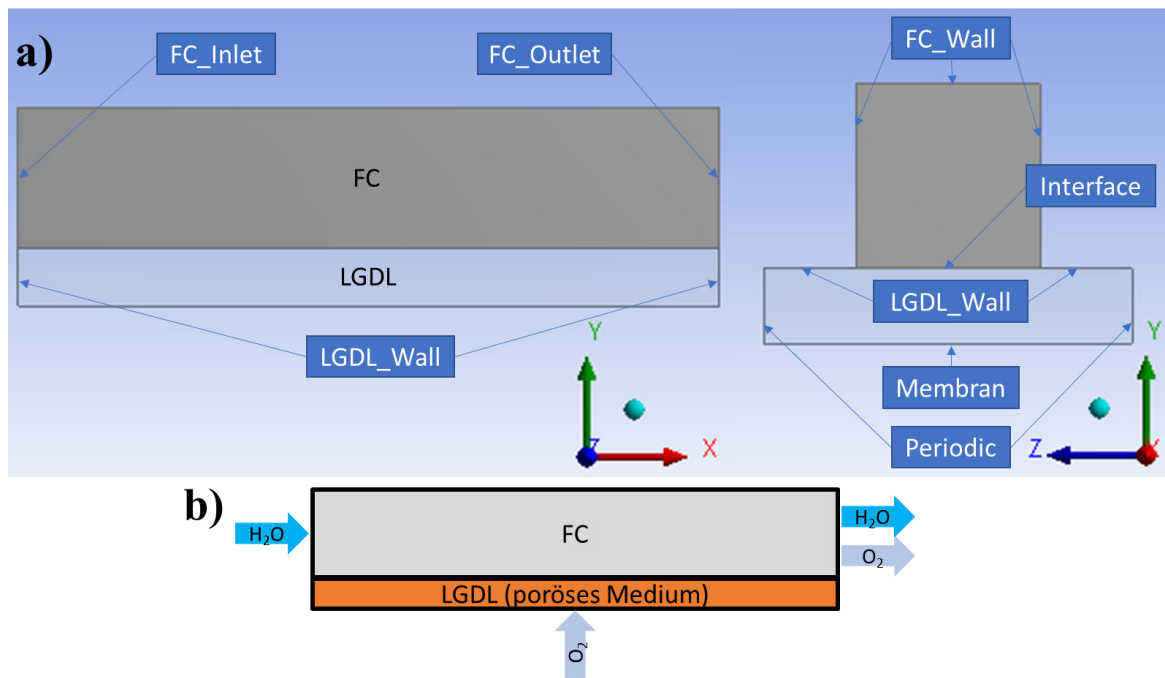


Abbildung 36: Geometrie, Randbedingungen (a) und Schema (b) vom 3D-Modell für planare PEM-Elektrolysezelle

Netz

Für die beiden Domänen wird ein strukturiertes Hexahedron-Netz, bei dem nur quaderförmige Volumenelemente erzeugt werden, umgesetzt. Zusätzlich wird Prismenschichten (Inflation) für die Kanalwände (FC_Wall) und die Grenzfläche zwischen dem FC und der LGDL (Interface) implementiert, da die Geschwindigkeitsgradient in der zugehörigen Normalrichtung relative hoch ist. Die Standard-Elementgröße beträgt 0.05 mm. Das generierte Netz für dieses Modell ist ähnlich wie das vom 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen (siehe Abbildung 21).

Modell

Die angegebenen Annahmen und Vereinfachungen werden mit den grundlegenden Fluent-Einstellungen in der Tabelle 14 realisiert. Hinzukommend werden die Einstellungen für die poröse LGDL-Domäne, deren Wirkung im Abschnitt 3.2.3 zu finden sind, am Ende der Tabelle 14 aufgelistet. Für die Abbildung der Phasenwechselwirkungen sind die Einstellungen in der Tabelle 15 zuständig.

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Time	Steady	Instationäre Terme werden mitgerechnet.
Gravity	Off	Gravitation wird nicht mitgerechnet.
Multiphase	Mixture	Mixture-Modell wird verwendet.
Viscous	laminar	Turbulentes Modell wird nicht aktiviert.
Energy Equation	Off	Energiegleichung wird nicht aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone	On	PM-Modell wird für die LGDL-Domäne aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone/Relative Viscosity	1 (Off)	Relative Viskosität wird nicht aktiviert.
Porous Formulation	Superfical Velocity	Oberflächengeschwindigkeit wird für die Zweiphasenströmung in der porösen Domäne verwendet.

Tabelle 14: grundlegende Einstellungen vom stationären Mixture-Modell

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Slip Velocity	On	Eine relative Geschwindigkeit zwischen den Phasen wird zugelassen.
Interface Modeling	Dispersed	Die Mischung der Phasen wird zugelassen, daher ist die Phasengrenze nicht eindeutig.
Primary phase	Water	Die Volumenanteilgleichung wird für die Sauerstoffphase gelöst und SVA wird als eine Variable definiert.
Secondary phase	Oxygen	
Drag	Schiller-Naumann	Schiller-Naumann-Modell wird zur Bestimmung der Widerstandfunktion verwendet.
Slip	Manninen-et-al	Manninen-et-al-Modell wird zur Bestimmung der relativen Geschwindigkeit verwendet.

Tabelle 15: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom stationären Mixture-Modell

Grundgleichung (siehe Anhang A-5)

Randbedingung

Die folgenden Randbedingungen in der Tabelle 16 werden gemäß den neben liegenden Erläuterungen eingestellt. Die genaue Position dieser Ränder wird in der Abbildung 36 dargestellt.

Rand	Bedingung	Erläuterung
FC_Inlet (H ₂ O- Einlass)	Velocity-inlet Water/Velocity = const Oxygen/Velocity = 0 Oxygen/Volume Fraction = 0	Durch diesen Rand strömt Wasser mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die Domänen hinein.
FC_Outlet (H ₂ O&O ₂ - Auslass)	Pressure-outlet (0Pa) Oxygen/Backflow Volume Fraction = 0	Durch diesen Rand strömen Wasser und Sauerstoff mit einem bestimmten Druck hauptsächlich aus den Domänen heraus. Hinzukommend enthält eine mögliche Rückströmung kein Sauerstoff.
Membran (O ₂ -Einlass)	Velocity-inlet Water/Velocity = 0 Oxygen/Velocity = const Oxygen/Volume Fraction = 1	Durch diesen Rand strömt Sauerstoff mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die Domänen hinein.
Periodic	Periodic	Dieser Rand ist zwar durchlässig für Fluide, aber der Nettomassenstrom durch diese Ränder ist gleich Null.
Interface	Interface	Dieser Rand ist durchlässig für Fluide.
FC_Wall, LGDL_Wall	Wall	Durch diese Ränder strömt nichts und die Fluide haften an diesen Rändern.

Tabelle 16: Randbedingungen vom stationären Mixture-Modell

Numerischer Lösungsansatz

Für die Druck-Geschwindigkeits-Kopplung wurden neben SIMPLE auch verschiedene Varianten probiert, wobei das Konvergenz-Verhalten nicht verbessert wurde. Demzufolge wird SIMPLE, was in der Studie von Nie gewählt wird, für die Druck-Geschwindigkeits-Kopplung gewählt. Die restlichen Einstellungen in der Tabelle 17 werden nicht begründet, weil entweder sie Standardeinstellungen sind oder ihre Erklärung zu detailliert für diese Arbeit ist.

Einstellung	Auswahl
Solver Type	Pressure-Based
Implicit Body Force	On
pressure-velocity Coupling	SIMPLE
Spatial Discretization / Gradient	Least Squares Cell Based
Spatial Discretization / Pressure	PRESTO!
Spatial Discretization / Momentum	QUICK
Spatial Discretization / Volume Fraction	QUICK

Tabelle 17: numerische Einstellungen vom stationären Mixture-Modell

Simulationsergebnis

Mit diesem Modell werden Simulationen für verschiedenen Sauerstoffmassenströme durchgeführt. Die folgenden Ergebnisse ergeben sich nach mindesten 1000 Iterationen und die erforderliche Iterationszahl hängt vom Sauerstoffmassenstrom ab. Aufgrund der Instabilität der Strömung schwanken die relevanten messbaren Größen, wie Volumenstrom und Druck, während der Iteration (Abbildung 37b,c,d). Demzufolge sind das Massenbilanz- und das SVA-Residuum, wie vermutet, höher als die Grenze von 10^{-3} (Abbildung 37a). Das ist der Hinweis dafür, dass eine instationäre Simulation durchgeführt werden sollte.

Bei einem hohen Sauerstoffmassenstrom treten am Kanalende Rückströmung und Sauerstoffansammlung auf (der in Rot markierte Bereich in der Abbildung 38). Der Hintergrund dafür kann die heftige Dichtesenkung am Kanalende sein (der in Rot markierte Bereich in der Abbildung 39b). Es gibt einen Grenzwert für den Sauerstoffmassenstrom ($0,02 \text{ mg/s}$), ab dem die Sauerstoffansammlung auftritt. Dieser Wert liegt jedoch niedriger als der erwartete Sauerstoffmassenstrom ($0,07 \text{ mg/s}$), der anhand des experimentellen Testes bestimmt wird. Obwohl die Sauerstoffansammlung und die Rückströmung wahrscheinlich in der Realität vorkommen können, scheint jedoch der niedrige Grenzwert nicht realistisch zu sein. Bei einem niedrigen Sauerstoffmassenstrom, der kleiner als der Grenzwert ist, bildet sich ein Sauerstofffilm am unteren Rand und fließt nur wenig Sauerstoffgas im FC (Abbildung 40).

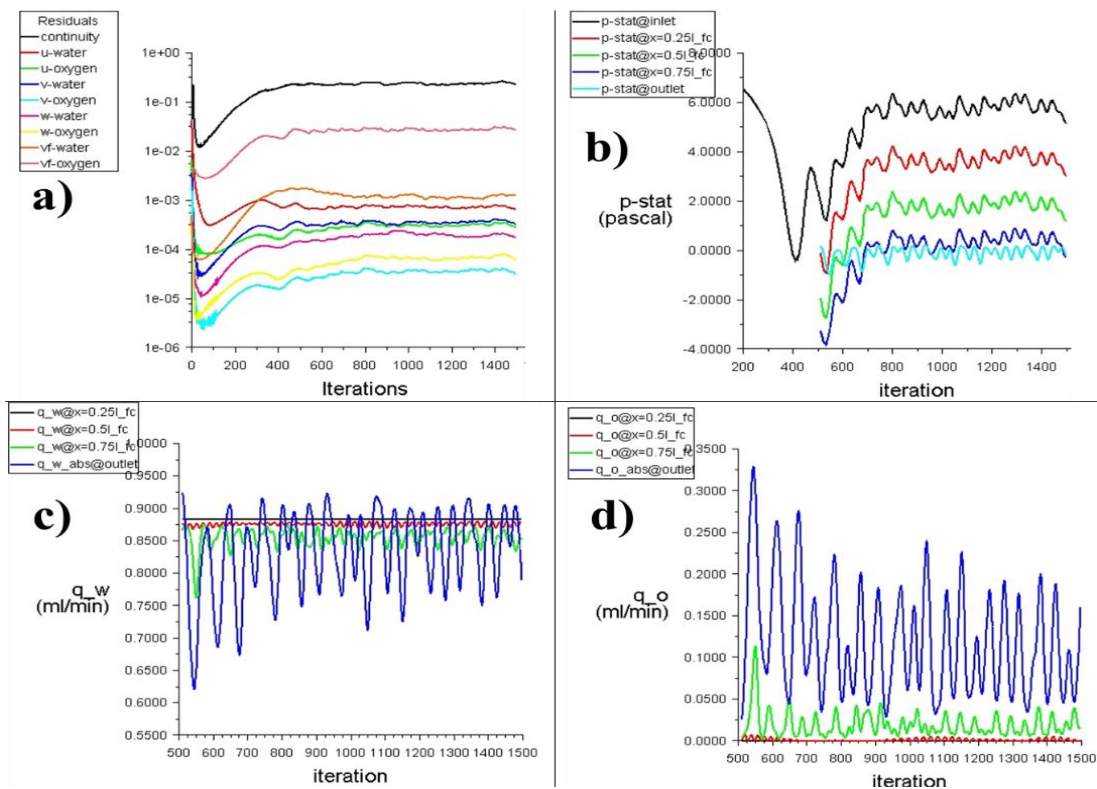


Abbildung 37: Residuum-Verlauf (a) und relevante messbare Größen (b,c,d) während der Iteration beim Sauerstoffmassenstrom von 0,01 mg/s.

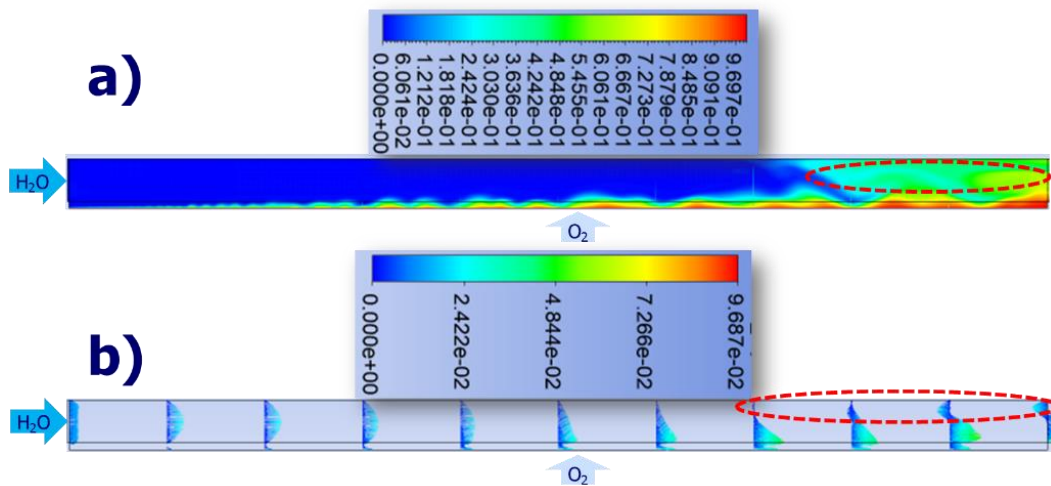


Abbildung 38: SVA-Verteilung (a) und Geschwindigkeitsvektor des Gemisches (b) bei einem hohen Sauerstoffmassenstrom ($\dot{m}_{O_2} \geq 0,02 \text{ mg/s}$)

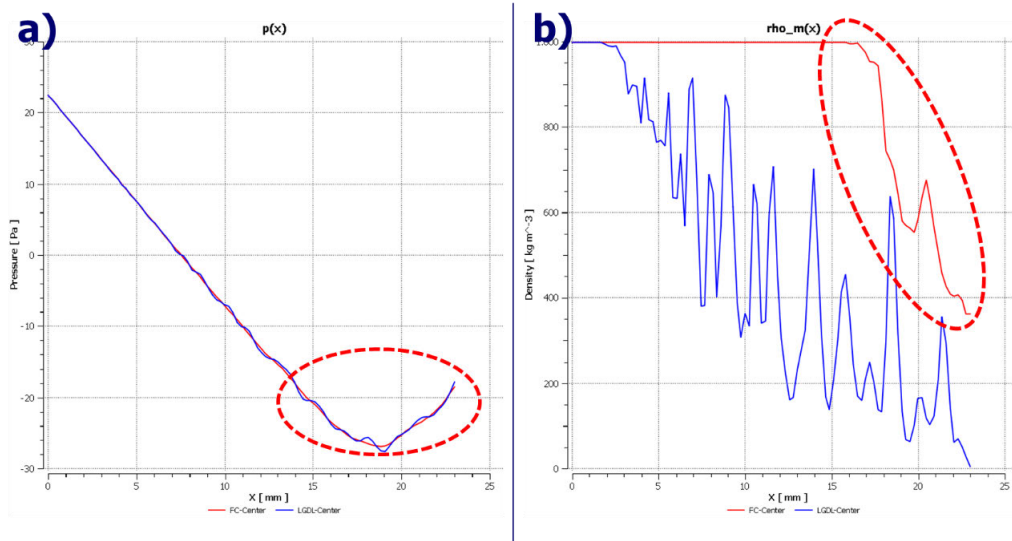


Abbildung 39: Druckverlauf (a) und Dichteverlauf (b) des Gemisches bei einem hohen Sauerstoffmassenstrom ($\dot{m}_{O_2} \geq 0,02 \text{ mg/s}$)

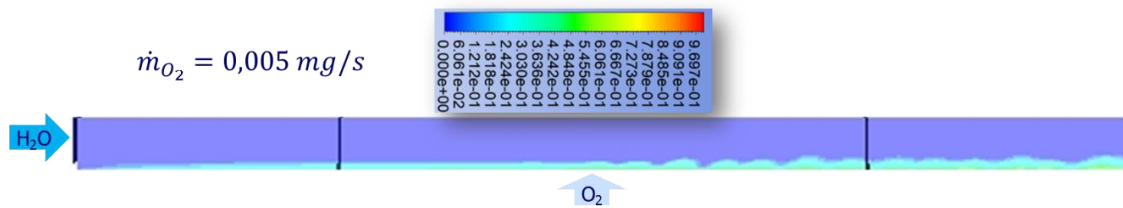


Abbildung 40: SVA-Verteilung bei einem niedrigen Sauerstoffmassenstrom ($\dot{m}_{O_2} < 0,02 \text{ mg/s}$)

6.3.3 Umsetzung des instationären Mixture-Modells

In diesem Abschnitt wird das Modell aus dem vorherigen Abschnitt 6.3.2 so modifiziert, dass die instationären Terme in den Grundgleichungen, die Oberflächenspannung, die Gravitation und die relative Viskosität auch berücksichtigt werden. Hinzukommend wird ein anderes Diskretisierungsschema für den Konvektionsterm in Volumenanteilgleichung verwendet, um eine schärfere Phasengrenze zu erhalten.

Geometrie und Netz

Die Geometrie und das Netz sind identisch zu den vom stationären Mixture-Modell (Abschnitt 6.3.2).

Modell

Die angegebenen Annahmen und Vereinfachungen werden mit den grundlegenden Fluent-Einstellungen in der Tabelle 18 realisiert. Hinzukommend werden die

Einstellungen für die poröse LGDL-Domäne, deren Wirkung im Abschnitt 3.2.3 zu finden sind, am Ende der Tabelle 18 aufgelistet. Für die Abbildung der Phasenwechselwirkungen sind die Einstellungen in der Tabelle 19 zuständig. Die Einstellungen, die bei diesem Modell geändert werden, werden in Gelb markiert.

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Time	Transient	Instationäre Terme werden mitgerechnet.
Gravity	On	Gravitation wird mitgerechnet.
Multiphase	Mixture	Mixture-Modell wird verwendet.
Viscous	laminar	Turbulentes Modell wird nicht aktiviert.
Energy Equation	Off	Energiegleichung wird nicht aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone	On	PM-Modell wird für die LGDL-Domäne aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone/Relative Viscosity	breugem	Relative Viskosität wird mit der Breugem-Korrelation bestimmt.
Porous Formulation	Superfical Velocity	Oberflächengeschwindigkeit wird für die Zweiphasenströmung in der porösen Domäne verwendet.

Tabelle 18: grundlegende Modelleinstellungen vom instationären Mixture-Modell

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Slip Velocity	On	Eine relative Geschwindigkeit zwischen den Phasen wird zugelassen.
Interface Modeling	Sharp/Dispersed	Die Mischung der Phasen wird nur zum Teil zugelassen, daher ist die Phasengrenze schärfer als die mit der Option „Dispersed“.
Primary phase	Water	Die Volumenanteilgleichung wird für die Sauerstoffphase gelöst und SVA wird als eine Variable definiert.
Secondary phase	Oxygen	
Drag	Schiller-Naumann	Schiller-Naumann-Modell wird zur Bestimmung der Widerstandfunktion verwendet.
Slip	Manninen-et-al	Manninen-et-al-Modell wird zur Bestimmung der relativen Geschwindigkeit verwendet.
Surface Tension	0.072 N/m	Ein konstanter Wert für die Oberflächenspannung wird verwendet.

Tabelle 19: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom instationären Mixture-Modell

Grundgleichung (siehe Anhang A-6)

Randbedingung

Die Randbedingungen sind identisch zu den vom stationären Mixture-Modell (Tabelle 16)

Numerischer Lösungsansatz

Für die instationären Terme wird variierter Zeitschritt verwendet, wobei eine konstante Courant-Zahl definiert wird, um den Zeitschritt bei jeder Iteration zu berechnen. Hinzukommend wird, im Vergleich zum stationären Mixture-Modell, eine spezielle Diskretisierungsmethode für den Volumenanteil verwendet, um eine scharfe Phasengrenze zu erhalten. Die restlichen Einstellungen in der Tabelle 20 werden nicht begründet, weil entweder sie Standardeinstellungen sind oder ihre Erklärung zu detailliert für diese Arbeit ist.

Einstellung	Auswahl
Solver Type	Pressure-Based
Implicit Body Force	On
pressure-velocity Coupling	SIMPLE
Spatial Discretization / Gradient	Least Squares Cell Based
Spatial Discretization / Pressure	PRESTO!
Spatial Discretization / Momentum	QUICK
Spatial Discretization / Volume Fraction	Compressive
Transient Formulation	Second Oder Implicit
Time Stepping Method	Variable
Time Stepping Method / Global Courant Number	0,5
Max Iterations pro Time Step	20
Convergence Criterion	Absolute (10^{-3})

Tabelle 20: numerische Einstellungen vom instationären Mixture-Modell

Simulationsergebnis

Bei diesem instationären Modell tritt die Sauerstoffansammlung nicht mehr auf und das Kanalende wird nicht blockiert, auch wenn der Sauerstoffmassenstrom höher als der Grenzwert für das stationäre Mixture-Modell (0,02 mg/s) ist.

Mit diesem Modell werden Simulationen für zwei geschätzte Blasendurchmesser durchgeführt. Beim niedrigeren Durchmesser von 10 μm bildet sich ein stabiler Sauerstofffilm an der unteren Randfläche, der wie der in der Abbildung 40 aussieht. Beim höheren Durchmesser von 100 μm wird der Sauerstofffilm ab einen Zeitpunkt abgelöst und fließt der Sauerstoff in den FC. Obwohl die Sauerstoffströmung realistischer als die mit dem niedrigeren Durchmesser aussieht, ist ein blasenförmiges Sauerstoffgas jedoch nicht zu sehen. Es kann sein, dass der vordefinierte Durchmesser von 100 μm immer noch

kleiner als der wahre Durchmesser ist. Wenn der Durchmesser auf 1 mm erhöht wird, tritt dann Divergenz während der Simulation auf, daher gibt es bei diesem Modell einen Grenzwert für den Sauerstoffblasendurchmesser.

Die gesamten Simulationsergebnisse mit dem Blasendurchmesser von 100 μm werden im Anhang A-10 dargestellt. In der Abbildung 56 werden die relevanten messbaren Größen, wie Volumenstrom und Druck, in Abhängigkeit mit der Zeit dargestellt, wobei der schwankende Druck und der schwankende Volumenstrom nach dem Ablösen bei ca. 0.3s zu sehen sind. In den restlichen Abbildungen wird die Verteilung der verschiedenen Größen für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms dargestellt. Insbesondere ist ein deutlicher Unterschied zwischen der Wasser- und der Sauerstoffgeschwindigkeit in der Abbildung 59 zu sehen, wobei die maximale Sauerstoffgeschwindigkeit im FC (162 mm/s) ca. vierfach höher als die von Wasser (35 mm/s) ist. Außerdem ist die Reynoldszahl, die sich auf das Gemisch bezieht, in den sämtlichen Domänen niedrig (Abbildung 61), daher ist der verwendete laminare Ansatz angemessen.

6.4 VOF-Modell

In diesem Abschnitt wird zunächst das VOF-Modell in der Studie von Lafmejani [10] nachgebaut und die resultierenden Ergebnisse werden mit den Ergebnissen in der Studie verglichen. Anschließend wird ein Modell, das auf dem VOF-Modell in der Studie von Lafmejani basiert, entwickelt.

6.4.1 Nachbau der Veröffentlichung von Lafmejani

Das Modell in der Studie von Lafmejani ist ein numerisches 3D-Modell, das unter Verwendung von ANSYS Fluent erstellt wird, für die Wasser-Sauerstoff-Strömung in der Anodenseite einer planaren PEM-Elektrolysezelle mit gekrümmten interdigitalisierten Strömungskanälen. Die Berechnungsdomäne dieses Modells umfasst zwei Eingangskanäle, einen Ausgangskanal, die in der Mitte der Zelle liegen, und der zugehörige LGDL-Abschnitt (Abbildung 41a).

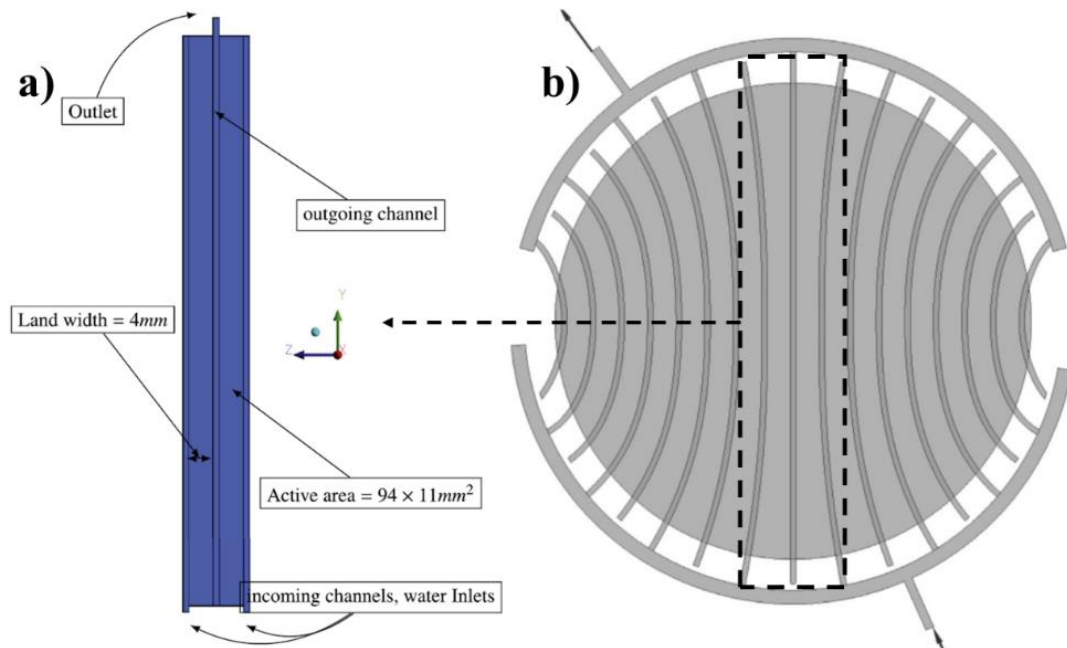


Abbildung 41: Berechnungsdomänen des Modells (a) und Geometrie der ganzen Zelle (b) [10]

Die folgenden Annahmen und Vereinfachungen werden für das Modell getroffen:

- Ein instationärer Strömungszustand wird angenommen.
- Eine turbulente Strömung im Ausgangskanal und eine laminare Strömung in den restlichen Domänen werden angenommen.
- Die Sauerstoffgeneration wird durch eine gleichmäßige Gas-Injektion an der ganzen unteren Randfläche der Diffusionsschicht realisiert.
- Der Kapillardruck in der Diffusionsschicht wird nicht abgebildet, da beim VOF-Modell nur eine Impulsgleichung für die beiden Phasen gelöst wird.
- Anstatt des Sauerstoffgases wird die Luft als die sekundäre Gasphase definiert.

Simulationsergebnis und Vergleich

In der Abbildung 42 werden die resultierenden Ergebnisse und die Ergebnisse aus der Lafmejani-Studie verglichen. Im Grunde scheinen die beiden Ergebnisse ähnlich zu sein, trotzdem können die unterschiedlichen Geschwindigkeiten in LGDL unterhalb der Eingangskanäle nicht ignoriert werden (Abbildung 42c,d). Der Grund für diese Abweichung kann entweder der abweichende Zeitpunkt oder die abweichenden Spezifikationsparameter für die Turbulenz an den Rändern, die in der Studie nicht angegeben werden, oder die beiden sein. Zur Veranschaulichung der Strömung beim Nachbaumodell wird es durch die Strömungslinien in der Abbildung 43 gezeigt, dass das frische Wasser meist in den Eingangskanälen strömt und erst am Kanalende durch die

Diffusionsschicht durchdringt. Dadurch wird die niedrige Geschwindigkeit im LGDL-Abschnitt unterhalb der Eingangskanäle beim Nachbaumodell erklärt und dieses Phänomen kann durch die genannten Gründe verursacht werden. Die restlichen kleinen Abweichungen, wie die unterschiedlichen Luft-Verteilungen und die unterschiedlichen Farbtöne bei der Kontur-Darstellung, können ebenfalls an dem abweichenden Zeitpunkt und/oder den abweichenden Einstellungen des Auswertungstools liegen. Mit diesen Ergebnissen kann es grob festgelegt werden, dass das VOF-Modell in der Studie von Lafmejani zumindest funktionsfähig nachgebaut wird, weil ähnliche Sauerstoffblasen gebildet werden.

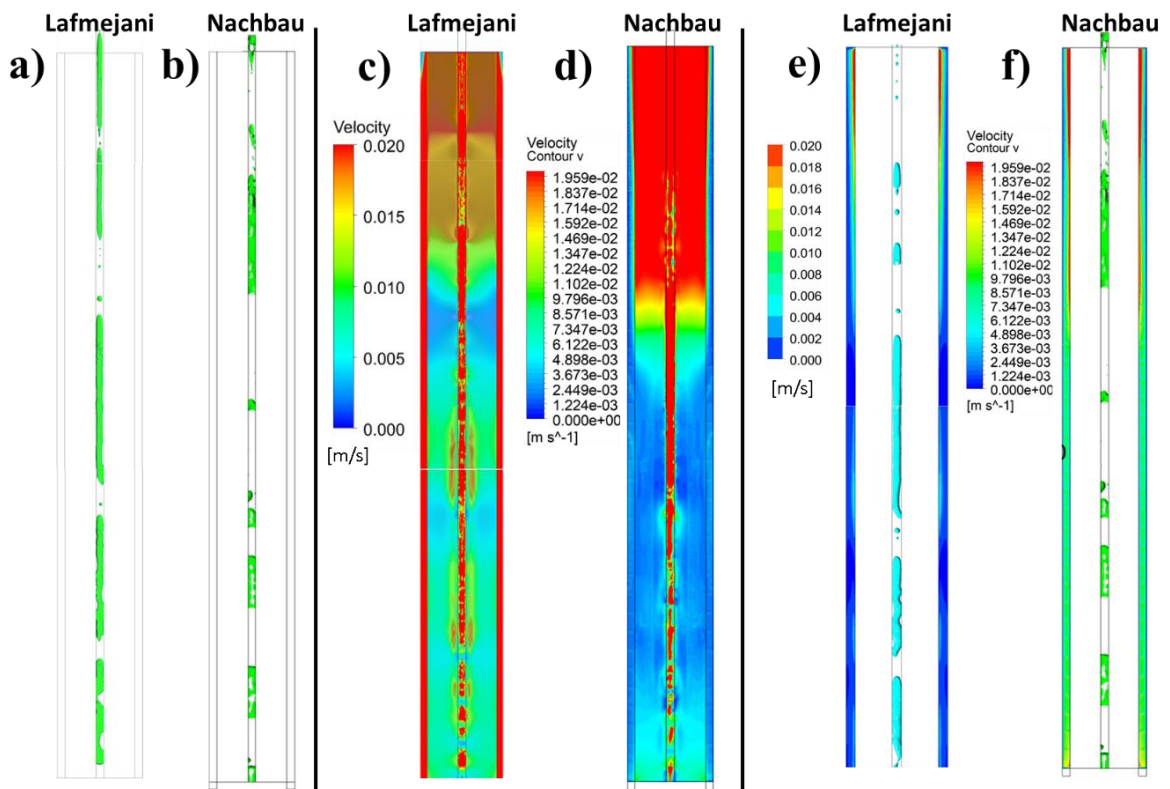


Abbildung 42: Iso-Fläche des Luftvolumenanteils von 0,5 im Ausgangskanal (a,b); Geschwindigkeitsverteilung in der mittleren Ebene von LGDL (c,d); Iso-Fläche des Luftvolumenanteils von 0,5 im Ausgangskanal und Geschwindigkeitsverteilung auf der Grenzfläche zwischen den Eingangskanälen und LGDL (e,f)

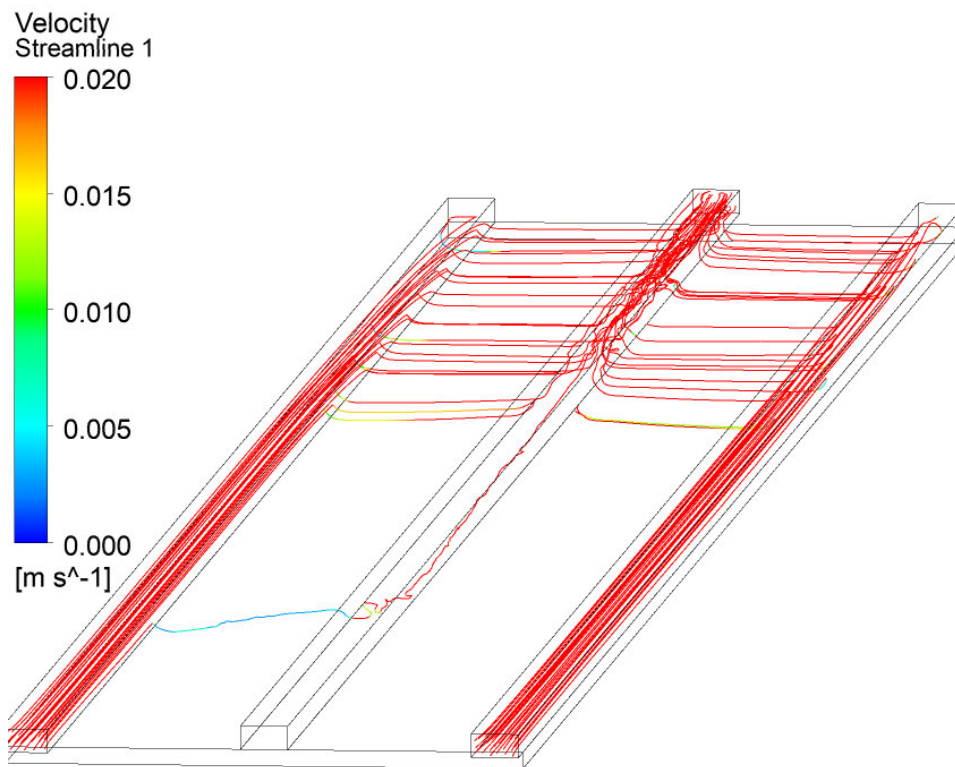


Abbildung 43: Strömungslinien des eingehenden Wassers beim Nachbaumodell

6.4.2 Umsetzung des instationären VOF-Modells

Für dieses Modell werden die genannten Annahmen und Vereinfachungen des Modells von Lafmejani (Abschnitt 6.4.1), abgesehen von der Annahme einer turbulenten Strömung und dem Ersatz durch Luft, übernommen.

Geometrie und Netz

Die Geometrie und das Netz sind identisch zu den vom stationären Mixture-Modell (Abschnitt 6.3.2).

Modell

Die angegebenen Annahmen und Vereinfachungen werden mit den grundlegenden Fluent-Einstellungen in der Tabelle 21 realisiert. Hinzukommend werden die Einstellungen für die poröse LGDL-Domäne, deren Wirkung im Abschnitt 3.2.3 zu finden sind, am Ende der Tabelle 21 aufgelistet. Für die Abbildung der Phasenwechselwirkungen sind die Einstellungen in der Tabelle 22 zuständig.

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Time	Transient	Instationäre Terme werden mitgerechnet.
Gravity	On	Gravitation wird mitgerechnet.
Multiphase	VOF	VOF-Modell wird verwendet.
Viscous	laminar	Turbulentes Modell wird nicht aktiviert.
Energy Equation	Off	Energiegleichung wird nicht aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone	On	PM-Modell wird für die LGDL-Domäne aktiviert.
LGDL-Domäne/ Porous zone/Relative Viscosity	breugem	Relative Viskosität wird mit der Breugem-Korrelation bestimmt.
Porous Formulation	Superfical Velocity	Oberflächengeschwindigkeit wird für die Zweiphasenströmung in der porösen Domäne verwendet.

Tabelle 21: grundlegende Einstellungen vom instationären VOF-Modell

Einstellung	Auswahl	Erläuterung
Volume Fraction / Formulation	Implicit	Eine iterative Diskretisierungsmethode für SVA wird verwendet.
Volume Fraction / Cutoff	1e-6	SVA, der kleiner als der Wert ist, wird gleich Null gesetzt.
Interface Modeling Type	Sharp	Die Mischung der Phasen wird nicht zugelassen, daher ist die Phasengrenze eindeutig.
Primary phase	Water	Die Volumenanteilgleichung wird für die Sauerstoffphase gelöst und SVA wird als eine Variable definiert.
Secondary phase	Oxygen	
Surface Tension / Model	Continuum Surface Force	CSF-Modell wird zur Bestimmung der Oberflächenspannungskraft verwendet.
Surface Tension / Wall Adhesion	On	Wandhaftung wird aktiviert und der Kontaktwinkel an einer Wand kann eingestellt werden.
Surface Tension / Jump Adhesion	On	Sprunghaftung wird aktiviert und ein Kontaktwinkel an einer Sprunggrenze kann eingestellt werden.
Surface Tension / Coefficient	0.072 N/m	Ein konstanter Wert wird für die Oberflächenspannungskoeffizient verwendet.

Tabelle 22: Mehrphasenmodell-Einstellungen vom instationären VOF-Modell

Grundgleichung (siehe Anhang A-7)

Randbedingung

Die folgenden Randbedingungen in der Tabelle 23 werden gemäß den neben liegenden Erläuterungen eingestellt. Die genaue Position dieser Ränder wird in der Abbildung 36 dargestellt. *FC-LGDL* ist eigentlich kein Rand, sondern ein infinitesimal kleiner Bereich zwischen der FC- und der LGDL-Domäne und er dient zur Definierung des porösen Sprunges (Porous jump).

Rand	Bedingung	Erläuterung
FC_Inlet (H ₂ O-Einlass)	Velocity-inlet (v=const) Oxygen/Volume Fraction = 0	Durch diesen Rand strömt Wasser mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die Domänen hinein.
FC_Outlet (H ₂ O&O ₂ -Auslass)	Pressure-outlet (0Pa) Oxygen/Backflow Volume Fraction = 0	Durch diesen Rand strömen Wasser und Sauerstoff mit einem bestimmten Druck hauptsächlich aus den Domänen heraus. Hinzukommend enthält eine mögliche Rückströmung kein Sauerstoff.
Membran (O ₂ -Einlass)	Velocity-inlet (v=const) Oxygen/Volume Fraction = 1	Durch diesen Rand strömt Sauerstoff mit einer bestimmten Geschwindigkeit parallel zur Flächennormale in die Domänen hinein.
Periodic	Periodic	Dieser Rand ist zwar durchlässig für Fluide, aber der Nettomassenstrom durch diese Ränder ist gleich Null.
Interface FC_Wall	Interface Wall Contact Angles: 70°	Dieser Rand ist durchlässig für Fluide. Durch diese Ränder strömt nichts und die Fluide haften an diesen Rändern. Hinzukommend wird ein bestimmter Kontaktwinkel zwischen dem Wasser, dem Sauerstoff und der Wand eingestellt.
LGDL_Wall	Wall	Durch diese Ränder strömt nichts und die Fluide haften an diesen Rändern.
FC-LGDL	Porous-jump Jump Adhesion: On Constrained Two-Sided Adhesion: On Contact Angles: 170°	Ein bestimmter Kontaktwinkel zwischen dem Wasser, dem Sauerstoff und der Grenzfläche wird eingestellt.

Tabelle 23: Randbedingungen vom instationären VOF-Modell

Numerischer Lösungsansatz

Die numerischen Lösungsansätze sind identisch zu den vom instationären Mixture-Modell (Tabelle 20)

Simulationsergebnis

Die Simulation mit diesem Modell liefert am Ende der Arbeit leider kein positives Ergebnis. Nach der Simulationszeit von zwei Wochen entwickelt sich nur eine dünne Sauerstoffschicht am unteren Rand und diese Schicht scheint nicht mehr zu wachsen (der

in Rot markierte Bereich in der Abbildung 44b). Die restlichen Ergebnisse werden im Anhang A-11 dargestellt.

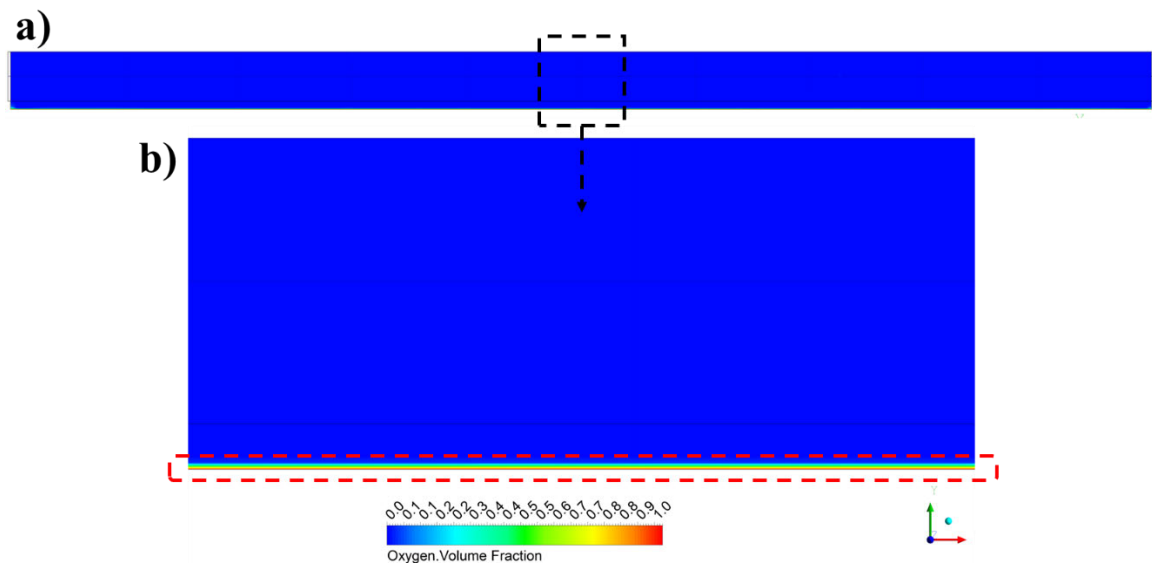


Abbildung 44: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt

Ursache

Das resultierende Ergebnis kann an der Abweichung der betrachteten Zelle von der Zelle in der Lafmejani-Studie liegen und eine Anpassung für die betrachtete Zelle ist vermutlich notwendig. Bei der Lafmejani-Zelle fließen das Wasser mit dem Volumenstrom von 58 ml/min und der Sauerstoff mit dem Volumenstrom von 40 ml/min in die Berechnungsdomäne beziehungsweise in den Ausgangskanal. Bei der Berechnungsdomäne der betrachteten Zelle betragen der Wasservolumenstrom 0,9 ml/min ($\frac{10}{11} \text{ ml/min}$) und der Sauerstoffvolumenstrom 0,3 ml/min ($\frac{3,17}{11} \text{ ml/min}$). Auch ein Beitrag zu einer niedrigeren Strömungsgeschwindigkeit in der betrachteten Zelle ist die FC-Größe, wobei der FC der betrachteten PEMEC ($1,1 \times 1 \text{ mm}^2$) zweifach größer als der von der Lafmejani-Zelle ($1 \times 0,5 \text{ mm}^2$) ist. Mit dieser Abweichung muss das umgesetzte Modell hinsichtlich der Netzfeinheit und des Zeitschritts angepasst werden, was bei dieser Arbeit nicht durchgeführt wird.

Aussicht der Modelleinstellung unterscheiden sich die beiden Modelle darin, dass ein laminarer Ansatz anstatt des tubulären Ansatzes wie das Nachbaumodell verwendet wird. Mit der geringen Strömungsgeschwindigkeit in der betrachteten Zelle wird es jedoch gezeigt, dass der laminare Ansatz angemessen ist und nicht zu den Ursachen gezählt werden soll. Deswegen scheint die Abweichung der betrachteten Zelle die überzeugende Ursache für das resultierende Ergebnis zu sein.

6.5 Diskussion über die Modelleinstellungen

6.5.1 Mehrphasenmodell: VOF- und Mixture-Modell

In diesem Abschnitt werden das VOF- und das Mixture-Modell mit dem instationären Ansatz verglichen. Dazu werden die folgenden Kriterien diskutiert: das vorhergesagte Strömungsmuster, die Referenzmodelle, der Berechnungsaufwand und die Simulationsergebnisse.

Vorhergesagtes Strömungsmuster

Die betrachtete Strömung handelt sich um eine Gas-Flüssigkeits-Strömung mit Sauerstoffblasen, bei der das Mixture-Modell auf den ersten Blick ein geeignetes Modell zu sein scheint. Aber für die Wahl eines richtigen Mehrphasenmodells muss das Strömungsmuster des Sauerstoffgases genauer identifiziert werden. Für den Fall einer Blasenströmung (Bubbly flow), bei der die sekundäre Gasphase aus vielen kleinen Blasen besteht, ist das Mixture-Modell eine richtige Auswahl. Für den Fall einer Taylor-Strömung (Taylor flows), bei der die sekundäre Gasphase aus großen Blasen besteht, kann das VOF-Modell das Blasenmuster genauer abbilden.

Zum Vorhersagen des Strömungsmusters wird eine Strömungskarte [16], die für die Gas-Flüssigkeits-Strömung in einem vertikalen dreieckigen Mikrokanal mit der Größe von 0,88 mm erstellt wird und ebenfalls in der Studie von Lafmejani [10] genutzt wird, verwendet. Die Oberflächengeschwindigkeit von Wasser beträgt 13.8 mm/s beim Einlassvolumenstrom von 10 ml/min. Das Sauerstoffgas wird jedoch an der gesamten unteren Randfläche und quer zur Strömungsrichtung zugeführt, deswegen steigt seine Oberflächengeschwindigkeit längst des Strömungskanals und erreicht am Kanalende den Wert 4.5 mm/s beim Einlassmassenstrom von 0.07 mg/s. Anhand dieser Oberflächengeschwindigkeiten (Abbildung 45a) und der Strömungskarte (Abbildung 45b) kann es nicht vorhergesagt werden, ob eine Blasenströmung (Bubbly flow) oder eine Taylor-Strömung (Taylor flows) im FC auftritt, da die resultierenden Oberflächengeschwindigkeiten außerhalb des betrachteten Bereiches der Strömungskarte liegen. Demzufolge kann durch das Vorhersagen von Strömungsmuster keine klare Aussage über ein passendes Mehrphasenmodell getroffen werden.

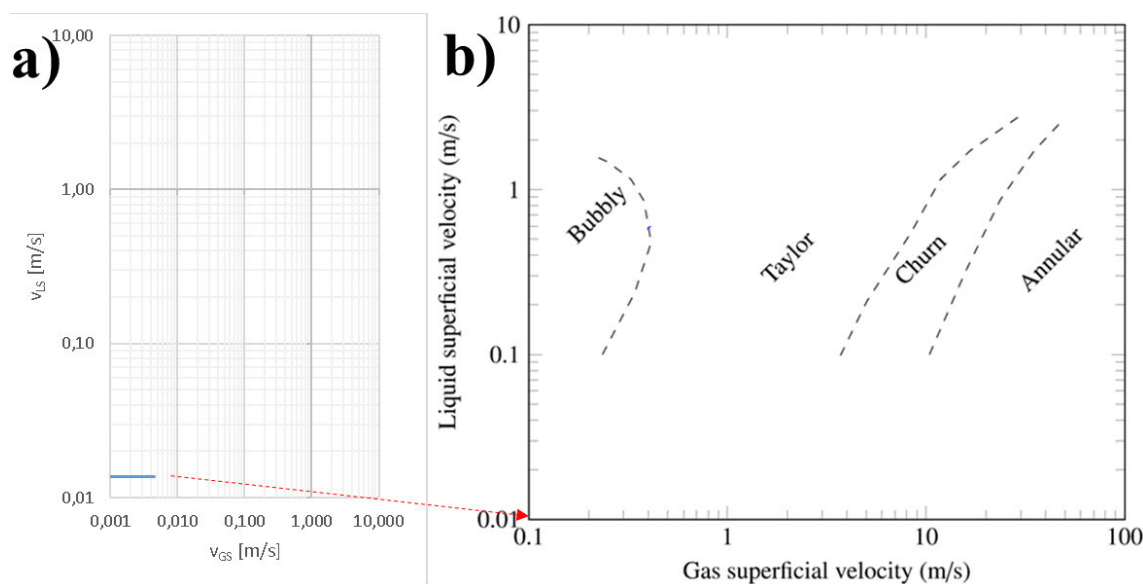


Abbildung 45: Oberflächen Geschwindigkeiten der betrachteten Strömung (a) und die referenzielle Strömungskarte (b)

Referenzmodelle

Außer der Studien von Nie und Lafmejani gibt es soweit nicht viele Studien, die ein numerisches 3D-Fluid-Flow-Modell für die PEMEC-Anode vorstellen. Trotzdem stehen viele Studien für die ähnlichen Systeme, wie PEM-Brennstoffzelle und Direktmethanol-Brennstoffzelle (DMFC), zur Verfügung. Beispielsweise werden in den Studien von Yin [8], Ferreira [25] und den anderen Studien für PEMFC-Kathode das VOF-Modell verwendet. Demzufolge kann es festgelegt werden, dass das VOF-Modell anhand der Referenzstudien die bessere Variante für die PEMEC-Anode ist.

Berechnungsaufwand

Aus Sicht des Berechnungsaufwands ist das Mixture-Modell die günstigere Variante, weil große Zeitschritte für die instationären Simulation verwendet werden können. Mit dem Mixture-Modell ist das Ergebnis für die betrachtete Strömung nach ca. einer Woche zu erhalten, während die gleiche Simulation mit dem VOF-Modell monatelang dauern kann.

Simulationsergebnisse

Ein Ergebnisvergleich zwischen den beiden Modellen ist im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich, weil das Simulationsergebnis des instationären VOF-Modells nicht nutzbar ist. Aber anhand des Simulationsergebnisses vom instationären Mixture-Modells kann es grob festgelegt werden, dass das Mixture-Modell für die Strömung mit kleinen Sauerstoffblasen, im Vergleich zur Kanalgröße ($d_o \leq d_{fc}/5$), in Ordnung ist.

6.5.2 stationärer Ansatz und instationärer Ansatz

Die Simulationsergebnisse des stationären Mixture-Modells (Abschnitt 6.3.2) zeigen es, dass der stationäre Ansatz für die betrachtete Strömung nur mit Beschränkung funktioniert und kein nutzbares Ergebnis liefert. Die betrachtete Strömung handelt sich vermutlich um eine periodische schwankende Strömung, wobei die Sauerstoffmenge in der Anodenhalbzelle mit der Zeit schwankt. Aus diesen Gründen ist der instationäre Ansatz eine bessere Auswahl. Auch wenn die wahre Strömung stabil ist, kann eine stationäre Strömung sich am Ende einer instationären Simulation ergeben.

6.5.3 turbulenter Ansatz und laminarer Ansatz

Beim Modell von Lafmejani wird ein turbulentes Modell aktiviert, da die Reynoldszahl im Ausgangskanal den Grenzfall überschritt. Aber bei der betrachteten Strömung liegt die Reynoldszahl wegen der niedrigen Geschwindigkeiten (siehe Abschnitt 6.5.1) niedriger als der Grenzfall, deswegen ist ein laminarer Ansatz für diese Situation ausreichend. Auch das Simulationsergebnis vom instationären Mixture-Modell zeigt ein akzeptierbares Reynoldszahl-Feld in den sämtlichen Domänen.

6.5.4 PM-Modell

Für die betrachtete Zweiphasenströmung reicht das Standard-PM-Modell nicht aus, weil der Kapillardruck nicht berücksichtigt wird. Das Konzept mit der effektiven Permeabilität und dem Kapillardruck ist jedoch erst beim Eulerian-Mehrphasenmodell, bei dem die Impulsgleichungen für jede Phase gelöst werden, verfügbar. Im Rahmen dieser Arbeit bleibt dieses Eulerian-Modell außer Betracht, deswegen ist die Umsetzung dieses Modells und des Kapillardrucks ein Ansatzpunkt für eine anschließende Arbeit. Durch den Effekt von Kapillardruck wird das Sauerstoffgas in der LGDL vermutlich schneller abtransportiert.

Hinzukommend verwendet das PM-Modell entweder die Oberflächengeschwindigkeit oder die physikalische Geschwindigkeit für die Geschwindigkeits-Formulierung in Mehrphasenströmung. Im Gegensatz zur Oberflächengeschwindigkeits-Formulierung enthalten die Konvektions- und Diffusionsterme bei der Formulierung mit physikalischer Geschwindigkeit auch die Porosität, daher soll das Geschwindigkeitsfeld im LGDL genauer abgebildet werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird gemäß der Studie von Lafmejani [10] hauptsächlich die Formulierung mit Oberflächengeschwindigkeit genutzt. Bei einem Simulationsversuch wird für das instationären Mixture-Modell die physikalische Geschwindigkeit angewendet und die resultierenden Ergebnisse werden mit den Ergebnissen der Oberflächengeschwindigkeits-Formulierung verglichen (Ergebnis im Anhang A-12). Beim Vergleich sind unterschiedliche

Geschwindigkeitsfelder im LGDL, wie erwartet, zu erhalten. Die Sauerstoff- und die Wassergeschwindigkeit verteilen sich, im Vergleich zur Oberflächengeschwindigkeits-Formulierung, gleichmäßiger. Die relevanten messbaren Größen, wie Druck und Volumenstrom, haben jedoch in den beiden Formulierungen fast keinen Unterschied. Demzufolge ist das Aussehen des Geschwindigkeitsfelds im LGDL entscheidend dafür, welche Formulierung gewählt werden soll. Um diese Frage beantworten zu können, sind genauere Betrachtung und Vergleich mit referenziellen Visualisierungs-Studien notwendig. Außerdem gibt es die Frage, wie relevant das Geschwindigkeitsfeld im LGDL ist, wenn die relevanten messbaren Größen gleichbleiben.

6.5.5 Sauerstoffgeneration

Bei den Modellen dieser Arbeit wird die Sauerstoffgeneration hauptsächlich durch die Randbedingung mit Einlassgeschwindigkeit realisiert, wobei ein konstanter Wert für die Sauerstoffgeschwindigkeit in der unteren Randfläche der LGDL definiert wird. Diese Randbedingung ist zwar eine funktionierte unkomplizierte Lösung, aber sie verursacht einen unrealistischen Sauerstofffilm im unteren Bereich der LGDL. Insbesondere beim instationären VOF-Modell steigt die Sauerstofffilm-Dicke während der Sauerstoffzufuhr bis zur Grenzfläche zwischen der LGDL und dem FC, danach wird dieser Film abgelöst und im FC bilden sich Sauerstoffblasen. Eine Alternative, die ebenfalls mit ANSYS Fluent einfach umsetzbar ist, ist die Volumenbedingung mit Quellterm, wobei eine konstante Sauerstoffmassenquelle und eine konstante Wassermassensenke für das gesamte LGDL-Volumen definiert werden können. Ferner ist es ideal, dass die Umwandlung vom flüssigen Wasser in das Sauerstoffgas abgebildet werden kann. Dafür ist die Umsetzung, im Vergleich zu der Rand- und der Volumenbedingung, besonders komplizierter. Diese genannten Alternativen sollen erst in einer anschließenden Arbeit untersucht und probiert werden, wenn die anderen Modelleinstellungen festgelegt sind. Bis dahin ist die Sauerstoffgeneration durch die Randbedingung ausreichend.

7 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel wird zunächst eine Zusammenfassung der Arbeit gegeben, wobei die Aufgabestellung, das Vorgehen und die Ergebnisse kurz beschrieben werden. Anschließend kommt ein Ausblick, bei dem mögliche weitere Arbeitspakete diskutiert werden. Einerseits werden mögliche Nutzungsszenarien der Modelle vorgestellt. Andererseits werden nötige Untersuchungen für die Erweiterung und die Verbesserung der Modelle erläutert.

7.1 Zusammenfassung

Gemäß der Zielsetzung werden Fluid-Flow-Modelle für zwei VRFB-Typen und die Anodenseite eines PEMEC-Typs unter Verwendung von ANSYS Fluent 19.1 entwickelt und zum Teil validiert. Im Anschluss werden gegebenenfalls Strömungsanalysen für die entsprechenden Systeme durchgeführt.

Planare VRFB-Zelle

Für die planare VRFB-Zelle mit Flow-By-Elektrode und parallelen Strömungskanälen werden 2D- und 3D-Modelle entwickelt, wobei das 2D-Modell zur Validierung dient und das 3D-Modell für die wahre Strömungsanalyse ausgelegt ist. Das 2D-Modell lässt sich mit dem analytischen 1D-Modell von Ke [2] erfolgreich validieren und anschließend wird es auf drei Dimensionen erweitert. Bei der Validierung des 3D-Modells werden neben dem 2D-Modell die anderen numerischen 3D-Modelle, die durch Kanitz [3] und Struckmann unter Verwendung von Comsol umgesetzt werden, genutzt und stimmen die Simulationsergebnisse der sämtlichen 3D-Modelle überein. Die Abweichung vom 2D-Modell ist auf die zusätzliche Wandreibung des 3D-Modells zurückzuführen und ist daher kein Modellfehler. Zum Schluss wird das 3D-Modell für die Analyse der DEHEMA-Zelle, die derzeit noch nicht experimentell getestet wird, verwendet. Bei dieser Analyse müssen hauptsächlich die relevanten messbaren Größen, wie Volumenstrom und Druck, bestimmt bzw. vorhergesagt werden und im Grunde wird keine neue Erkenntnis identifiziert. Nebenbei wird es anhand des linearen Zusammenhanges zwischen dem Druckverlust und dem PE-Volumenstrom festgelegt, dass eine Leistungsoptimierung für die Zelle allein durch Strömungsanalyse nicht durchgeführt werden kann.

Tubuläre VRFB-Zelle

Für die tubuläre VRFB-Zelle mit Flow-By-Elektrode und parallelen Strömungskanälen werden 3D-Modelle entwickelt, wobei jede Halbzelle ein eigenes Modell hat. Das Modell für die äußere Halbzelle lässt sich mit dem 3D-Modell für planare VRFB-Halbzellen erfolgreich validieren. Anschließend werden die beiden Halbzellen-Modelle

mit den Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären Zelle validiert. Bei dieser Validierung werden anhand des Vergleiches von Druckverlust einerseits die Eindringtiefen der PE im FC abgeschätzt, wobei diese Tiefen, im Vergleich zu den FC-Tiefen, hoch sind. Andererseits werden die unterschiedlichen Druckverluste in den Halbzellen erklärt.

PEMEC-Anodenhalbzelle

Für die Anodenseite einer planaren PEM-Elektrolysezelle mit poröser Diffusionsschicht und parallelen Strömungskanälen werden verschiedene numerische 3D-Modelle, die auf den Mehrphasenmodellen in der Studie von Nie [41] und der von Lafmejani [10] basieren (Mixture- und VOF-Modell), vorgestellt. Nach dem Nachbau der Studien von Nie und Lafmejani werden die resultierenden Ergebnisse mit den Ergebnissen der Studien verglichen, damit kein Modellfehler in der anschließenden Modellumsetzung sichergestellt werden. Für die betrachtete Zelle werden drei Modelle umgesetzt: das stationäre Mixture-Modell, das instationäre Mixture-Modell und das instationäre VOF-Modell. Zum Schluss werden anhand der Simulationsergebnisse und der anderen Faktoren die folgenden Modelleinstellungen vorgeschlagen.

- Anhand der referenziellen Modelle ist zwar das VOF-Modell eine bessere Variante als das Mixture-Modell, aber wegen des genannten Problems vom instationären VOF-Modell wird im Rahmen dieser Arbeit ein bevorzugendes Mehrphasenmodell nicht herausgefunden.
- Der instationäre Ansatz soll umgesetzt werden.
- Der laminare Ansatz ist anhand der vorhandenen Wasser- und der vorhandenen Sauerstoffmenge soweit ausreichend.
- Das vorhandene PM-Modell ohne Kapillardruck ist zwar nicht ausreichend, aber mit den betrachteten Modellen bleibt keine andere Wahl übrig. Für die Wahl einer Geschwindigkeitsformulierung ist eine genauere Betrachtung notwendig.
- Die vorhandene Sauerstoffgeneration durch Randbedingung mit Einlassgeschwindigkeit ist, abgesehen vom unrealistischen Sauerstofffilm, soweit ausreichend.

7.2 Ausblick

VRFB

Neben den angegebenen VRFB-Typen sind die entwickelten Fluid-Flow-Modelle auch für andere Konfigurationen von VRFB wie Flow-By-Elektrode mit Serpentin- oder Interdigitalisierten Strömungskanälen sowie Flow-Through-Elektrode geeignet. Dafür

müssen außer der Parameter gegebenenfalls die Berechnungsdomänen und die Randbedingungen angepasst werden. Die Modelleinstellungen und die numerischen Ansätze bleiben jedoch im Wesentlichen gleich.

Wenn eine CAD-Datei importiert werden soll, dann müssen die Vernetzung und gegebenenfalls die Modelleinstellungen nochmal definiert werden. Die Anpassung des vorhandenen Fluent-Modells an eine importierte CAD-Datei erfolgt nicht immer fehlerfrei und problemlos, weil z.B. die Randbedingungen des Modells auf die herkömmliche Geometrie sich beziehen. Deswegen kann eine neue Definierung des Modells bei einem CAD-Import manchmal günstiger sein.

Im Abschnitt 3.4.3 wird es erwähnt, dass die Elektrolytpermeabilität und die -dichte mit SOC und Temperatur variieren. Daher ist es sinnvoll, eine Simulation zur Untersuchung dieser Variation durchzuführen. Ferner kann anhand der Simulationsergebnisse eine Look-Up-Tabelle für das 0D-Modell erstellt werden. Für solche Simulation mit einer hohen Anzahl von Variationen funktioniert ANSYS Fluent sehr effizient. Für eine günstige Rechenzeit kann das Netz weiter optimiert und das Konvergenzkriterium zugleich gelockert werden.

PEMEC

In einer anschließenden Arbeit soll zuerst das Problem vom instationären VOF-Modell gelöst werden, um ein vernünftiges Simulationsergebnis zu erhalten. Dann sind die beiden instationären Mixture- und VOF-Modell hinsichtlich des Simulationsergebnisses zu vergleichen und validieren. Als Nächste kann einerseits das ausgewählte Mehrphasenmodell verbessert werden, indem eine passende Geschwindigkeits-Formulierung und eine bessere Sauerstoffgenerations-Methode untersucht werden. Andererseits kann das Eulerian-Modell umgesetzt werden, um den Kapillardruck im LGDL abzubilden. Für eine vernünftige Strömungsanalyse sollen außerdem die relevanten Eingabeparameter, die in dieser Arbeit noch nicht ganz festgelegt werden können, sichergestellt werden. Zu diesen Parametern zählen die generierte Sauerstoffmenge, die Porosität und die Permeabilität von Wasser.

Neben den aufwändigen numerischen 3D-Modellen existieren auch andere Alternativen für die PEMEC-Anode, wobei das 1D-Modell von Han [19] und das von Nouri-Khorasani [42] derzeit die guten Vertreter sind. Die Verwendbarkeit und die Begrenzung dieser Modelle für die Strömungsanalyse sind jedoch noch unbekannt, deswegen ist eine genaue Betrachtung dieser Modelle sowie der anderen 1D-Modelle ebenfalls ein Ansatzpunkt für eine anschließende Arbeit.

Ferner ist es auch nützlich, mehrere Validierungsmöglichkeiten für die entwickelten Modelle bereitzustellen. Diese Validierungen erfolgen beispielsweise durch Vergleich

mit einem validierten Modell, Vergleich mit einer Visualisierungs-Studie oder idealerweise durch eine experimentelle Messung der betrachteten PEMEC.

Anhand dieser Arbeit ist es bekannt, dass eine instationäre Simulation für die betrachtete Zweiphasenströmung zu einer hohen Berechnungszeit führen kann. Aus diesem Grund ist es für weitere instationäre Simulationen notwendig, Maßnahmen hinsichtlich der Computer-Technik für eine bessere Berechnungsleistung umzusetzen. Als Beispiel kann die Simulation auf dem HAW-Computer-Cluster laufen gelassen werden.

Literaturverzeichnis

- [1] S. Siracusano, V. Baglio, N. Briguglio, G. Brunaccini, A. D. Blasi, A. Stassi, R. Ornelas, E. Trifoni, V. Antonucci und A. S. Aricò, „An electrochemical study of a PEM stack for water electrolysis,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 37, pp. 1939-1946, 2012.
- [2] X. Ke, J. I. D. Alexander, J. M. Prahll und R. F. Savinell, „A simple analytical model of coupled single flow channel over porous electrode in vanadium redox flow battery with serpentine flow channel,“ *Journal of Power Sources*, Bd. 288, pp. 308-313, 2015.
- [3] R. Kanitz, *Strömungsanalyse in Flow-by Elektroden*, Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg, 2020.
- [4] S. Lecheler, *Numerische Strömungsberechnung*, München: Springer Vieweg, 2018.
- [5] P. Wulf, *CFD-Vorlesung: Finite Volumen Methode*, Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg, 2015.
- [6] C. Lee, J. Hinebaugh, R. Banerjee, S. Chevalier, R. Abouatallah, R. Wang und A. Bazylak, „Influence of limiting throat and flow regime on oxygen bubble saturation of polymer electrolyte porous transport layers,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 42, pp. 2724-2735, 2017.
- [7] M. Shahraeeni und M. Hoorfar, „Pore-network modeling of liquid water flow in GDL of PEMFC,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 39, pp. 10697-10709, 2014.
- [8] Y. Yin, T. Wu, P. He, Q. Du und K. Jiao, „Numerical simulation of two-phase cross flow in microstructure of gas diffusion layer with variable contact angle,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 39, pp. 15772-15785, 2014.
- [9] M. W. Nix, *Analyse und Implementierung einer mehrdimensionalen Mikrosimulation für eine Vanadium Redox-Flow Batterie*, Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg, 2017.
- [10] S. S. Lafmejani, A. C. Olesen und S. K. Kær, „VOF modelling of gasliquid flow in PEM water electrolysis cell micro-channels,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 42, pp. 16333-16344, 2017.

- [11] W.-P. Breugem, „The Effective Viscosity of a Channel-type Porous Medium,“ *Physics of Fluids*, Bd. 19, p. 103104, 2007.
- [12] ANSYS, *Fluent Theory Guide v19.1*.
- [13] N. Shao, A. Gavriilidis und P. Angeli, „Flow regimes for adiabatic gas–liquid flow in microchannels,“ *Chemical Engineering Science*, Bd. 64, pp. 2749-2761, 2009.
- [14] H. Shaban und S. Tavoularis, „Zorbubbles (Producing flow regimes in air-water flow),“ [Online]. Available: <https://doi.org/10.1103/APS.DFD.2015.GFM.V0009>. [Zugriff am 4 6 2020].
- [15] T. Cubaud, U. Ulmanella und C.-M. Ho, „Two-phase flow in microchannels with surface modifications,“ *Fluid Dynamics Research*, Bd. 38, p. 772 – 786, 2006.
- [16] T. Zhao und Q. Bi, „Co-current air–water two-phase flow patterns in vertical triangular microchannels,“ *International Journal of Multiphase Flow*, Bd. 27, pp. 765-782, 2001.
- [17] O. Verfasser, *Physikalisches Grundpraktikum: Oberflächenspannung*, Technische Universität Dresden, 2019.
- [18] Studyflix, „Oberflächenspannung,“ [Online]. Available: <https://studyflix.de/chemie/oberflachenspannung-1595>. [Zugriff am 26 6 2020].
- [19] B. Han, J. Mo, Z. Kang, G. Yang und W. Barnhill, „Modeling of two-phase transport in proton exchange membrane electrolyzer cells for hydrogen energy,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 42, pp. 4478-4489, 2017.
- [20] Nederman Mikropul, „Umgang mit Feuchtigkeit in Ansaugluftfiltrationssystemen,“ [Online]. Available: <https://www.nedermanmikropul.com/de-de/knowledge-center/dealing-with-moisture-in-air-inlet-filtration-systems>. [Zugriff am 26 6 2020].
- [21] T. Nierhaus, *Modeling and Simulation of Dispersed Two-Phase Flow Transport Phenomena in Electrochemical Processes*, Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen, 2009.
- [22] M. Manninen, V. Taivassalo und S. Kallio, *On the mixture model for multiphase flow*, VTT Publications, 1996.
- [23] J. U. Brackbill, D. B. Kothe und C. Zemach, „A Continuum Method for Modeling Surface Tension,“ *Journal of Computational Physics*, Bd. 100, pp. 335-354, 1992.

- [24] L. Schiller und Z. Naumann, „A drag coefficient correlation,“ *Zeit. Ver. Deutsch. Ing.*, Bd. 77, pp. 318-320, 1933.
- [25] R. B. Ferreira, D. Falcão, V. Oliveira und A. Pinto, „1D + 3D two-phase flow numerical model of a proton exchange membrane fuel cell,“ *Applied Energy*, Bd. 203, pp. 474-495, 2017.
- [26] M. C. Leverett, „Capillary behavior in porous solids,“ *Transactions of the AIME*, Bd. 142, pp. 152-169, 1941.
- [27] R. F. Carsel und R. S. Parrish, „Developing joint probability distributions of soil water retention characteristics,“ *Water Resources Research*, Bd. 24, pp. 755-769, 1988.
- [28] S. Ressel, *Theoretical and experimental analysis of tubular vanadium redox flow batteries*, Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg, 2011.
- [29] M. Rychcik und M. Skyllas-Kazacos, „Characteristics of a new all-vanadium redox flow battery,“ *Journal of Power Sources*, Bd. 22, pp. 59-67, 1988.
- [30] C. Choia, S. Kim, R. Kim, Y. Choi, S. Kim, H.-y. Jung, J. H. Yang und H.-T. Kim, „A review of vanadium electrolytes for vanadium redox flow batteries,“ *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Bd. 69, pp. 263-274, 2017.
- [31] S. Ressel, F. Billa, L. Holtza, N. Janshena, A. Chicab und T. Flower, „State of charge monitoring of vanadium redox flow batteries using half cell potentials and electrolyte density,“ *Journal of Power Sources*, Bd. 378, pp. 776-783, 2018.
- [32] X. Ke, J. I. D. Alexander, J. M. Prahll und R. F. Savinell, „Flow distribution and maximum current density studies in redox flow batteries with a single passage of the serpentine flow channel,“ *Journal of Power Sources*, Bd. 270, pp. 646-657, 2014.
- [33] X. Li, J. Xiong, A. Tang, Y. Qin, J. Liu und C. Yan, „Investigation of the use of electrolyte viscosity for online state-of-charge monitoring design in vanadium redox flow battery,“ *Applied Energy*, Bd. 211, pp. 1050-1059, 2018.
- [34] S. Ressel, A. Laube, S. Fischer, A. Chica, T. Flower und T. Struckmann, „Performance of a vanadium redox flow battery with tubular cell design,“ *Journal of Power Sources*, Bd. 355, pp. 199-205, 2017.

- [35] H. Ito, T. Maeda, A. Nakano, C. M. Hwang, M. Ishida, A. Kato und T. Yoshida, „Experimental study on porous current collectors of PEM electrolyzers,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 37, pp. 7418-7428, 2012.
- [36] D. B. R. D. P. Choi, „A simple model for solid polymer electrolyte (SPE) water electrolysis,“ *Solid State Ionics*, Bd. 175, pp. 535-539, 2004.
- [37] N. E. A. U. R. García-Valverde, „Optimized method for photovoltaic-water electrolyser direct coupling,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 36, pp. 10574-10586, 2011.
- [38] Z. Kang, J. Mo, G. Yang, S. T. Retterer, D. A. Cullen, T. J. Toops, J. B. G. Jr, M. M. Mench und F.-Y. Zhang, „Investigation of thin/well-tunable liquid/gas diffusion layers exhibiting superior multifunctional performance in low-temperature electrolytic water splitting,“ *Energy & Environmental Science*, Bd. 10, pp. 166-175, 2017.
- [39] J. Moa, Z. Kang, G. Yang, S. T. Retterer, D. A. Cullen, T. J. Toops, J. B. G. Jr. und F.-Y. Zhang, „Thin liquid/gas diffusion layers for high-efficiency hydrogen production from water splitting,“ *Applied Energy*, Bd. 177, pp. 817-822, 2016.
- [40] X. Ke, *CFD Studies on Mass Transport in Redox Flow Batteries*, Case Western Reserve University, 2014.
- [41] J. Nie und Y. Chen, „Numerical modeling of 3D two-phase gas–liquid flow in the flow field plate of a PEM electrolysis cell,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 35, pp. 3183-3197, 2010.
- [42] A. Nouri-Khorasani, E. T. Ojong, T. Smolinka und D. P. Wilkinson, „Model of oxygen bubbles and performance impact in the porous transport layer of PEM water electrolysis cells,“ *International Journal of Hydrogen Energy*, Bd. 42, pp. 28665-28680, 2017.
- [43] P. Wulf, *CFD-Vorlesung: Strömungsmechanische Grundgleichungen*, Hochschule für Angewandte Wissenschaften Hamburg, 2015.
- [44] O. Verfasser, „Redox-Flow-Batterie,“ [Online]. Available: <https://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Redox-Flow-Batterie&oldid=199094318>. [Zugriff am 30.5.2020].

Anhänge zu dieser Arbeit

A-1. Dichte und Viskosität der Elektrolytlösung in VRFB

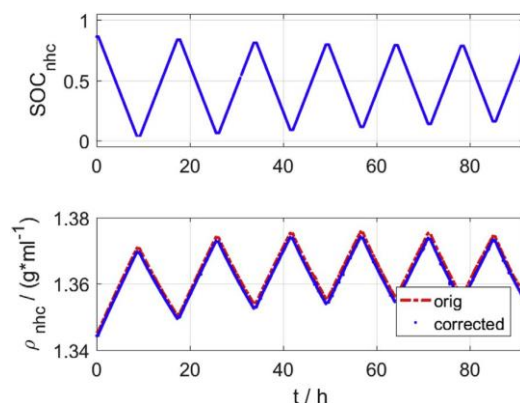


Abbildung 46: SOC- und Dichteverlauf in der negativen Halbzelle einer VRFB-Zelle [31]

SOC	Positive Electrolyte Viscosity/mPaS				Negative Electrolyte Viscosity/mPaS			
	10 °C	20 °C	30 °C	40 °C	10 °C	20 °C	30 °C	40 °C
90%	6.187	4.491	3.403	2.679	6.731	4.802	3.594	2.787
80%	6.293	4.560	3.454	2.720	6.751	4.837	3.628	2.813
60%	6.543	4.733	3.571	2.797	7.434	5.299	3.959	3.055
50%	6.702	4.827	3.637	2.853	7.628	5.423	4.064	3.152
40%	6.865	4.941	3.719	2.919	8.036	5.686	4.217	3.295
20%	7.173	5.134	3.851	2.999	8.776	6.166	4.546	3.485
10%	7.343	5.241	3.919	3.047	9.365	6.567	4.820	3.683

Tabelle 24: Gemessene Viskositätswerte für die Elektrolytlösungen von 1,6 MV in 2,6 M H₂SO₄ bei verschiedenen SOC's und Temperaturen [33]

SOC	Positive Electrolyte Viscosity/mPaS				Negative Electrolyte Viscosity/mPaS			
	10 °C	20 °C	30 °C	40 °C	10 °C	20 °C	30 °C	40 °C
90%	6.422	4.645	3.509	2.741	8.389	5.923	4.413	3.412
80%	6.671	4.812	3.628	2.829	9.057	6.378	4.693	3.712
60%	7.194	5.166	3.875	3.017	10.40	7.285	5.360	4.094
50%	7.486	5.361	4.010	3.111	11.05	7.692	5.621	4.285
40%	7.782	5.555	4.143	3.211	11.72	8.138	5.919	4.492
20%	8.489	6.009	4.460	3.440	–	9.088	6.690	4.939
10%	8.864	6.264	4.643	3.578	–	9.627	6.921	5.185

Tabelle 25: Gemessene Viskositätswerte für die Elektrolytlösungen von 1,8 MV in 2,7 M H₂SO₄ bei verschiedenen SOC's und Temperaturen [33]

A-2. Simulationsparameter

	Parameter	Wert
FC	Dicke	$th_{fc} = 1 \text{ mm}$
	Breite	$w_{fc} = 1 \text{ mm}$
	Länge	$l_{fc} = 20 \text{ mm}$
PE	Dicke	$th_{pe} = 0,41 \text{ mm}$
	Breite	$w_{pe} = 1 \text{ mm}$
	Permeabilität	$K_1 = 2,31 * 10^{-10} \text{ m}^2$
		$K_2 = 97 * 10^{-10} \text{ m}^2$
Porosität	$\varepsilon_1 = 0,8$	
	$\varepsilon_2 = 0,78$	
Elektrolyt	Dichte	$\rho = 1,35 \text{ g/cm}^3$
	Viskosität	$\mu = 4,93 \text{ mPa} \cdot \text{s}$
	Volumenstrom	$Q_{in} = 20 \text{ ml/min}$
$\rightarrow u_{in} = 33,3 \text{ cm/s}$		

Tabelle 26: Simulationsparameter zur Validierung der Modelle für planaren VRFB-Halbzellen

	Parameter	Wert	Quelle
FC	Dicke	$th_{fc} = 0,5 \text{ mm}$	Zeichnung
	Breite	$w_{fc} = 1 \text{ mm}$	Zeichnung
	Länge	$l_{fc} = 35 \text{ mm}$	Zeichnung
	Kanalanzahl	$z_{fc} = 15$	Zeichnung
PE	Dicke	$th_{pe} = 500 \mu\text{m}$	
	Breite	$w_{pe} = 2 \text{ mm}$	Zeichnung
	Länge	$l_{pe} = 33 \text{ mm}$	Zeichnung
	Permeabilität	$K_{Ke} = 2,31 * 10^{-10} \text{ m}^2$	Studie von Ke [2]
		$K_{ECM80} = 0,7 \dots 1 * 10^{-10} \text{ m}^2$	Hersteller-Angabe
$K_{HAW} = 0,22045 * 10^{-10} \text{ m}^2$		HAW-Ermittlung	
Porosität	$\varepsilon_{ECM80} = 0,886$	Wird mit Hersteller-Angabe berechnet	
Elektrolyt	Dichte	$\rho = 1,36 \text{ g/cm}^3$	Experimentdaten [31]
	Viskosität	$\mu_{pos,50\%,20^\circ\text{C}} = 4,827 \text{ mPa} \cdot \text{s}$	Experimentdaten [33]
	Volumenstrom	$Q_{in} = 6,4 \text{ ml/min}$	Voraussichtlicher Betriebswert

Tabelle 27: Simulationsparameter zur Analyse der DECHEMA-Zelle mit dem 3D-Modell für planaren VRFB-Halbzellen

Parameter	Wert	Quelle
Dicke	$th_{pe} = 500 \mu m$	
PE	Permeabilität	$K_{ECM80} = 0,7 \dots 1 * 10^{-10} m^2$ Hersteller-Angabe
		$K_{HAW} = 0,22045 * 10^{-10} m^2$ HAW-Ermittlung
Porosität	$\varepsilon_{Pyron} = 0,829$	Wird mit Hersteller-Angabe berechnet
Elektrolyt	Dichte	$\rho = 1,3739 g/cm^3$ Experimentdaten [31]
	Viskosität	$\mu_{pos,50\%,20^\circ C} = 4,827 mPa \cdot s$ Experimentdaten [33]
		$\mu_{neg,50\%,20^\circ C} = 5,423 mPa \cdot s$
	Volumenstrom	$Q_{in} = 10 ml/min$

Tabelle 28: Simulationsparameter zur Validierung der Modelle für tubuläre VRFB-Zelle mit den Druckverlust-Messdaten

Parameter	Wert	Quelle
FC	Dicke	$th_{fc} = 1 mm$ Fertigungszeichnung
	Breite	$w_{fc} = 1,1 mm$ Fertigungszeichnung
	Länge	$l_{fc} = 23 mm$ Fertigungszeichnung
	Kanalanzahl	$z_{fc} = 11$ Fertigungszeichnung
LGDL	Dicke	$th_{lga1} = 160 \mu m$
	Breite	$w_{lga1} = 2 mm$ Fertigungszeichnung
	Länge	$l_{lga1} = 23 mm$ Fertigungszeichnung
	Permeabilität	$K_L = 5 * 10^{-10} m^2$ geschätzt
		$K_G = 4 * 10^{-6} m^2$ Hersteller-Angabe
Porosität	$\varepsilon_{Titanfülle} = 0,5$ geschätzt	
H ₂ O	Dichte	$\rho_w = 998,2 kg/m^3$ Fluent-Daten
	Viskosität	$\mu_w = 1,003 mPa \cdot s$ Fluent-Daten
	Volumenstrom	$Q_{in,w} = 10 ml/min$ Experimentaler Test
O ₂	Dichte	$\rho_o = 1,29 kg/m^3$ Fluent-Daten
	Viskosität	$\mu_o = 0,0191 mPa \cdot s$ Fluent-Daten
	Massenstrom	$\dot{m}_{in,o} = 0,07 mg/s$ Experimentaler Test

Tabelle 29: Simulationsparameter der Modelle für die HAW-planare PEM-Elektrolysezelle

A-3. Druckverlust-Messdaten der HAW-tubulären Zelle

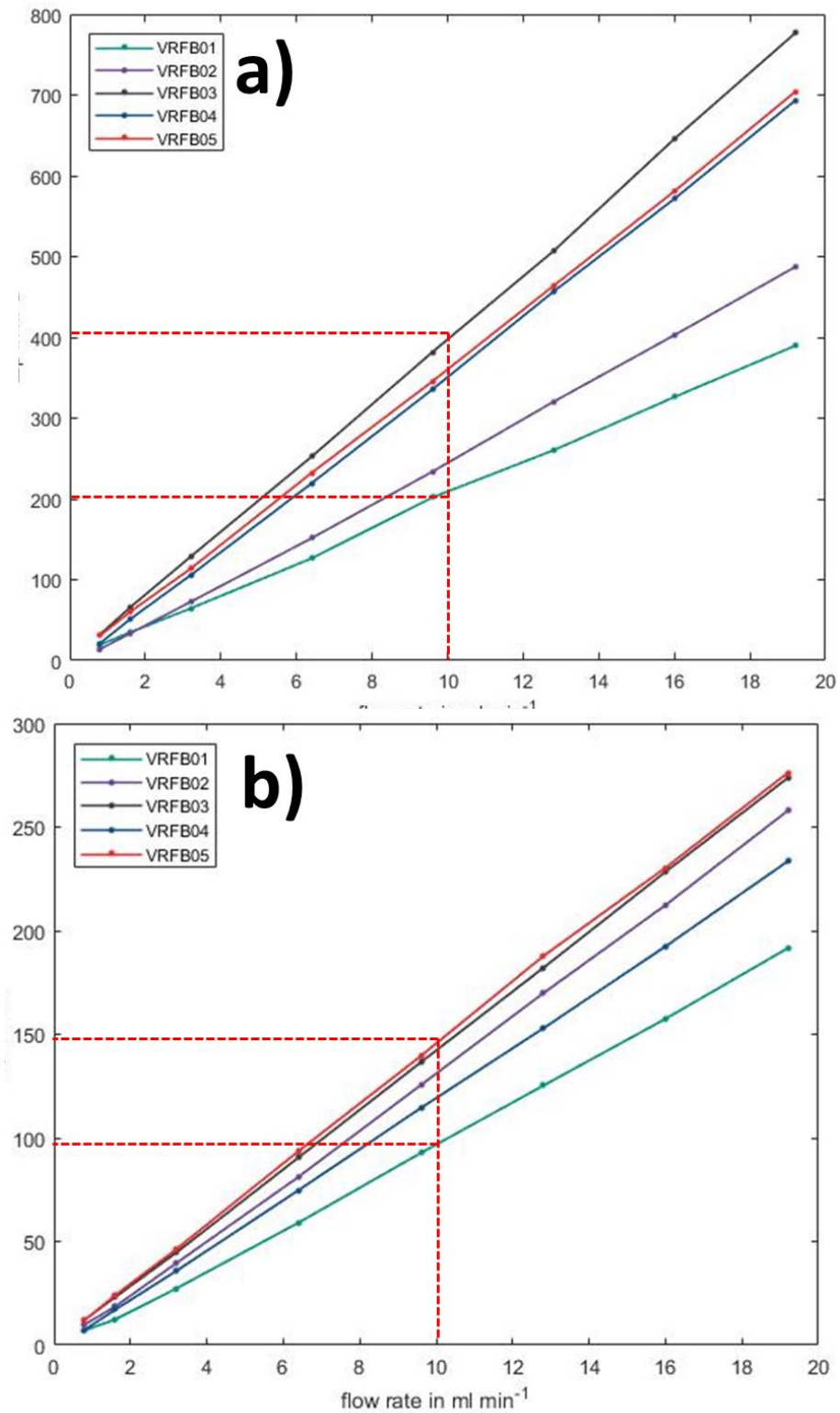


Abbildung 47: Druckverlust-Messdaten von der äußeren Halbzelle (a) und der inneren Halbzelle (b) der HAW-Zelle

A-4. Fotos und Daten aus dem experimentellen Test der HAW-planaren PEM-Elektrolysezelle

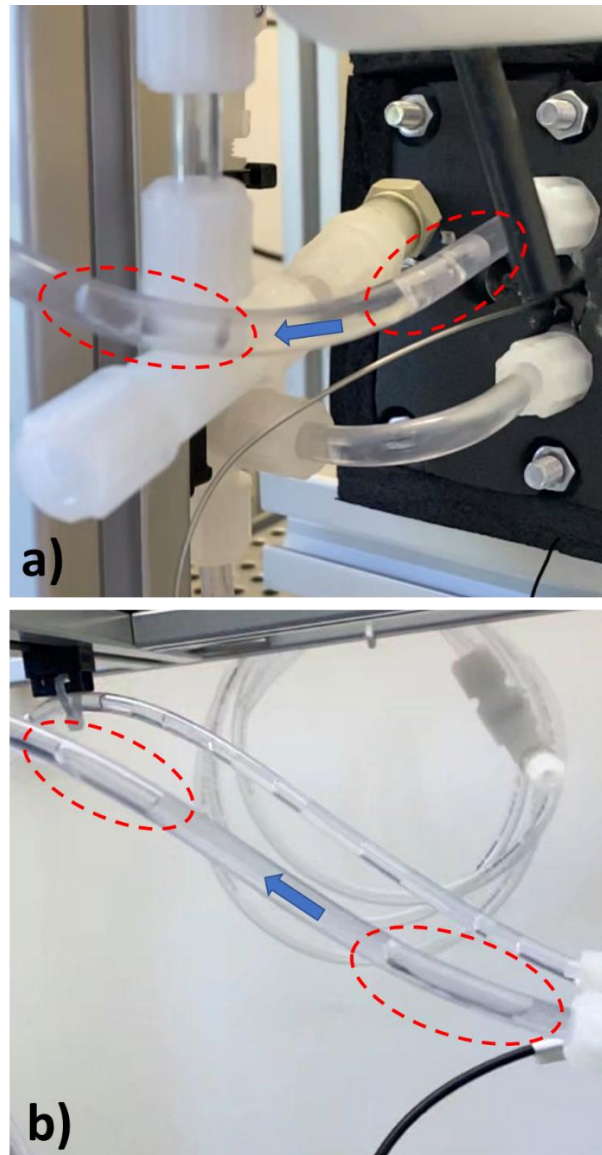


Abbildung 48: Fotos der Sauerstoffblasen im Ausgangschlauch direkt nach der Zelle (a) und weit entfernt von der Zelle (b)

Die folgenden Daten wurden zum Zeitpunkt der Fotoaufnahme notiert:

- LGDL-Material: Titanfilze mit ALD
- Wasservolumenstrom: $Q_w \approx 10 \text{ ml/min}$
- Zellstromstärke: $I_{cell} \approx 0,94 \text{ A}$
- Zellspannung: $E_{cell} = 1,8 \text{ V}$
- Zelltemperatur: $T_{cell} \approx 60 \text{ }^\circ\text{C}$

A-5. Grundgleichungen des stationären Mixtur-Modells

Die Volumenanteilgleichung für die Gasphase wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.33), unter Annahmen von einer stationären Strömung ($\frac{\partial(\alpha_o \rho_o)}{\partial t} = 0$), keinem Massenaustausch ($\dot{m}_{ow} - \dot{m}_{wo} = 0$) und einer konstanten Sauerstoffdichte wie folgt definiert:

$$\nabla(\alpha_o \vec{v}_m) = -\nabla(\alpha_o \vec{v}_{dr,o}) \quad (\text{A-5.1})$$

wobei \vec{v}_m , in Anlehnung an der Gleichung (3.32), wie folgt berechnet wird:

$$\vec{v}_m = c_w \vec{v}_w + c_o \vec{v}_o = \alpha_w \frac{\rho_w}{\rho_m} \vec{v}_w + \alpha_o \frac{\rho_o}{\rho_m} \vec{v}_o \quad (\text{A-5.2})$$

Die Kontinuitätsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.34), unter Annahme einer stationären Strömung ($\frac{\partial \rho_m}{\partial t} = 0$) wie folgt definiert:

$$\nabla(\rho_m \vec{v}_m) = 0 \quad (\text{A-5.3})$$

wobei ρ_m , in Anlehnung an der Gleichung (3.27), wie folgt berechnet wird:

$$\rho_m = \alpha_w \rho_w + \alpha_o \rho_o \quad (\text{A-5.4})$$

Die Impulsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.35), unter Annahme einer stationären Strömung ($\frac{\partial(\rho_m \vec{v}_m)}{\partial t} = 0$) und mit dem zusätzlichen Quellterm des PM-Modells (\vec{M}) wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} \nabla(\rho_m \vec{v}_m \vec{v}_m) = & -\nabla p + \nabla[\mu_m(\nabla \vec{v}_m + \nabla \vec{v}_m^T)] + \rho_m \vec{g} + \vec{M} \\ & - \nabla(\alpha_o \rho_o \vec{v}_{dr,o} \vec{v}_{dr,o} + \alpha_w \rho_w \vec{v}_{dr,w} \vec{v}_{dr,w}) \end{aligned} \quad (\text{A-5.5})$$

wobei μ_m und \vec{M} , in Anlehnung an den Gleichungen (3.28)(3.21), wie folgt berechnet werden:

$$\mu_m = \alpha_w \mu_w + \alpha_o \mu_o \quad (\text{A-5.6})$$

$$\vec{M} = \begin{cases} 0 & \text{für FC Domäne} \\ -\frac{\mu}{K} \vec{v} & \text{für LGDL Domäne} \end{cases} \quad (\text{A-5.7})$$

Die algebraischen Ausdrücke für die Geschwindigkeiten werden, in Anlehnung an der Gleichung (3.36), wie folgt definiert:

$$\vec{v}_{dr,o} = \vec{v}_{ow} - c_o \vec{v}_{ow} = \vec{v}_{ow} - \alpha_o \frac{\rho_o}{\rho_m} \vec{v}_{ow} \quad (\text{A-5.8})$$

$$\vec{v}_{dr,w} = \vec{v}_{wo} - c_w \vec{v}_{wo} = \vec{v}_{wo} - \alpha_w \frac{\rho_w}{\rho_m} \vec{v}_{wo} \quad (\text{A-5.9})$$

wobei \vec{v}_{ow} , in Anlehnung an der Slip-Formulierung von Manninen (3.42) und den Gleichungen (3.43)(3.44), unter Annahme einer stationären Strömung ($\frac{\partial \vec{v}_m}{\partial t} = 0$) wie folgt berechnet werden:

$$\vec{v}_{ow} = \frac{d_o^2}{f_{drag}} \frac{(\rho_o - \rho_m)}{18\mu_w} (\vec{g} - (\vec{v}_m \nabla) \vec{v}_m) \quad (\text{A-5.10})$$

Die Widerstandsfunktion f_{drag} wird, in Anlehnung an dem Widerstand-Modell von Schiller und Naumann (3.45), wie folgt definiert:

$$f_{drag} = \begin{cases} 1 + 0,15Re^{0,687} & \text{für } Re \leq 1000 \\ 0,0183Re & \text{für } Re > 1000 \end{cases} \quad (\text{A-5.11})$$

wobei Re , in Anlehnung an der Gleichung (3.46), wie folgt berechnet wird:

$$Re = \frac{\rho_w |\vec{v}_{ow}| d_o}{\mu_w} \quad (\text{A-5.12})$$

A-6. Grundgleichungen des instationären Mixtur-Modells

Die Volumenanteilgleichung für die Gasphase wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.33), unter Annahmen von keinem Massenaustausch ($\dot{m}_{ow} - \dot{m}_{wo} = 0$) und einer konstanten Sauerstoffdichte wie folgt definiert:

$$\frac{\partial(\alpha_o)}{\partial t} + \nabla(\alpha_o \vec{v}_m) = -\nabla(\alpha_o \vec{v}_{dr,o}) \quad (\text{A-6.1})$$

wobei \vec{v}_m , in Anlehnung an der Gleichung (3.32), wie folgt berechnet wird:

$$\vec{v}_m = c_w \vec{v}_w + c_o \vec{v}_o = \alpha_w \frac{\rho_w}{\rho_m} \vec{v}_w + \alpha_o \frac{\rho_o}{\rho_m} \vec{v}_o \quad (\text{A-6.2})$$

Die Kontinuitätsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.34), wie folgt definiert:

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla(\rho_m \vec{v}_m) = 0 \quad (\text{A-6.3})$$

wobei ρ_m , in Anlehnung an der Gleichung (3.27), wie folgt berechnet wird:

$$\rho_m = \alpha_w \rho_w + \alpha_o \rho_o \quad (\text{A-6.4})$$

Die Impulsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.35), mit dem zusätzlichen Quellterm des PM-Modells (\vec{M}), der Oberflächenspannungskraft (\vec{F}_{st}) und der effektiven Viskosität (μ_e) wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho_m \vec{v}_m)}{\partial t} + \nabla(\rho_m \vec{v}_m \vec{v}_m) \\ = -\nabla p + \nabla[\mu_e(\nabla \vec{v}_m + \nabla \vec{v}_m^T)] + \rho_m \vec{g} + \vec{M} + \vec{F}_{st} \\ - \nabla(\alpha_o \rho_o \vec{v}_{dr,o} \vec{v}_{dr,o} + \alpha_w \rho_w \vec{v}_{dr,w} \vec{v}_{dr,w}) \end{aligned} \quad (\text{A-6.5})$$

wobei μ_e , \vec{M} und \vec{F}_{st} , in Anlehnung an der Breugem-Korrelation (3.23)(3.24) und den Gleichungen (3.28)(3.21)(3.37), wie folgt berechnet werden:

$$\mu_e = \mu_r \mu_m = \begin{cases} \frac{1}{2} \left(\varepsilon - \frac{3}{7} \right) (\alpha_w \mu_w + \alpha_o \mu_o) & \text{für } \varepsilon \geq \frac{3}{7} \\ 0 & \text{für } \varepsilon < \frac{3}{7} \end{cases} \quad (\text{A-6.6})$$

$$\vec{M} = \begin{cases} 0 & \text{für FC Domäne} \\ -\frac{\mu}{K} \vec{v} & \text{für LGDL Domäne} \end{cases} \quad (\text{A-6.7})$$

$$\vec{F}_{st} = \gamma \kappa_o \nabla \alpha_o \quad (\text{A-6.8})$$

Die algebraischen Ausdrücke für die Geschwindigkeiten werden, in Anlehnung an der Gleichung (3.36), wie folgt definiert:

$$\vec{v}_{dr,o} = \vec{v}_{ow} - c_o \vec{v}_{ow} = \vec{v}_{ow} - \alpha_o \frac{\rho_o}{\rho_m} \vec{v}_{ow} \quad (\text{A-6.9})$$

$$\vec{v}_{dr,w} = \vec{v}_{wo} - c_w \vec{v}_{wo} = \vec{v}_{wo} - \alpha_w \frac{\rho_w}{\rho_m} \vec{v}_{wo} \quad (\text{A-6.10})$$

wobei die relative Geschwindigkeit \vec{v}_{ow} , in Anlehnung an der Slip-Formulierung von Manninen (3.42) und den Gleichungen (3.43)(3.44), wie folgt berechnet werden:

$$\vec{v}_{ow} = \frac{d_o^2}{f_{drag}} \frac{(\rho_o - \rho_m)}{18\mu_w} \left(\vec{g} - (\vec{v}_m \nabla) \vec{v}_m - \frac{\partial \vec{v}_m}{\partial t} \right) \quad (\text{A-6.11})$$

Die Widerstandsfunktion f_{drag} wird, in Anlehnung an dem Widerstand-Modell von Schiller und Naumann (3.45), wie folgt definiert:

$$f_{drag} = \begin{cases} 1 + 0,15Re^{0,687} & \text{für } Re \leq 1000 \\ 0,0183Re & \text{für } Re > 1000 \end{cases} \quad (\text{A-6.12})$$

wobei Re , in Anlehnung an der Gleichung (3.46), wie folgt berechnet wird:

$$Re = \frac{\rho_w |\vec{v}_{ow}| d_o}{\mu_w} \quad (\text{A-6.13})$$

A-7. Grundgleichungen des instationären VOF-Modells

Die Volumenanteilgleichung für die Gasphase wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.29), unter Annahmen von keinem Quellterm ($S_{\alpha_o} = 0$), keinem Massenaustausch ($\dot{m}_{wo} - \dot{m}_{ow} = 0$) und einer konstanten Sauerstoffdichte ($\frac{\partial \rho_o}{\partial t}$) wie folgt definiert wird:

$$\frac{\partial \alpha_o}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_o \vec{v}_o) = 0 \quad (\text{A-7.1})$$

Die Kontinuitätsgleichung für das Gemisch wird gemäß der Gleichung (3.30) wie folgt definiert:

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \vec{v}) = 0 \quad (\text{A-7.2})$$

wobei ρ_m , in Anlehnung an der Gleichung (3.27), wie folgt berechnet wird:

$$\rho_m = \alpha_w \rho_w + \alpha_o \rho_o \quad (\text{A-7.3})$$

Die Impulsgleichung für das Gemisch wird, in Anlehnung an der Gleichung (3.31), mit dem zusätzlichen Quellterm des PM-Modells (\vec{M}), der Oberflächenspannungskraft (\vec{F}_{st}) und der effektiven Viskosität (μ_e) wie folgt definiert:

$$\frac{\partial (\rho_m \vec{v})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot [\mu_e (\nabla \vec{v} + \nabla \vec{v}^T)] + \rho_m \vec{g} + \vec{F}_{st} + \vec{M} \quad (\text{A-7.4})$$

wobei μ_e und \vec{M} , in Anlehnung an der Breugem-Korrelation (3.23)(3.24) und den Gleichungen (3.28)(3.21), wie folgt berechnet werden:

$$\mu_e = \mu_r \mu_m = \begin{cases} \frac{1}{2} \left(\varepsilon - \frac{3}{7} \right) (\alpha_w \mu_w + \alpha_o \mu_o) & \text{für } \varepsilon \geq \frac{3}{7} \\ 0 & \text{für } \varepsilon < \frac{3}{7} \end{cases} \quad (\text{A-7.5})$$

$$\vec{M} = \begin{cases} 0 & \text{für FC Domäne} \\ -\frac{\mu}{K} \vec{v} & \text{für LGDL Domäne} \end{cases} \quad (\text{A-7.6})$$

Die Oberflächenspannungskraft wird, in Anlehnung am CSF-Modell (3.37), wie folgt definiert:

$$\vec{F}_{surface\ tension} = \gamma \frac{\rho_m \kappa_o \nabla \alpha_o}{0,5(\rho_o + \rho_w)} \quad (\text{A-7.7})$$

wobei κ_o , in Anlehnung an den Gleichungen (3.38)(3.39), wie folgt definiert wird:

$$\kappa_o = \nabla \hat{n} = \nabla \left(\frac{\vec{n}}{|\vec{n}|} \right) = \nabla \left(\frac{\nabla \alpha_o}{|\nabla \alpha_o|} \right) \quad (\text{A-7.8})$$

Die Oberflächeneinheitsnormale \hat{n} an einer Wand oder einer Grenzfläche kann außerdem, in Anlehnung an dem Wandhaftungs-Modell (3.40) oder dem Sprunghaftungs-Modell (3.41), durch den Kontaktwinkel wie folgt berechnet werden:

$$\hat{n} = \hat{n}_{wand} \cos \theta_{wand} + \hat{t}_{wand} \sin \theta_{wand} \quad (\text{A-7.9})$$

$$\hat{n} = \hat{n}_{sprung} \cos \theta_{sprung} + \hat{t}_{sprung} \sin \theta_{sprung} \quad (\text{A-7.10})$$

A-8. Validierungsergebnis des 2D-Modells für planare VRFB-Halbzellen

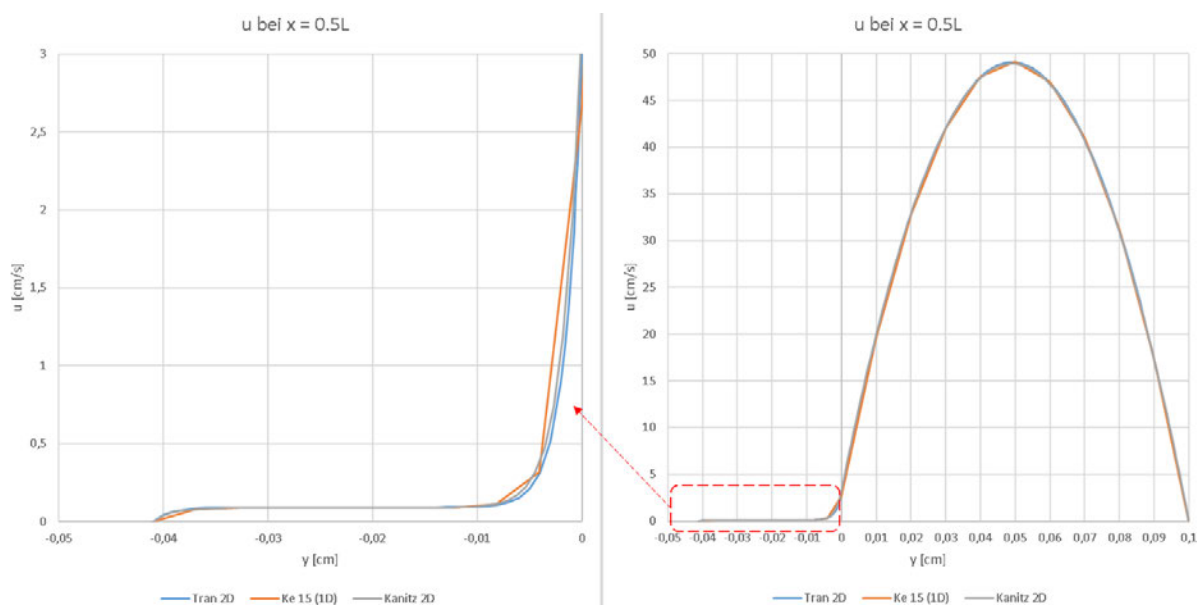


Abbildung 49: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern K_1, ε_1

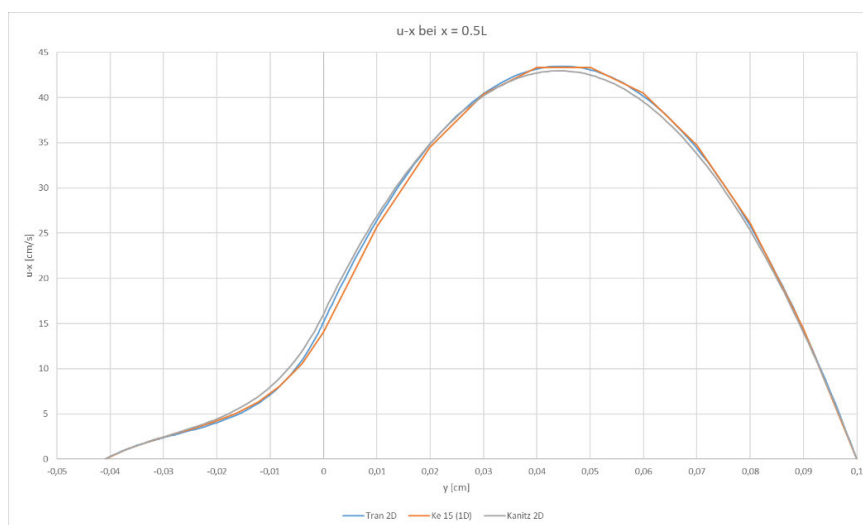


Abbildung 50: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern K_2, ε_2

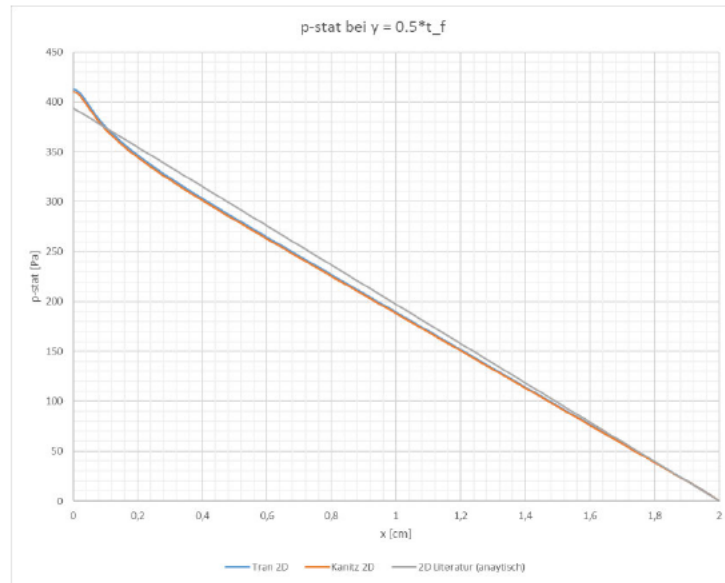


Abbildung 51: Druckverlauf in FC mit den Parametern K_1, ε_1

Modell	Druckverlust
Kanitz 1D	378 Pa
Kanitz 2D	410 Pa
Literatur 2D (analytisch)	394 Pa
Tran 2D	413 Pa (FC-Mittelpunkt) 440.2 (Flächenmittelwert)

Tabelle 30: Druckverluste mit den Parametern K_1, ε_1

Modell	$u_{fc}^* [-]$				$u_{pe}^* [-]$			
	x = 0,1L	x = 0,2L	x = 0,5L	x = 0,7L	x = 0,1L	x = 0,2L	x = 0,5L	x = 0,7L
Ke 2D (2014)	0,921	0,932		0,934	0,179	0,154		0,15
Kanitz 2D	0,919	0,929		0,93	0,191	0,167		0,163
Struckmann 2D	0,919	0,932		0,934	0,187	0,153		0,149
Ke 1D (2015)			0,938				0,15	
Tran 2D	0,925	0,937	0,938	0,938	0,183	0,155	0,15	0,15

Tabelle 31: normierte Geschwindigkeiten mit den Parametern K_2, ε_2

A-9. Validierungsergebnis des 3D-Modells für planare VRFB-Halbzellen

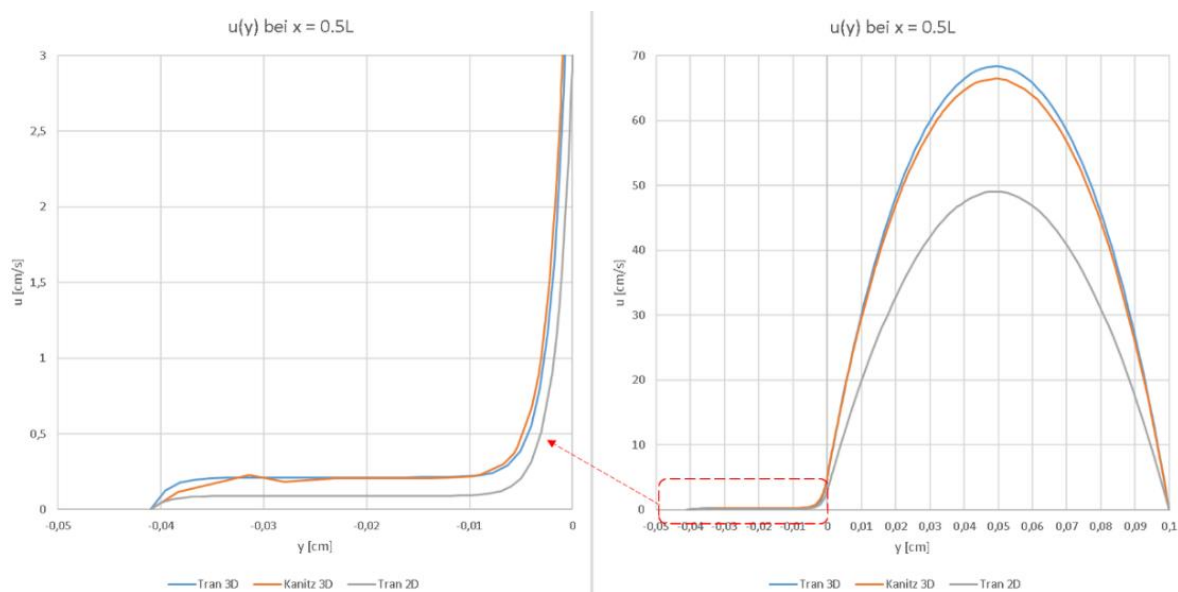


Abbildung 52: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern K_1, ε_1

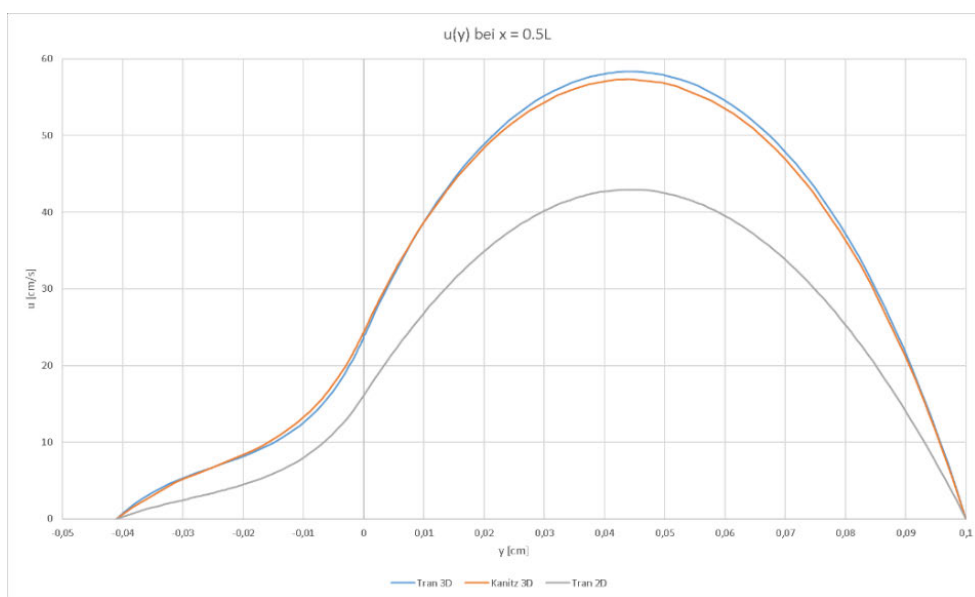


Abbildung 53: Geschwindigkeitsverteilung bei $x = 0.5L$ mit den Parametern K_2, ε_2

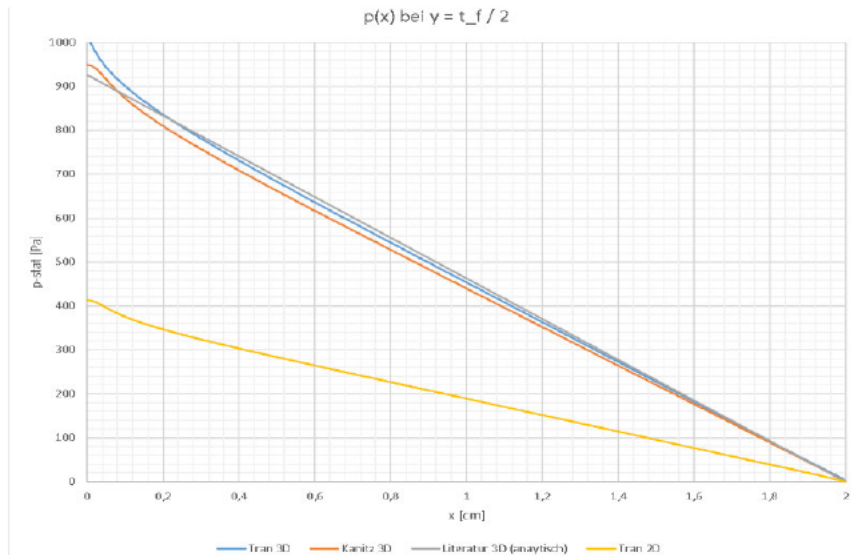


Abbildung 54: Druckverlauf in FC mit den Parametern K_1, ε_1

Modell	Druckverlust
Kanitz 3D	994 Pa
Struckmann 3D	1065 Pa
Literatur 3D (analytisch)	925 Pa
Tran 3D	1006 Pa (Flächenmittelwert)
Tran 2D	413 Pa (FC-Mittelpunkt)

Tabelle 32: Druckverluste mit den Parametern K_1, ε_1

Modell	$u_{fc}^* [-]$				$u_{pe}^* [-]$			
	$x = 0.1L$	$x = 0.2L$	$x = 0.5L$	$x = 0.7L$	$x = 0.1L$	$x = 0.2L$	$x = 0.5L$	$x = 0.7L$
Kanitz 3D	0,879	0,892		0,896	0,249	0,220		0,210
Struckmann 3D	0,877	0,894		0,898	0,256	0,215		0,204
Tran 3D	0,883	0,899	0,905	0,905	0,289	0,249	0,235	0,234
Tran 2D	0,925	0,937	0,938	0,938	0,183	0,155	0,150	0,150
Ke 1D			0,938	0,938			0,150	0,150

Tabelle 33: normierte Geschwindigkeiten mit den Parametern K_2, ε_2

Modell	$Q_{fc} [ml/s]$				$Q_{pe} [ml/s]$			
	$x = 0.1L$	$x = 0.2L$	$x = 0.5L$	$x = 0.7L$	$x = 0.1L$	$x = 0.2L$	$x = 0.5L$	$x = 0.7L$
Kanitz 3D	0,293	0,297		0,298	0,034	0,030		0,029
Struckmann 3D	0,292	0,298		0,299	0,035	0,029		0,028
Tran 3D	0,294	0,299	0,301	0,301	0,039	0,034	0,032	0,032
Tran 2D	0,308	0,312	0,313	0,313	0,025	0,021	0,021	0,021
Ke 1D			0,313	0,313			0,020	0,020

Tabelle 34: Volumenströme mit den Parametern K_2, ε_2

A-10. Simulationsergebnis des instationären Mixture-Modells

Die zugehörige Simulation wird mit dem Sauerstoffdurchmesser von $100\ \mu\text{m}$ durchgeführt.

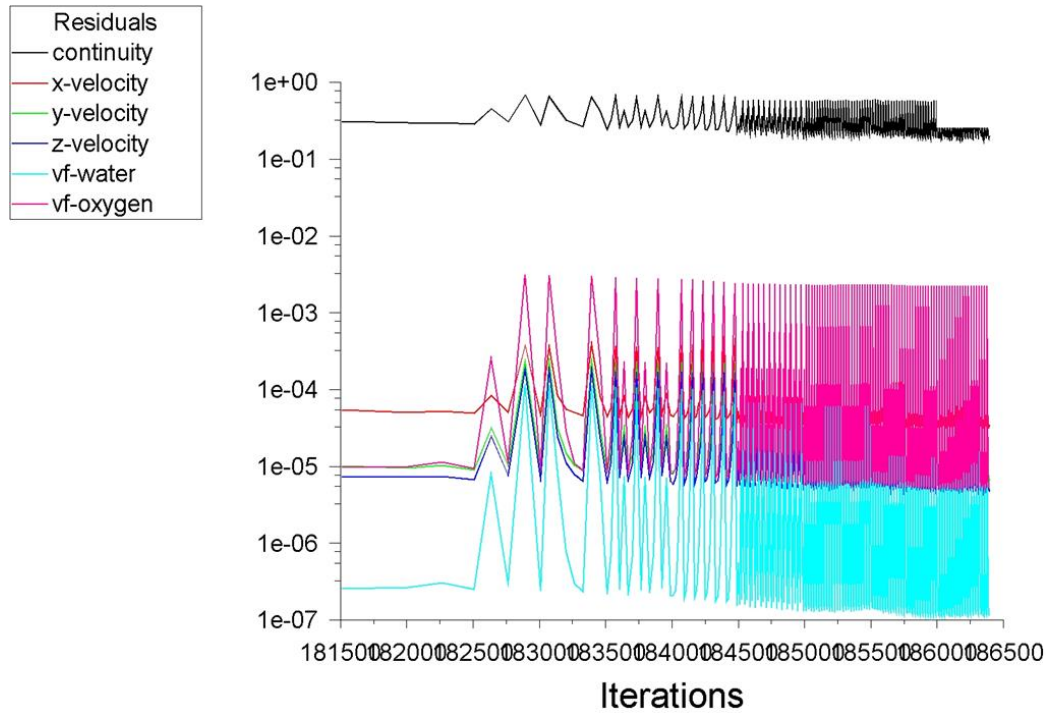


Abbildung 55: Residuum-Verlauf während der Iteration

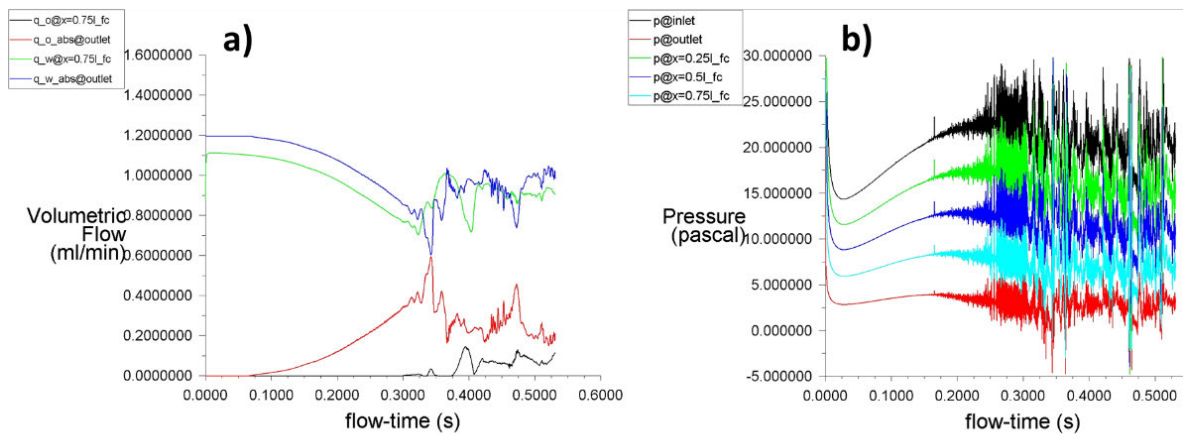


Abbildung 56: Volumenströme (a) und Drücke (b) in verschiedenen Positionen während der Zeit

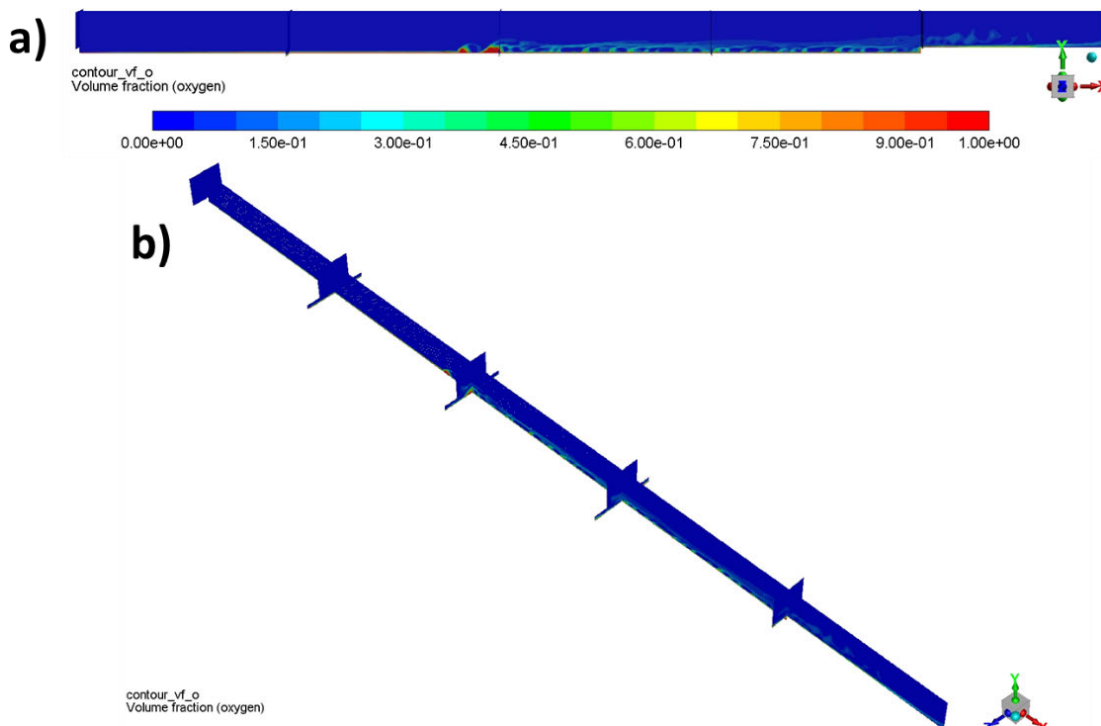


Abbildung 57: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms

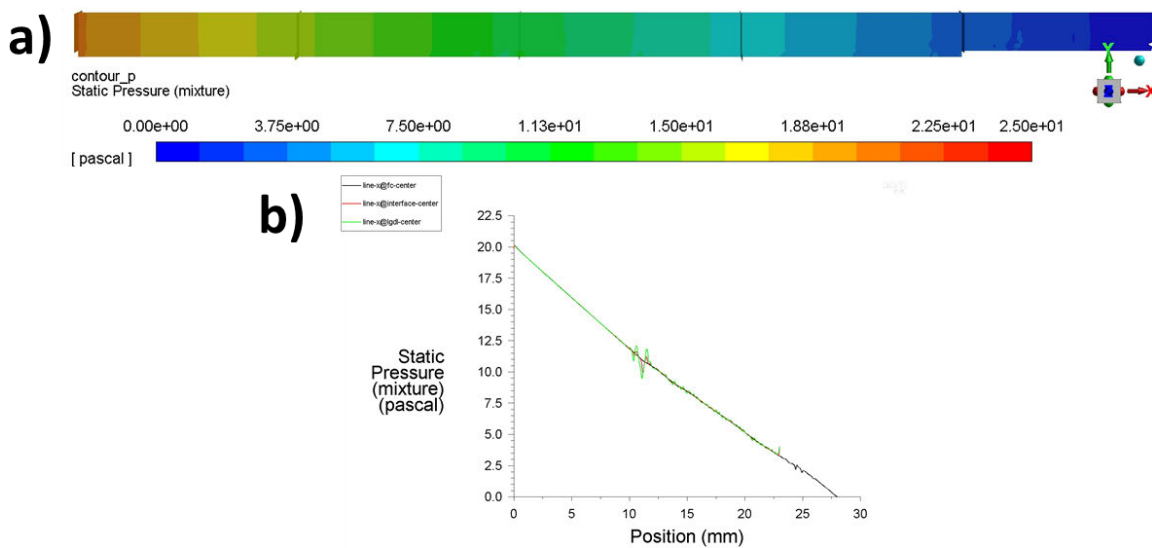


Abbildung 58: Druckverteilung (a) und -verlauf entlang FC (b) für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms

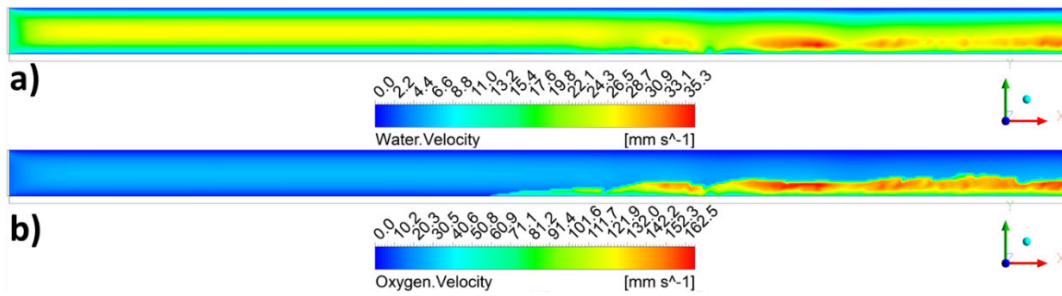


Abbildung 59: Geschwindigkeitsverteilungen des Wassers (a) und des Sauerstoffes (b) in FC für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms

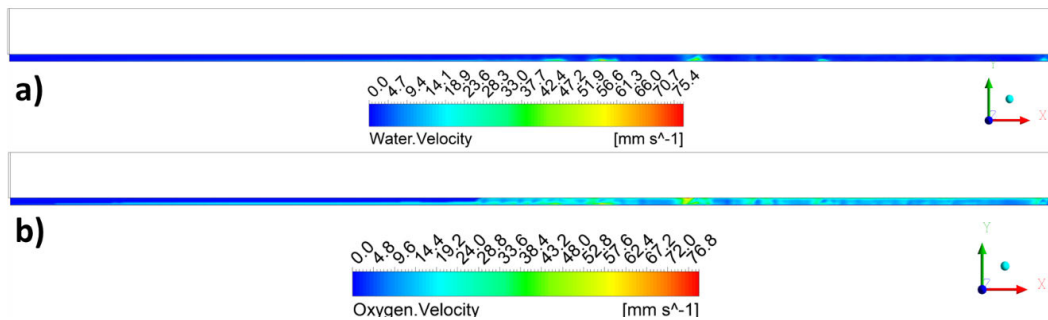


Abbildung 60: Geschwindigkeitsverteilungen des Wassers (a) und des Sauerstoffes (b) in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen des Sauerstofffilms

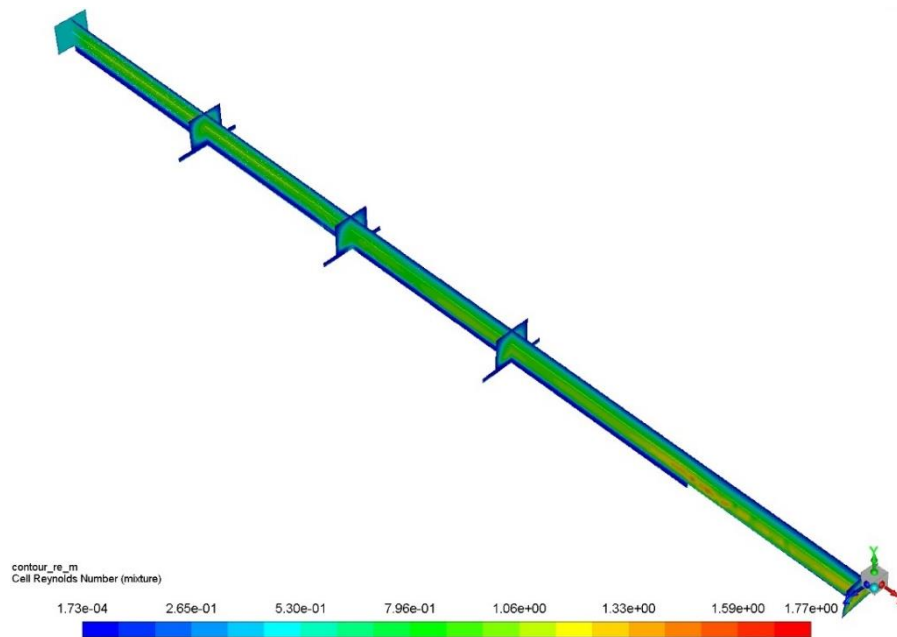


Abbildung 61: Reynoldszahl-Verteilung des Gemisches für einen bestimmten Zeitpunkt nach dem Ablösen der Sauerstofffilms

A-11. Simulationsergebnis des instationären VOF-Modells

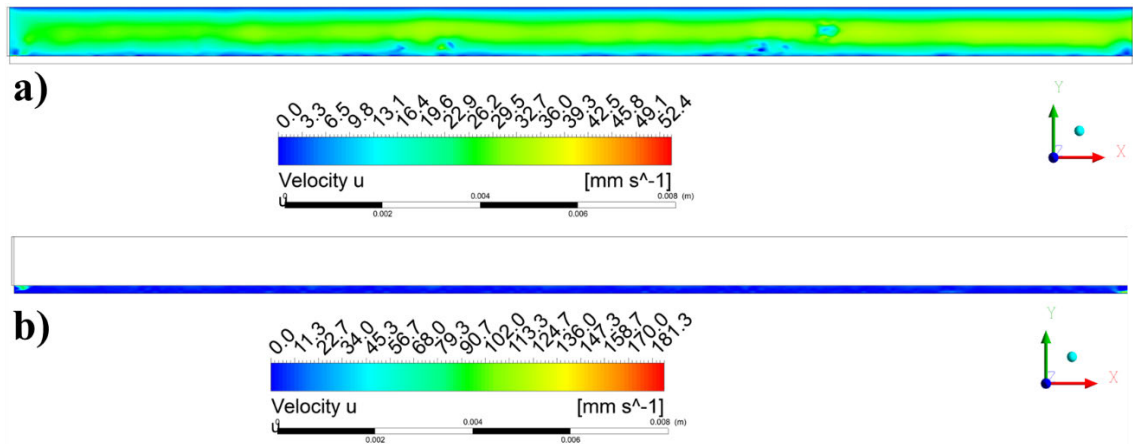


Abbildung 62: Geschwindigkeitsverteilung in FC (a) und in LGDL (b) für einen bestimmten Zeitpunkt

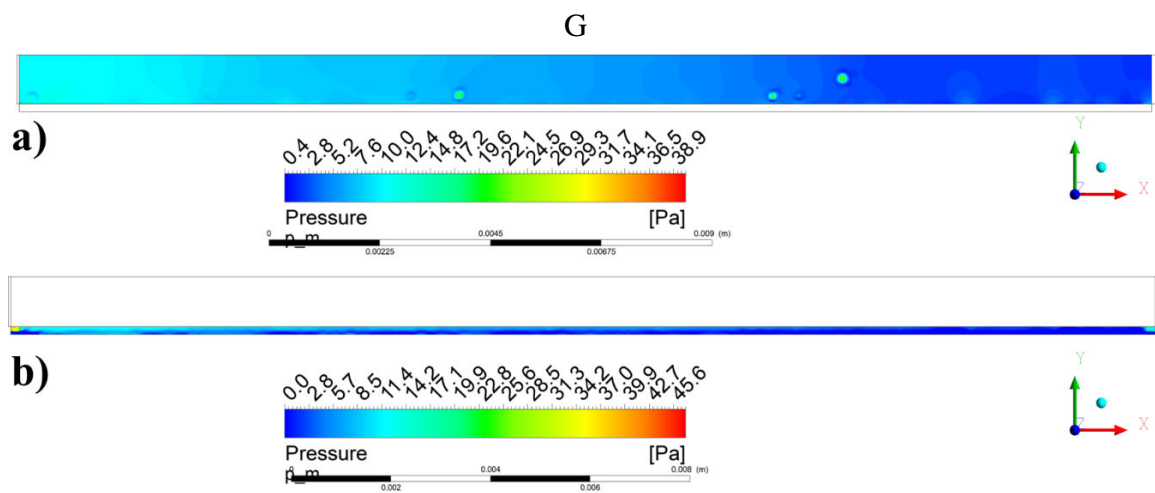


Abbildung 63: Druckverteilung in FC (a) und in LGDL (b) für einen bestimmten Zeitpunkt

A-12. Vergleich zwischen den Formulierungen mit Oberflächengeschwindigkeit und physikalischer Geschwindigkeit

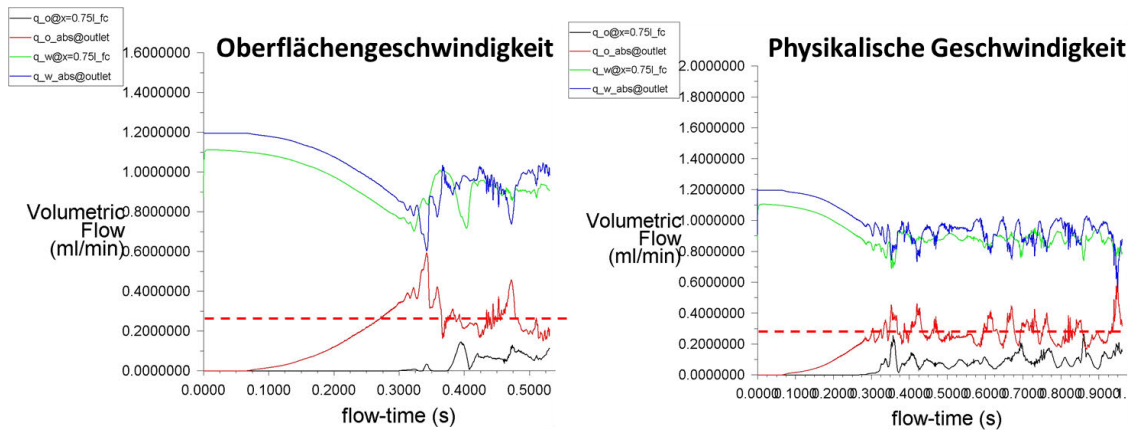


Abbildung 64: Volumenströme während der Zeit

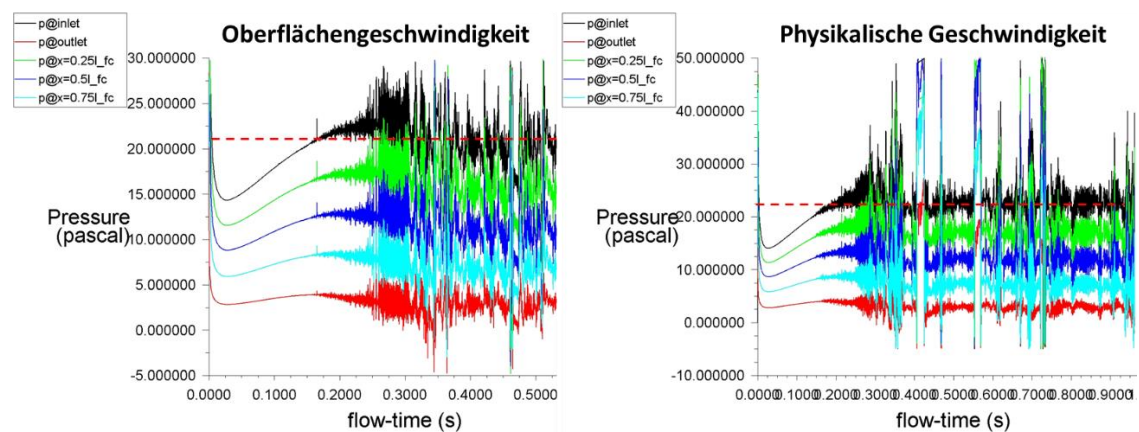


Abbildung 65: Drücke während der Zeit

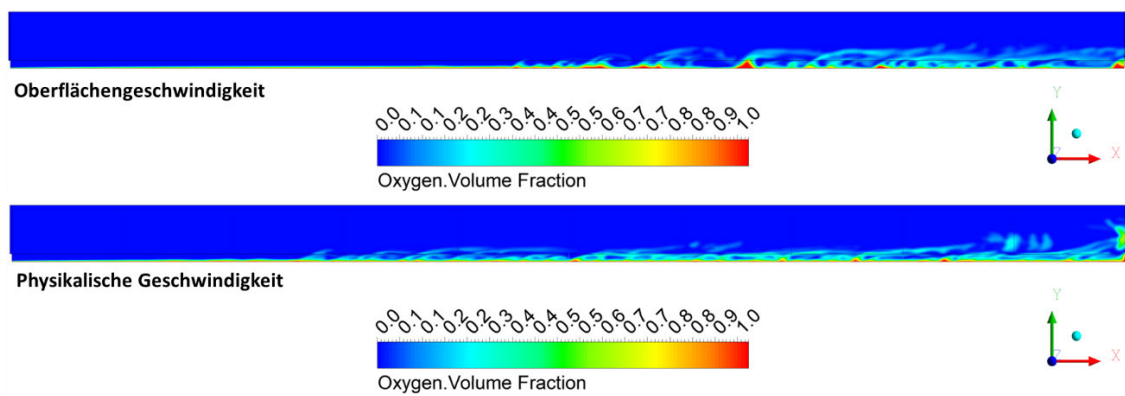


Abbildung 66: SVA-Verteilung für einen bestimmten Zeitpunkt

Vergleich zwischen den Formulierungen mit Oberflächengeschwindigkeit und physikalischer Geschwindigkeit

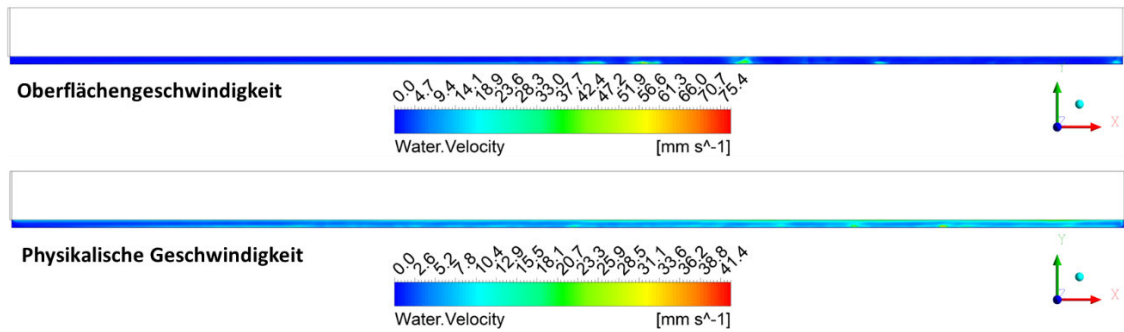


Abbildung 67: Wassergeschwindigkeitsverteilung in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt

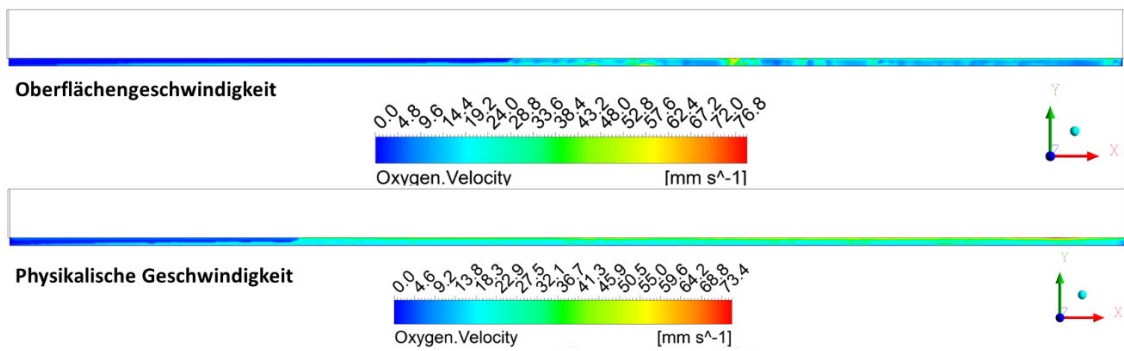


Abbildung 68: Sauerstoffgeschwindigkeitsverteilung in LGDL für einen bestimmten Zeitpunkt



Erklärung zur selbstständigen Bearbeitung einer Abschlussarbeit

Gemäß der Allgemeinen Prüfungs- und Studienordnung ist zusammen mit der Abschlussarbeit eine schriftliche Erklärung abzugeben, in der der Studierende bestätigt, dass die Abschlussarbeit „– bei einer Gruppenarbeit die entsprechend gekennzeichneten Teile der Arbeit [(§ 18 Abs. 1 APSO-TI-BM bzw. § 21 Abs. 1 APSO-INGI)] – ohne fremde Hilfe selbstständig verfasst und nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt wurden. Wörtlich oder dem Sinn nach aus anderen Werken entnommene Stellen sind unter Angabe der Quellen kenntlich zu machen.“

Quelle: § 16 Abs. 5 APSO-TI-BM bzw. § 15 Abs. 6 APSO-INGI

Dieses Blatt, mit der folgenden Erklärung, ist nach Fertigstellung der Abschlussarbeit durch den Studierenden auszufüllen und jeweils mit Originalunterschrift als letztes Blatt in das Prüfungsexemplar der Abschlussarbeit einzubinden.

Eine unrichtig abgegebene Erklärung kann -auch nachträglich- zur Ungültigkeit des Studienabschlusses führen.

Erklärung zur selbstständigen Bearbeitung der Arbeit

Hiermit versichere ich,

Name: Tran

Vorname: Duc Hai

dass ich die vorliegende Bachelorarbeit bzw. bei einer Gruppenarbeit die entsprechend gekennzeichneten Teile der Arbeit – mit dem Thema:

Fluid-Flow-Modellierung zur Auslegung von Flow-By-Elektroden in elektrochemischen Energiewandlern

ohne fremde Hilfe selbstständig verfasst und nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Wörtlich oder dem Sinn nach aus anderen Werken entnommene Stellen sind unter Angabe der Quellen kenntlich gemacht.

- die folgende Aussage ist bei Gruppenarbeiten auszufüllen und entfällt bei Einzelarbeiten -

Die Kennzeichnung der von mir erstellten und verantworteten Teile der Bachelorarbeit ist erfolgt durch:

Hamburg

Ort

13.8.2020

Datum

