

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



Université El-Hadj Lakhdar - BATNA 1

Faculté des Sciences de la Matière

Département de Physique



# THÈSE

En vue de l'obtention du  
Diplôme de Doctorat

Présentée par :

**Belkhiri Zina**

Thème :

---

**Phénomènes de transport dans les piles à combustible à  
membrane échangeuse de protons (PEMFC)**

---

*Spécialité : Physique Energétique*

Soutenue le 22/05/2017

**Devant le jury :**

Président :	BOUGOUL Saadi	Professeur	Université Batna 1
Rapporteur :	BEN MOUSSA Hocine	Professeur	Université Batna 2
Examineurs :	KHALDI Fouad	Professeur	Université Batna 1
	BOUGRIOU Chérif	Professeur	Université Batna 2
	BOURAS Fethi	M.C.A	Université El Oued
	ZITOUNI Bariza	Professeur	Université Batna 1

# Remerciements

Avant toutes choses, je remercie **Dieu** le tout puissant de m'avoir donné courage, patience et force durant toutes ces années d'études.

Mes remerciements les plus vifs vont au défunt **Dr. ZEROUAL Mostefa**, Professeur à l'Université de Batna, pour m'avoir encadré durant les deux premières années de thèse. Entre autre, je le remercie pour toute la rigueur qu'il a apporté, pour le temps et les conseils qu'il n'a pas compté, pour l'enthousiasme dont il fait preuve pour la recherche. Je le remercie également pour son extrême gentillesse ainsi que pour sa bonne humeur. Ces quelques lignes ne suffiront pas à exprimer toute ma gratitude.

Mes premiers remerciements iront à **M. Hocine BEN MOUSSA**, Professeur à l'Université de Batna, de m'avoir accepté d'être mon directeur de thèse. La pertinence de ses remarques, de ses conseils, des échanges que nous avons pu avoir, a éclairé mon chemin après le décès de **Dr. Mostefa ZEROUAL**.

J'adresse mes vifs remerciements à **toute l'équipe de recherche** sur les piles à combustibles de l'Université de Batna et en particulier :

-Un grand merci à **Mr D. HADDAD**, qui m'a donné les informations dont il disposait sur la pile à combustible et qui m'a souvent aidé à la faire fonctionner.

- **M<sup>elle</sup>. K. Oulmi** qui m'a aidé dans mes recherches et qu'elle m'a consacré beaucoup de temps pour la réalisation de ce travail.

- Merci à tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin, lors de la réalisation de cette thèse.

Je tiens ensuite à remercier les membres du jury de thèse :

-**M. BOUGOUL Saadi**, Professeur de l'université de Batna 1, pour m'avoir fait l'honneur d'accepter de présider le jury.

-**M. KHALDI Fouad**, Professeur de l'université de Batna 1, **M. BOUGRIOU Chérif**, Professeur de l'université de Batna 2, et **M<sup>elle</sup>. ZITOUNI Bariza**, Professeur de l'université de Batna 1, ainsi que **M. BOURAS Fethi**, Maître de Conférences de l'université d'El Oued, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse et pour l'intérêt qu'ils y ont porté, et pour les différentes remarques constructives dont ils ont fait preuve dans leur rapport.

*Tous mes remerciements et mon estime à tous les enseignants du département de physique, ainsi qu'à mes camarades du laboratoire de Physique Energétique.*

*Lina Belkhir*

# *Dédicaces*

*Je dédie ce travail à :*

*Mon père : Mohammed qui m'a donné durant toute la vie : L'amour, le soutien, l'éducation, le courage, l'espoir et le vouloir de vivre parmi les meilleurs.*

*Ma chère mère : Fatima qui a bien veillé à notre éducation et qu'elle n'arrête jamais de me guider par sa prière ; Merci de m'avoir permis de réaliser mes rêves,*

*Mes sœurs : Noura, Nadia, Malika, Salima, Yamina, Hadjer, sans vous je ne serais pas ici aujourd'hui. Merci pour votre courage et votre amour. Sans oublier mes beaux frères : Amar, Samir, Abdallah,*

*Mes frères : Badis, Ahmed, Abdelghani pour les bons moments que l'on continue de partager,*

*Mon cher mari : Mekki Zerouali pour la patience qu'elle m'a montré durant ces longues études,*

*Ma chère fille : Sara,*

*Mille mercis.....*

*Lina Belkhiri*

# Liste des publications

- 1- **Z. Belkhiri**, M. Zeroual, H. Ben Moussa, B. Zitouni, «Effect of temperature and water content on the performance of PEM fuel cell», *Revue des Energies Renouvelables*, Vol. 14 N°1(2011) 121 –130.
- 2- **Belkhiri. Z**, Zeroual. M, Ben moussa. H, Zitouni. B, Zereg. M, « Effet de la perméabilité sur la distribution des espèces et la répartition du champ de vitesse», *Revue Algérienne de Physique*, 06 (2011) 56-60.
- 3- **Z. Belkhiri**, M. Zeroual, N. Saidani, H. Ben Moussa, «A two-dimensionnel analysis of mass transport in proton exchange membrane fuel cells: influence of porosity and permeability», *International Journal of Chemical and Environmental Engineering*, Vol.2 N°6 (2011) 390–394.
- 4- **Zina Belkhiri**, Mostefa Zeroual, Hocine Ben Moussa, Moussa Zereg, Bariza Zitouni, «Numerical simulation of exchange membrane fuel cells in different operating conditions», *International Journal of hydrogen energy*, 37 (2012) 5444-5451.
- 5- **Z. Belkhiri**, H. Ben moussa, D. Haddad, K. Oulmi, «Effect of permeability on the dynamic field in the PEM fuel cell», *International Journal of Hydrogen Energy*, 40 (2015) 13789-13798.

# TABLE DES MATIÈRES

Remerciements	i
Table des matières	V
Liste des figures	viii
Liste des tableaux	x
Nomenclature	xi
<b>Introduction générale</b>	1
Références bibliographiques	4
<b>Chapitre I</b>	
<b>Description générale de la pile à combustible</b>	
I.1 Introduction	5
I.2 La pile à combustible : principe de fonctionnement	6
I.3 Les différents types de piles à combustible	8
I.3.1 La pile à membrane électrolyte polymérique (PEMFC)	8
I.3.2 La pile à méthanol direct (DMFC)	8
I.3.3 La pile à électrolyte alcalin (AFC)	8
I.3.4 La pile à acide phosphorique (PAFC)	8
I.3.5 La pile à oxyde solide (SOFC)	8
I.3.6 La pile à carbonates fondus (MCFC)	8
I.4 Combustible	8
I.5 Les différentes applications des piles à combustible	9
I.5.1. Les applications stationnaires	10
I.5.2. Les applications transport	11
I.5.3. Les applications Portables	12
I.6 Construction de pile à combustible de type PEM	12
I.6.1 Electrodes	13
I.6.2 Electrolyte	14
I.6.3 Plaque bipolaire	16
I.7 Processus thermodynamiques et électrochimiques	17
I.7.1 Les performances idéales	17
I.7.2 Les performances actuelles	17
I.8 Conclusion	19
I.9 Références bibliographiques	21

## **CHAPITRE II**

### **Modélisation des piles PEM : Etat de l'art dans la littérature**

II.1 Introduction	23
II.2 Phénomènes physico-chimiques au sein d'une pile PEM	23
II.2.1 Phénomènes fluidiques	23
II.2.2 Phénomènes électrochimiques	25
II.2.3 Phénomènes thermiques	27
II.2.4 Transport de l'eau	30
II.3 La Gestion de l'eau dans la pile PEMFC	31
II.3.1 Généralités	31
II.3.2 Les transferts de l'eau dans la pile	33
II.3.3 Les méthodes de gestion de l'eau dans les piles	34
II.4 État de l'art sur les travaux de modélisation de la PAC	37
II.5 Conclusion	41
II.6 Références bibliographiques	42

## **Chapitre III**

### **Modèle physique et mathématique**

III.1 Introduction	46
III.2 Modèle Physique	46
III.2.1 Géométrie de la structure modélisée	46
III.2.2 Hypothèses du modèle	48
III.3 Écriture du modèle	49
III.4 Tension de la cellule	53
III.5 Simulation numérique	55
III.5.1 Outil de simulation Gambit et Fluent	55
III.5.2 Présentation du maillage	56
III.5.3 Conditions aux limites	57
III.6 Paramètres de modélisation	57
III.6.1 Paramètres géométriques	58
III.6.2 Paramètres des cinétiques de réaction	58
III.6.3 Les conditions d'entrée	58
III.6.4 Paramètres de transport de matière	59
III.6.5 Définition des caractéristiques des matériaux	60
III.6.6 Propriétés thermo-physiques	62
III.7 Conclusion	63
III.8 Références bibliographiques	64

## Chapitre IV

### Interprétation et discussion des résultats

IV.1 Introduction	66
IV. 2 Modèle bidimensionnel monophasique dans la direction perpendiculaire suivant la direction « x »	66
IV. 2.1 Profils thermiques	66
IV.2.1.1 Distribution de la température dans la cellule	66
IV.2.1.2 Profil de température suivant différents axes	68
IV. 2.2 Distribution des sources de chaleur dans la cellule	70
IV. 2.3 Effet de la conductivité thermique	72
IV.2.4 Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans la cellule	72
IV.2.5 Distribution des fractions molaire des gaz dans la cellule	74
IV.2.5.1 Distribution de la fraction molaire d'hydrogène	74
IV.2.5.2 Distribution de la fraction molaire d'oxygène	75
IV. 3 Modèle bidimensionnel monophasique dans la direction parallèle suivant la direction « z »	77
IV.4 Etude paramétrique	77
IV.4.1 Effet de la densité de courant	77
IV.4.1.1 Champ thermique	77
IV.4.1.1.1 Distribution de la température à l'intérieur de la cellule	77
IV.4.1.1.2 Profil de température suivant différents axes	79
IV.4.1.2 Profils des fractions molaire des gaz	80
IV.4.1.3 Distribution de fraction molaire de la vapeur d'eau	83
IV.4.1.4 Profil de la fraction molaire de la vapeur d'eau suivant différents axes	85
IV.4.2 Effet de la vitesse d'entrée des gaz	86
IV.4.2.1 Evolution des fractions molaires des gaz	86
IV.4.2.2 Profil de température et la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'AME	87
IV.4.3 Effet de la température d'entrée des gaz	88
IV.4.3.1 Profils de température dans l'assemblage-membrane-électrode (AME)	89
IV.4.3.2 profils de température dans les canaux	90
IV.4.3.3 profils de température dans les couches de catalyseurs	91
IV.4.3.4 Performance de la pile en fonction de température	93
IV.4.3.4.1 Effet de la température sur la conductivité de la membrane	93
IV.4.3.4.2 Courbe de polarisation et courbe de densité de puissance	93

IV.4.4 Effet de la teneur en eau de la membrane	95
IV.4.5 Effet de l'humidification des gaz réactifs (fractions molaires de la vapeur d'eau) sur le transport de l'eau dans la pile	98
IV.4.6 Effet de l'épaisseur de la membrane	99
IV.4.7 Effet de la longueur du canal	100
IV.4.8 Effet de la porosité	101
IV.5 Conclusion	102
IV.6 Références bibliographiques	104
<b>Conclusion générale et perspectives</b>	106
<b>ANNEXE A</b>	108

# LISTE DES FIGURES

Figure I.1: Pile de 300 We, refroidie à air.	6
Figure I.2: Principe de fonctionnement d'une pile à combustible.	12
Figure I.3: Structure du stack.	13
Figure I.4: Constitution d'une MEA.	15
Figure I.5: Formule chimique du Nafion®.	16
Figure I.6: Plaques bipolaire de pile PEM.	16
Figure I.7: Caractéristique statique de pile PEM.	20
Figure I.8: Courbe de polarisation de la PAC.	21
Figure II.1: Motifs de canaux les plus employés.	22
Figure II.2: Les processus occurrence dans une cellule de carburant de PEM.	26
Figure II.3: Exemple d'évolution de la résistance d'une membrane Nafion117® de 9cm <sup>2</sup> avec la charge en Eau.	27
Figure II.4: Mécanismes de transport d'eau dans la membrane.	46
Figure III.1: Présentation de différents domaines d'étude de la pile PEMFC.	47
Figure III.2: Les modèles bidimensionnels des domaines d'étude.	48
Figure III.3: Procédure générale de simulation.	56
Figure III.4: (a): Présentation générale du maillage, (b): Maillage des zones de catalyseurs.	57
Figure IV.1: Distribution de température à l'intérieur de la cellule pour différentes valeur de densité de courant: i=a)0.2, b)0.4, c)0.6, d)0.8, e)1, f)1.2A/cm <sup>2</sup> .	67
Figure IV.2: Profils de température dans la cellule pour différentes valeur de densité de courant.	68
Figure IV.3: Positions des axes du tracé des profils de température dans l'AME [2].	69
Figure IV.4: Profil de température en fonction du positionnement pour une mono cellule [2].	69
Figure IV.5: Profil de température suivant différents axes à i=0.5A/m <sup>2</sup> , T=353K.	70
Figure IV.6: Répartition et quantification des termes sources dans le cœur de la cellule.	71
Figure IV.7: Localisation des sources de chaleur dans le cœur de la cellule.	71
Figure IV.8: Profil de température pour différentes valeurs de conductivité thermique des diffuseurs pour i=0.8A/cm <sup>2</sup> , T=353K.	72
Figure IV.9: Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule pour différentes valeur de densité de courant: i=a)0.2, b)0.4, c)0.6, d)0.8, e)1, f)1.2A/cm <sup>2</sup> .	73
Figure IV.10: Profils de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'assemblage AME pour différentes valeur de densité de courant.	74
Figure IV.11: Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal et le diffuseur anodique pour différentes valeur de densité de courant: i=a)0.2, b)0.8, c)1.2A/cm <sup>2</sup> .	75
Figure IV.12: Profils de la fraction molaire d'hydrogène dans le diffuseur anodique pour différentes valeur de densité de courant.	75

Figure IV.13: Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal et le diffuseur cathodique pour différentes valeur de densité de courant: i=a)0.2, b)0.8, c)1.2A/cm <sup>2</sup> .	76
Figure IV.14: Profils de la fraction molaire d'oxygène dans le diffuseur cathodique pour différentes valeur de densité de courant.	76
Figure IV.15: Distribution de la température à l'intérieur de la cellule en fonction de densité de courant : i=a)=0.2, b) 0.8, c) 1.2A /cm <sup>2</sup> .	78
Figure IV.16: Profil de température dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de densités de courant.	79
Figure IV.17: Profil de température à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule pour i=0.8A/cm <sup>2</sup> .	80
Figure IV.18: Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal et la couche de diffusion de gaz coté anodique en fonction de densité de courant : i=a)0.4, b)0.8, c) 1.2A /cm <sup>2</sup> .	81
Figure IV.19: Profil de la fraction molaire d'hydrogène dans le catalyseur anodique pour différentes valeurs de densités de courant.	81
Figure IV.20: Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal et la couche de diffusion de gaz coté cathodique en fonction de densité de courant : i=a)0.4, b)0.8, c) 1.2A /cm <sup>2</sup> .	82
Figure IV.21: Profil de la fraction molaire d'oxygène dans le catalyseur cathodique pour différentes valeurs de densités de courant.	82
Figure IV.22: Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule en fonction de densité de courant : i=a)0.2, b) 0.8, c) 1.2A /cm <sup>2</sup> .	83
Figure IV.23: Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de densités de courant.	84
Figure IV.24: Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans le catalyseur anodique pour différentes valeurs de densités de courant.	84
Figure IV. 25: Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans le catalyseur cathodique pour différentes valeurs de densités de courant.	85
Figure IV. 26: Profil de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule pour i=0.8A/cm <sup>2</sup> .	85
Figure IV.27: Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le coté anodique en fonction de la vitesse d'entrée : v=a) 0.01, b) 0.1, c) 0.5, d) 1 m /s.	86
Figure IV.28: Evolution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal anodique pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz. i=0.8A/cm <sup>2</sup> , T <sub>e</sub> =353K.	86
Figure IV.29: Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le coté cathodique en fonction de la vitesse d'entrée : v=a) 0.01, b) 0.1, c) 0.5, d) 1 m /s.	87
Figure IV.30: Evolution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal anodique pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz. i=0.8A/cm <sup>2</sup> , T <sub>e</sub> =353K.	87
Figure IV.31: Evolution de la température dans la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz. i=0.8A/cm <sup>2</sup> , T <sub>e</sub> =353K	88
Figure IV.32: Evolution de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz. i=0.8A/cm <sup>2</sup> , T <sub>e</sub> =353K.	88

Figure IV.33: Profils de température dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de températures de 333K, 353K et 363K.	90
Figure IV.34: Evolution de la température dans le canal anodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz. $i=0.5A/cm^2$	90
Figure IV.35: Evolution de température dans le canal cathodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz. $i=0.5A/cm^2$	91
Figure IV.36: Profils de température dans la couche de catalyseur anodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz. $i=0.5A/cm^2$	91
Figure IV.37: Profils de température dans la couche de catalyseur cathodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz. $i=0.5A/cm^2$	92
Figure IV.38: Profils de température dans la couche de catalyseur anodique et cathodique pour $T_e=333K$ , $i=0.5A/cm^2$ .	92
Figure IV.39: Influence de la température sur la conductivité de la membrane.	93
Figure IV.40: Courbes de polarisation pour différentes valeurs de températures.	94
Figure IV.41: Courbes de la densité de puissance pour différentes valeurs de températures.	95
Figure IV.42: Influence de la teneur en eau sur la résistance de la membrane.	96
Figure IV.43: La résistance de la membrane en fonction de la température pour différents taux d'humidification.	96
Figure IV.44: Courbes de polarisation pour différentes valeurs de la teneur en eau.	97
Figure IV.45: Courbes de la densité de puissance pour différentes valeurs de la teneur en eau.	97
Figure IV.46: La répartition de la vapeur d'eau dans une pile PEMFC à une faible densité de courant $i=0.01A/cm^2$ , $Y_{H_2Oa}=0.273$ , $Y_{H_2Oc}=0.8$ .	98
Figure IV.47: La répartition de la vapeur d'eau dans une pile PEMFC à une densité de courant $i=0.5A/cm^2$ , $Y_{H_2Oa}=0.273$ , $Y_{H_2Oc}=0.8$ .	99
Figure IV.48: Influence de l'épaisseur de la membrane sur la résistance ohmique.	99
Figure IV.49: Evolution de fraction molaire d'hydrogène dans le canal anodique en fonction de la longueur du canal. $i=0.8A/cm^2$ , $T_e=353K$	100
Figure IV.50: Evolution de fraction molaire d'oxygène dans le canal cathodique en fonction de la longueur du canal. $i=0.8A/cm^2$ , $T_e=353K$	101
Figure IV.51: Profils des fractions molaires d'hydrogène dans la couche de diffusion de gaz anodique pour différentes porosités. $T_e = 353K$ , $i = 0,8 A/cm^2$	102
Figure IV.52: Profils des fractions molaires d'oxygène dans la couche de diffusion de gaz cathodique pour différentes porosités. $T_e = 353K$ , $i = 0,8 A/cm^2$	102

# LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1: Différents types de pile à combustible.	8
Tableau II.1: Expressions du potentiel standard idéal.	26
Tableau II.2: Expressions de surtensions de concentration.	27
Tableau II.3: Expressions des termes sources de chaleur « $S_T$ ».	28
Tableau III.1: Les termes sources des équations gouvernantes.	53
Tableau III.2: les paramètres géométriques utilisés dans le modèle.	58
Tableau III.3: Paramètres des Cinétiques de réaction.	58
Tableau III.4: Paramètres d'entrée.	59
Tableau III.5: Paramètres de transport utilisé dans la modélisation.	59
Tableau III.6: Propriétés physique du fluide utilisées dans la simulation.	60
Tableau III.7: Valeurs des conductivités des diffuseurs dans la littérature.	61
Tableau III.8: Propriétés physique des matériaux utilisées dans la simulation.	61
Tableau III.9: Conductivités thermiques effectives et chaleurs volumiques spécifiques des milieux considérés.	62

# Nomenclature

## Lettres latines

Symbole	Description	Unité
$A$	Surface d'électrode	$m^2$
$a$	Activité	–
$b$	Pente de Tafel	$\bar{V}$
$C_p$	Chaleur spécifique	$J.Kg^{-1}K^{-1}$
$D$	Coefficient de diffusion	$m^2.s^{-1}$
$E$	Potentiel standard de la réaction	$V$
$F$	Constante de Faraday	$96485 C.mol^{-1}$
$i$	Densité de courant	$A.m^{-2}$
$i_0$	Densité de courant d'échange	$A.m^{-2}$
$J$	Densité volumique	$A.m^{-3}$
$K$	Perméabilité	$m^2$
$k$	Conductivité thermique	$W.m^{-1}K^{-1}$
$M$	Masse molaire	$Kg.mol^{-1}$
$n$	Nombre d'électrons échangés lors de la réaction	–
$P$	pression	$Pa$
$R$	Constante des gaz parfait	$8.314 J.mol^{-1}K^{-1}$
$S$	Terme source	$W.m^{-3}$
$T$	Température	$K$
$V$	Potentiel électrique	$V$
$u, v$	Vitesses des gaz	$m.s^{-1}$
$x$	Abscisse	$m$
$y$	Ordonné	$m$
$Y$	Fraction molaire	–

## Lettres grecques

Symbole	Description	Unité
$\alpha$	Coefficient de transfert de charge	–
$\varepsilon$	Porosité	–
$\eta$	Surtension / chute de tension	$V$
$\lambda$	Teneur en eau de la membrane	$mol_{H_2O} / mol_{SO_3}$
$\mu$	Viscosité dynamique	$Kg.m^{-1}s^{-1}$
$\rho$	Masse volumique	$Kg.m^{-3}$
$\sigma$	Conductivité de membrane	$S.m^{-1}$
$\Delta S$	Entropie de la réaction	$J.mol^{-1}.K^{-1}$

## Indices et exposants

0	Condition de référence
a	Anode
act	Activation
c	Cathode
CL, cl	Couche de catalyseur anode ou cathode
ch	Canal
conc	Concentration
e	Entrée
eff	Effective
g	Gaz
GDL, gdl	Couche de diffusion de gaz anode ou cathode
i	Espèces
L	Limite
m	Membrane
ohm	Ohmique
PB	Plaque bipolaire

## Abréviation

PAC	Pile A Combustible
PEMFC	Proton Exchange Membrane Fuel Cell
SPEFC	Solid Polymer Electrolyte Fuel Cell
IEMFC	Ion Exchange Membrane Fuel Cell
AME	Assemblage Membrane Electrodes "Membrane Electrode Assembly"
PTFE	Poly Tetra Fluoro Ethylène

# **Introduction générale**

Actuellement, la crise énergétique et l'augmentation du niveau de pollution sont des problèmes majeurs à travers le monde. Des sources d'énergies nouvelles, renouvelables et propres doivent donc être considérées. Une nouvelle source possible est la pile à combustible (en anglais : Fuel Cell, FC), dont le principe a été découvert par Sir William Grove en 1839 [1].

Une pile à combustible utilise l'énergie chimique de l'hydrogène et de l'oxygène pour produire de l'électricité, sans pollution. Les autres produits sont simplement de l'eau pure et de la chaleur. Les scientifiques ont déjà et continuent à développer différents types de piles à combustible, caractérisés par la nature des gaz et de l'électrolyte utilisé, déterminant ainsi ses caractéristiques de fonctionnement. Un type prometteur, léger et facile à construire, est la pile à membrane électrolyte polymère (PEMFC), utilisée par la NASA dans les années 1960 dans le programme spatial Gemini [2].

En ce qui concerne notre travail, on s'intéresse à une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEM). Cette dernière est considérée actuellement comme étant la mieux adaptée pour le secteur d'automobile. Ses points forts sont une dynamique relativement rapide comparée à d'autres types de piles et une température de fonctionnement basse de 40 à 100°C ce qui facilite son intégration dans un véhicule sans isolation thermique spécifique. Tout au long de ce manuscrit, nous utiliserons la terminaison anglosaxonne « PEM » (Proton Exchange Membrane), afin de désigner la pile à membrane échangeuse de protons [3].

Cette technologie est en phase de commercialisation, mais certains points critiques freinent encore sa généralisation, notamment le coût du catalyseur, la compacité du système et la gestion de l'eau. La gestion de l'eau est un thème de recherche récurrent ces dernières années car elle est soumise à un paradoxe : l'eau doit être présente dans les différentes parties du cœur de pile, notamment dans la membrane, pour faciliter son fonctionnement, mais présente en trop grande quantité elle peut également en diminuer les performances [4].

L'objet de ce travail concerne un de ces aspects : la compréhension et la description des phénomènes de transport dans la pile. Ces phénomènes doivent en effet être maîtrisés pour permettre l'analyse des performances électriques d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC). Le but de ce travail est le développement de deux modèles

qui prennent en compte la plupart des phénomènes interagissant au sein de la cellule afin de prévoir les conditions de fonctionnement optimales pour de meilleures performances de pile PEM.

Cette thèse est présentée sous la forme de quatre chapitres :

Le premier chapitre est une présentation générale des piles à combustibles et de leurs applications. La pile PEMFC, étant l'objet de cette étude, une description détaillée de chaque élément constituant une cellule permet de préciser la composition d'un cœur de pile ainsi que les processus thermodynamiques et électrochimiques.

Dans le deuxième chapitre nous présentons l'état de l'art de la pile à combustible à membrane échangeuse de protons, les différents travaux de modélisation et les principales problématiques liées à la gestion de l'eau. Les différents phénomènes et modes liés au fonctionnement de la pile sont exposés en vue de leur modélisation.

Dans le troisième chapitre, nous présentons en détail la géométrie et les caractéristiques de la cellule a modélisé. Après une présentation de la structure de la cellule, les équations de transport de masse et de chaleur régissant le fonctionnement sont présentées et discutées. Nous avons adapté certaines équations à la procédure de calcul afin de simplifier la résolution globale du problème sans pour autant le rendre simpliste à travers ces équations adaptées au modèle, une présentation de l'outil numérique utilisé CFD FLUENT est faite.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons les résultats de modélisation dans le but d'illustrer l'influence des paramètres physiques (la température, la densité de courant, la vitesse d'entrée des gaz, la teneur en eau, la température d'entrée des gaz, la conductivité thermique) et les paramètres géométriques ( l'épaisseur de la membrane, la porosité, la longueur du canal) sur la répartition de l'eau et les réactifs et la distribution de chaleur dans le cœur de la pile (AME) et les canaux d'alimentation. Les résultats des simulations ont pu montrer l'influence de la température et la teneur en eau sur les performances électriques de la pile.

Il est nécessaire d'optimiser et d'homogénéiser la répartition d'eau, ce qui nécessite de bonnes connaissances sur les phénomènes de transport d'eau dans la membrane, car une bonne gestion de l'eau améliore la performance de la cellule, afin d'éviter les risques d'assèchement et de noyage de la membrane. La régulation proposée est humidifiée le côté

anodique et cathodique pour créer un gradient d'eau croissant, ce gradient engendre un flux diffusif de la cathode vers l'anode pour éviter le problème de l'assèchement du côté anodique.

**Références bibliographiques**

- [1] P.Thounthong, Conception d'une source hybride utilisant une pile à combustible et des supercondensateurs, *Thèse de doctorat de l'institut National polytechnique de Lorraine*, 2005.
- [2] U.S. department of energy, Hydrogen Fuel Cell Engines and Related Technologies Course Manual, disponible à: <http://www.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/>.
- [3] G. Fontès, Modélisation et caractérisation de la pile PEM pour l'étude des interactions avec les convertisseurs statiques, *Thèse de doctorat de l'institut national polytechnique de Toulouse*, 2005.
- [4] D.Conteau, Développement d'outils pour l'étude des écoulements diphasiques dans les canaux d'une pile à combustible de type PEM, *Thèse de doctorat de l'institut National polytechnique de Lorraine*, 2011.

# **Chapitre I**

**Description générale  
de la pile à combustible**

## I.1 Introduction

Il y a 160 ans, en 1839, la première pile à combustible a été inventée par Sir William Robert Grove, un professeur de philosophie expérimentale à l'Institut Royal de Londres. Depuis, il est connu comme « le Père de la pile à combustible ». Ses expériences sur l'électrolyse - l'utilisation de l'électricité pour séparer l'eau en hydrogène et oxygène – ont mené à la première mention d'un dispositif qui plus tard se nommera pile à combustible. Il a pensé qu'il était possible de renverser le procédé d'électrolyse et de produire de l'électricité en faisant réagir de l'oxygène avec de l'hydrogène. Pour vérifier cette théorie il a enfermé deux bandes de platines dans des bouteilles séparées, l'une contenant de l'hydrogène l'autre de l'oxygène. Quand ces récipients ont été immergés dans de l'acide sulfurique dilué un courant a commencé à s'établir entre les deux électrodes et de l'eau s'est formée dans les bouteilles de gaz. Pour augmenter la tension produite, il a placé plusieurs de ces dispositifs en série et a produit ce qu'il a appelé une « batterie à gaz », le précurseur de la pile à combustible moderne [1].

La pile à combustible (figure I.1) a connu une renaissance au début des années 60 lorsqu'un nouvel organisme gouvernemental des USA - the National Aeronautics and Space Administration (NASA) - rechercha comment produire de l'énergie pour les vols spatiaux. La NASA avait déjà éliminé les batteries car elles étaient trop lourdes, l'énergie solaire car source trop chère et l'énergie nucléaire car trop risquée, et cherchait une source alternative. La pile à combustible est apparue comme une solution possible, et la NASA a attribué un certain nombre de contrats de recherche pour développer cette solution. Cette recherche a mené au développement de la première membrane échangeuse de protons ou « membrane d'électrolyte polymère » [2].

Ces piles à combustible utilisaient de l'oxygène pur et de l'hydrogène pur et étaient de petite taille, chères et non disponibles dans le commerce. L'intérêt de la NASA pour les piles à combustible et la crise de l'énergie de 1973 ont relancé le développement de ce dispositif. Depuis, la recherche sur les piles à combustible a continué et des piles à combustible ont été utilisées avec succès dans une grande variété d'applications [3].

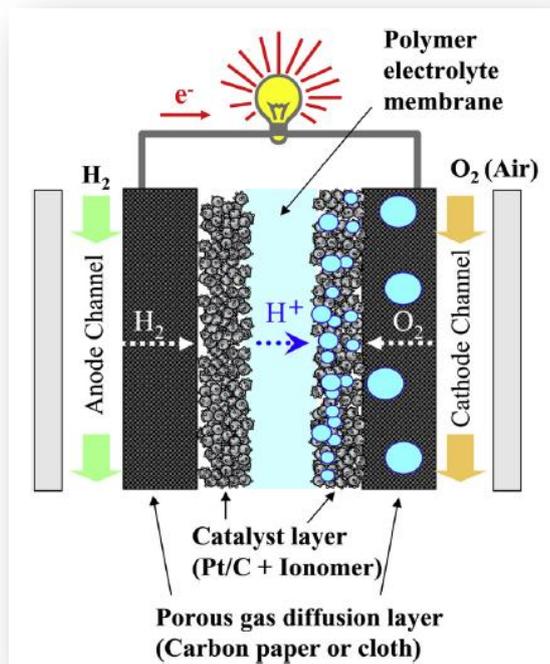


**Figure I.1 :** Pile de 300 We, refroidie à air [24].

## I.2 La pile à combustible : principe de fonctionnement

Dans une pile à combustible (Fuel Cell en anglais) les réactifs sont amenés en continu jusqu'à la surface des électrodes. Ainsi, en théorie, un tel dispositif peut fonctionner indéfiniment tant que l'on apporte le combustible (dihydrogène notamment) à l'anode et le comburant (dioxygène) à la cathode. Il existe différents types de pile à combustible se distinguant en premier lieu par la nature de l'électrolyte utilisé. Les dispositifs PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell) utilisent comme électrolyte une membrane solide échangeuse de protons communément appelée PEM. Le matériau de référence constituant les PEM est le Nafion®. Le principe d'une PEMFC est le suivant :

(Figure I.2) : la membrane PEM est prise en sandwich entre deux électrodes poreuses de carbone comportant une fine couche d'un catalyseur à base de platine sur lequel se font les réactions anodique et cathodique. En effet, ce métal est un des rares à posséder une activité catalytique suffisante en milieu acide pour la réduction de l'oxygène et l'oxydation de l'hydrogène [4 ,5].



*Figure I.2 : Principe de fonctionnement d'une pile à combustible [6].*

À l'anode, on observe l'oxydation du dihydrogène (I.1):



Les protons produits migrent jusqu'à la cathode à travers la membrane échangeuse de protons où ils sont récupérés par le dioxygène qui est alors réduit (I.2):



La réaction bilan (I.3) est alors la suivante :



La membrane conductrice protonique doit être saturée en eau, condition essentielle pour assurer une bonne conductivité ionique. Pour cette raison, une PEMFC qui a été arrêtée, et dont la membrane est par conséquent asséchée, fonctionne mieux après un certain temps d'utilisation grâce à l'eau qui est produite au niveau de la cathode (on parle d'hydratation de la membrane). Cependant, après ce temps de mise en route, l'excès d'eau doit être éliminé en continu pour éviter le phénomène de noyage (blocage du transport des gaz dans les électrodes).

### I.3 Les différents types de piles à combustible

On distingue plusieurs types de piles à combustible et on les classifie selon la nature de l'électrolyte utilisé. Celui-ci détermine en même temps la température de fonctionnement (Généralement, une pile basse température fonctionne à des températures inférieures à 200°C. Au delà, la pile est dite haute température) (Tableau I.1) [7].

I.1 PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell)

I.2 DMFC (Direct Methanol Fuel Cell)

I.3 AFC (Alkaline Fuel Cell)

I.4 PAFC (Phosphoric Acid Fuel Cell)

I.5 SOFC (Solid Oxide Fuel Cell)

I.6 MCFC (Molten Carbonate Fuel Cell)

*Tableau I.1 : Différents types de pile à combustible (ion traversant l'électrolyte, température de fonctionnement et applications typiques [8]).*

Type de pile à combustible	Ion	$T^{\circ}(\text{C})$	Applications typiques
Pile à combustible alcaline (AFC)	$OH^+$	50-200	Apollo, navette spatiale
Pile à combustible à membrane (PEMFC)	$H^+$	30-100	Véhicule, stationnaire
Piles à combustible au méthanol direct (DMFC)	$H^+$	20-90	Portable
Pile à combustible à acide phosphorique (PAFC)	$H^+$	220	Stationnaire
Pile à combustible à carbonate fondu (MCFC)	$CO_3^{-2}$	650	Stationnaire
Pile à combustible à oxyde solide (SOFC)	$O^{-2}$	500-1000	Stationnaire, système auxiliaire de puissance (Auxiliary Power Unit)

### I.4 Combustible

L'hydrogène pur est généralement le combustible préféré car c'est celui qui permet les plus fortes densités de puissance par surface active de pile [9]. L'hydrogène est l'élément le plus abondant dans l'univers. Il compose 75% de la masse de toute la matière dans les étoiles

et les galaxies. Un atome d'hydrogène a seulement un proton et un électron. Cependant l'hydrogène comme gaz ( $H_2$ ) n'existe pas naturellement sur terre et se présente sous formes composées. Combiné avec l'oxygène, c'est l'eau ( $H_2O$ ). Combiné avec le carbone, il forme les composés organiques tels que le méthane ( $CH_4$ ), le charbon ou le pétrole.

La plupart de l'énergie que nous utilisons aujourd'hui vient des carburants fossiles. Seulement sept pour cent viennent des sources d'énergie renouvelable. Dans une optique de raréfaction des carburants fossiles, l'hydrogène apparaît comme un vecteur énergétique prometteur. Puisque le gaz d'hydrogène n'existe pas naturellement sur terre, il faut le produire [10].

Il y a plusieurs manières de faire cela. Si l'hydrogène est produit à partir de l'électrolyse de l'eau, l'électrolyseur étant alimenté à partir d'une source d'énergie renouvelable (panneau solaire, éolienne ou turbine hydroélectrique), il n'y aura pas d'émissions de dioxyde de carbone [11]. Le développement des piles à combustible conduira à différents modes de production liés aux méthodes locales de production énergétique.

En raison de l'abondance de gaz naturel, de la disponibilité du méthanol et du propane, et du manque d'une infrastructure de production et de distribution de l'hydrogène, on prévoit que les carburants hydrocarbures seront les carburants dominants pour les applications stationnaires de piles à combustible. Tant que ces carburants sont disponibles à faible coût, le reformage hydrocarbure est la méthode la plus simple et la plus efficace pour produire de l'hydrogène [12].

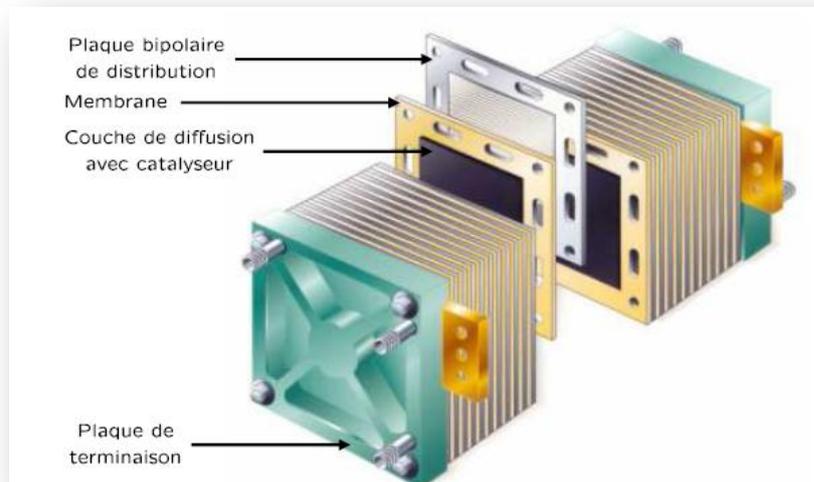
### **1.5 Les différentes applications des piles à combustible**

Les espoirs de commercialisation rapide des piles à combustibles sont fondés sur les différents avantages présentés par cette technologie pour la production délocalisée d'électricité [13].

L'ensemble des piles à combustibles présentent des rendements électriques élevés : de 40% à 70%. Cependant, la prise en compte du système dans son intégralité peut parfois réduire considérablement le rendement électrique global.

Le principe d'assemblage des piles permet une construction modulaire (appelé stack figure I.3). Pour obtenir des puissances électriques plus importantes, deux voies sont exploitables :

- augmenter la surface de la cellule pour intensifier les échanges électroniques et donc augmenter l'intensité délivrée par chaque cellule,
- ou connecter plusieurs cellules en série afin d'accroître la tension totale délivrée par l'empilement.



*Figure I.3 : Structure du stack [6].*

Ces techniques d'assemblage, particulièrement adaptées aux PEMFC, simples de principe, offrent une large gamme d'utilisation : de 1W pour les petites applications jusqu'à plusieurs centaines de kW, pour les applications importantes. Nous avons regroupé les domaines d'application en trois classes : applications stationnaires, automobiles et portables.

### **I.5.1 Applications stationnaires**

Parmi les applications stationnaires, il faut distinguer la production centralisée d'électricité pour l'industrie et la production décentralisée, avec en particulier les applications stationnaires de faibles puissances et la cogénération de moyennes puissances pour le résidentiel ou pour des postes de secours.

En ce qui concerne la production centralisée d'électricité, certaines études envisagent de remplacer les centrales thermiques trop polluantes par des systèmes de piles à combustibles. Cependant, les installations actuelles ne dépassent que rarement la puissance de 1 MW. Pour ces applications importantes, la cogénération, qui permet une valorisation de la chaleur produite, est souvent utilisée afin d'améliorer le rendement électrique global de l'installation.

Pour la production décentralisée, les puissances types sont de l'ordre du kW. En plus de l'électricité, la chaleur produite par les piles à combustibles peut être utilisée pour la production d'eau chaude, le chauffage ou la réfrigération... Ainsi, ces dispositifs sont particulièrement adaptés aux applications domestiques et industrielles légères. De plus, la production délocalisée permet d'envisager ces applications pour des lieux isolés où l'acheminement de l'électricité peut être difficile et très coûteux. Enfin, les systèmes de secours ou de sécurité requérant une grande fiabilité peuvent être alimentés par une pile à combustible indépendamment du réseau électrique.

Après les premiers essais réalisés avec des piles à acide phosphorique (PAFC) dans les années 1990, le marché s'est orienté vers les piles MCFC, SOFC et PEMFC. Les piles hautes températures, c'est-à-dire les MCFC et SOFC, sont plus particulièrement adaptées aux applications de moyennes ou fortes puissances. Leur température de fonctionnement élevée (supérieure à 600 °C) permet une conversion de la chaleur produite en électricité à l'aide d'une turbine à vapeur ou à gaz. On peut les opposer aux PEMFC dont les faibles températures de fonctionnement rendent difficile la valorisation de cette énergie. Ce type de pile ne présente qu'un intérêt réduit pour les applications en cogénération (électricité et chaleur) mais peut assurer l'alimentation en électricité de postes de secours et de sécurité.

### **I.5.2 Applications automobile**

Pour la traction automobile, seules les PEMFC sont pressenties. Leur température de fonctionnement relativement faible (proche de 80 °C) permet d'assurer une plus grande souplesse de fonctionnement. La montée en température de la pile est plus facile et plus rapide pour les piles << basses températures >> que pour les piles << hautes températures >> nécessitant un système de préchauffe important. Un démarrage rapide << à froid >> est alors envisageable.

Au niveau environnemental, les nuisances sonores sont faibles car les applications envisagées ne possèdent pas de pièces mobiles. Seuls les différents auxiliaires du système peuvent être source de bruit. Il faut également noter que les produits de réaction des piles sont non polluants et par conséquent les émissions de gaz nocifs de la pile seule sont nulles. Cependant, il faut également considérer la fabrication de combustible. L'utilisation d'un reformeur produit des émissions de CO<sub>2</sub>, de particules et de NO<sub>x</sub> non nulles mais souvent

inférieures à celles des véhicules à moteur thermique. Remarquons toutefois que les émissions de gaz polluants varient fortement avec le procédé de production de l'hydrogène.

Les piles à combustibles peuvent être utilisées en complément d'une motorisation quelconque pour l'alimentation en électricité des appareils de bords (climatisation, appareils électroniques, confort...) en tant qu'APU (Auxiliary Power Unit). Pour ces applications embarquées, les PEMFC sont en concurrence avec les piles SOFC et AFC.

### I.5.3 Application portable

Le marché des appareils électroniques portatifs (téléphones, ordinateurs, caméscopes, agendas électroniques...) en constante croissance peut également être conquis par les piles à combustibles. Ces appareils, d'une gamme de puissance comprise entre 0,1 et 10 W, souffrent actuellement de leur faible autonomie. En revanche, avec une pile à combustible, l'autonomie ne dépend que de la taille du réservoir de carburant (hydrogène ou méthanol). La grande modularité des piles permet de créer des piles de petites puissances ne comportant que quelques cellules de faibles surfaces. Toutefois, la miniaturisation du système pour obtenir des puissances inférieures au W semble avoir ses limites. La création de micro pile passe par la miniaturisation de l'ensemble des composants [14, 15].

### I.6 Construction de pile à combustible de type PEM

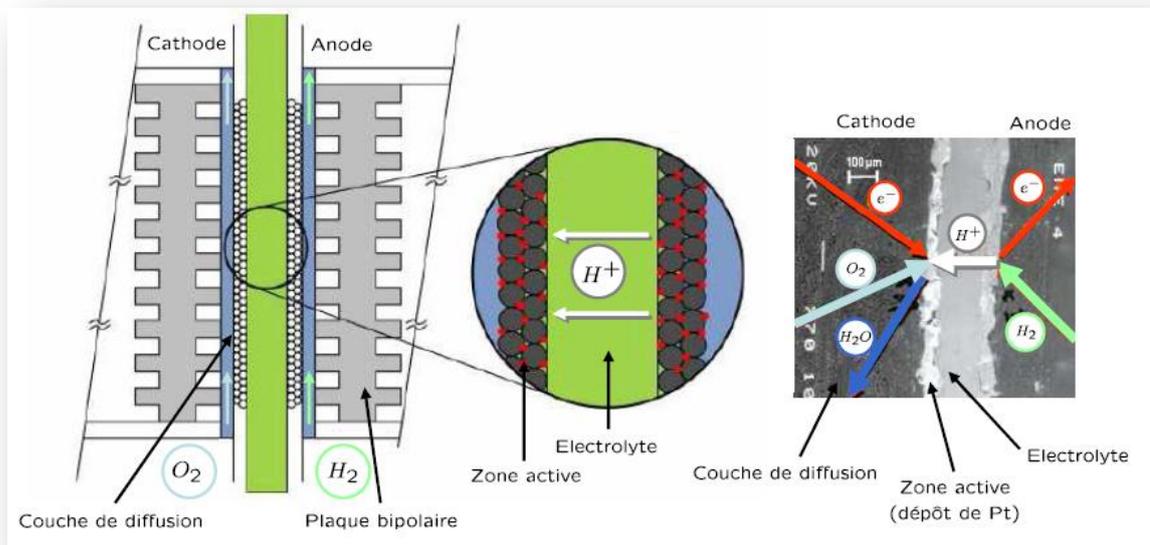
La technologie PEMFC concentre actuellement le plus gros effort de recherche et développement dans le monde. Les objectifs sont d'améliorer les performances (rendement, fiabilité, durée de vie, compacité et masse) et de diminuer le coût des composants critiques (platine par exemple). Le choix s'est porté sur cette technologie pour plusieurs raisons [16]. La densité de puissance des PEMFC est élevée : outre un rendement pouvant aller jusque 60% pour la pile et 40% pour le système, elles ont des densités de puissance maximales de 1 W/cm<sup>2</sup>. Leur température de fonctionnement est basse (<100°C), ce qui laisse envisager une technologie simplifiée pour assurer un démarrage rapide. Elles sont insensibles à la présence de CO<sub>2</sub> dans l'air contrairement à la filière alcaline. L'électrolyte est solide, ce qui présente plusieurs avantages. Il n'y a pas de liquide corrosif, donc on peut envisager une durée de vie sensiblement supérieure aux filières à électrolyte liquide. De plus, la structure solide offre une compacité des empilements et une flexibilité par rapport aux géométries envisagées. Il ne faut cependant pas oublier les inconvénients majeurs des PEMFC. Les matériaux actuellement

utilisés (cellule, membranes, catalyseur) sont très coûteux. De plus, il y a une intolérance de l'anode au CO et la gestion de l'eau et de la chaleur est très problématique.

Nous allons maintenant regarder de plus près les différents composants de la pile.

### Assemblage-membrane-électrodes

L'assemblage membrane-électrodes est le cœur de la pile à combustible (en anglais MEA). Il se compose d'une membrane d'électrolyte de polymère solide serrée entre deux électrodes de carbone poreuses. Un catalyseur à base de platine est intégré entre la membrane et les électrodes. Les électrodes incluent souvent des joints améliorant le contact avec les composants adjacents et évitant les fuites. A titre d'exemple, la figure (I.4) présente l'assemblage-membrane-électrodes (AME).



*Figure I.4 : Constitution d'une AME [17].*

#### I.6.1 Electrodes

Les électrodes sont le lieu des réactions d'oxydoréduction. Pour que la synthèse de l'eau ait lieu, les protons (en solution dans l'eau), l'oxygène (gaz dissous dans l'eau) et le platine (catalyseur solide) doivent simultanément être présents sur le site réactionnel : il s'agit du triple contact (gaz, électrolyte, catalyseur). Pour favoriser la création du triple contact, les électrodes doivent présenter les caractéristiques suivantes :

- Etre poreuses pour permettre la diffusion des gaz jusqu'aux sites de réaction. Elles sont généralement en feutre de carbone ou en papier carbone.

- Etre imprégnées d'une pâte constituée de catalyseur contenant du carbone platiné, sur la face en contact avec l'électrolyte.

La partie de l'électrode imprégnée de pâte constitue la zone active. La partie non imprégnée constitue la zone diffusionnelle.

La création du triple contact est une difficulté majeure de la conception des piles à combustible PEM si l'on veut minimiser la quantité de platine utilisée et donc le prix du stack (rappelons que le platine est un métal précieux !). En outre, les électrodes doivent :

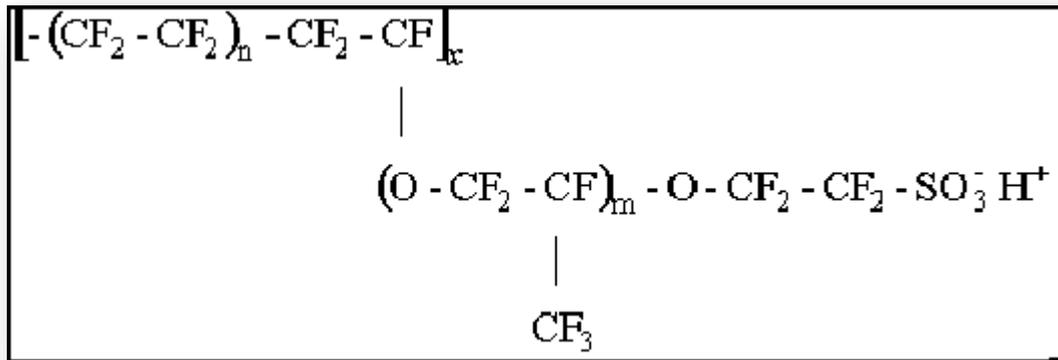
- Présenter un caractère hydrophobe pour faciliter l'évacuation de l'eau. Un agent hydrophobe de type PTFE ou Téflon est ajouté. La quantité de ce produit diffère entre cathode et anode : en effet, la concentration en PTFE pourra être plus faible à l'anode qu'à la cathode pour permettre une meilleure hydratation. A la cathode, l'accès au gaz doit être privilégié. De même, la quantité est généralement plus faible dans la zone active que dans la zone diffusionnelle. En effet, cet agent hydrophobe n'est pas nécessaire pour la diffusion des gaz dans des couches actives très fines, et peut même être nuisible en se substituant à l'électrolyte sur une partie des sites réactifs.

- Etre de bonnes conductrices électroniques (collecte d'électrons et conduction vers les plaques bipolaires).

- Etre flexibles pour augmenter la surface de contact avec l'électrolyte.

### I.6.2 Electrolyte

Les membranes constituent l'électrolyte de la pile à combustible et assurent la conduction protonique de l'anode vers la cathode sous l'influence d'un champ électrique. Elles servent également de séparateur des réactifs et d'isolant électronique : sa perméabilité aux gaz doit donc être faible [18]. La membrane la plus répandue est le Nafion®, commercialisée par Dupont de Nemours, dont la formule est donnée dans la figure (I.5).



*Figure I.5: Formule chimique du Nafion® [18].*

Le Nafion® est une membrane PFSI (ionomères perfluorosulfonés). Elle est constituée d'un squelette de PTFE sur lequel sont greffées des chaînes perfluorosulfonées. Le Nafion® présente des analogies avec le Téflon : il est stable thermiquement et inerte chimiquement, mais il présente un fort caractère hydrophile dû aux groupements sulfoniques terminaux des chaînes pendantes. Un des inconvénients majeur des membranes perfluorosulfonées est leur prix. L'avenir commercial des piles passe par une réduction du prix des membranes d'un facteur 10 ou 20 [19]. Cela passe par le développement de nouvelles membranes: les membranes hydrocarbonées sulfonées (remplacement du groupement CF<sub>2</sub> par CH) ou les polymères thermostables (type polyimide ou polybenzimidazole) sur lesquels sont rajoutés des groupes sulfonés.

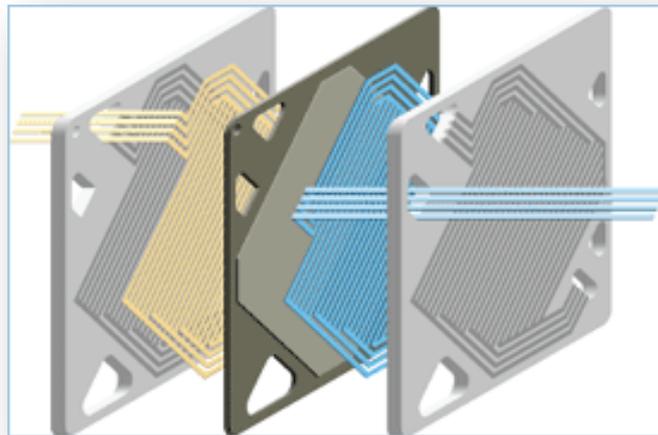
L'autre inconvénient est leur température d'utilisation limitée en raison de la nécessité d'être totalement hydratée pour présenter des propriétés de conduction protonique satisfaisantes. En effet, pour des températures supérieures à 90°C, le Nafion® retient mal l'eau. Des recherches sont faites pour augmenter les températures de fonctionnement au dessus de 120°C, car cela permettrait d'augmenter l'activité des catalyseurs en platine des électrodes, d'améliorer le rendement thermique du système en permettant d'exploiter la chaleur des gaz en sortie de pile comme avec un système de cogénération et faciliterait le refroidissement, ce qui pose un réel problème pour les applications transport. Une solution consiste à développer des membranes qui retiennent plus d'eau, en rajoutant un composé inorganique dans le Nafion® par exemple. Des études sont également menées pour développer des membranes dont la conduction protonique ne nécessiterait pas la présence d'eau (utilisation de composés à base de phosphate), mais également des électrolytes à base de liquides ioniques.

### I.6.3 Plaque bipolaire

Les plaques bipolaires dirigent le carburant et l'oxydant des deux côtés opposés des assemblages membrane-électrodes. Chaque plaque contient des canaux de conception sinueuse qui maximise la répartition des gaz (figure I.6). La forme des canaux de gaz est un paramètre important pour la production uniforme d'électricité, un fonctionnement stable des cellules et la gestion de l'eau. Des conceptions différentes des plaques bipolaires sont adaptées aux diverses applications de pile à combustible.

Chaque plaque doit être électriquement conductrice pour que le courant issu de la réaction électrochimique puisse passer d'une cellule à l'autre, et finalement aux bornes électriques. Les plaques sont typiquement faites de graphite les canaux étaient usinés ou pressés. Le graphite est le matériau préféré en raison de sa conductivité excellente, sa neutralité et son coût relativement bas.

Les plaques de refroidissement placées entre les cellules ou les groupe de cellules sont de conception similaire, les canaux de refroidissement étant conçus pour maximiser les échanges thermiques. Les plaques bipolaires de refroidissement comportent les entrées et sorties de fluides et assurent la liaison avec les plaques voisines. Des joints entre les plaques s'assurent que les flux de carburant, d'oxydant et de liquide de refroidissement ne se mélangent pas.



*Figure I.6: Plaques bipolaire de pile PEM [7].*

## I.7 Processus thermodynamiques et électrochimiques

### I.7.1 Les performances idéales

La première étape dans la compréhension du fonctionnement d'une pile à combustible est de définir ses performances idéales. Celles-ci dépendent des réactions électrochimiques qui ont lieu entre les différents combustibles et l'oxygène et elles sont définies par le potentiel de Nernst, représentant la différence de potentiel théorique entre le potentiel de la cathode et celui de l'anode. L'équation de Nernst fournit une relation entre le potentiel standard idéal ( $E^0$ ) et le potentiel idéal à l'équilibre pour d'autres conditions de températures et de pression.

$$E = E^0 - \frac{RT}{2F} \ln \left[ \prod_i a_i^{\gamma_i} \right] \quad (\text{I.4})$$

Pour des gaz parfaits, l'activité des gaz est égale à la pression partielle et l'activité de l'eau vaut 1, d'où

$$E = E^0 - \frac{RT}{nF} \ln \left[ \prod_i \left( \frac{P_i}{P_0} \right)^{\gamma_i} \right] \quad (\text{I.5})$$

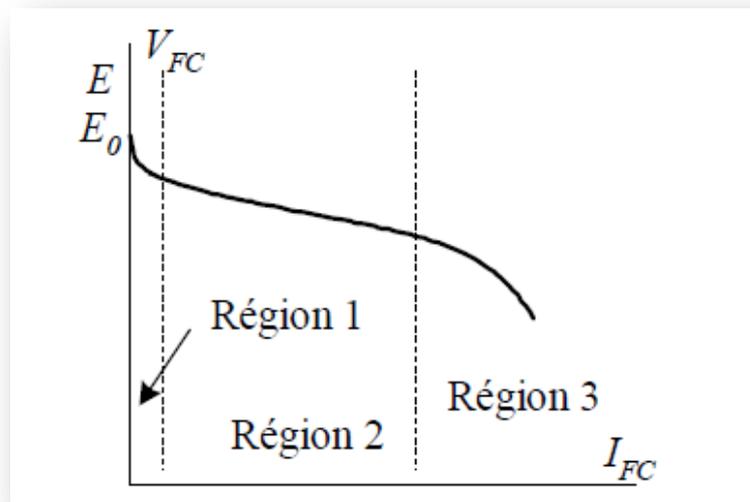
Pour une pile à combustible hydrogène/air, l'équation de Nernst est :

$$E = E^0 - \frac{RT}{2F} \left[ \ln \left( \frac{P_{H_2}}{P_{H_2O}} \right) + \ln \left( \sqrt{P_{O_2}} \right) \right] \quad (\text{I.6})$$

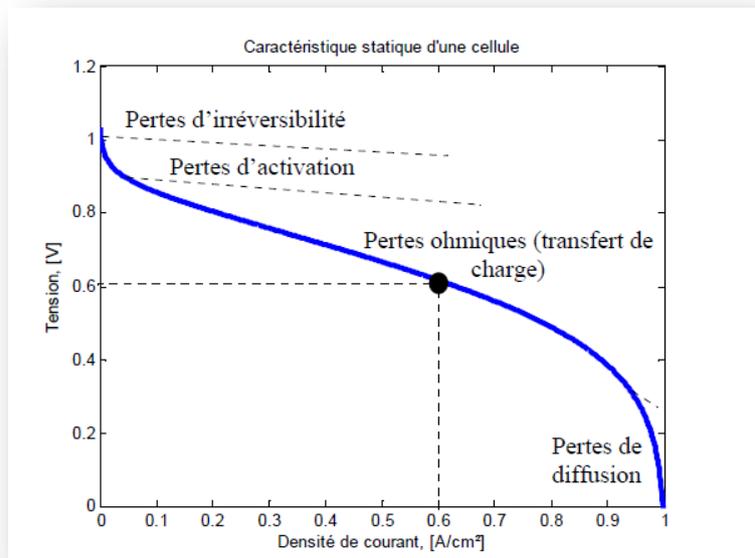
Le potentiel idéal d'une pile peut donc être augmenté en augmentant la pression des réactifs. Pour une pile à hydrogène, la différence de potentiel théorique dans les conditions standard  $E^0$  est de 1,23V en circuit ouvert lorsque l'eau est produite sous forme liquide et de 1,18V pour la formation de vapeur d'eau.

### I.7.2 Les performances actuelles

Comparativement à un moteur à combustion interne, les piles à combustible ne sont pas soumises aux limitations du cycle de Carnot, leur rendement énergétique théorique est donc plus élevé. Cependant, la tension utilisable lorsque la pile est parcourue par un courant, s'éloigne de la valeur idéale à cause des pertes irréversibles montrées dans les figures (I.7, 8). Ces pertes, souvent appelées polarisation ou surtensions proviennent principalement de trois sources: la polarisation d'activation, la polarisation ohmique et la polarisation de concentration.



**Figure I.7:** Caractéristique statique de pile PEM [7].



**Figure I.8:** Courbe de polarisation de la PAC [20].

La tension  $U$  aux bornes de la pile est donc différente du potentiel théorique :

$$U = E - \text{pertes} \quad (\text{I.7})$$

-La chute de tension observée dans la zone 1 à faible densité de courant correspond aux surtensions d'activation des réactions électrochimiques. Elles traduisent la cinétique des réactions. Dans le cas de la PEMFC, les caractéristiques (fonctionnement à basse température, électrode volumique) induisent une cinétique lente lors de la réduction de l'oxygène. Cette limitation est fonction de la nature et de la surface du catalyseur.

La relation entre les pertes d'activation et la densité de courant est donnée par l'équation de Tafel [21]:

$$V_{act} = A \ln \left( \frac{I_{FC} + i_n}{i_0} \right) \quad (I.8)$$

où  $I_{FC}$  est le courant délivré par la pile à combustible,  $i_0$  le courant d'échange caractérisant à vide les échanges électrode-électrolyte,  $i_n$  le courant interne permettant de tenir compte d'une éventuelle traversée de gaz et/ou d'électrons à travers l'électrolyte et  $A$  la pente de la droite de Tafel.

- La zone 2 présente une diminution linéaire caractéristique des pertes ohmiques dues au transport des protons et des électrons. Toutes les résistances des matériaux et interfaces constituant l'assemblage électrode-électrolyte mais aussi la cellule test, interviennent dans la chute ohmique, avec toutefois une prédominance de la résistance de l'électrolyte.

La chute de tension correspondante s'écrit [22]:

$$V_{ohm} = R_m (I_{FC} + i_n) \quad (I.9)$$

Où  $R_m$  est la résistance totale de la pile à combustible.

- La zone 3 correspond aux problèmes d'accès des gaz aux sites catalytiques c'est à dire aux problèmes de diffusion et de noyage des électrodes. Les pertes apparaissent à fortes densités de courant.

Cette chute de tension s'exprime en fonction d'un courant limite  $i_L$ , pour lequel tout le combustible étant utilisé sa pression tomberait à zéro, et d'une constante  $B$  appelée constante de transport ou de transfert de masse [23]:

$$V_{conc} = -B \ln \left( 1 - \frac{I_{FC} + i_n}{i_L} \right) \quad (I.10)$$

## I.8 Conclusion

Les PEMFC présentent des atouts indéniables, un électrolyte solide, un rendement pouvant aller jusqu'à 60% pour la pile et 40% pour le système, une bonne dynamique et une température de fonctionnement basse. Certains inconvénients sont liés à cette faible température comme la forte sensibilité au monoxyde de carbone. L'hydratation des gaz et de manière générale la gestion de l'eau constitue un défi qui prend toute son importance aux très faibles températures (en dessous de zéro degré Celsius).

Indépendamment du problème de disponibilité et d'alimentation en hydrogène, de nombreux points restent à traiter (le coût, la masse et le volume, la durée de vie, La gestion thermique, la gestion fluidique et la gestion de l'eau).

Pour établir un modèle capable de prendre en compte les phénomènes physiques agissant dans les différents milieux de la pile pour déterminer avec la meilleure précision, un état de l'art des travaux de modélisation des différents phénomènes de transport dans les différentes zones de la pile est l'objectif du chapitre suivant.

**I.9 Références bibliographiques**

- [1] S. Thomas et M. Zalbowitz, Fuel Cells – Green Power, prepared for the U.S. Department of Energy, under contract W-7405- ENG-36, *disponible à: [http://education.lanl.gov/resources/fuel\\_cells/fuelcells.pdf](http://education.lanl.gov/resources/fuel_cells/fuelcells.pdf)*.
- [2] B. Cook, An introduction to fuel cells and hydrogen technology, *Engineering Science and Education Journal*, vol. 11, n° 6, pp. 205- 216, décembre 2002.
- [3] M. A. J. Cropper, S. Geiger et D. M. Jollie, Fuel cells: a survey of current developments, *Journal of Power Sources*, vol. 131, n° 1-2, pp. 57-61, mai 2004.
- [4] K.Kordesch et G.Simader. Fuel Cells and Their Applications. *VCH, Weinheim. ISBN: 3-527-28579-2*, 1996.
- [5] J.Larminie et A.Dicks. Fuel Cell Systems. *Explained. Wiley, Chichester, ISBN: 0-471-49026-1*, 2000.
- [6] S.Tsushima, S.Hirai, In situ diagnostics for water transport in proton exchange membrane fuel cells, *Progress in Energy and Combustion Science*, 37: 204-220, 2011.
- [7] P. Thouthong, Conception d'une Source Hybride Utilisant une Pile à Combustible et des Supercondensateurs, *Thèse de doctorat de l'INPL*, 2005.
- [8] J. Larminie et A. Dicks, Fuel Cell Systems Explained *John Wiley and Sons, Inc., New York*, 2003.
- [9] C. Gondrand, Analyse des transferts d'eau dans les micropiles à combustible, *These de doctorat de l'INPT*, 2006.
- [10] C. J. Andrews et S. A. Weiner, Visions of hydrogen future, *IEEE Power & Energy Magazine*, pp. 26-34, mars-avril, 2004.
- [11] J. H. Gurney, Building a case for the hydrogen economy, *IEEE Power & Energy Magazine*, pp. 35-39, mars-avril, 2004.
- [12] A. T-Raissi et D. L. Block, Hydrogen: automotive fuel of the future, *IEEE Power & Energy Magazine*, pp. 40-45, novembre-décembre, 2004.
- [13] Anne-Sophie Corbeau. Les piles à combustibles. [http : //www.anso.freesurf.fr/liens.html](http://www.anso.freesurf.fr/liens.html), Décembre, 2003.
- [14] C. Roux, D. Marsacq, J. Y. Laurent, C. Nayose, D. Bloch, and J. Arroyo, Application of electrochemical and microelectronic processes to mems fuel cell conception, In France-Deutschland Fuel Cell Conference, Octobre, 2002.
- [15] J. P. Meyer and H. L. Maynard, Design considerations for miniaturized pem fuel cells, *Journal of Power Sources*, 109:76-88, 2002.
- [16] S.Escribano, Optimisation de nouvelles électrodes pour piles à combustible hydrogène/oxygène à membrane électrolyte polymère, *Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble*, 1995.
- [17] N. Romani, Modélisation et Commande du Système d'Alimentation en Air pour le Module de Puissance d'un Véhicule à Pile à Combustible avec Reformeur Embarqué, *Thèse effectuée au sein du Département d'Automatique de Supélec, Paris*, 2007.
- [18] Kreuer (KD), Handbook of Fuel cells – Fundamentals, Technology and Applications, *Ch. 33, Wolf Vielstich, Arnold Lamm, Hubert A. Gasteiger*, 2003.

- [19] Marchand (M), Gestion de l'eau dans les piles à combustible, *Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble*, 1998.
- [20] D. B. Viet, Conception d'une interface d'électronique de puissance pour Pile à Combustible, *Thèse de doctorat au Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble*, 2005.
- [21] J. H. Lee, T. R. Lalk et A. J. Appleby, Modeling electrochemical performance in large scale proton exchange membrane fuel cell stacks, *Journal of Power Sources*, vol. 70, n° 2, pp. 258-268, février, 1998.
- [22] M. T. Iqbal, Modeling and control of a wind fuel cell hybrid energy system, *Renewable Energy*, vol. 28, n° 2, pp. 223-237, février, 2003.
- [23] J. M. Corrêa, F.A. Farret, L.N. Canha et M. Godoy Simões, An electrochemical based fuel cell model suitable for electrical engineering automation approach, *IEEE Trans. On Industrial Electronics*, vol. 51, n° 5, pp. 1103 - 1112, octobre, 2004.
- [24] T. Alleau, La pile PEMFC, *Mémento de l'Hydrogène FICHE 5.2.2*, 2007.

# **Chapitre II**

**Modélisation des piles PEM :  
État de l'art dans la littérature**

## II.1 Introduction

Le but de ce chapitre est de présenter les connaissances nécessaires sur la pile à combustible (PAC) afin de préciser les notions structurelles de notre principal thème d'étude. Nous commençons par une description sur les phénomènes physico-chimiques au sein d'une pile à combustible PEM. Les principales problématiques liées à la gestion de l'eau sont exposés. Enfin, un état de l'art des travaux concernant la modélisation est présenté afin de dégager aussi clairement que possible notre contribution.

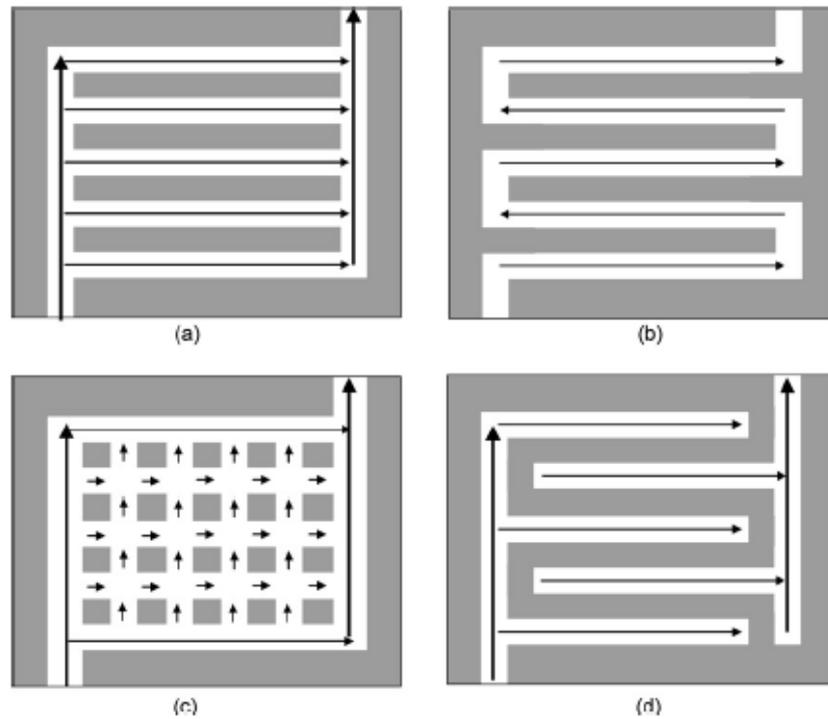
## II.2 Phénomènes physico-chimiques au sein d'une pile PEM

Bien que le principe de fonctionnement des PAC soit simple, les phénomènes qui se produisent dans le cœur de pile sont nombreux. Nous avons les phénomènes fluidiques, électrochimiques, thermiques ainsi que le transport d'eau. L'interaction entre ces différents phénomènes fortement couplés est importante pour le bon fonctionnement du système.

### II.2.1 Phénomènes fluidiques

- **Les pertes de charge :** Les gaz injectés dans les canaux de distribution des plaques bipolaires, subissent une perte de charge se traduisant par une chute de pression à l'intérieur des canaux. Cette perte de charge dépend principalement de la conception géométrique des canaux. La géométrie des canaux est particulièrement importante pour assurer une répartition homogène des gaz sur toute la surface de l'électrode tout en minimisant les pertes de charge. Ainsi, la pression partielle des gaz est généralement inférieure à la pression totale des gaz réglée à l'entrée de la pile. Néanmoins, ces phénomènes hydrauliques n'ont pas été pris en compte dans cette thèse : les pertes de charge sont notamment supposées faibles et donc négligées.

Ainsi, depuis quelques années les motifs les plus courants représentés en Figure (II.1) côtoient d'autres motifs plus ou moins complexes censés améliorer les performances de piles en évacuant au mieux l'eau, liquide ou non. Quel que soit le motif sélectionné, un compromis doit être réalisé entre une perte de charge suffisante pour entraîner l'eau liquide [1] et une vitesse de gaz pas trop grande qui pourrait entraîner un assèchement de la membrane.



**Figure. II.1 :** Motifs de canaux les plus employés : a) Canaux parallèle, b) Canaux serpentins, c) Canaux pin, d) Canaux interdigué [2].

- **La diffusion des gaz :** Lors de leur circulation dans les canaux, les gaz se diffusent vers les électrodes à travers les couches de diffusion en suivant la première loi de Fick :

$$J = -D \overrightarrow{\text{grad}C} \quad (\text{II.1})$$

$J$  est le flux de diffusion des gaz,  $C$  étant la concentration et  $D$  le coefficient de diffusion des gaz. Cette loi stipule que le flux de matière est localement contrôlé par le gradient de la concentration. Ce comportement tend à adoucir toutes les variations de la concentration  $C$  car les particules se déplacent toujours d'un lieu de haute concentration vers un lieu de plus basse concentration.

Si la quantité de matière est globalement conservée, on peut écrire la loi de conservation suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \overrightarrow{\text{grad}J} = 0 \quad (\text{II.2})$$

En introduisant la première loi de Fick dans cette équation, on obtient l'équation de diffusion, dite aussi la deuxième loi de Fick :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \operatorname{div}(\overline{\operatorname{grad} C}) \quad (\text{II.3})$$

A une dimension, l'équation de diffusion est simplement donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (\text{II.4})$$

Par ailleurs, le principe de la loi fondamentale de la thermodynamique s'applique aux gaz qui sont supposés parfaits. Ce principe donne la relation entre la pression du gaz P, son volume V, sa température T et le nombre de moles n :

$$PV = nRT \quad (\text{II.5})$$

Cette relation peut aussi s'écrire en fonction de la concentration C du gaz sous la forme :

$$P = \frac{nRT}{V} = CRT \quad (\text{II.6})$$

### II.2.2 Phénomènes électrochimiques

Les gaz qui traversent la couche de diffusion atteignent une zone appelée active ou de catalyse. C'est dans cette zone que le mécanisme réactionnel des deux demi-réactions d'oxydoréduction s'applique réalisant ainsi la transformation de l'énergie chimique en énergie électrique.

Lors de cette transformation, des pertes dues à la cinétique chimique des réactions apparaissent. La condition nécessaire au mécanisme réactionnel est la mise en présence au même point du gaz réactif, du proton, des électrons et du catalyseur. Ce lieu est appelé le lieu du "triple contact" ou "triple phase". La couche active de l'électrode présente peu de caractère hydrophobe. Elle est généralement considérée comme noyée [3]. Ainsi, il provoque une résistance à la progression du gaz comme dans la couche de diffusion. Par conséquent, le potentiel électrochimique théorique E donné par l'équation (II.7) subit une chute de tension causée par les pertes électrochimiques. Ces dernières regroupent les pertes ohmiques ainsi que celles d'activation et de concentration (voir Chapitre I):

$$E = E^0 + \frac{RT}{nF} \ln \left( \frac{P_{H_2} \sqrt{P_{O_2}}}{P_{H_2O}} \right) \quad (\text{II.7})$$

**Tableau II.1:** Expressions du potentiel standard idéal.

potentiel standard idéal	Références
$E^0 = 1,1 \text{ V}$	[4, 5]
$E^0 = 0,0025T + 0,2329$	[6, 7]
$E^0 = 1,23 - 0,9 \times 10^{-3} (T - 298) + 2,3 \frac{RT}{4F} (P_{H_2}^2 P_{O_2})$	[8, 9, 10]
$E^0 = 1,229 - 0,83 \times 10^{-3} (T - 298,15) + 4,31 \times 10^{-5} T [\ln P_{H_2} + \ln P_{O_2}]$	[11, 12, 13]

**– La perte d'activation:**

Son expression est donnée par la loi de Tafel, qui montre une relation logarithmique avec la densité de courant  $i$  :

$$V_{act} = \frac{RT}{\alpha n F} \ln \left( \frac{i}{i_0} \right) \quad (\text{II.8})$$

Où  $i_0$  est la densité de courant d'échange qui représente la valeur minimale fournie par la pile ( $i > i_0$ ).

**-Les pertes ohmiques :**

En vertu de la loi d'Ohm, leur expression est donnée par [8, 14] :

$$V_{ohm} = R i \quad (\text{II.9})$$

Où  $R$  est la résistance ohmique équivalente. Elle est égale à la somme des résistances électriques de l'anode  $R_a$ , de la cathode  $R_c$  et de la membrane  $R_m$  ( $R = R_a + R_c + R_m$ ).

**– La perte de concentration :**

Les surtensions de concentrations se traduisent alors par l'apparition d'un courant limite ou les réactifs ne sont plus suffisants pour alimenter la réaction. Pour cette valeur de courant, le potentiel de l'électrode s'annule rapidement.

La perte de concentration est donnée par l'équation suivante :

$$V_{conc} = \frac{RT}{\alpha n F} \ln \left( 1 - \frac{i}{i_L} \right) \quad (\text{II.10})$$

Où  $i_L$  est la densité de courant limite. Elle représente la valeur maximale que la pile peut fournir avant de subir une chute de tension lors d'une saturation de la concentration côté cathode.

Les expressions des surtensions de concentration sont regroupées dans le tableau II.2.

**Tableau II.2:** Expressions de surtensions de concentration

Surtensions de concentration	Références
$V_{conc,c} = \frac{RT}{2F} \ln \left( 1 - \frac{i_c}{i_{L,c}} \right) , i_{L,c} = \frac{2FD_{O_2}C_{O_2}}{\delta_{GDL}}$	[11, 12, 13]
$V_{conc,a} = \frac{RT}{2F} \ln \left( 1 - \frac{i_a}{i_{L,a}} \right) , i_{L,a} = \frac{2FD_{H_2}C_{H_2}}{\delta_{GDL}}$	

### II.2.3 Phénomènes thermiques

Les phénomènes thermiques jouent un rôle important dans les PAC. En effet, la température est un paramètre déterminant pour les réactions chimiques : plus la température est grande plus la cinétique des réactions est grande. L'électrolyte doit être assez chaud pour être bon conducteur ionique. Cependant, pour assurer un fonctionnement correct de la pile, il est nécessaire de travailler en dessous d'une certaine température (selon le type de pile) afin d'éviter un assèchement de la membrane.

La source principale de la chaleur est la réaction exothermique entre l'hydrogène et l'oxygène. D'autres éléments participent à l'échauffement interne de la pile comme le courant électrique qui réchauffe les composants conducteurs de la cellule et le degré d'humidification de la membrane électrolytique [15].

La chaleur produite au niveau des couches actives se décompose en un flux de chaleur traversant les électrodes et un autre flux traversant la membrane par les phénomènes de conduction et de transport de matière. Une quantité importante de la chaleur produite est évacuée au niveau de chaque composant (plaque bipolaire, couche de diffusion, électrode, membrane) par les phénomènes de convection et d'évaporation de l'eau. Le flux de chaleur évacué est influencé aussi bien par la température extérieure de refroidissement que par le débit de l'eau produite ou injectée.

Les termes source utilisées dans la littérature sont différentes selon les hypothèses de simplifications, la couche considéré et la pris en compte de la phase liquide (changement de phase) ou pas.

Les différents termes de sources d'énergie thermique utilisée dans la littérature sont donnés dans le tableau II.3.

**Tableau II.3:** Expressions des termes sources de chaleur «  $S_T$  ».

Canal	Couche de diffusion « GDL »	Couche de catalyseur « CL »	Membrane	Plaques bipolaires	Références
$S_T = 0$	0	$i \left( \eta + T \frac{dV_{oc}}{dT} \right) + \frac{i^2}{\sigma_m}$	$\frac{i^2}{\sigma_m}$	0	[9]
0	$\varepsilon_g \beta (T_s - T_g)$	$\left[ \frac{T (-\Delta S)}{nF} + \eta_c \right] i_c$	$\frac{i^2}{\sigma_m}$	0	[16]
0	$\varepsilon_g \beta (T_s - T_g)$	$\left[ \frac{T (-\Delta S)}{nF} + \eta_c \right] i_c$	0	0	[17]
$r_w h_L$	$\frac{i^2}{\sigma_s^{eff}} + r_w h_L$	$\eta R_{an,cat} + i^2 \left( \frac{1}{\sigma_s^{eff}} + \frac{1}{\sigma_m^{eff}} \right) + r_w h_L$	$\frac{i^2}{\sigma_m^{eff}} + r_w h_L$	$\frac{i^2}{\sigma_s}$	[18]

Les termes sources se composent de deux parts:

- **une part réversible** correspondant aux demi-réactions d'oxydation de l'hydrogène et de réduction de l'oxygène, A cause des difficultés d'évaluation de l'entropie standard des ions et étant donné que seules les entropies des réactions sont les grandeurs mesurables, on admet par convention que l'hydrogène présente une enthalpie standard de formation et une enthalpie de Gibbs nulles. Ceci justifie l'hypothèse selon laquelle l'oxydation de l'hydrogène à l'anode n'entraîne pas de dégagement de chaleur et la réduction de l'oxygène à la cathode est seule à l'origine de la source de chaleur de réaction (la création d'entropie liée à la réaction globale).
- **une part irréversible** associée aux surtensions aux électrodes, et enfin une part correspondant aux phénomènes de sorption de l'eau dans la membrane. C'est ici la seule source qui dépend de l'équilibre massique, et non du régime électrique.

**A / Effet Joule**

L'effet Joule est provoqué par la résistance au transfert protonique dans la membrane (la résistance ohmique des zones solide). L'expression associée à l'effet Joule est donné dans l'équation (II.11).

$$S_T = \frac{i^2}{\sigma_m} \quad (W / m^3) \quad (\text{II.11})$$

Avec  $i$  : la densité de courant dans la cellule en  $(A / m^2)$ ,  $\sigma$  : Conductivité protonique de membrane ou électrique dans les électrodes (S/m).

**B /Entropie des demi-réactions**

Les demi-réactions aux électrodes sont à l'origine d'un dégagement réversible de chaleur. Leur expression dans l'équation (II.12)

$$S_T = \frac{T (-\Delta S)}{nF} i_c \quad (\text{II.12})$$

$\Delta S$  : Entropie spécifique (J/mole K).

**C/Activation électrochimique des réactions**

L'irréversibilité des réactions électrochimiques se traduit par des surtensions aux électrodes, qui viennent réduire le rendement électrique de la pile. L'écriture de la loi de Butler-Volmer modélisant les phénomènes d'activation de réactions ou la modélisation des transferts couplés de masse et de charge au niveau de l'électrode permettent d'estimer les sources de chaleur correspondantes.

$$S_T = \eta i \quad (\text{II.13})$$

$\eta$  : Surtension d'activation en (V) dans les deux cotés anode et cathode.

**D/Sorption de l'eau**

L'eau liquide est apparaît dans la pile à combustible lorsque la pression de la vapeur d'eau atteint sa valeur de saturation à la température de fonctionnement de la cellule.

Au contraire, l'eau liquide est évaporée lorsque la pression de la vapeur d'eau est inférieure à sa valeur de saturation.

Le processus de changement de phase (condensation / évaporation) (Équation II.14) est également un facteur important dans la détermination de la présence d'eau liquide dans le modèle multiphasique.

$$S_T = r_w h_L \quad (\text{II.14})$$

Où  $h_L$  : enthalpie de formation de la vapeur d'eau en ( $J.kg^{-1}$ ).

L'expression de taux de changement de phase (condensation/évaporation) «  $r_w$  » est donné dans l'équation (II.15) :

$$r_w = c_r \max \left( \left[ (1-s) \frac{P_{H_2O} - P_{sat}}{RT} M_{H_2O} \right], [-s \rho_l] \right) \quad (\text{II.15})$$

$c_r$  : taux de condensation est défini comme :  $c_r = 100/S$ .

Une autre expression de terme source de chaleur a été utilisée par [16, 17] (équation II.16) dans la couche de diffusion de gaz, représente l'échange thermique vers et à partir de la matrice solide du GDL.

$$S_T = \varepsilon_g \beta (T_s - T_g) \quad (\text{II.16})$$

Où  $\varepsilon_g$  : porosité du GDL,  $\beta$  : est un coefficient de transfert thermique modifié qui tient compte du transfert de chaleur par convection en ( $W/m^2$ ) et de la surface spécifique ( $m^2/m^3$ ) du milieu poreux [16].

Par conséquent, l'unité de  $\beta$  est ( $W/m^3$ ).

Dans notre cas, la variation du débit massique de l'eau due à la condensation / évaporation ne pas considéré. Ainsi, les choix des termes source effectuées pour la modélisation sont discutés dans le chapitre suivant.

## II.2.4 Transport de l'eau

Le transport de l'eau au sein de la PAC est l'un des phénomènes les plus importants qui affecte directement le comportement de la membrane (élément cœur de la pile). Le degré d'humidification de cette dernière est d'une importance majeure en vertu de son influence sur le rendement et sur les performances de la cellule.

Dans la suite, nous expliquons les problèmes liées à la gestion de l'eau.

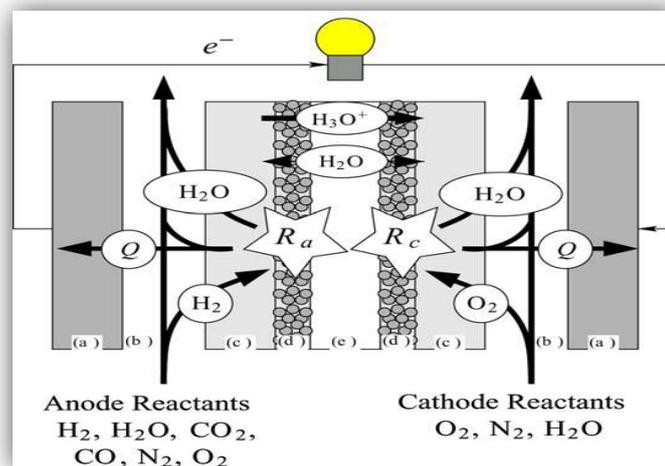
## II.3 La Gestion de l'eau dans la pile PEMFC

### II.3.1 Généralités

La gestion de l'eau au sein des PEMFC est devenue une préoccupation majeure pour les chercheurs et les fabricants, car c'est une question complexe pour laquelle il n'existe pas de réponse unique. En effet, la présence d'eau est à la fois nécessaire et néfaste au bon fonctionnement de la cellule : une bonne hydratation de la membrane permet une meilleure conductivité protonique, tandis que de la vapeur d'eau présente en trop grande quantité peut condenser et l'eau liquide ainsi formée peut empêcher les réactifs de parvenir aux électrodes. Pour gérer ce paradoxe, il faut comprendre d'où vient l'eau présente dans le cœur de la cellule et en quoi elle peut entraver son fonctionnement.

Généralement, l'humidification est appliquée aux admissions de l'anode et/ou de la cathode afin de fournir l'eau à la région de membrane. D'autre part, l'eau est produite à l'interface de cathode/membrane due à la réaction électrochimique de  $H^+ / O_2$ .

Si l'eau produite n'est pas enlevée de la cathode à un taux suffisant, le flooding de cathode peut résulter et le transport de gaz de l'oxygène est gêné. Ainsi, un air relativement sec à l'admission de cathode est parfois utile d'enlever l'eau excessive (Z.H. Wang et al(2001) [4]).

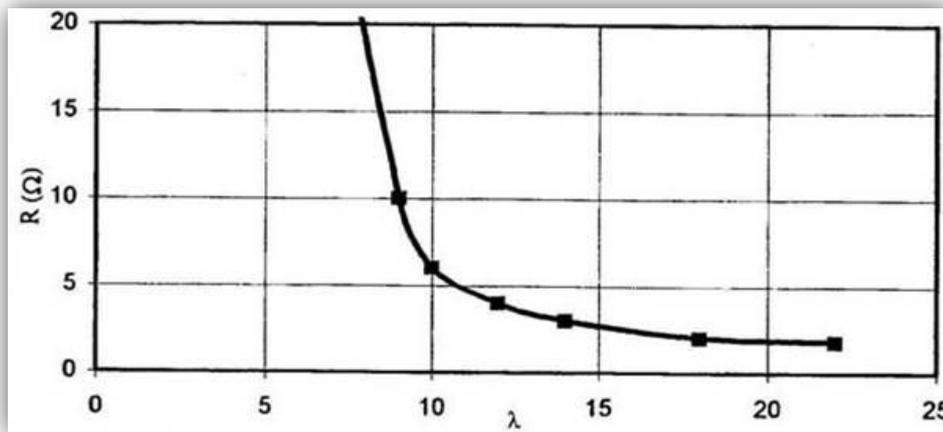


**Figure II.2:** Les processus occurrence dans une cellule de carburant de PEM. La cellule de carburant de PEM est composée (a) plaque bipolaire, (b) canal d'écoulement de gaz, (c) couche de diffusion, (d) couche de catalyseur, et (e) couche d'électrolyte de polymère (J.J. Baschuk et al (2004) [18]).

Les performances de la pile peuvent être affectées par le noyage ou l'assèchement.

### *i. L'assèchement*

La conductivité protonique d'une membrane dépend fortement de son taux d'hydratation. En effet, elle est multipliée par 10 entre l'état sec et l'état gonflé. La Figure II.3 illustre cette dépendance dans le cas d'une membrane Nafion117® de surface 9cm<sup>2</sup> (Pourcelly, (1990) [20]).



**Figure II.3 :** Exemple d'évolution de la résistance d'une membrane Nafion117® de 9cm<sup>2</sup> avec la charge en Eau.

D'après (Gerbaux (1996) [21]), la conductivité protonique est une fonction croissante de son contenu en eau  $\lambda$ :

$$\sigma = \sqrt{2.416 \left( \frac{1}{303.15} - \frac{1}{T} \right) (0.005139\lambda - 0.00326)} \quad (\text{II.17})$$

Ainsi, si la membrane n'est pas suffisamment humidifiée, la résistivité de la pile augmente, d'où une diminution des performances. De plus, l'assèchement de l'AME entraîne une augmentation des surtensions d'activation. En effet, le séchage de la phase électrolyte présente dans la couche active rend certains sites catalytiques inopérants du fait de la résistance ionomère (Mikkola (2001) [22]). Il est donc primordial d'assurer un bon taux d'hydratation dans la pile.

### *ii. Le noyage*

Les problèmes d'engorgement en eau peuvent se localiser à deux niveaux, dans les électrodes (à la fois au niveau de la couche active et des couches de diffusion) et dans les

canaux de distribution. Au niveau de l'électrode, l'eau produite dans la zone active doit être rapidement évacuée sinon elle peut s'accumuler et gêner la diffusion d'oxygène vers les sites catalytiques (Marchand (1998) [22]). Au niveau des canaux de distribution, si l'eau liquide s'accumule préférentiellement dans un canal, elle risque de l'obstruer et de le rendre inopérant. La surface d'électrode active diminue alors, car il y a des zones mortes ne produisant pas d'électricité.

### II.3.2 Les transferts de l'eau dans la pile

L'eau présente dans la pile peut avoir deux sources : l'humidification des gaz réactifs et la réaction cathodique. Dans une PEMFC, l'eau est transportée dans les canaux d'alimentation, mais également à travers la membrane et les électrodes. Nous allons maintenant regarder de plus près les deux mécanismes de transport d'eau à travers la membrane représentés Figure (II.4).

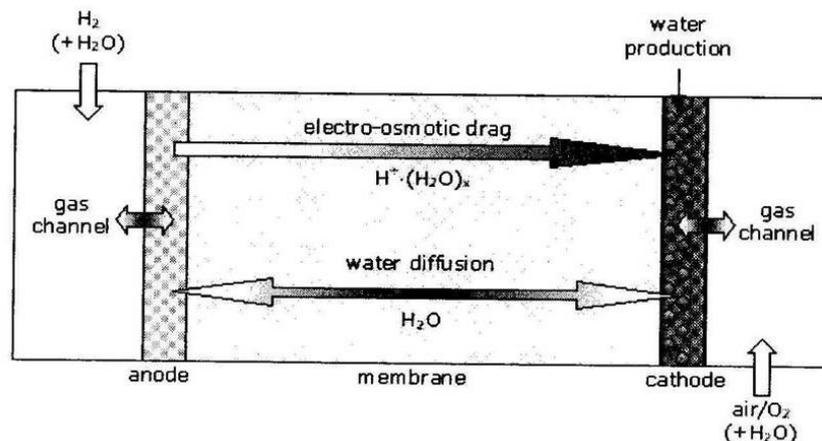


Figure II.4: Mécanismes de transport d'eau dans la membrane [23].

- **L'électro-osmose**

En traversant la membrane, les protons entraînent avec eux un certain nombre de molécules d'eau. Des mesures du coefficient d'électro-osmose (nombre de molécules d'eau par proton) ont été réalisées sur des membranes de Nafion117® en milieu liquide à 30°C par Zadowinski et al. (1993) [24]. Ils ont constaté une croissance linéaire du coefficient d'électro-osmose en fonction du contenu en eau  $\lambda$  (nombre de molécules d'eau par site sulfonique). Le contenu en eau peut être modifié par traitement thermique de la membrane. Sans traitement, quand la membrane est en contact avec de l'eau liquide,  $\lambda$  vaut classiquement 22 et le coefficient d'électro-osmose est de  $2,5 \text{ H}_2\text{O}/\text{H}^+$ . Cette dernière tombe à 0,9 pour  $\lambda$  égal à 11

dans des membranes immergées. Des mesures ont également été faites (Zawodzinski et al. 1995) [25] en milieux gazeux plus ou moins saturés, le coefficient d'électro-osmose est alors constant et égal à 1 pour une grande plage de valeurs de  $\lambda$  (1.4-14).

- **La diffusion**

La membrane Nafion® peut être approximée par un milieu dense, c'est-à-dire avec une structure compacte (non poreuse), dans laquelle les espaces libres entre les molécules sont de l'ordre de grandeur de la longueur des liaisons (Marchand, 1998) [23]. Le transport dans ces membranes denses se fait selon 3 étapes, sorption des molécules de soluté sur la face amont de la membrane, diffusion du perméat à travers la membrane et désorption du soluté à partir de la face aval de la membrane. L'étape cinétiquement limitant est l'étape de diffusion. Le soluté diffuse du milieu le plus concentré vers le plus dilué sous l'influence d'un gradient de potentiel chimique. Le flux de diffusion à travers une membrane dense est régi par la loi de Fick dont l'expression peut s'écrire :

$$J = -D \frac{\Delta C}{e_m} \quad (\text{II.18})$$

Avec J: Flux de diffusion molaire,

D: Coefficient de diffusion de l'eau dans la membrane,

$e_m$ : Epaisseur de la membrane,

$\Delta c$  : Différence de concentration à travers la membrane.

En ce qui concerne le flux d'eau dans l'électrolyte des piles, ce flux a généralement lieu de la cathode vers l'anode. Il est d'autant plus important que la membrane est fine et que le coefficient de diffusion chimique est élevé.

### II.3.3 Les méthodes de gestion de l'eau dans les piles

La gestion de l'eau dans la pile implique donc d'assurer une hydratation suffisante de la membrane, tout en évitant qu'un excès d'eau ne noie la pile. Différentes techniques sont utilisées pour contrôler l'hydratation de l'eau dans la pile (Mikkola, 2001) [26]. Comme nous l'avons vu, l'assèchement de la membrane a lieu quand le flux d'électro-osmose est plus important que le flux de rétro-diffusion. La solution consiste donc à augmenter le flux de diffusion. Pour cela, on peut soit diminuer l'épaisseur de la membrane soit changer de membrane pour avoir un coefficient de diffusion plus important. Une autre solution consiste à

humidifier les gaz par un système d'humidification externe. L'humidification peut être contrôlée en jouant sur la température des gaz. En général, la température d'humidification des gaz est gardée supérieure à la température de fonctionnement de la pile, afin que de l'eau liquide se forme par condensation de la vapeur d'eau présente dans les gaz. Ainsi l'anode peut facilement être humidifiée, mais il faudra alors faire très attention au noyage au niveau de la cathode.

En ce qui concerne le noyage, il faut l'éviter à la fois dans l'électrode, mais aussi dans les canaux. Actuellement, pour éviter le problème au niveau des électrodes, l'eau liquide formée dans la zone active est envoyée vers les canaux de distribution des gaz. En effet, les couches de diffusion contiennent généralement des agents hydrophobes dont le but est d'augmenter la pression capillaire et d'évacuer l'eau produite sous l'effet d'un gradient de pression. Pour éviter le noyage des canaux, la solution classiquement retenue consiste à évacuer dynamiquement l'eau vers l'extérieur en utilisant de grandes stœchiométries de gaz, c'est à dire en excès de gaz porteur. Les gouttelettes d'eau sont poussées le long des canaux et les gaz sous-saturés se chargent en vapeur d'eau. La température ainsi que les conditions opératoires ont un effet notable sur la pression de vapeur ainsi que sur l'évaporation de l'eau, donc sur la teneur en vapeur d'eau des gaz. Ainsi l'efficacité de l'évacuation de l'eau liquide dépend fortement des conditions de température de fonctionnement. Le ratio entre eau liquide et vapeur est contrôlé par la température et l'humidité des réactants. Il faut également noter que les conditions pour la gestion d'eau fluctuent le long des canaux d'alimentation.

En effet, des gaz secs se chargent en vapeur d'eau, alors que des gaz sur-saturés condensent dans les canaux et sur la couche de diffusion. Ainsi la quantité d'eau transportée par le flux de réactants est différente en différents endroits des canaux d'alimentation.

L'écoulement des fluides est très important pour la gestion de l'eau. Ainsi, la porosité, la perméabilité, le caractère hydrophile ou hydrophobe des différents composants peuvent avoir un effet certain sur l'évacuation ou non de l'eau dans la cathode. Le choix des **caractéristiques morphologiques et hydrauliques des GDL** est donc très important. De même, la forme des canaux peut avoir des conséquences importantes sur l'écoulement et les propriétés de diffusion.

Plusieurs études sont donc menées pour essayer de comprendre quels sont les paramètres qui vont induire un noyage ou plutôt un assèchement.

### Caractérisation des milieux poreux

On appelle milieu poreux un solide délimitant et englobant des vides appelés pores (*Bories et Prat [27]*). Ces vides peuvent communiquer entre eux et contenir une ou plusieurs phases fluides pouvant s'écouler et éventuellement échanger entre elles et/ou avec le solide de la matière et/ou de l'énergie. La partie solide, appelée matrice, peut être déformable mais doit avoir une certaine cohésion. Elle peut être soit non-consolidée (formée de grains ou de fibres non soudés entre eux), soit consolidée (qui ne peut se diviser en grains ou fibres). On peut citer à titre d'exemple de milieu poreux la mousse ou un lit de sable. Les phénomènes qui se déroulent dans les milieux poreux dépendent de la géométrie de la matrice ; celle-ci est donc caractérisée par un certain nombre de grandeurs moyennes, géométriques ou statistiques.

On distingue plusieurs grands domaines de caractérisation :

#### ▪ Caractérisation Morphologique

- dimensions globales (épaisseur, largeur, longueur, diamètre)
- porosité globale  $\varepsilon$  définie comme le rapport du volume de vide au volume apparent du milieu poreux. On distingue la porosité ouverte (ou accessible) et la porosité fermée.

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{vides}}}{V_{\text{total}}}, \quad \varepsilon_0 = \frac{V_{\text{pores ouverts}}}{V_{\text{total}}}, \quad \varepsilon_f = \frac{V_{\text{pores fermés}}}{V_{\text{total}}}, \quad \text{avec } \varepsilon = \varepsilon_0 + \varepsilon_f$$

- rayon moyen de pores ou distribution de taille de pores/grains
- surface spécifique (aire massique), définie comme le rapport de la surface totale des interfaces solides-pores  $A_{sf}$  à la masse de l'échantillon  $\rho V$  :

$$S_m = \frac{A_{sf}}{\rho V} \quad (\text{m}^2/\text{g}) \quad (\text{II.19})$$

- tortuosité, généralement définie par une formule de la forme  $\tau = \left(\frac{L_e}{L}\right)^2$ , rapport de la longueur moyenne réelle  $L_e$  des lignes de courant du fluide traversant l'échantillon à la longueur  $L$  de ce dernier. Cette grandeur permet de caractériser l'interconnexion des pores.

#### ▪ Caractérisation Hydraulique

- perméabilité intrinsèque : propriété d'un milieu caractérisant son aptitude à laisser circuler un fluide dans son espace.

- perméabilité relative (écoulement diphasique)
- pression capillaire : différence de pression à l'interface de deux phases, généralement une phase liquide et gazeuse :  $P_c = P_g - P_l$

- **Caractérisation Thermique**

- conductivité thermique équivalente  $\lambda$  ;
- chaleur spécifique  $C_p$  ;
- propriétés radiatives (transmittance, réflectance).

#### II.4 État de l'art sur les travaux de modélisation de la PAC

La difficulté de contrôle des phénomènes physiques internes de la PAC est considérée comme l'un des obstacles qui empêchent la progression de cette technologie. Dans ce contexte, la modélisation mathématique occupe une place importante dans les recherches liées à la PAC.

La dernière décennie a reconnu le développement d'un nombre important de modèles de PAC. Les modèles proposés varient en fonction de leur niveau de complexité, leur domaine de validité (une partie ou la totalité d'une cellule, le Stack tout entier, le Stack avec les systèmes auxiliaires) et de dimensions (mono, bi ou tridimensionnel) sur lesquelles se déroulent les phénomènes étudiés.

Bien qu'une quelconque classification soit toujours arbitraire, il nous semble qu'une classification conduisant à séparer les modèles existants en deux catégories principales:

##### **-Modèles monophasique (mono, bi ou tridimensionnel):**

Comme méthode importante pour étudier les piles à combustible à membrane échangeuse de proton (PEM), les modèles mathématiques ont reçu l'emphase forte en années renvoyées. Un bon modèle de cellules de carburant de PEM peut non seulement aider à comprendre les mécanismes internes, tels que le transfert de la chaleur et de la masse, mais également, il peut aider à améliorer l'efficacité et à économiser beaucoup d'argent en concevant et en expérimentant avec des cellules de carburant.

Il y a eu quelques études sur la gestion de l'eau aussi bien que la performance modelant pour des cellules de carburant de PEM. **Bernardi (1991) [28] et Verbrugge (1992) [29] et Springer et al. (1991) [30]** ont proposé les modèles unidimensionnels qui ont fourni de

bonnes bases préliminaires pour modéliser de cellules de carburant de PEM. Cependant, un modèle unidimensionnel ne peut pas simuler la diminution des réactifs et l'accumulation des produits dans le sens d'écoulement.

Des études précédentes ont été la plupart du temps fondées sur une hypothèse de simple phase (gaz), avec la présence de l'eau liquide étant négligée. Plusieurs de ces modèles sont unidimensionnels, par exemple, (**Ramousse et al. [31]**, **Rowe et al. [32]**, **Falcão et al (2009) [14]**) ont présenté un modèle unidimensionnelle pour le transfert couplé de la chaleur et de la masse dans une cellule de carburant de PEM. Une particulière attention est consacrée au transport de l'eau par la membrane on assume qu'il ya un effet combiné de la diffusion et de drague l'électro-osmotique. Le modèle prévoit raisonnablement l'influence de la densité de courant et du l'humidité relative sur le coefficient net de transport de l'eau.

Et également deux dimensions, par exemple, (**Cheng et al. (2006)[33]**, **Guvelioglu et al. (2005) [34]**, **Siegel et al. (2004) [35]**, **Ge et al. (2003) [36]**, **Costamagna (2001) [37]**, **Singh et al. (1999) [38]**), et des modèles monophasique 3D (**Berning et al. (2003) [10]** et **Sadiq Al-Baghdadi et al. (2007) [12]**) qui présenté un modèle monophasé, non-isotherme complet tridimensionnel de CFD avec les canaux droits d'écoulement de gaz. Le modèle comptes en détaille le transport de la masse d'espèce, le transfert thermique dans les solides aussi bien que dans les gaz, les pertes potentielles dans les couches et la membrane de diffusion de gaz, la cinétique électrochimique, et le transport de l'eau par la membrane.

La caractérisation des phénomènes de transport dans le cœur de pile est primordiale pour proposer des stratégies de gestion de l'eau et de la chaleur adaptées aux besoins de la pile. Une récente revue des différentes modélisations proposées dans la littérature est donnée dans l'article de **Belkhiri et al. (2012, 2015) [39, 40]**.

Il faut cependant garder à l'esprit que ces modèles ne tiennent pas compte de la condensation de l'eau ni du changement de phase dans les électrodes poreuses. Or l'importance du transport diphasique a été très souvent soulignée dans la littérature en années récentes. Et ceci a été reflété dans la grande quantité de modèles édités orientés vers la description des écoulements diphasique (two-phase flow) à l'intérieur des milieux poreux.

**-Modèles diphasique (mono, bi ou tridimensionnel) :**

Pendant le fonctionnement de la pile et tout particulièrement à fort courant, de l'eau liquide apparaît dans la cathode. Les phénomènes de transport deviennent alors beaucoup plus compliqués dus aux couplages entre les flux d'eau liquide et de gaz (**Kaviany (1995) [41]**). Le transport de l'eau liquide par capillarité, l'interaction entre des zones monophasiques et diphasiques via l'évaporation ou la condensation, ainsi que l'effet de la distribution des phases sur le transport de gaz doivent être pris en considération. Dans cet objectif, plusieurs modèles de pile à combustible ont été décrits. Ces modèles se différencient suivant les objectifs fixés. Ils peuvent être classifiés dans deux catégories, c.-à-d. **modèles de mélange homogène** et **modèles de phase séparée (de deux fluides)**.

Ces modèles sont fondés sur les différentes théories et l'hypothèse dans la dynamique d'écoulement. Un des modèles le plus généralement utilisé est **le modèle multi-phase du mélange ( $M^2$ )**, qui considère l'idée est de se focaliser au niveau du mélange multi-phase et non au niveau de chaque phase séparée. Les phases sont considérées comme des constituants du mélange homogène, de manière à ce qu'on puisse décrire ce mélange par une vitesse moyenne et des flux de diffusion représentant les différences entre la vitesse du mélange et les vitesses de chaque phase. L'avantage de ce modèle est de pouvoir être utilisé dans des domaines où des zones diphasiques et monophasiques coexistent. Cependant, les écoulements biphasés dans PEMFCs sont des processus dynamiques complexes. **Gurau et al. (2008) [42]** prouvent que le modèle de  $M^2$  a une gamme étroite de l'applicabilité, qui est limitée aux écoulements équilibrés sans changement de phase et sans production de phase due à d'autres processus physiques. Pour des situations plus complexes, y compris ceux généralement produits dans PEMFCs, le modèle de  $M^2$  cesse de refléter les principes et pourrait mener aux prévisions de la vitesse peu réaliste et des champs scalaires. En outre, modèle  $M^2$  pourrait représenter un outil incapable de capturer des phénomènes complexes de cellules de carburant tels que le transfert de l'eau liquide et la gouttelette dans le canal de gaz et son effet sur le transfert de masse ne peut pas être considérée dans le modèle multiphase de mélange.

En travaux récents, **le modèle de deux-fluide** a obtenu plus d'attention pour sa convenance de considérer la phase liquide et la phase gazeuse séparément, ainsi il peut décrire plus de phénomènes dans l'écoulement biphasé, mais il y a également quelques inconvénients pour le modèle de deux-fluide, tel que lui a besoin de plus de calcul pour coûter, et son dur

pour converger pour lui inclut l'équation de quantité de mouvement du liquide, l'équation de continuité de liquide, l'équation de quantité de mouvement de gaz, et l'équation de continuité de gaz.

Plusieurs études sur la simulation biphasée bidimensionnelle d'écoulements de fluide dans le PEMFC ont été effectuées:

**Wang et al. (2001) [4], You et al. (2002) [43], Sun et al. (2005) [44], Hsing Chang et al. (2006) [45], Class et al. (2006) [46], Acosta et al. (2006) [47], You et al. (2006) [48], Rao et al. (2007) [49], Khakpour et al. (2008) [50], Lemoine-Navaet al. (2011)[51], Chi-Young Jung et al. (2010) [52]** ont développé un modèle bidimensionnel biphasé pour décrire l'écoulement et le transport dans le canal de gaz et le diffuseur poreux de gaz dans la cellule de carburant de PEM. La performance de la cellule de carburant prévue par ces modèles est comparée aux résultats expérimentaux et des accords raisonnables sont réalisés.

Cette distribution bidimensionnelle ne peut pas être modélisée avec les modèles bidimensionnels utilisés où la limitation de transport de masse est absente dans la troisième direction. Le modèle était prolongé dans un système tridimensionnel, biphasé a été compris.

**Hu et al. (2004) [53], Hu et al. (2004) [8], Lum et al. (2005) [5], Chun-I Lee et al. (2006) [54], Sadiq Al-Baghdadi, et al. (2007) [13], Wang et al. (2008) [2], Liu et al. (2008) [7], Sadiq Al-Baghdadi (2009) [11], Falcao et al. (2011) [6], Khajeh-Hosseini-Dalasm et al. (2010) [55], He et al. (2009) [56]** ont présenté un modèle tridimensionnel d'une cellule de carburant complète de membrane d'électrolyte de polymère (PEMFC), Le modèle validé est alors employé pour étudier l'effet de la drague électro-osmotiques et de la diffusion de l'eau à travers la membrane. Le transport global de l'eau à travers la membrane est vu pour avoir lieu de l'anode au côté de cathode. Les effets de la formation de l'eau liquide sur le transport du gaz de réactif sont considérés dans le modèle. Les modèles présentés simulent plusieurs paramètres importants avec l'impact sur la performance de cellules de carburant, telle que la teneur en eau de membrane et la conductivité protonique.

## II.5 Conclusion

La plupart de ces travaux s'intéressent à la modélisation des différents phénomènes de transport et de diffusion d'eau à travers les différentes composantes de la cellule. Ils étudient l'influence des paramètres et des conditions de fonctionnement sur les performances de la pile.

Voilà pourquoi il est plus que nécessaire de présenter une description détaillée du modèle que nous avons utilisé et les équations correspondantes dans le cadre d'une prise en compte et de façon plus élaborée de ces phénomènes. Tel sera l'objectif du chapitre suivant.

**II.6 Références bibliographiques**

- [1] X. Li, I. Sabir, and J. Park, A flow channel design procedure for PEM fuel cells with effective water removal, *Journal of Power Sources*, 163 (2007) 933–942.
- [2] Y.Wang, S.Basu, C.Y.Wang, Modeling two-phase flow in PEM fuel cell channels, *Journal of Power Sources*, 179 (2008) 603–617.
- [3] L. Gerbaux, Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène/air et validation expérimentale, Ph.D. dissertation, *Thèse Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG), Grenoble, FRANCE*, (1996).
- [4] Z.H. Wang, C.Y. Wang, K.S. Chen, Two-phase flow and transport in the air cathode of proton exchange membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, 94 (2001) 40-50.
- [5] K.W.Lum, J. J.McGuirk, Three-dimensional model of a complete polymer electrolyte membrane fuel cell – model formulation, validation and parametric studies, *Journal of Power Sources*, 143 (2005) 103–124.
- [6] D.S. Falcao, P.J. Gomes, V.B. Oliveira, C. Pinho, A.M.F.R. Pinto, 1D and 3D numerical simulations in PEM fuel cells, *International Journal of Hydrogen Energy*, 36 (2011) 12486-12498.
- [7] X.Liu, W.Tao, Z.Li, Y.He, Three-dimensional transport model of PEM fuel cell with straight flow channels, *Journal of Power Sources*, 158 (2006) 25–35.
- [8] M. Hu, X.Zhu, M.Wang, A. Gu, L. Yu, Three dimensional, two phase flow mathematical model for PEM fuel cell: Part II. Analysis and discussion of the internal transport mechanisms, *Energy Conversion and Management*, 45 (2004) 1883–1916.
- [9] W.Q. Tao, C.H. Min, X.L. Liu, Y.L. He, B.H. Yin, W. Jiang, Parameter sensitivity examination and discussion of PEM fuel cell simulation model validation, Part I. Current status of modeling research and model development, *Journal of Power Sources*, 160 (2006) 359–373.
- [10] T. Berning, N. Djilali, Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell—a parametric study, *Journal of Power Sources*, 124 (2003) 440–452.
- [11] Maher A.R. Sadiq Al-Baghdadi, Performance comparison between airflow-channel and ambient air-breathing PEM fuel cells using three-dimensional computational fluid dynamics models, *Renewable Energy*, 34 (2009) 1812–1824.
- [12] M.A.R. Sadiq Al-Baghdadi, H. A.K. Shahad Al-Janabi, Parametric and optimization study of a PEM fuel cell performance using three-dimensional computational fluid dynamics model, *Renewable Energy*, 32 (2007) 1077–1101.
- [13] M.A.R. Sadiq Al-Baghdadi, H.A.K. Shahad Al-Janabi, Modeling optimizes PEM fuel cell performance using three-dimensional multi-phase computational fluid dynamics model, *Energy Conversion and Management*, 48 (2007) 3102–3119.
- [14] D.S. Falcão, V.B.Oliveira, C.M.Rangel, C.Pinho, A.M.F.R.Pinto, Water transport through a PEM fuel cell: A one-dimensional model with heat transfer effects, *Chemical Engineering Science*, 64 (2009) 2216—2225.

- [15] G. Fontès, Modélisation et caractérisation de la pile pem pour l'étude des interactions avec les convertisseurs statiques, Ph.D. dissertation, *Thèse Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Toulouse, FRANCE*, (2005).
- [16] T. Berning, D.M. Lu, N. Djilali, Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, 106 (2002) 284–294.
- [17] A. Dinh Le, B. Zhou, Fundamental understanding of liquid water effects on the performance of a PEMFC with serpentine-parallel channels, *Electrochimica Acta*, 54 (2009) 2137–2154.
- [18] J.J. Baschuk, Xianguo Li, A general formulation for a mathematical PEM fuel cell model, *Journal of Power Sources*, 142 (2004) 134–153.
- [19] G. Pourcelly, A. Oikonomou, C. Gavach and H.D. Hurwith, Influence of the water-content on the kinetics of counterion transport in perfluorosulfonic membranes, *Journal of electroanalytical Chemistry*, 287-1 (1990) 43-59.
- [20] L. Gerbaux, Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène/air et validation expérimentale, *Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble*, (1996).
- [21] M. Mikkola, Experimental studies on polymer electrolyte membrane fuel cell Stacks, *Master's thesis, Helsinki University of Technology*, (2001).
- [22] M. Marchand, Gestion de l'eau dans les piles à combustible, *Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble*, (1998).
- [23] C. Gondrand, Analyse des transferts d'eau dans les micropiles à combustible, *Thèse de doctorat de l'institut national polytechnique de Toulouse*, (2006).
- [24] Zawodzinski (TA), Springer (TE), Davey (J), Jestel (R), Valerio (J) and Gottesfeld (S), A comparative study of water uptake by and transport through ionomeric fuel cell membranes, *Journal of the Electrochemical Society*, 140-7 (1993) 1981-1985.
- [25] Zawodzinski (TA), Davay (J), Valerio (J) and Gottesfeld (S), *The water content dependance of electro-osmotic drag in proton-conducting polymer electrolytes*, *Electrochimica Acta*, 40-3 (1995) 297-302.
- [26] Mikkola (M), Experimental studies on polymer electrolyte membrane fuel cell stacks, *Master's thesis, Helsinki University of Technology*, 2001.
- [27] S. Bories et M. Prat, Transferts de chaleur dans les milieux poreux, *Techniques de l'Ingénieur, Traité Génie Énergétique*, B8250, pp. 1-33.
- [28] D.M. Bernardi, M.W. Verbrugge, "Mathematical model of a gas diffusion electrode bonded to a polymer electrolyte", *AIChE J*, 37 (1991) 1151–1163.
- [29] D.M. Bernardi, M.W. Verbrugge, A mathematical model for the solid-polymer-electrode fuel cell, *J. Electrochem. Soc.*, 139 (1992) 2477–2491.
- [30] F.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, Polymer electrolyte fuel cell model, *J. Electrochem. Soc.*, 138 (1991) 2334–2342.
- [31] J. Ramousse, J. Deseure, O. Lottin, S. Didierjean, D. Maillet, Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell, *Journal of Power Sources* 145 (2005) 416–427.
- [32] A. Rowe, X. Li, Mathematical modeling of proton exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 102 (2001) 82–96.

- [33] B.Cheng, O. Minggao, Y.Baolian, Analysis of Water Management in Proton Exchange Membrane Fuel Cells, *Tsinghua Science and Technology*, 11 (2006) 54-64.
- [34] G.H. Guvelioglu, H.G. Stenger, Computational fluid dynamics modeling of polymer electrolyte membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, 147 (2005) 95–106.
- [35] N.P. Siegel, M.W. Ellis, D.J. Nelson, M.R. von Spakovsky, A two-dimensional computational model of a PEMFC with liquid water transport, *Journal of Power Sources*, 128 (2004) 173–184.
- [36] S.H.Ge, B.L.Yi, A mathematical model for PEMFC in different flow modes, *Journal of Power Sources*, 124 (2003) 1–11.
- [37] P.Costamagna, Transport phenomena in polymeric membrane fuel cells, *Chemical Engineering Science*, 56 (2001) 323-332.
- [38] D. Singh, D.M. Lu, N. Djilali, A two-dimensional analysis of mass transport in proton exchange membrane fuel cells, *International Journal of Engineering Science*, 37 (1999) 431-452.
- [39] Zina Belkhiri, Mostefa Zeroual, Hocine Ben Moussa, Moussa Zereg, Bariza Zitouni, Numerical simulation of exchange membrane fuel cells in different operating conditions, *International Journal of Hydrogen Energie*, 37 (2012) 5444-5451.
- [40] Zina Belkhiri, Hocine Ben Moussa, Djamel Haddad, Kafia Oulmi, Effect of permeability on the dynamic field in the PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energie*, 40 (2015) 13789-13798.
- [41] M.Kaviani, Principles of Heat Transfer in Porous Media, *Edition Springer, Second Edition*, 1995.
- [42] V. Gurau, R.V. Edwards, J. Adin Mann Jr., T.A. Zawodzinski, *Electrochemical and Solid-State Letters*, 11 (2008) B132–B135.
- [43] L.You, H. Liu, A two-phase flow and transport model for the cathode of PEM fuel cells, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45 (2002) 2277–2287.
- [44] H.Sun, H. Liu, L.J. Guo, PEM fuel cell performance and its two-phase mass transport, *Journal of Power Sources*, 143 (2005) 125–135.
- [45] M.Hsing Chang, F. Chen, H.She Teng, Effects of two-phase transport in the cathode gas diffusion layer on the performance of a PEMFC, *Journal of Power Sources*, 160 (2006) 268–276.
- [46] H. Class, R. Helmig, B. Thoben, H. Müller-Steinhagen, Modeling non-isothermal two-phase multicomponent flow in the cathode of PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, 159 (2006) 1123–114.
- [47] M. Acosta, C. Merten, G. Eigenberger, H. Class, R. Helmig, B. Thoben, H. Müller-Steinhagen, Modeling non-isothermal two-phase multicomponent flow in the cathode of PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, 159 (2006) 1123–1141.
- [48] L.You, H.Liu, A two-phase flow and transport model for PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, 155 (2006) 219–230.
- [49] R. M. Rao, D. Bhattacharyya, R. Rengaswamy, S.R. Choudhury, A two-dimensional steady state model including the effect of liquid water for a PEM fuel cell cathode, *Journal of Power Sources*, 173 (2007) 375–393.

- [50] M. Khakpour, K.Vafai, Analysis of transport phenomena within PEM fuel cells – An analytical solution, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 51 (2008) 3712–3723.
- [51] R.Lemoine-Nava, R.H.Rauschenbach, M. Mangold, K.Sundmacher, The gas diffusion layer in polymer electrolyte membrane fuel cells: A process model of the two-phase flow, *International Journal of Hydrogen Energy*, 36 (2011) 1637-1653.
- [52] Chi-Young Jung, Chi-Hoon Park, Young-Moo Lee, Wha-Jung Kim, Sung-Chul Yi, Numerical analysis of catalyst agglomerates and liquid water transport in proton exchange membrane fuel cells, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35 (2010) 8433-8445.
- [53] M.Hu, A. Gu , M.Wang , X.Zhu , L.Yu, Three dimensional, two phase flow mathematical model for PEM fuel cell: Part I. Model development, *Energy Conversion and Management*, 45 (2004) 1861–1882.
- [54] Chun-I Lee, Hsin-Sen Chu, Effects of cathode humidification on the gas–liquid interface location in a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, 161 (2006) 949–956.
- [55] N. K-Hosseini-Dalasm, K. Fushinobu, K.Okazaki, Three-dimensional transient two-phase study of the cathode side of a PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35 (2010) 4234 – 4246.
- [56] G. He, Y. Yamazaki, A.Abudula, A droplet size dependent multiphase mixture model for two phase flow in PEMFCs, *Journal of Power Sources*, 194 (2009) 190–198.

# Chapitre III

**Modèle physique et  
mathématique**

### III.1 Introduction

L'amélioration des performances des piles à combustibles PEM doit passer par une meilleure compréhension des différents phénomènes internes ainsi que leurs interactions en son sein. Dans ce sens, la modélisation est un outil très puissant pour l'étude de ces interactions et de leurs rôles, ainsi que pour la prédiction et l'amélioration des conditions opératoires.

Ce chapitre décrit un modèle complet, stationnaire, monophasique (l'eau produit à l'état vapeur) avec le champ d'écoulement dans la totalité de la cellule du type PEM à géométrie 2D. Plus précisément, il s'agit de construire un modèle qui prend en compte la plupart des phénomènes interagissant au sein de la cellule, après une présentation de la structure de la cellule, les équations de transport de masse et de chaleur régissant le fonctionnement et les différentes propriétés de l'écoulement sont présentées. A travers ces équations adaptées au modèle, une présentation de l'outil numérique utilisé CFD FLUENT est faite.

### III.2 Modèle Physique

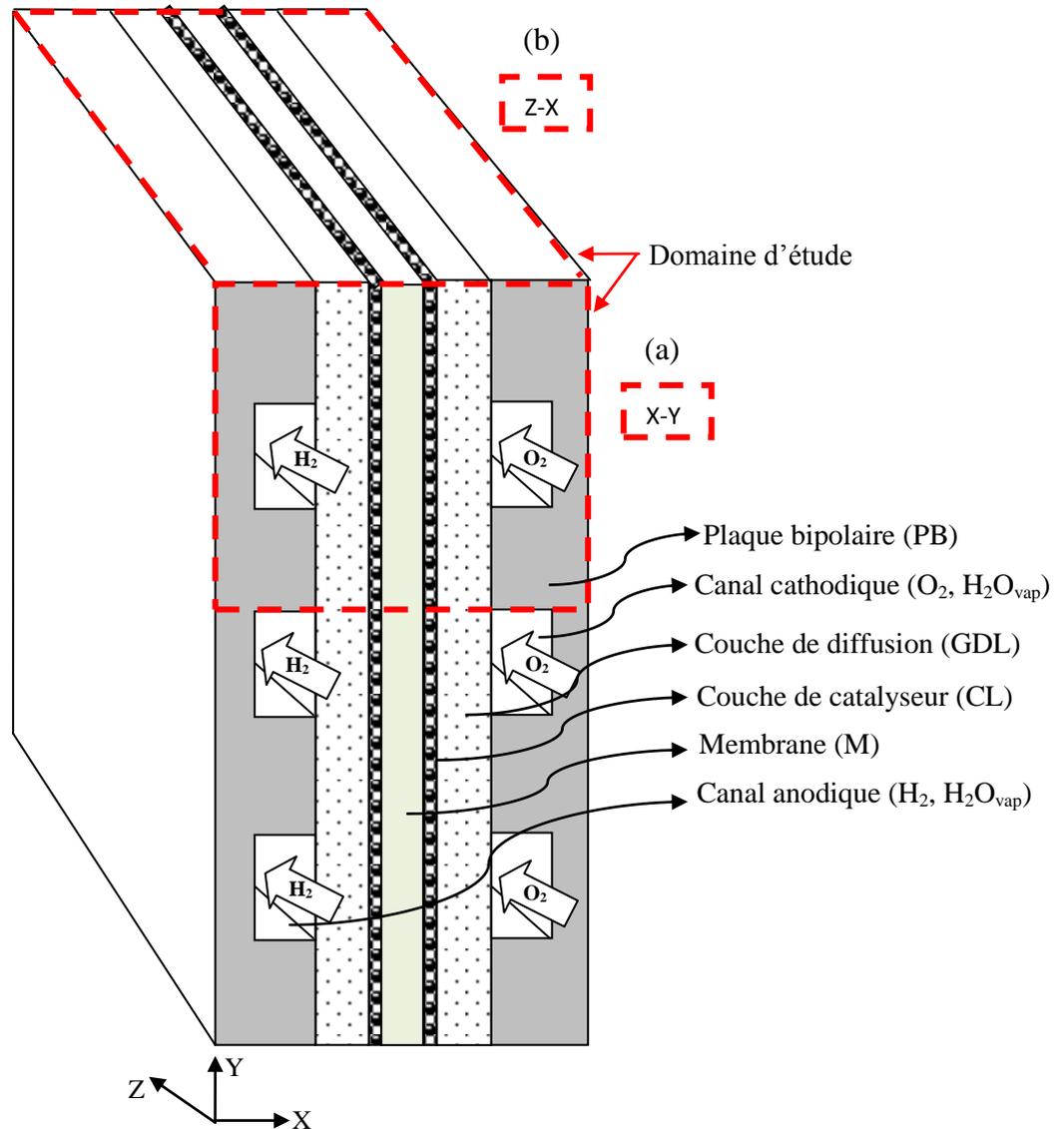
Les phénomènes physiques actifs rencontrés dans les différentes zones de la pile sont :

Le transport dans les milieux continu et poreux qui comportent les équations de conservation (quantité mouvement, chaleur, et masse) ainsi que les relations empiriques, avec des termes sources qui expliquent les réactions électrochimiques et l'effet Joule.

Pour pouvoir construire le modèle mathématique d'une cellule à géométrie plane, il faut d'abord définir une image géométrique macroscopique, sur laquelle nous plaçons le système de coordonnées et nous définissons le système d'équations composant le modèle.

#### III.2.1 Géométrie de la structure modélisée

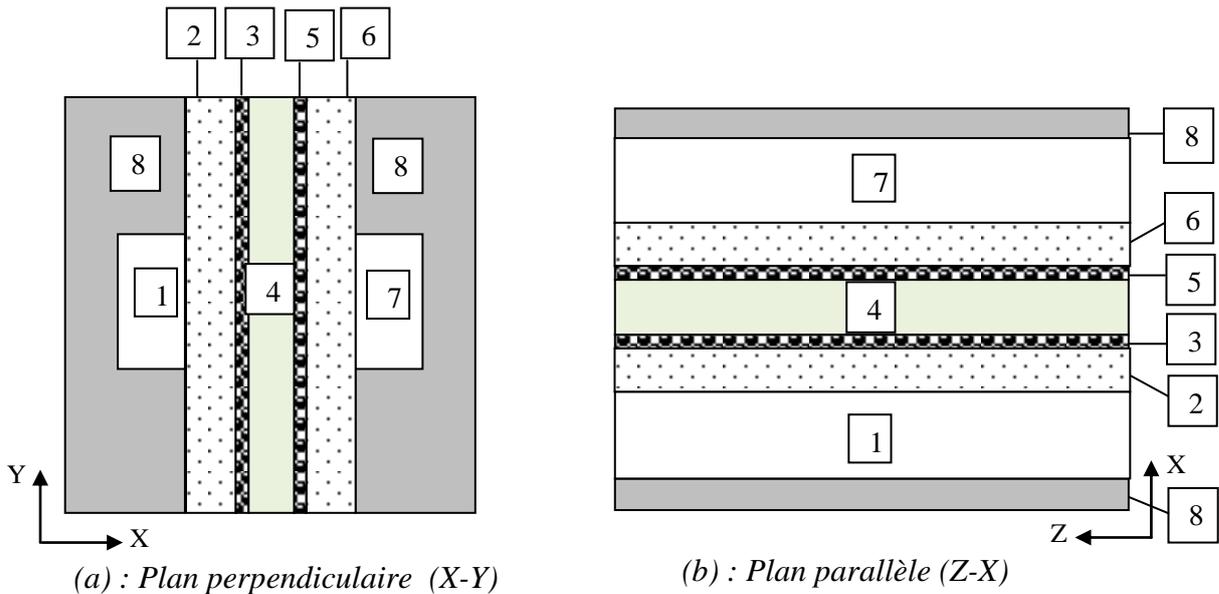
Les différents éléments du modèle sont présentés et détaillés dans ce paragraphe. La géométrie d'une cellule du modèle PEMFC se compose de deux canaux d'écoulement rectiligne coté cathodique et anodique. Ces canaux sont séparés par deux couches de diffusion (GDLs) à l'intérieur desquelles se trouvent les zones de réaction dites actives ou catalytiques (CLs), situées de part et d'autre d'une membrane échangeuse de protons ou électrolyte, communément appelée Membrane-Electrod-Assembly (MEA) comme montré dans la (Figure III.1).



**Figure III.1:** Présentation de différents domaines d'étude de la pile PEMFC.

(a): (plan perpendiculaire  $x$ - $y$ ).

(b): (plan parallèle  $z$ - $x$ ).



**Figure III.2:** Les modèles bidimensionnel des domaines d'étude: (a) plan (x-y) et (b) plan (z-x), ((1) canal anodique, (2) couche de diffusion anodique, (3) couche de catalyseur anodique, (4) membrane, (5) couche de catalyseur cathodique, (6) couche de diffusion cathodique, (7) canal cathodique, (8) plaque bipolaire).

A partir de cette description des différents constituants de la cellule, le domaine de modélisation décrit dans la figure (III.1), dans notre étude, nous considérons deux différents types de géométries les plus utilisés dans la littérature qui diffèrent selon le chemin d'écoulement des gaz. Le premier modèle perpendiculaire à l'écoulement (plan x-y) (Figure III.2: (a)), et le deuxième parallèle à l'écoulement (plan x-z) (Figure III.2: (b)).

### III.2.2 Hypothèses du modèle

La détermination d'un modèle mathématique d'un processus nécessite en général diverses hypothèses simplificatrices afin de limiter sa complexité.

Notre modèle est basé sur les hypothèses suivantes:

- La cellule est alimentée par l'hydrogène et de l'oxygène humides.
- L'état de fonctionnement de la cellule est stationnaire.
- L'écoulement dans les canaux est considéré laminaire.
- Le fluide est incompressible.
- Modèle monophasique (l'eau à l'état vapeur).
- Les couches de diffusion de gaz, des couches de catalyseur, et la couche de membrane sont des matériaux isotropes.
- La membrane est considérée imperméable aux gaz.

### III.3 Écriture du modèle

Le transport des différentes espèces chimiques doit être pris en compte dans le système d'équations décrivant la dynamique des fluides dans les canaux et les zones poreuses. Le modèle consiste en un seul système d'équations à dérivées partielles non linéaires représentant les équations de conservation de masse, de quantité de mouvement, de la continuité, et de l'énergie. Les équations de conservation sont écrites:

- **Equation de continuité**

Le transport des différentes espèces chimiques doit vérifier l'équation de continuité suivante :

$$\frac{\partial \varepsilon \rho U}{\partial x} + \frac{\partial \varepsilon \rho V}{\partial y} = S_m \quad (\text{III.1})$$

Pour toutes les zones de ce modèle, le terme source de masse  $S_m = 0$ .

La porosité  $\varepsilon$  est égale 1 dans les canaux.

- **Equation de quantité de mouvement**

Les champs de vitesse et de pression sont obtenus par la résolution des équations de mouvement qui s'écrivent comme suit :

$$U \frac{\partial \varepsilon \rho U}{\partial x} + V \frac{\partial \varepsilon \rho U}{\partial y} = -\varepsilon \frac{\partial P}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left( \varepsilon \mu^{eff} \frac{\partial U}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \varepsilon \mu^{eff} \frac{\partial U}{\partial y} \right) + S_U \quad (\text{III.2})$$

$$U \frac{\partial \varepsilon \rho V}{\partial x} + V \frac{\partial \varepsilon \rho V}{\partial y} = -\varepsilon \frac{\partial P}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x} \left( \varepsilon \mu^{eff} \frac{\partial V}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \varepsilon \mu^{eff} \frac{\partial V}{\partial y} \right) + S_V \quad (\text{III.3})$$

Les termes sources  $S_U$ ,  $S_V$  sont égaux à zéro dans toutes les zones sauf pour les couches de diffusion de gaz et les couches de catalyseur modélisent le comportement du milieu poreux ils sont basés sur la loi de Darcy.

$$S_U = -\varepsilon \frac{\mu}{k} U \quad (\text{III.4})$$

$$S_V = -\varepsilon \frac{\mu}{k} V \quad (\text{III.5})$$

Où :  $\varepsilon$  : la porosité,  $k$  : la perméabilité de chaque milieu poreux de la pile,  $\mu$  : la viscosité.

▪ **Equation de conservation des espèces**

Le transport des différentes espèces chimiques doit être pris en compte dans le système d'équations décrivant la dynamique des fluides dans les canaux et les zones poreuses. Les fractions massiques des différentes espèces obéissent à une équation de la même forme que l'équation de transport, ou la conservation des espèces est nécessaire pour calculer le bilan massique pour chaque réactif impliqué dans ce modèle.

$$U \frac{\partial \varepsilon \rho Y_i}{\partial x} + V \frac{\partial \varepsilon \rho Y_i}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \rho D_i^{eff} \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \rho D_i^{eff} \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) + S_i \quad (\text{III.6})$$

Où l'indice « i » désigne l'oxygène  $O_2$  côté cathode et l'hydrogène  $H_2$  côté anode et la vapeur d'eau  $H_2O_{vap}$  dans les deux cotés.

Où  $D_i^{eff}$  et  $Y_i$  indiquent respectivement les coefficients de diffusion effective et les fractions molaires des espèces « i ».

Afin de tenir compte des contraintes géométriques des milieux poreux, les diffusivités sont corrigées en utilisant la formule de correction de Bruggemann [1, 2]:

$$D_i^{eff} = D_i \cdot \varepsilon^{1.5} \quad (\text{III.7})$$

$D_i$  représente les coefficients de diffusion des espèces « i » en fonction de température et de pression est exprimée par:

$$D_i = D_i^0 \left( \frac{T}{T^0} \right)^{1.5} \left( \frac{P^0}{P} \right) \quad (\text{III.8})$$

Trois espèces sont prises en compte dans le calcul des termes sources. Ce sont l'hydrogène ( $H_2$ ) à l'anode, l'oxygène ( $O_2$ ), et la vapeur d'eau ( $H_2O_{vap}$ ) à la cathode. Les termes sources  $S_{H_2}$  et  $S_{O_2}$  correspondent à la diminution dans les volumes de contrôle relatifs aux zones de réaction de l'hydrogène et de l'oxygène. Le terme source de l'eau  $S_{H_2O}$ , à la cathode est déduit quant à lui des termes sources  $S_{H_2}$  et  $S_{O_2}$ . La variation des espèces à travers la zone de réaction est imposée par la réaction électrochimique. C'est une fonction qui ne dépend que de la densité de courant et elle est donnée par la loi de Faraday :

$$S_i = -\frac{M_i}{nF} i \quad (\text{III.9})$$

Où :  $i$  est la densité de courant en ( $A.cm^{-2}$ ),  $n$  le nombre d'électrons échangés lors de la réaction,  $F$  la constante de Faraday,  $M_i$  la masse molaire des constituants «  $i$  » en ( $kg.mol^{-1}$ ).

Les réactions chimiques des produits et des réactifs à l'anode et à la cathode sont respectivement:



Dans le cas de la décomposition de l'hydrogène à l'anode,  $n=2$  dans l'équation (III.10). Le terme consommation d'hydrogène s'obtient avec :

$$S_{H_2} = -\frac{M_{H_2}}{2F} i \quad (III.12)$$

L'oxygène étant réduit à la cathode,  $n = 4$  dans l'équation (III.11) et le terme source est :

$$S_{O_2} = -\frac{M_{O_2}}{4F} i \quad (III.13)$$

La quantité d'eau générée à la cathode est donnée par la relation suivante :

$$S_{H_2O} = \frac{M_{H_2O}}{2F} i \quad (III.14)$$

À l'intérieur des zones catalytiques, les densités de courant local  $i$  ( $A.cm^{-2}$ ) sont définies de façon générale comme suit [3]:

$$i_a = i_{0,a}^{ref} \left( \frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \right)^{1/2} \left[ \exp\left( \frac{\alpha_a F}{RT} \eta_{act} \right) - \exp\left( -\frac{\alpha_c F}{RT} \eta_{act} \right) \right] \quad (III.15)$$

$$i_c = i_{0,c}^{ref} \left( \frac{C_{O_2}}{C_{O_2}^{ref}} \right) \left[ \exp\left( \frac{\alpha_a F}{RT} \eta_{act} \right) - \exp\left( -\frac{\alpha_c F}{RT} \eta_{act} \right) \right] \quad (III.16)$$

Où  $i$  : la densité de courant locale,  $i_{0,a,c}^{ref}$  : la densité de courant d'échange de référence,  $C$ : les concentrations d'espèces ( $kg.mol/m^3$ ),  $\alpha$ : le coefficient de transfert (adimensionnel),  $\eta_{act}$  : surtension électrique ou pertes d'activation,  $F$ : la constante de Faraday ( $C.kg/mol$ ).

Les équations (III.15) et (III.16) sont une formulation générale de la fonction de Butler-Volmer. La simplification de cette fonction en tenant compte des termes prépondérants donne les équations de Tafel qui peuvent encore s'écrire:

$$i_a = i_{0,a}^{ref} \left( \frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \right)^{1/2} \exp \left( \frac{\alpha_a F}{RT} \eta_{act} \right) \quad (III.17)$$

$$i_c = i_{0,c}^{ref} \left( \frac{C_{O_2}}{C_{O_2}^{ref}} \right) \exp \left( -\frac{\alpha_c F}{RT} \eta_{act} \right) \quad (III.18)$$

### ▪ Equation d'énergie

Il est également important de comprendre les effets de la variation de température à travers une pile à combustible.

$$\left( \rho C_p \right)_{eff} \left( U \frac{\partial T}{\partial x} + V \frac{\partial T}{\partial y} \right) = \frac{\partial}{\partial x} \left( k_{eff} \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( k_{eff} \frac{\partial T}{\partial y} \right) + S_T \quad (III.19)$$

Avec  $k^{eff}$  : la conductivité thermique effective.

Le terme source de chaleur dans l'équation d'énergie (III.19) inclut :

-La génération de chaleur interne dans la pile à combustible est à l'effet des deux termes dont l'un est dû à des changements d'entropie et l'autre est issu de la chaleur produite par la surtension d'activation des réactions dans le catalyseur [4]:

$$S_T = \left[ \frac{T (-\Delta S)}{n F} + \eta_{act} \right] i \quad (III.20)$$

Où :  $\Delta S$  est le changement d'entropie dans les réactions chimiques,  $n$  est le nombre d'électrons et  $\eta_{act}$  est la surtension d'activation.

-La source de chaleur associée à l'effet Joule qu'est provoqué par la résistance au transfert protonique dans la membrane est donné par:

$$S_T = \frac{i^2}{\sigma_m} \quad (III.21)$$

Où  $\sigma_m$  : conductivité de la membrane, exprimée en fonction de la température et de la teneur en eau  $\lambda$ , exprimé par la corrélation suggérées par Springer [5, 6].

$$\sigma_m = (5.139\lambda - 3.26) \exp \left[ 1268 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (III.22)$$

Les termes sources  $S_m$ ,  $S_u$ ,  $S_v$ ,  $S_T$ ,  $S_i$ , sont résumés dans le tableau (III.1).

**Tableau III.1:** Les termes sources des équations gouvernantes.

Équation gouvernante	Termes sources volumétriques et lieu d'application
Conservation de masse	Pour les canaux de gaz, GDL, la couche de catalyseur anodique et cathodique et la membrane: $S_m = 0$
Conservation de quantité de mouvement	Pour les canaux de gaz: $S_u = S_v = 0$ Pour GDLs, CLs et la membrane: $S_U = -\varepsilon \frac{\mu}{k} U$ , $S_V = -\varepsilon \frac{\mu}{k} V$
Conservation d'énergie	Pour les canaux de gaz et GDLs: $S_T = 0$ Pour CLs anodique: $S_T = \eta_{act} \cdot i + \frac{i^2}{\sigma_{cat}}$ Pour CL cathodique: $S_T = \left[ \frac{T(-\Delta S)}{n_e F} + \eta_{act} \right] i + \frac{i^2}{\sigma_{cat}}$ Pour la membrane: $S_T = \frac{i^2}{\sigma_m}$
Le transport de l'hydrogène	Pour la couche de catalyseur d'anode: $S_{H_2} = -\frac{M_{H_2}}{2F} i$
Le transport de l'oxygène	Pour la couche de catalyseur de cathode: $S_{O_2} = -\frac{M_{O_2}}{4F} i$
Transport de la vapeur d'eau	Pour la couche de catalyseur de cathode: $S_{H_2O} = \frac{M_{H_2O}}{2F} i$

### III.4 Tension de la cellule

Le potentiel réel d'une cellule (V) est diminué de son potentiel thermodynamique d'équilibre ( $E_{Nemest}$ ) en raison de pertes irréversibles. Le potentiel V est obtenu en soustrayant toutes les surtensions (pertes) de la potentielle thermodynamique d'équilibre comme l'expression suivante [7, 8]:

$$V_{pile} = E_{Nemest} - \eta_{act} - \eta_{ohm} - \eta_{conc} \quad (III.23)$$

-Le potentiel d'équilibre  $E_{Nernst}$  est déterminé en utilisant l'équation de Nernst [5,9]:

$$E_{Nernst} = 0,0025T + 0,2329 \quad (\text{III.24})$$

-Les principales sources de surtensions ohmiques  $\eta_{ohm}$  sont attribuées au transport des protons dans la membrane.

$$\eta_{ohm} = R_m \cdot i \quad (\text{III.25})$$

La résistance de la membrane  $R_m$  ( $\Omega m^2$ ) dépend fortement de son taux d'humidification et de sa température. Le matériau le plus utilisé dans la membrane de la pile PEM est le Nafion. L'expression de la résistance électrique du Nafion d'après la loi d'ohm [10]:

$$R_{ohm} = \frac{H_m}{\sigma_m (\lambda)} \quad (\text{III.26})$$

$\sigma_m$  : Conductivité de la membrane (S/m),

$H_m$  : Epaisseur de la membrane (m).

-Lorsque l'équation de Tafel est écrite en termes de surtension d'activation  $\eta_{act}$ , la forme d'expression devient [11]:

$$\eta_{act} = 2,303 \frac{RT}{\alpha_c F} \ln \left( \left| \frac{i}{i_0} \right| \right) \quad (\text{III.27})$$

-Le transport de masse affecte les concentrations d' $H_2$  et d' $O_2$  à cause de la diminution des pressions partielles de ces gaz. Cette polarisation est exprimée par la relation de J.Larminie [12]:

$$\eta_{conc} = -B \ln \left( 1 - \frac{i}{i_L} \right) \quad (\text{III.28})$$

$i_L$  : Courant limite,

$B$  : Terme relatif à chaque réactif, est égal:

-Pour l'hydrogène:  $\left( \frac{RT}{2\alpha F} \right)$ ,

-Pour l'oxygène:  $\left( \frac{RT}{4\alpha F} \right)$ .

-A partir des équations précédentes il est intéressant de tracer les densités de puissance électrique utile en fonction de la densité de courant. Cette densité de puissance  $P_{elec}$  est donnée par :

$$P_{elec} = V_{pile} \times i \quad (W / m^2) \quad (III.29)$$

### III.5 Simulation numérique

La simulation se définit comme l'utilisation ou la résolution de modèles correspondant à un système donné pour étudier le comportement de ce dernier dans un contexte précis. Elle est la suite logique de la modélisation qui est la première approche d'une simulation.

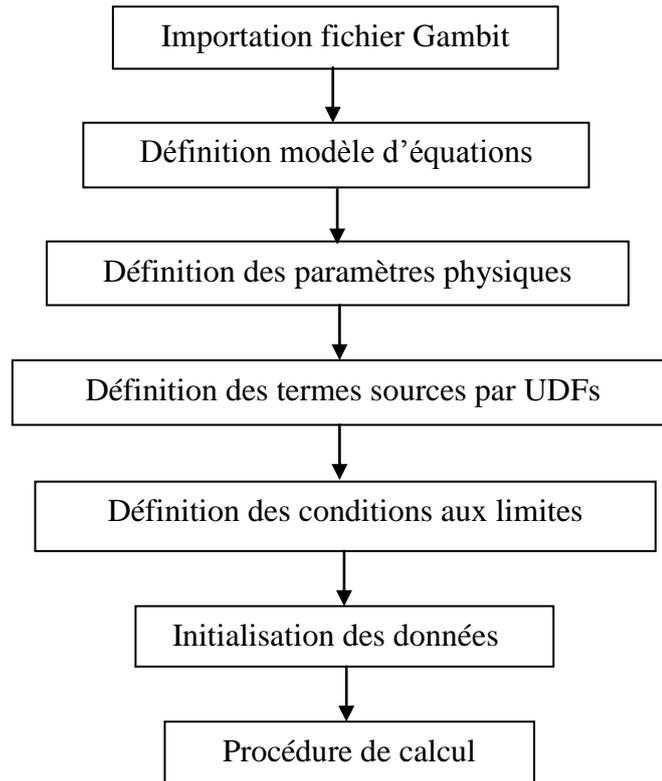
#### III.5.1 Outil de simulation Gambit et Fluent

##### A/ Mise en place du modèle

La mise en place du modèle dans Fluent nécessite deux étapes majeures. La première consiste à produire le schéma et le maillage de la cellule en employant un logiciel approprié au code CFD à savoir GAMBIT, version 2.4. On spécifie les différentes zones de la cellule en leur attribuant respectivement les caractéristiques physiques appropriées. La seconde étape consiste à exporter le schéma de la cellule vers Fluent et à définir les conditions aux limites afin de procéder à la simulation.

##### B/ Procédure de calcul

La procédure de calcul requiert un certain nombre d'opérations au préalable dont le synoptique global est donné en Figure (III.3).

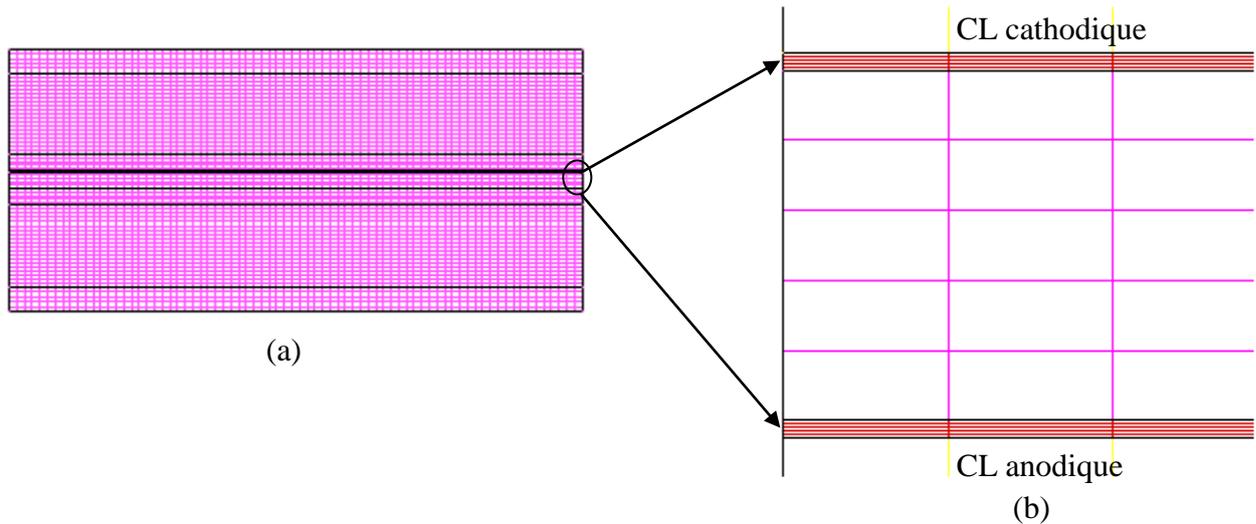


*Figure III.3 : Procédure générale de simulation.*

### III.5.2 Présentation du maillage

Le maillage qui a été utilisée pour le domaine de la modélisation est représenté sur la Figure (III.4: (a)). Dans le MEA, le maillage est également construit avec un raffinement élevé dans la couche de catalyseur, parce que sont très minces. Le schéma utilisé dans la division des mailles est présenté à la Figure (III.4: (b)).

Le nombre total des mailles était d'environ (85×100). La solution est considérée comme étant convergente lorsque l'erreur relative de chaque variable dépendante entre deux itérations consécutives est inférieure à  $10^{-5}$ .



**Figure III.4:** (a): Présentation générale du maillage, (b): Maillage des zones de catalyseurs.

### III.5.3 Conditions aux limites

Les conditions aux limites doivent être définies pour les simulations de piles à combustible PEM, basées sur la spécification du problème, les termes sources traduisant les réactions électrochimiques sont intégrés dans le modèle par l'intermédiaire d'une commande UDFs (User Define Functions) (Annex « A ») [13].

La définition de la géométrie du maillage et les conditions aux limites ont été effectuées en utilisant Gambit, après que le maillage a été exporté vers Fluent.

Dans ce modèle, les conditions aux limites ont été définies comme suit:

- dans les zones d'entrée (velocity inlet type) et de sortie (symmetry type) pour les canaux de gaz d'anode et de cathode;
- parois (wall type) représentant des canaux d'anode et de la cathode; ainsi que le collecteur de courant de l'anode et la cathode;
- et la continuité entre chaque composante du MEA et la couche de diffusion de gaz (interior type).

### III.6 Paramètres de modélisation

Parmi les parties les plus fastidieuses du développement du modèle est la détermination des paramètres corrects pour le modèle, qui finira par déterminer la précision des résultats.

L'ensemble des paramètres utilisés pour nos modélisations sont répertoriées dans les tableaux suivants.

### III.6.1 Paramètres géométriques

Les paramètres géométriques utilisés pour les simulations sont présentés dans le Tableau (III.2).

*Tableau III.2: les paramètres géométriques utilisés dans le modèle.*

Paramètre	symbole	Valeurs	unité	référence
Longueur de Cellule/Electrode	$L$	$7 \times 10^{-3}$	(m)	[25]
Hauteur des canaux de gaz	$H_{ch}$	$1 \times 10^{-3}$	(m)	[19, 22, 24]
Hauteur des plaques bipolaires PB	$H_{PB}$	$0,3 \times 10^{-3}$	(m)	-
hauteur des diffuseurs anode, cathode GDL	$H_{GDL}$	$0,2 \times 10^{-3}$	(m)	[26]
hauteur des couches de catalyseurs anode, cathode CL	$H_{CL}$	$1 \times 10^{-6}$	(m)	[19, 28]
Hauteur de membrane (Nafion 117)	$H_m$	$0.2 \times 10^{-3}$	(m)	-
Porosité des diffuseurs	$\varepsilon_{gdl}$	0.4	-	[15, 19, 24, 25, 28]
Porosité de la membrane	$\varepsilon_m$	0.2	-	[28]

### III.6.2 Paramètres des cinétiques de réaction

Les valeurs des paramètres de transport électrochimiques sont tirées de la réf. [19] et [23] et sont donnés dans le tableau III.3.

*Tableau III.3: Paramètres des Cinétiques de réaction.*

Paramètre	symbole	Valeurs	unité	référence
Constante de Faraday	$F$	96485	( $C.mol^{-1}$ )	-
constante universelle des gaz	$R$	8.314	( $J.K^{-1}.mol^{-1}$ )	-
Coefficient de transfert de charge coté anodique	$\alpha_a$	0.5	( $m^2$ )	[19]
Coefficient de transfert de charge, coté cathodique	$\alpha_c$	1	( $m^2 / s$ )	[19]
Densité de courant d'échange, coté anodique	$i_{0,a}$	$1 \times 10^2$	( $A / m^2$ )	[23]
Densité de courant d'échange, coté cathodique	$i_{0,c}$	$4 \times 10^{-3}$	( $A / m^2$ )	[23]
Courant limite	$i_L$	$1.3 \times 10^4$	( $A / m^2$ )	-

### III.6.3 Les conditions d'entrée

Le Tableau (III.4) donne les paramètres d'entrée de notre modèle de piles à combustible.

Les valeurs des paramètres de fonctionnement varient avec le cas de fonctionnement étudié mais elles sont précisées dans le texte pour chaque cas étudié.

**Tableau III.4:** Paramètres d'entrée.

Paramètre	symbole	Valeurs	unité	référence
Température d'entrée d'hydrogène et d'oxygène	$T_e$	353	(K)	[15, 19, 24, 25]
Pression d'entrée des gaz	$P_a, P_c$	101 325	(Pa)	[19, 22, 24, 27]
Vitesse d'entrée	$U_e$	0.5	(m / s)	-
Fraction molaire d'hydrogène à l'anode	$Y_{H_2,a}$	0.9	-	-
Fraction molaire de la vapeur d'eau à l'anode	$Y_{H_2O_{vap},a}$	0.1	-	-
Fraction molaire d'oxygène à cathode	$Y_{O_2,c}$	0.9	-	-
Fraction molaire de la vapeur d'eau à cathode	$Y_{H_2O_{vap},c}$	0.1	-	-

### III.6.4 Paramètres de transport de matière

Pour les diffusivités de gaz dans les équations de conservation de masse sont données dans le tableau (III.5), des valeurs déterminées expérimentalement ont été prises et mises à l'échelle pour la température et la pression [13].

**Tableau III.5:** Paramètres de transport utilisé dans la modélisation.

Paramètre	symbole	Valeurs	unité	référence
Perméabilité des électrodes	$k$	$1.76 \times 10^{-11}$	( $m^2$ )	[15, 19, 24, 25]
Coefficient de diffusion d' $H_2$ dans l'anode (353 K, 1 atm)	$D_{H_2}^0$	$1.1028 \times 10^{-4}$	( $m^2 / s$ )	[27]
Coefficient de diffusion d' $O_2$ dans la cathode (353 K, 1 atm)	$D_{O_2}^0$	$3.2348 \times 10^{-5}$	( $m^2 / s$ )	[27]
Coefficient de diffusion d' $H_2O$ dans l'anode (353 K, 1 atm)	$D_{H_2O,a}^0$	$1.1028 \times 10^{-4}$	( $m^2 / s$ )	[27]
Coefficient de diffusion d' $H_2O$ dans la cathode (353 K, 1 atm)	$D_{H_2O,c}^0$	$3.8900 \times 10^{-5}$	( $m^2 / s$ )	[27]
Densité de la membrane sèche	$\rho_m^{dry}$	2000	( $Kg.m^{-3}$ )	[18, 26, 27]
Masse moléculaire de la membrane	$M^m$	1.1	( $Kg.mol^{-1}$ )	[26, 27]
Masse molaire de l'hydrogène	$M_{H_2}$	$2 \times 10^{-3}$	( $Kg.mol^{-1}$ )	-
Masse molaire de l'oxygène	$M_{O_2}$	$32 \times 10^{-3}$	( $Kg.mol^{-1}$ )	-
Masse molaire de l'eau	$M_{H_2O}$	$18 \times 10^{-3}$	( $Kg.mol^{-1}$ )	-
Changement d'entropique de la réaction du coté cathodique	$\Delta S$	-326.36	( $J / mol.K$ )	[19]

### III.6.5 Définition des caractéristiques des matériaux

L'écriture du modèle nécessite la connaissance des propriétés thermo physiques des différents matériaux constituant le cœur de la pile c-à-d la matrice solide et la nature de fluide. Les caractéristiques du fluide sont chargées à partir de la bibliothèque de données de Fluent.

**Tableau III.6:** Propriétés physique du fluide utilisées dans la simulation.

Fluide	Masse volumique $\rho$ (Kg /m <sup>3</sup> )	Capacité thermique massique $C_p$ (J/Kg K)	Conductivité thermique $k$ (W/mK)	Viscosité $\mu$ (Kg/m s)
Hydrogène (H <sub>2</sub> )	0.08189	14283	0.1672	8.411×10 <sup>-6</sup>
Oxygène (O <sub>2</sub> )	1.2999	919.31	0.0246	1.919×10 <sup>-5</sup>
Eau vapeur (H <sub>2</sub> O <sub>vap</sub> )	0.5542	2014	0.0261	1.34×10 <sup>-5</sup>
Eau liquide (H <sub>2</sub> O <sub>liq</sub> )	998.2	4182	0.6	0.001003

Les conductivités thermiques des plaques bipolaires (PB), des zones de diffusion (GDLs) et de la membrane sont des paramètres importants influant grandement les champs de température dans la pile. Il faut noter que le caractère poreux des milieux constituant le cœur de pile (zone de diffusion et membrane) modifie les transferts thermiques en leur sein.

Ainsi les conductivités utilisées dans ce modèle sont des conductivités effectives représentant le transfert conductif dans le matériau et dans ses pores. Elles sont fortement dépendantes de la nature et de la géométrie de la matrice solide, et de la nature du fluide interstitiel.

Les trois grandeurs déterminant les caractéristiques thermiques d'un matériau sont les suivantes :

- a) Conductivité thermique  $\lambda$ , en (W/m. k): flux de chaleur transmis par conduction au travers d'un corps soumis à un gradient de température de 1k/m. D'après la littérature les auteurs proposent d'utiliser des conductivités effectives représentatives du transfert conductif voire conducto-convectif dans le matériau et dans ses pores.

**Tableau III.7:** Valeurs des conductivités des diffuseurs dans la littérature.

Conductivité thermique effectives des diffuseurs $k_{eff}$ (W/m.K)	Conductivité thermique de membrane $k_m$ (W/m.K)	Auteurs
1.3	0.45	[16]
1.5	-	[15]
75	0.67	[18]
1.6	0.34	[17]
1.3	0.455	[19]
8	8	[20]
15.6	0.43	[21]

Ainsi les valeurs utilisées dans la littérature peuvent présenter des ordres de grandeur différents selon qu'on ait pris en compte la phase liquide ou pas.

b) Capacité thermique massique  $C_p$  [J/Kg. K].

c) Masse volumique  $\rho$  [Kg/m<sup>3</sup>].

A partir des trois grandeurs on peut calculer la diffusivité thermique  $\alpha$ , en (m<sup>2</sup>/s) dans l'équation d'énergie: elle caractérise la vitesse de pénétration et l'atténuation d'une onde thermique dans un milieu. Elle caractérise les influences des cycles quotidiens et mensuels.

$$\alpha = \frac{\lambda}{\rho C_p} \quad (\text{III.30})$$

Les caractéristiques des matériaux sont données dans le tableau suivant :

**Tableau III.8:** Propriétés physique des matériaux utilisées dans la simulation.

Matériaux	Composite Cellule	Densité $\rho$ (Kg /m <sup>3</sup> )	Capacité thermique massique $C_p$ (J/Kg.K)	Conductivité thermique $k$ (W/m.K)
Graphite	Plaque bipolaire (PB)	1600	710	28
Téflon	Zones de diffusions (GDL) et active (CL)	2200	1000	0.15
Nafion 117	Membrane	2240	1046	0.186

**III.6.6 Propriétés thermo-physiques**

Différents modèles permettent l'estimation de la conductivité effective d'un milieu poreux à partir de sa porosité et des conductivités respectives de la phase solide et de la phase fluide.

La conductivité effective se calcule directement à partir de la loi des mélanges :

$$k_{eff} = \varepsilon k_f + (1 - \varepsilon) k_s \tag{III.31}$$

avec  $k_s$  la conductivité de la phase solide et  $k_f$  celle de la phase fluide, et  $\varepsilon$  la porosité du milieu.

Les valeurs de chaleur massique spécifique équivalente des milieux sont également fournies pour leur utilité future en régime transitoire. La chaleur massique équivalente se calcule directement à partir de la loi des mélanges :

$$(\rho C_p)_{eff} = \varepsilon (\rho C_p)_f + (1 - \varepsilon) (\rho C_p)_s \tag{III.32}$$

Les valeurs de chaleur spécifique équivalente des milieux poreux (la membrane et les diffuseurs) et un encadrement de leur conductivité thermique effective sont donnés dans le tableau (III.9). Ces valeurs sont à comparer à celles proposées dans la littérature (tableau (III.7)).

**Tableau III.9:** Conductivités thermiques effectives et chaleurs volumiques spécifiques des milieux considérés.

Paramètre	Diffuseurs			Membrane		Plaques bipolaires
	Par phase			Par phase		
	Tèflon	H <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	Nafion 117	H <sub>2</sub> O <sub>liq</sub>	Graphite (gr)
$k$ (W / mK)	0.15	0.1672	0.0246	0.186	0.6	28
$\rho C_p$ (J / Km <sup>3</sup> )	2.2×10 <sup>6</sup>	1.16×10 <sup>3</sup>	1.19×10 <sup>3</sup>	2.34×10 <sup>6</sup>	4.17×10 <sup>6</sup>	1.13×10 <sup>6</sup>
	Pour le milieu			Pour le milieu		Pour le milieu
$k_{eff}$ (W / mK)	0.15			0.26		28
$(\rho C_p)_{eff}$ (J / Km <sup>3</sup> )	1.32×10 <sup>6</sup>			2.7×10 <sup>6</sup>		1.13×10 <sup>6</sup>

### III.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le modèle physique avec une description générale de ces équations de transport et des quantités de mouvement pour tenir compte des propriétés de l'écoulement, ainsi que les conditions aux limites et les différents termes source de chaleur dans l'équation d'énergie provoquant un échauffement.

Un outil de simulation, le code CFD Fluent a été choisi pour la résolution de notre modèle et pour cela, le synoptique général de calcul a été présenté avec les propriétés thermo-physiques utilisées.

A la connaissance de tous ces éléments combinés, il conviendrait de présenter les résultats fiables par voie de simulation. C'est le but envisagé dans le chapitre suivant.

## III.8 Références bibliographiques

- [1] Berning T, Lu DM, Djilali N, Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell, *J Power Sources*, 106(1–2) (2002) 284–94.
- [2] Nguyen PT, Berning T, Djilali N. Computational model of a PEM fuel cell with serpentine gas flow channels, *J Power Sources*, 130(1–2) (2004) 149–57.
- [3] A.J.Bard, L.R.Faulkner, *Electrochemical Methods*, Wiley, New York, 1980.
- [4] Lampinen MJ, Fomino M. Analysis of free energy and entropy changes for half-cell reactions. *J Electrochem Soc*, 140(12) (1993) 3537–46.
- [5] T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, Polymer electrolyte fuel cell model, *Journal of the Electrochemical Society*, 138 (8) (1991) 2334-2342.
- [6] T.A. Zawodzinski, T.E. Springer, J. Davey, A comparative study of water uptake by and transport through ionomeric fuel cell membranes, *Journal of Electrochemical Society*, 140 (1993) 1981.
- [7] D.M. Bernardi, M.W. Verbrugge, A mathematical model for the solid-polymer-electrode fuel cell, *J. Electrochem. Soc.*, 139 (1992) 2477–2491.
- [8] Gurau V, Liu H, Kakac S, Two-dimensional model for proton exchange Membrane fuel cells, *AIChEJ*, 44 (11) (1998) 2410–22.
- [9] Al-Baghdadi MARS, Al-Janabi HAKS, Modeling optimizes PEM fuel cell performance using three-dimensional multi-phase computational fluid dynamics model, *Energy Convers Manag*, 48(12) (2007) 3102–19.
- [10] K. B. Oldham and J. C. Myland, Fundamentals of Electrochemical Science, *Academic Press*, 1994.
- [11] E. A. Ticianelli, C. R. Derouin, A. Redondo, and S. Srinivasan, Methods to Advance Technology of Proton Exchange Membrane Fuel Cells, *J. Electrochem. Soc.*, 135(9) (1988) 2209–2214.
- [12] J.Larminie, Fuel Cell Systems Explained, *Andrew Dicks.-2<sup>nd</sup> ed.p.cm.* 2003.
- [13] Fluent 6.3 UDF Guide, *Fluent Inc., Nh, USA*, Chap. 1-3.
- [14] E. L. Cussler, Diffusion–Mass Transfer in Fluid Systems, Cambridge University Press, 1984.
- [15] M.Hu, A. Gu , M.Wang , X.Zhu , L.Yu, Three dimensional, two phase flow mathematical model for PEM fuel cell: Part I. Model development, *Energy Conversion and Management*, 45 (2004) 1861–1882.
- [16] M.A.R. Sadiq Al-Baghdadi, H.A.K. Shahad Al-Janabi, Modeling optimizes PEM fuel cell performance using three-dimensional multi-phase computational fluid dynamics model, *Energy Conversion and Management* , 48 (2007) 3102–3119.
- [17] J. Ramousse, J. Deseure, O. Lottin, S. Didierjean, D. Maillet, Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell, *Journal of Power Sources*, 145 (2005) 416–427.
- [18] D.S. Falcão, V.B.Oliveira, C.M.Rangel, C.Pinho, A.M.F.R.Pinto, Water transport through a PEM fuel cell: A one-dimensional model with heat transfer effects, *Chemical Engineering Science*, 64 (2009) 2216-2225.

- [19] Maher A.R. Sadiq Al-Baghdadi, Performance comparison between airflow-channel and ambient air-breathing PEM fuel cells using three-dimensional computational fluid dynamics models, *Renewable Energy*, 34 (2009) 1812–1824.
- [20] G. He, Y. Yamazaki, A. Abudula, A droplet size dependent multiphase mixture model for two phase flow in PEMFCs, *Journal of Power Sources*, 194 (2009) 190–198.
- [21] M. Acosta, C. Merten, G. Eigenberger, H. Class, R. Helmig, B. Thoben, H. Muller-Steinhagen, Modeling non-isothermal two-phase multicomponent flow in the cathode of PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, 159 (2006) 1123–1141.
- [22] R. Lemoine-Nava, R. Hanke-Rauschenbach, M. Mangold, Kai Sundmacher, The gas diffusion layer in polymer electrolyte membrane fuel cells: A process model of the two-phase flow, *International Journal of Hydrogen Energy*, 36 (2011) 1637-1653.
- [23] Berning T, Lu DM, Djilali N, Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell—a parametric study, *Journal of Power Sources*, 124 (2003) 440-452.
- [24] N. K. Hosseini-Dalasm, K. Fushinobu, K. Okazaki, Three-dimensional transient two phase study of the cathode side of a PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35 (2010) 4234-4246.
- [25] Chun-I Lee, Hsin-Sen Chu, Effects of cathode humidification on the gas–liquid interface location in a PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, 161 (2006) 949–956.
- [26] K.W.Lum, J. J. McQuirk, Three-dimensional model of a complete polymer electrolyte membrane fuel cell – model formulation, validation and parametric studies, *Journal of Power Sources*, 143 (2005) 103–124.
- [27] Chi-Young Jung, Chi-Hoon Park, Young-Moo Lee, Wha-Jung Kim, Sung-Chul Yi, Numerical analysis of catalyst agglomerates and liquid water transport in proton exchange membrane fuel cells, *International Journal of Hydrogen Energy*, 35 (2010) 8433-8445.
- [28] H. Meng, Multi-dimensional liquid water transport in the cathode of a PEM fuel cell with consideration of the micro-porous layer (MPL), *International Journal of Hydrogen Energy*, 34 (2009) 5488-5497.

# **Chapitre IV**

**Interprétation et  
discussion des résultats**

## IV.1 Introduction

Nous avons présenté dans le chapitre précédent, un modèle monophasique stationnaire d'une cellule du type PEM à géométrie planaire. L'objectif de ce chapitre est donc de mettre en place une description des phénomènes de transport de matière ainsi que de chaleur dans la cellule. Seul le régime permanent est considéré et les modèles décrits sont bidimensionnels. Plus précisément, il s'agit de construire un modèle qui prend en compte la plupart des phénomènes interagissant au sein de la cellule afin de prévoir les conditions de fonctionnement optimales pour de meilleures performances électriques.

Dans un premier temps, Les résultats des simulations pour le premier modèle figure (III.1 :(a)) fournit les profils et les champs de température dans la cellule en fonction de la densité de courant, la répartition et la quantification des sources de chaleur sont présentés.

Nous avons présenté l'importance de la conductivité thermique des couches de diffusion de gaz sur la répartition de température.

Par la suite, nous intéresserons au transport de la phase gazeuse dans les diffuseurs anodique et cathodique, les canaux et de l'eau dans la membrane Figure (III.1 :(b)), le modèle choisi dans notre étude est employé, pour évaluer l'influence des paramètres physiques (la densité de courant, la vitesse d'entrée des gaz, la teneur en eau, la température d'entrée des gaz) et les paramètres géométriques ( l'épaisseur de la membrane, la porosité, la longueur du canal) sur la répartition de l'eau et les réactifs dans le cœur de la pile (AME) et les canaux d'alimentation.

Les résultats des simulations ont pu montrer l'influence de la température et la teneur en eau sur les performances électriques de la pile.

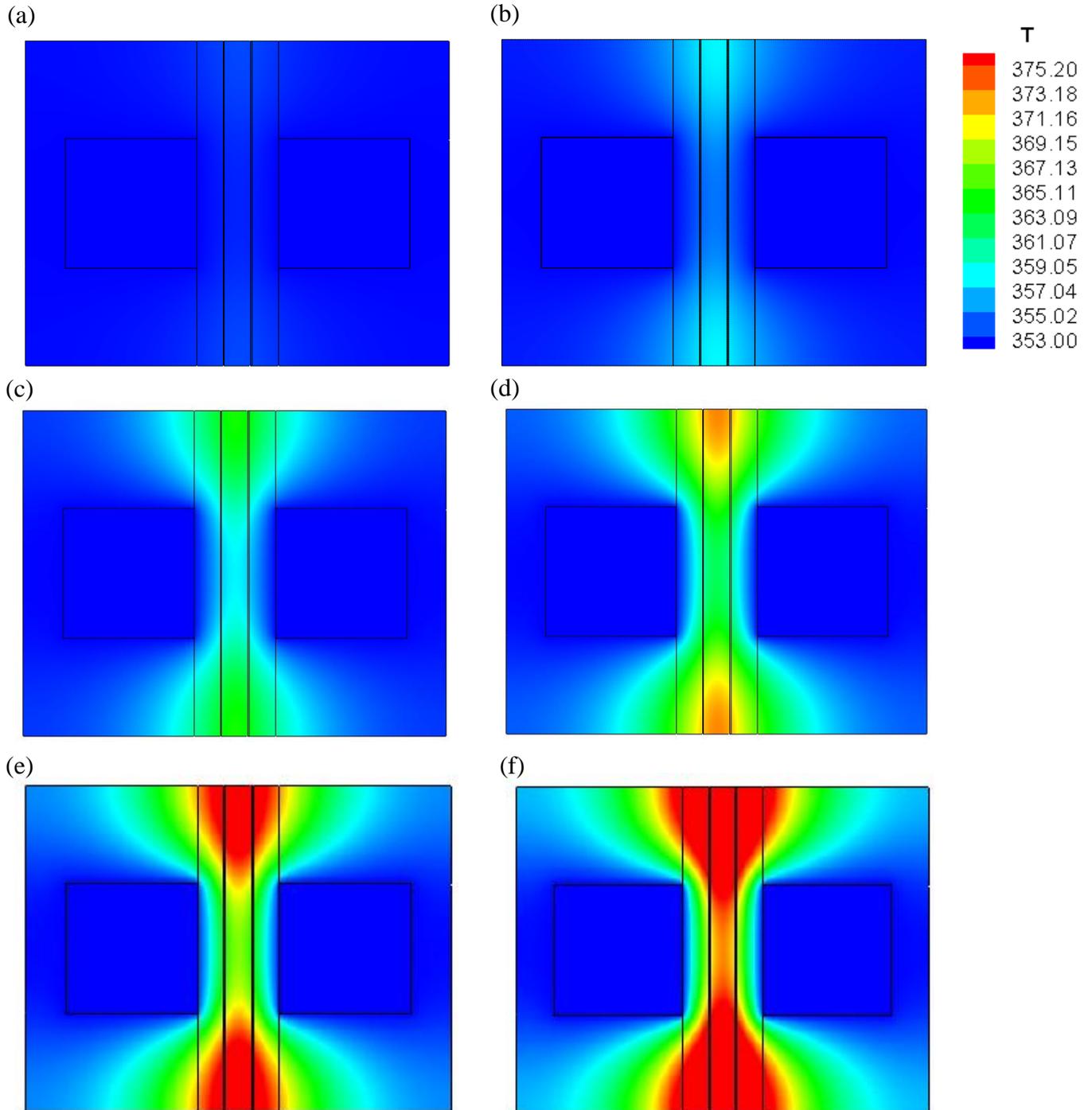
## IV. 2 Modèle bidimensionnel monophasique dans la direction perpendiculaire suivant la direction « x »

### IV. 2.1 Profils thermiques

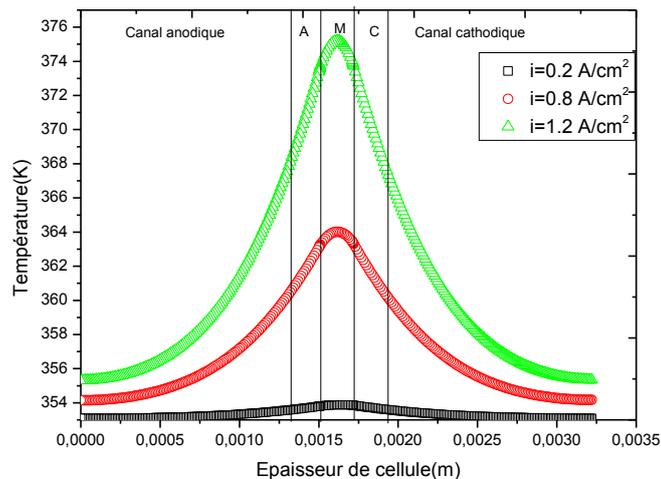
#### IV.2.1.1 Distribution de la température dans la cellule

La distribution de la température à l'intérieur de la pile à combustible à des effets importants presque sur tous les phénomènes de transport, et la connaissance de l'ampleur des augmentations de température en raison des irréversibilités pourrait aider à prévenir l'échec [1].

La figure (IV. 1, 2) présente la distribution et les profils des températures en (K) trouvées par simulation (FLUENT), pour différentes valeurs des densités de courant variant de 0.2 à 1.2 A/ cm<sup>2</sup> dans l'épaisseur de la cellule.



**Figure IV.1 :** Distribution de température à l'intérieur de la cellule pour différentes valeur de densité de courant:  $i=a)0.2, b)0.4, c)0.6, d)0.8, e)1, f)1.2A/cm^2$ .



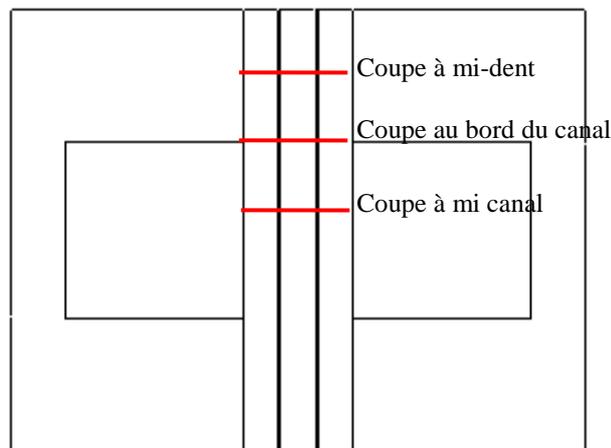
**Figure IV.2 :** Profils de température dans la cellule pour différentes valeurs de densité de courant.

On constate la forte dépendance de température et la densité de courant, cette dépendance est liée aux mécanismes physiques à l'origine des principales sources de chaleur: surtensions d'électrode, effet Joule dans la membrane et entropie de réaction dans la cathode. Tous ces phénomènes sont proportionnels à la densité de courant.

Les résultats présentés ont montré que le niveau global d'augmentation de la température dans l'AME zone principale de la production de chaleur par réaction électrochimique et la baisse température dans la région des canaux. Un gradient de température est minimum de l'ordre de 0.8 K à une faible densité de courant de 0.2 A/cm<sup>2</sup>, et le gradient maximal de température de  $\Delta T = 22.2K$  à une densité de courant de 1.2 A/cm<sup>2</sup>.

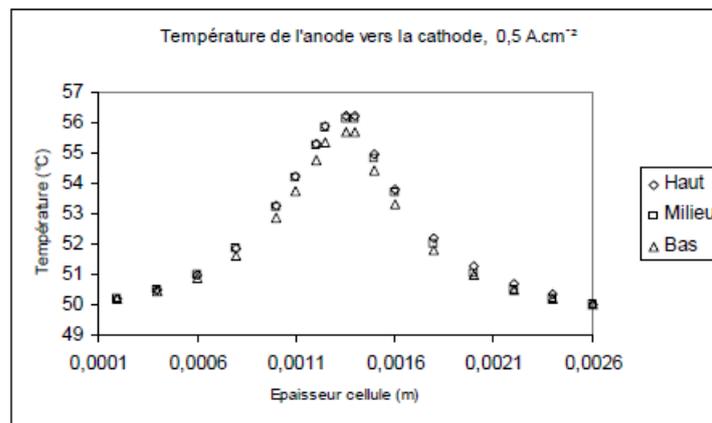
#### IV.2.1.2 Profil de température suivant différents axes

Nous avons tracé les profils thermiques suivant trois axes différents : à mi-dent, à mi-canal et au bord du canal comme représenté dans la figure (IV. 3), ces axes sont choisis à partir du modèle du J. Paul [2] afin d'évaluer les gradients de température dans l'AME (Electrode-Membrane-Electrode).

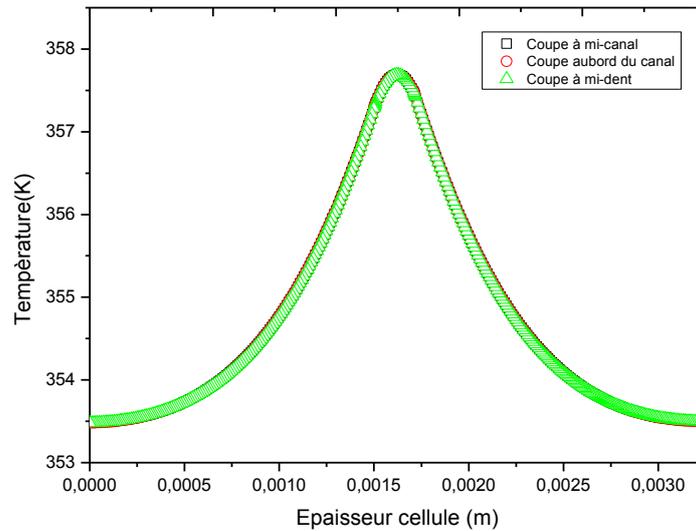


**Figure IV.3:** Positions des axes du tracé des profils de température dans l'AME [2].

Les résultats de J.Paul [2] pour une mono cellule sont présentés dans la figure (IV.4), il trouve que les températures maximales des parties hautes sont plus élevées de  $6^{\circ}\text{C}$  à  $0.5 \text{ A/cm}^2$  que celles des parties basses. Dans nos simulations (figure (IV.5)) on a trouvé un gradient de  $5^{\circ}\text{C}$  à  $0.5 \text{ A/cm}^2$ , cela s'explique par la richesse en gaz de la partie haute de la cellule et les réactions chimiques sont plus importantes.



**Figure IV.4:** Profil de température en fonction du positionnement pour une mono cellule [2].

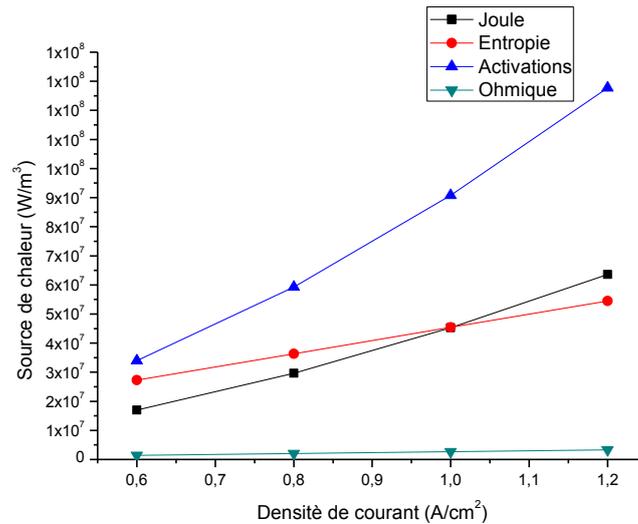


**Figure IV.5:** Profil de température suivant différents axes à  $i=0.5A/m^2$ ,  $T=353K$ .

#### IV.2.2 Distribution des sources de chaleur dans la cellule

On a montré dans le chapitre (II) les différentes sources principales de la chaleur et le lien entre les surtensions électriques et les dégagements de chaleur. Nous intéressons dans cette partie à la quantification des sources de chaleur et son localisation dans les différentes zones de l'AME.

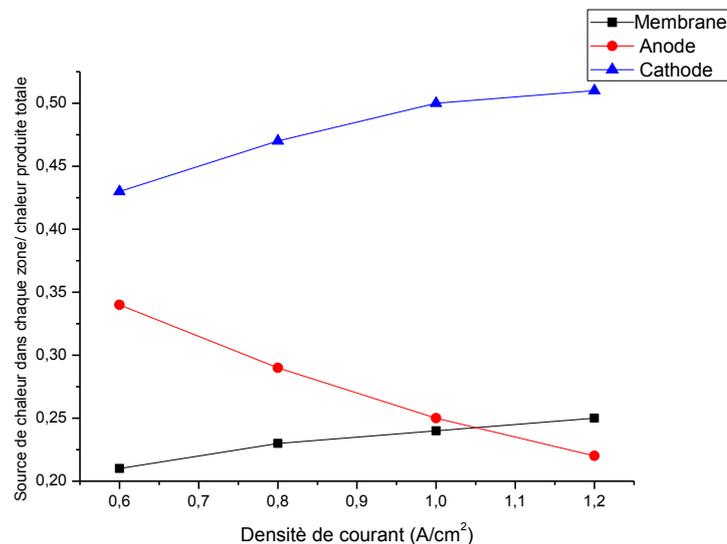
La Figure (IV.6) présente la quantification et distribution des termes source de chaleur dans chaque zone à une densité de courant de  $0.8A/cm^2$ . On peut observer, la chaleur produite par les irréversibilités électrochimiques (les surtensions d'activations aux électrodes) sont à l'origine de la majeure partie de chaleur dégagée, puis la source de chaleur associée à l'effet Joule dans la membrane, ensuite la chaleur réversible produite par changement d'entropie dans le catalyseur cathodique est presque du même ordre de grandeur, enfin la chaleur produite associées aux sources ohmique sont moins importants, ci pour cette raison ces termes sont négligeables par d'autres auteurs. Les résultats obtenus sont confirmés par ceux proposés par J. Ramousse [3].



**Figure IV.6:** Répartition et quantification des termes sources dans le cœur de la cellule.

La Figure (IV.7) présente la localisation des sources de chaleur dans chaque zone à la chaleur totale de la pile c'est-à-dire le rapport entre les sources de chaque zone et la chaleur totale.

On peut observer que les surtensions à l'anode sont faibles devant celles à la cathode c'est-à-dire les sources de chaleur sont alors plus importantes à la cathode qu'à l'anode qui représente jusqu'à 50% de la chaleur totale produite dans le cœur de pile.

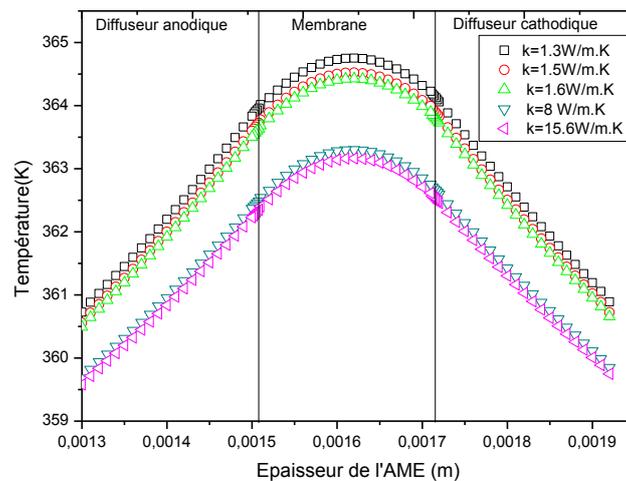


**Figure IV.7:** Localisation des sources de chaleur dans le cœur de la cellule.

### IV.2.3 Effet de la conductivité thermique

La Figure (IV.8) présente les profils de températures en fonction de différentes conductivités thermiques des couches de diffusion de gaz. Nous n'avons comparé les gradients de température pour différentes valeurs de la littérature Tableau (III.7).

On constate que la température baisse lorsque les conductivités thermiques augmentent. Les gradients thermiques et l'échauffement de l'AME sont directement liés à la conductivité thermique des diffuseurs.



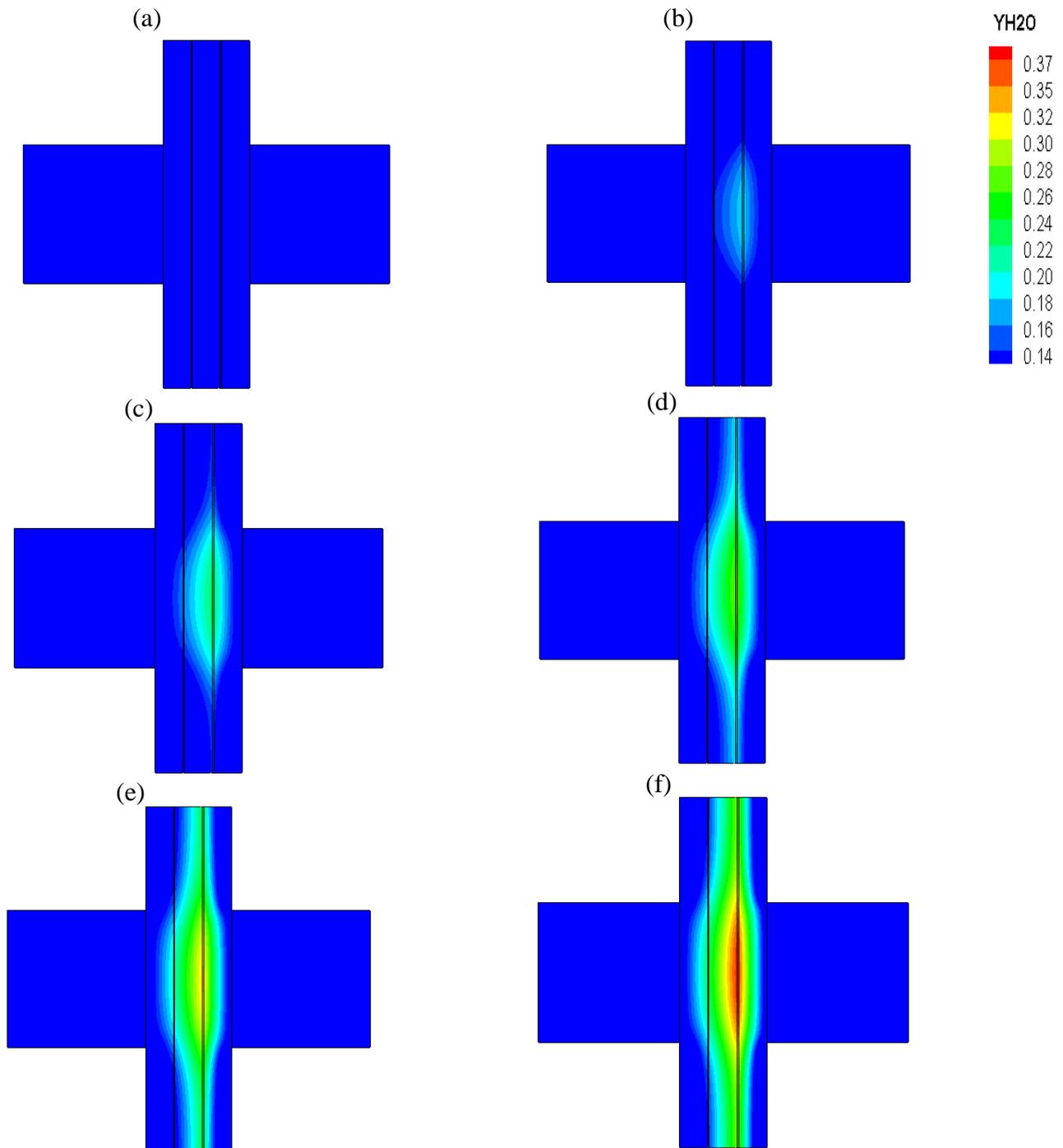
**Figure IV.8:** Profil de température pour différentes valeurs de conductivité thermique des diffuseurs pour  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T=353K$ .

### IV.2.4 Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans la cellule

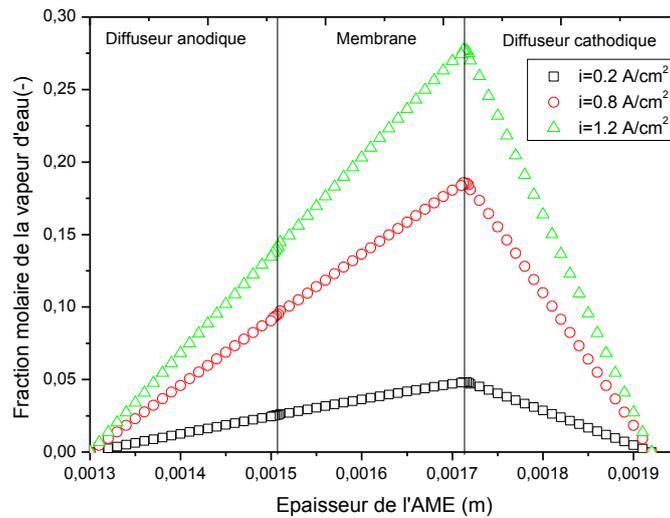
La figure (VI. 9, 10) présente la distribution et les profils de la fraction molaire de la vapeur d'eau obtenus par simulation FLUENT, pour différentes valeurs des densités de courant variant de 0.2 à 1.2 A/  $cm^2$  dans l'épaisseur de la cellule.

On constate qu'aux faibles densités de courant ( $i=0.2A/cm^2$ ), la production d'eau est presque nulle, en augmentant la densité de courant la fraction molaire de la vapeur d'eau augmente à la couche de catalyseur cathodique par la réaction électrochimique. Nous avons montré que le transport de la vapeur d'eau dépend de la densité de courant, alors pour des densités de courant faible il faut humidifier les gaz à l'entrée des canaux pour une bonne humidification de la membrane et pour réduire son résistance protonique et aux fortes densités de courant, il est nécessaire d'humidifier les gaz à l'anode seulement pour créer un gradient en eau

entre les deux interfaces de la membrane Ce gradient se traduit par l'apparition d'un flux diffusif dirigé de la cathode vers l'anode. Ces résultats montrent la répartition correcte et le transport de l'eau dans la pile, un point clef du fonctionnement d'une PEMFC.



**Figure IV.9:** Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule pour différentes valeurs de densité de courant:  $i = a)0.2, b)0.4, c)0.6, d)0.8, e)1, f)1.2 \text{ A/cm}^2$ .



**Figure IV.10:** Profils de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'assemblage AME pour différentes valeurs de densité de courant.

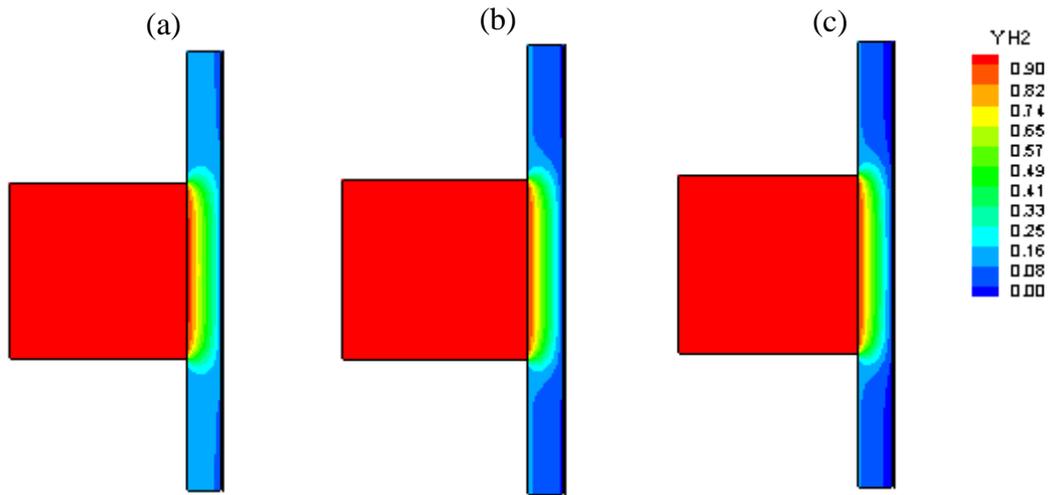
## IV.2.5 Distribution des fractions molaire des gaz dans la cellule

### IV.2.5.1 Distribution de la fraction molaire d'hydrogène

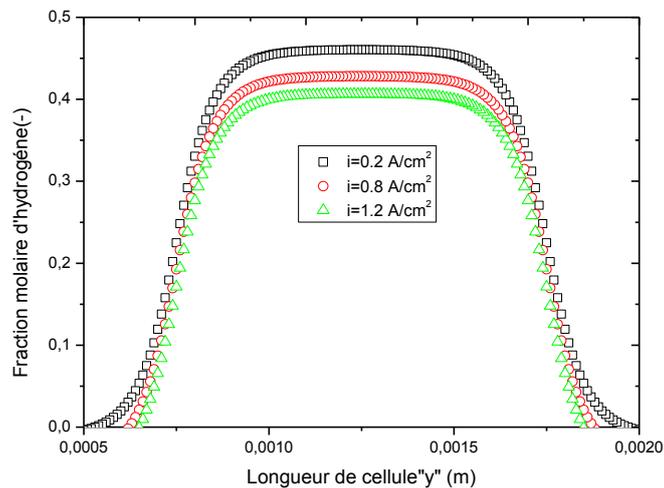
La figure (IV.11, 12) montre la distribution de la fraction molaire de l'hydrogène dans les canaux de pile à combustible et les couches de diffusion de gaz dans le côté de l'anode.

En générale, la fraction molaire d'hydrogène diminue de l'entrée à la sortie telle qu'elle est consommée.

Cependant, la diminution est assez faible le long du canal et la diminution de la fraction molaire de l'hydrogène augmente sous les dents et le taux de consommation augmente, et devient plus petit à l'interface de la membrane. A une densité de courant  $i = 1.2 \text{ A/cm}^2$ , la fraction en hydrogène atteint zéro à l'interface de la membrane, qui signifie que tout l'hydrogène disponible est épuisé dans l'épaisseur de la couche de catalyseur anodique.



**Figure IV.11 :** Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal et le diffuseur anodique pour différentes valeur de densité de courant:  $i=a)0.2$ ,  $b)0.8$ ,  $c)1.2\text{A/cm}^2$ .



**Figure IV.12:** Profils de la fraction molaire d'hydrogène dans le diffuseur anodique pour différentes valeur de densité de courant.

#### IV.2.5.2 Distribution de la fraction molaire d'oxygène

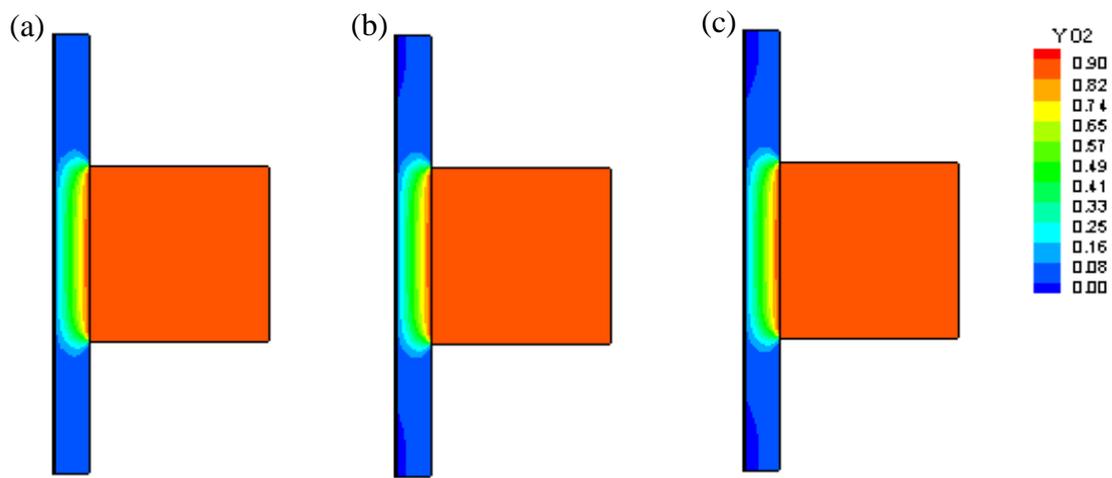
La distribution et les profils de la fraction molaire de l'oxygène dans les canaux et les couches de diffusion de gaz dans le côté de la cathode sont présentés dans la figure (VI.13, 14).

La fraction molaire de l'oxygène diminue à l'intérieur de la couche de diffusion de gaz, et l'effet de la diminution en oxygène est important, en particulier dans les zones sous les dents. A une densité de courant de  $1,2\text{ A / cm}^2$ , la fraction molaire d'oxygène à la couche de catalyseur est presque nulle dans toute l'interface, indiquant que la densité de courant limite a été atteinte.

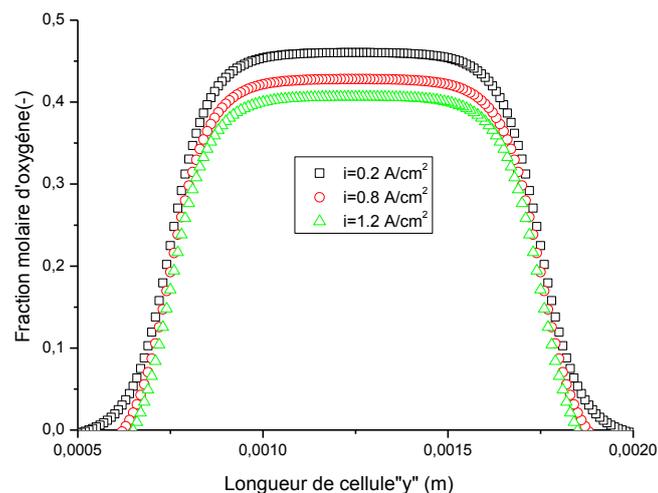
La consommation diminue dans les régions proches de la sortie dans le sens des écoulements c'est-à-dire la dent des canaux.

En raison de la diffusivité relativement faible de l'oxygène par rapport à celle de l'hydrogène, les conditions de fonctionnement de cathode déterminent habituellement la densité de courant limite [4].

En effet, une augmentation de la densité de courant correspond à une augmentation de la consommation d'oxygène.



**Figure IV.13 :** Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal et le diffuseur cathodique pour différentes valeur de densité de courant:  $i=a)0.2$ ,  $b)0.8$ ,  $c) 1.2A/cm^2$ .



**Figure IV.14:** Profils de la fraction molaire d'oxygène dans le diffuseur cathodique pour différentes valeur de densité de courant.

### IV. 3 Modèle bidimensionnel monophasique dans la direction parallèle suivant la direction « z »

Dans cette partie, nous présentons le deuxième modèle dans les canaux sont parallèles selon l'axe (o, z) et couplés avec les transferts massiques des espèces et thermiques.

#### IV.4 Etude paramétrique

Les résultats de simulation réalisés permettent d'obtenir les différentes distributions (les gaz réactifs, la vapeur d'eau, la température) dans la cellule PEMFC, et on a discuté l'effet de la variation des conditions de fonctionnement et géométrique sur la performance d'un PEMFC.

Les cas suivants ont été étudiés: l'effet de la densité de courant, l'effet de la température d'entrée des gaz anodique et cathodique ainsi que l'effet de la fraction molaire de la vapeur d'eau, l'effet de la vitesse d'entrée des gaz, ainsi que l'effet des paramètres géométriques (épaisseur de la membrane, porosité, longueur du canal) et l'effet de la teneur en eau et la température sur la performance de la pile.

Pour faire ça, un seul paramètre a été modifié à partir des conditions de fonctionnement.

#### IV.4.1 Effet de la densité de courant

##### IV. 4.1.1 Champ thermique

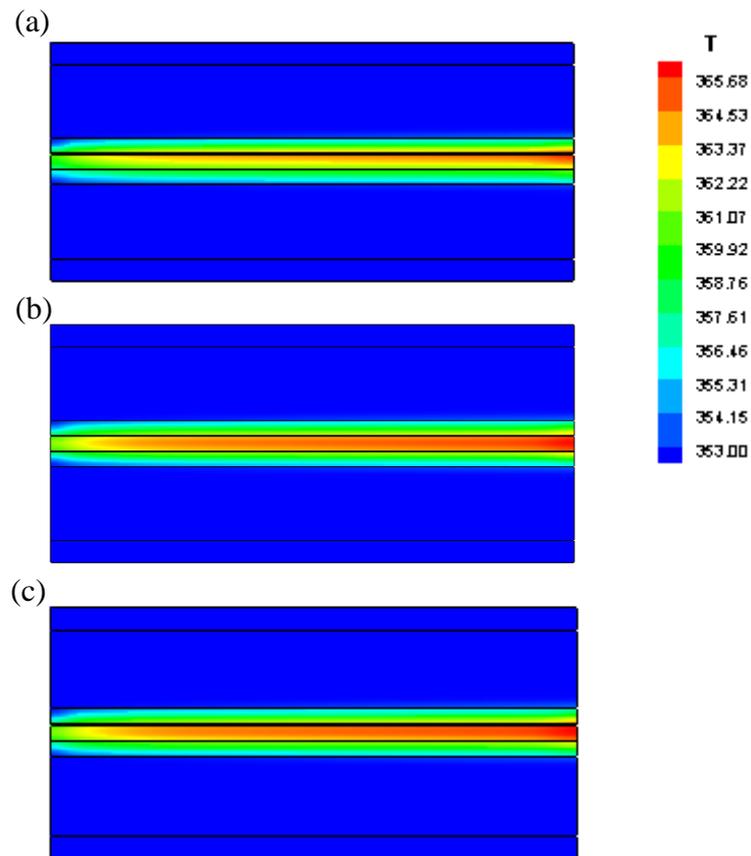
##### IV.4.1.1.1 Distribution de la température à l'intérieur de la cellule en fonction de densité de courant

La figure (IV. 15) présente la distribution des températures simulées sous FLUENT à l'intérieur de la cellule pour différentes valeurs de densité de courant de  $i=0.2, 0.8, 1.2 \text{ A/cm}^2$ , pour une faible densité de courant de  $i=0.2 \text{ A/cm}^2$ , entraîne une diffusion faible du champ de température qui apparaît dans la couche de catalyseur cathodique correspond à la production de chaleur par la réaction électrochimique et par l'augmentation de densité de courant un gradient de température est maximal apparaît dans les régions de l'AME (figure IV.16) et la diffusion de la chaleur est située dans les régions proches de la sortie, l'augmentation de température maximale est d'environ 12 K à une densité de courant de  $1.2 \text{ A/cm}^2$ .

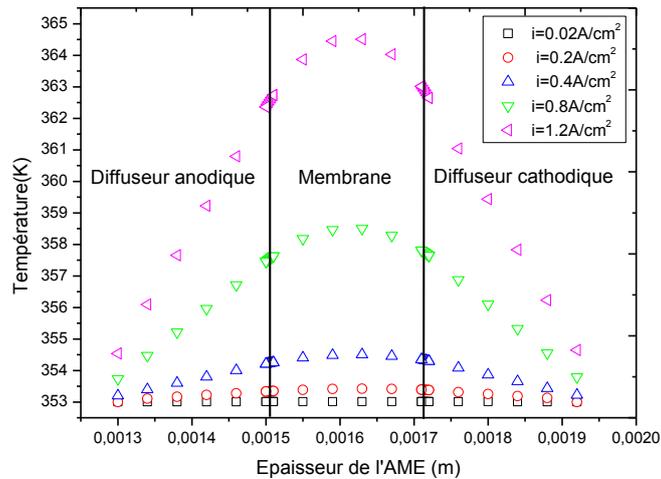
Les résultats présentés ont montré de façon globale que la température dans la cellule dépend fortement de la densité de courant et des réactions à l'intérieur de la pile.

La température maximale située dans la couche de catalyseur cathodique est due à la production réversible et irréversible de chaleur.

L'augmentation de la température maximale est d'environ 12 °C. Berning et al. [4] ont simulé l'augmentation de la température maximale à environ 3 °C lorsque la densité de courant moyenne est de 1.2A/cm<sup>2</sup>. Alors que le résultat modélisé par Ju et al. [5] était supérieur à 10 °C à  $V_{pile} = 0,6V$ .



**Figure IV. 15:** *Distribution de la température à l'intérieur de la cellule en fonction de densité de courant : i=a)0.2, b) 0.8, c) 1.2A /cm<sup>2</sup>.*



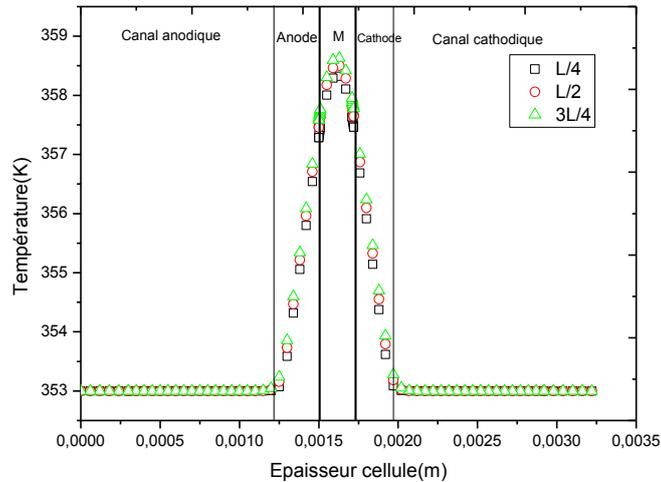
**Figure IV. 16:** Profil de température dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de densités de courant.

#### IV.4.1.1.2 Profil de température suivant différents axes

Nous considérons trois axes de températures différents dans la cellule afin d'évaluer les gradients de température dans la cellule. Les trois positions des axes dans la dimension perpendiculaire selon un axe assemblage-membrane-électrode (AME) sont définies à un quart du canal (pris d'entrée), la moitié du canal (au centre de la cellule), trois quart du canal (pris de sortie).

La figure (IV. 17) présente les profils de température à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule.

On remarque que la température à la sortie est beaucoup plus élevée que celles des deux autres positions de la cellule. La température maximale est de l'ordre de 359.08K alors un gradient de 6K à une densité de courant de  $0.8\text{A/cm}^2$ , cela peut s'expliquer par la diffusion de la chaleur vers la sortie de la cellule.

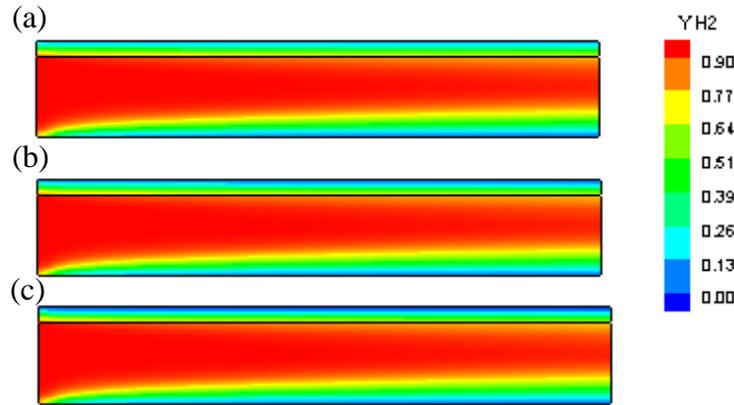


**Figure IV. 17:** Profil de température à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule pour  $i=0.8A/cm^2$ .

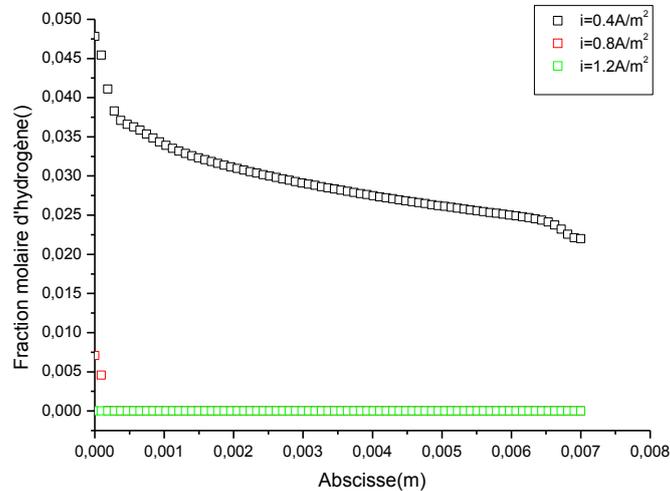
#### IV.4.1.2 Profils des fractions molaires des gaz dans les canaux et les diffuseurs.

La figure (IV. 18) montre la distribution des fractions molaire d'hydrogène pour différentes valeurs de densité de courant dans le canal et la couche de diffusion de gaz anodique. L'oxydation d'hydrogène dépend de la réaction électrochimique dans la couche de catalyseur. A une faible densité de courant, on observe une petite diminution de la fraction molaire d'hydrogène et la grande partie se localise à l'entrée du canal de gaz de l'anode. Avec une densité de courant croissante, le taux de consommation d'hydrogène augmente, et devient plus petit à l'interface de la membrane/catalyseur anodique. A une densité de courant  $i= 1.2A/cm^2$ , la consommation d'hydrogène atteint zéro a l'interface de la membrane/catalyseur anodique, qui signifie que tout l'hydrogène disponible est épuisé dans l'épaisseur de la couche de catalyseur anodique comme présente dans la figure (IV. 19).

La consommation des gaz de réaction est directement proportionnelle à la densité de courant.



**Figure IV. 18:** Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal et la couche de diffusion de gaz coté anodique en fonction de densité de courant :  $i=a)0.4, b) 0.8, c) 1.2A/cm^2$ .



**Figure IV. 19:** Profil de la fraction molaire d'hydrogène dans le catalyseur anodique pour différentes valeurs de densités de courant.

En raison de la diffusivité relativement faible de l'oxygène par rapport à l'hydrogène, les conditions de fonctionnement de la cathode déterminent habituellement la densité de courant limite lorsque la pile à combustible fonctionne sur de l'air humidifié [6].

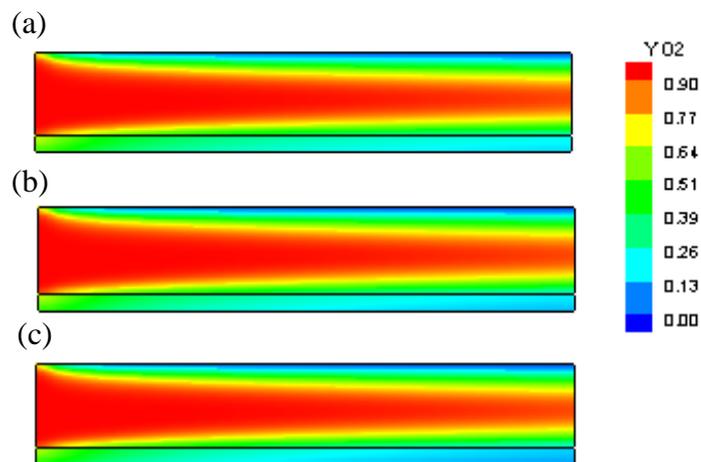
En effet, une augmentation de la densité de courant correspond à une augmentation de la consommation d'oxygène.

La concentration en oxygène dans la couche de catalyseur est équilibrée par l'oxygène qui est consommé et la quantité d'oxygène qui diffuse vers la couche de catalyseur, entraînée par le gradient de concentration [4]. La densité de courant locale de la réaction du côté cathodique dépend directement de la concentration en oxygène [6, 7].

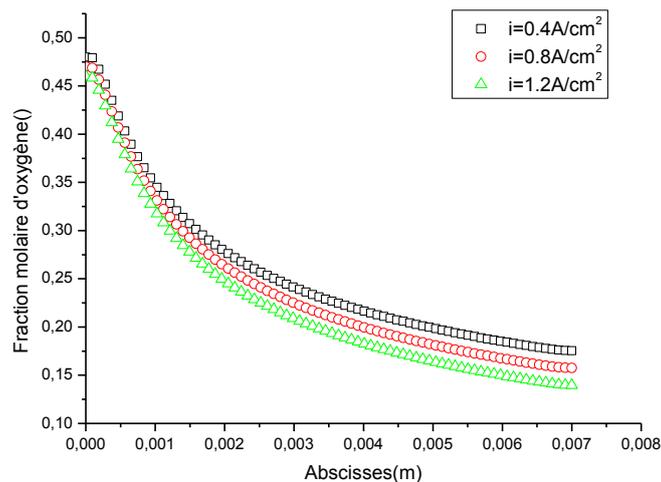
La figure (IV. 20) montre la distribution des fractions molaire d'oxygène pour différentes valeurs de densité de courant dans le canal et la couche de diffusion de gaz cathodique. La fraction molaire d'hydrogène diminue si la densité de courant est augmentée.

À une faible densité de courant, la consommation d'oxygène est faible, et pour une densité de courant élevée, la fraction molaire d'oxygène atteint des valeurs proches de zéro.

À une densité de courant élevée, la consommation d'oxygène atteint zéro à l'interface de la membrane/catalyseur cathodique, qui signifie que tout l'oxygène disponible est épuisé dans l'épaisseur de la couche de catalyseur cathodique comme présenté dans la figure (IV. 21).



**Figure IV. 20:** Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal et la couche de diffusion de gaz coté cathodique en fonction de densité de courant : a) 0.4, b) 0.8, c) 1.2A /cm<sup>2</sup>.

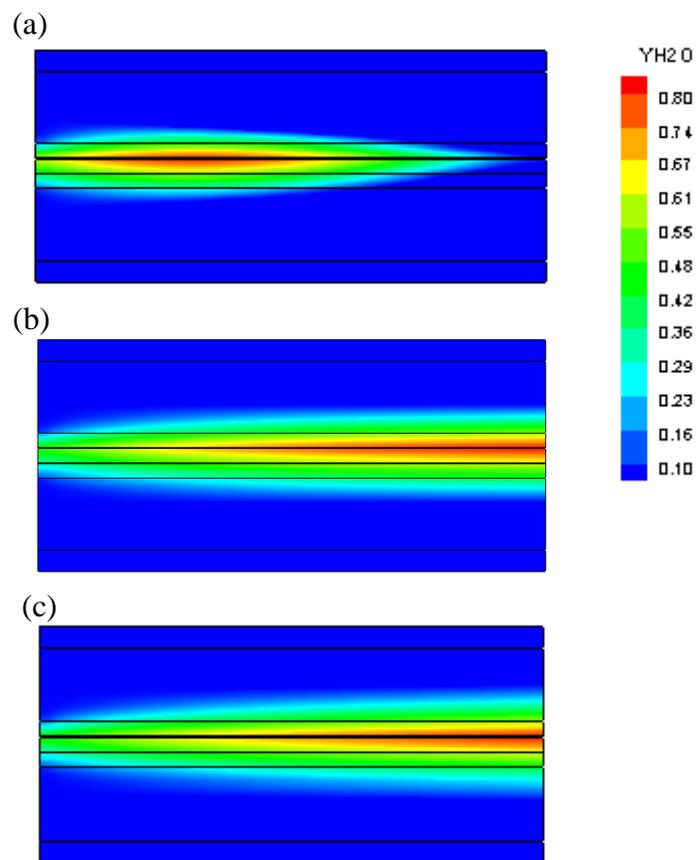


**Figure IV. 21:** Profil de la fraction molaire d'oxygène dans le catalyseur cathodique pour différentes valeurs de densités de courant.

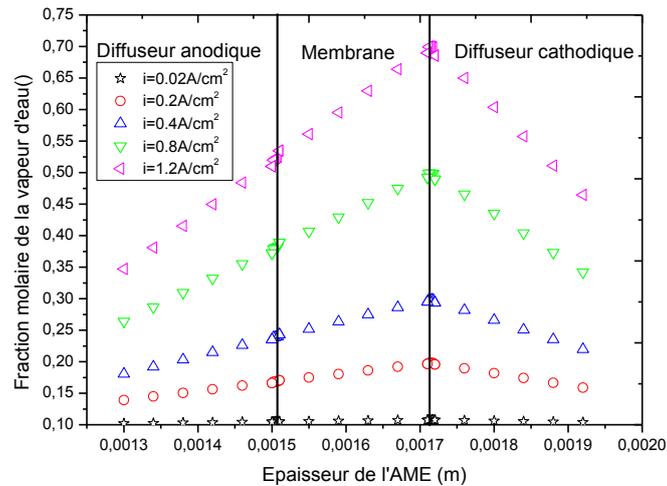
#### IV.4.1.3 Distribution de fraction molaire de la vapeur d'eau dans la membrane

Cependant, on présente dans les figures (IV. 22, 23) la distribution et les profils de la fraction molaire de la vapeur d'eau obtenus par simulation FLUENT, pour différentes valeurs des densités de courant variant de ( $i= 0.2, 0.8, 1.2 \text{ A /cm}^2$ ) dans l'épaisseur de la cellule.

On constate que la fraction molaire de la vapeur d'eau côté cathodique est supérieur à celle du côté anodique. Cela peut s'expliquer par la consommation de l'oxygène et à la production de la vapeur d'eau dans le catalyseur cathodique ou on observe la quantité maximale se localise dans l'interface membrane/cathode.



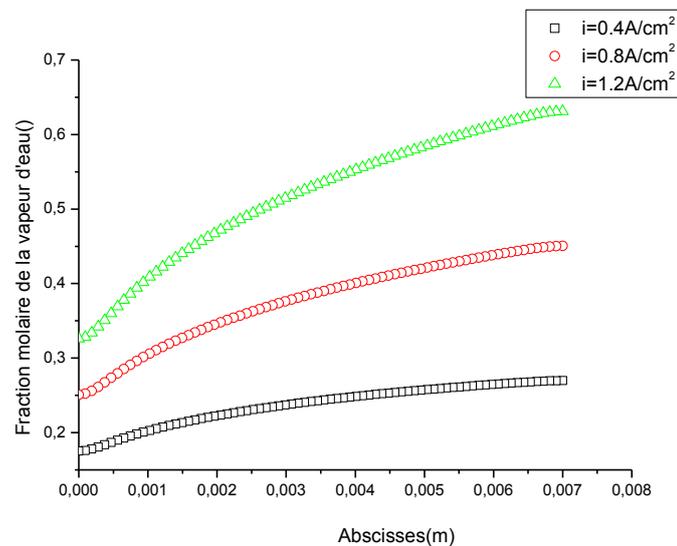
**Figure IV. 22:** Distribution de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule en fonction de densité de courant : a)  $0.2, b) 0.8, c) 1.2 \text{ A /cm}^2$ .



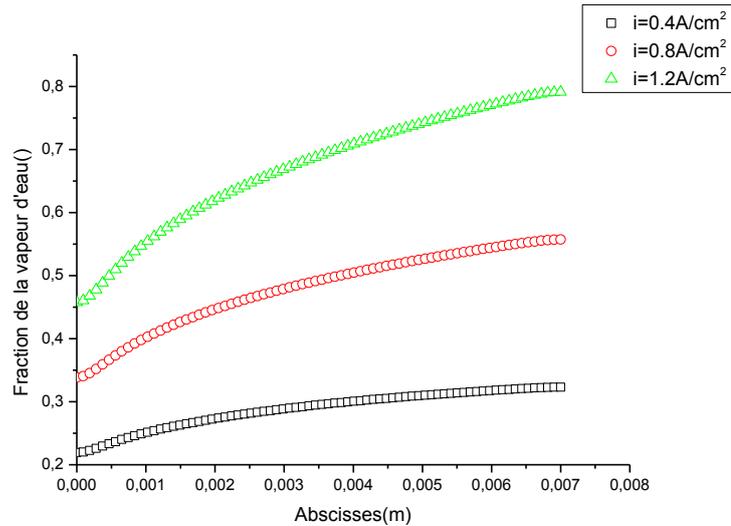
**Figure IV. 23:** Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de densités de courant.

Les figures (IV. 24, 25), montrent une comparaison entre l'évolution des fractions molaire de la vapeur d'eau dans le catalyseur anodique et cathodique, on peut expliquer cela par la production de la vapeur d'eau à la cathode qui fait augmenter la fraction molaire de la vapeur d'eau.

L'évolution de la fraction molaire de la vapeur est directement liée à la production d'eau qui dépend de la densité de courant.



**Figure IV. 24:** Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans le catalyseur anodique pour différentes valeurs de densités de courant.

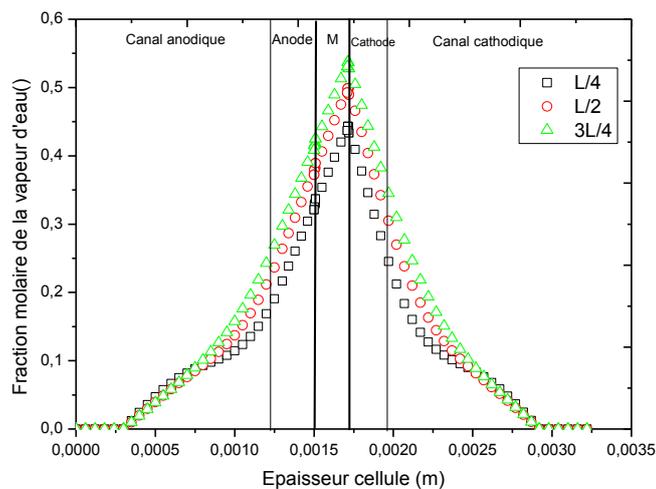


**Figure IV. 25:** Profil la fraction molaire de la vapeur d'eau dans le catalyseur cathodique pour différentes valeurs de densités de courant.

#### IV.4.1.4 Profil de la fraction molaire de la vapeur d'eau suivant différents axes

La figure (IV. 26) présente les profils de la fraction molaire d'eau à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule. Les trois positions des axes dans la dimension perpendiculaire selon un axe assemblage-membrane-électrode (AME) sont définies à un quart du canal (pris d'entrée), la moitié du canal (au centre de la cellule), trois quart du canal (pris de sortie).

On constate que la fraction molaire de la vapeur d'eau côté cathodique est supérieur à celle du côté anodique dans la région proche de la sortie.



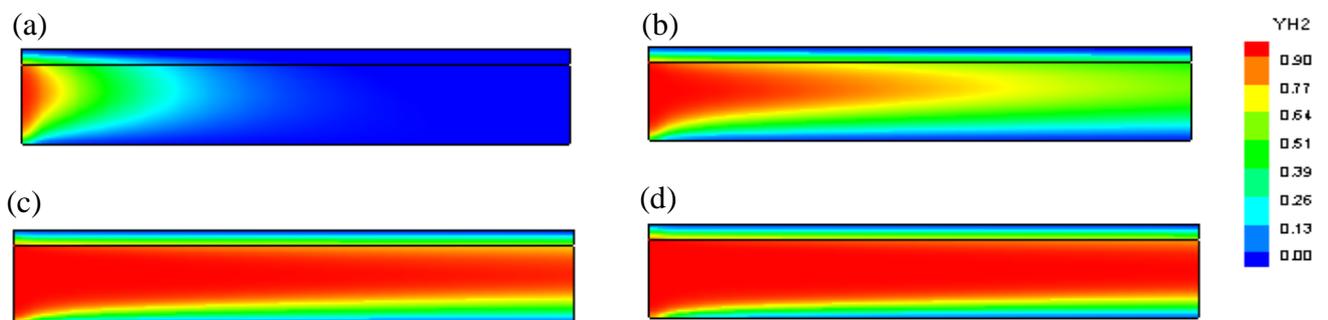
**Figure IV. 26:** Profil de la fraction molaire de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule suivant différents axes de la cellule pour  $i=0.8A/cm^2$ .

#### IV.4.2 Effet de la vitesse d'entrée des gaz

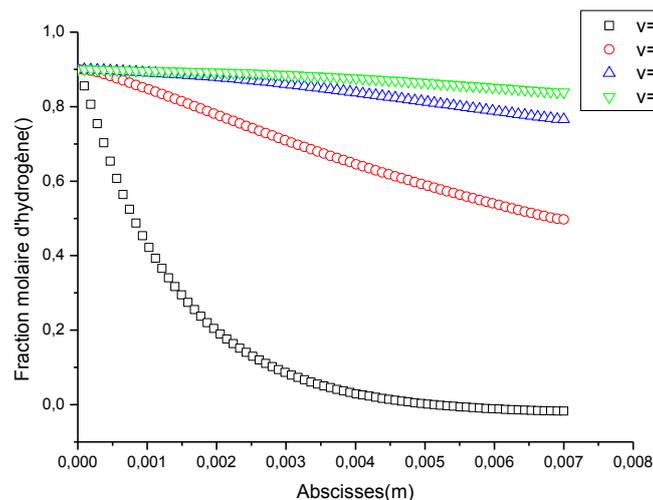
Cependant, on présente dans ce qui suit la distribution et les profils de la fraction molaire des gaz et la vapeur d'eau ainsi que la température obtenus par simulation FLUENT, pour différentes valeurs de vitesse d'entrée ( $v= 0.01, 0.1, 0.3, 0.5$  m/s) dans l'épaisseur de la cellule.

##### IV.4.2.1 Evolution des fractions molaires des gaz pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz

Les figures (IV. 27, 29) présentent les distributions des fractions molaires d'hydrogène et d'oxygène respectivement, à l'intérieur de la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée.

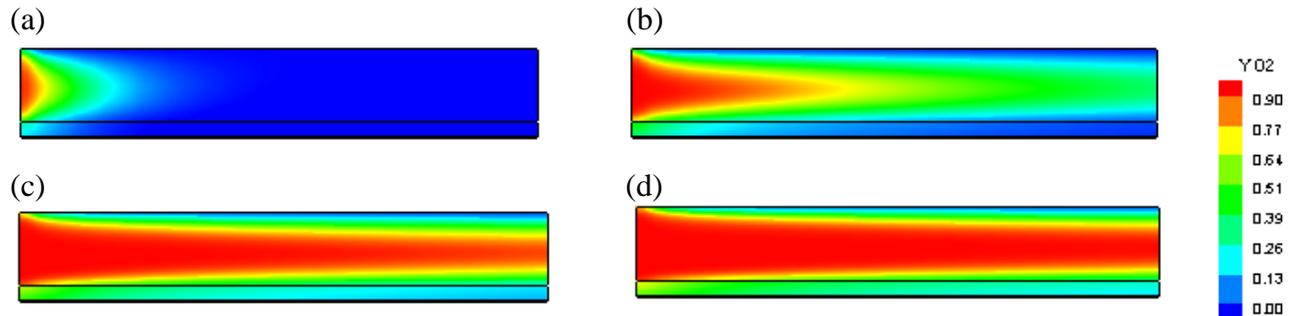


**Figure IV. 27:** Distribution de la fraction molaire d'hydrogène dans le côté anodique en fonction de la vitesse d'entrée :  $v=a) 0.01, b) 0.1, c) 0.5, d) 1$  m/s.

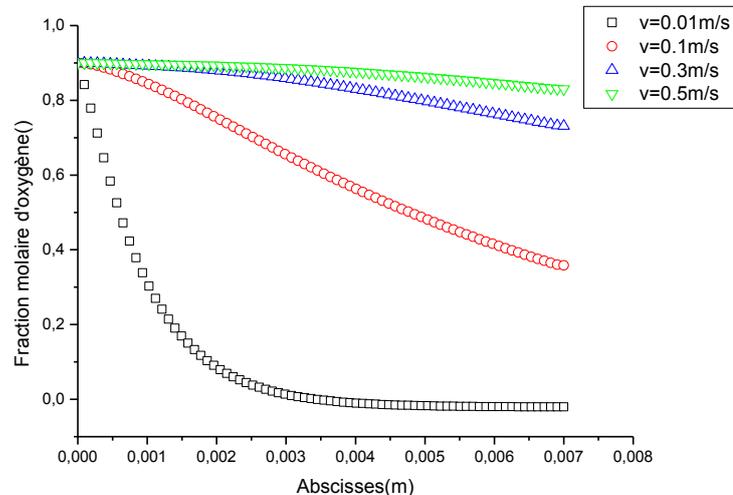


**Figure IV. 28:** Evolution de la fraction molaire d'hydrogène dans le canal anodique pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz.  $i=0.8A/cm^2, T_e=353K$

Pour une faible vitesse, on remarque que la diffusion des réactifs est faible dans les canaux ce qui facilite sa diffusion vers les couches de diffusion et les couches actives ces résultats sont expliqués par la consommation d'hydrogène et d'oxygène qui diminue progressivement par la diminution de la vitesse. Par contre, si on augmente la vitesse, les réactifs se dirigent directement vers la sortie avec une faible consommation. Ces résultats sont montrés sous forme de profils dans les figures (IV. 28, 30).



**Figure IV. 29:** Distribution de la fraction molaire d'oxygène dans le côté cathodique en fonction de la vitesse d'entrée :  $v=a) 0.01$ ,  $b) 0.1$ ,  $c) 0.5$ ,  $d) 1$  m/s.

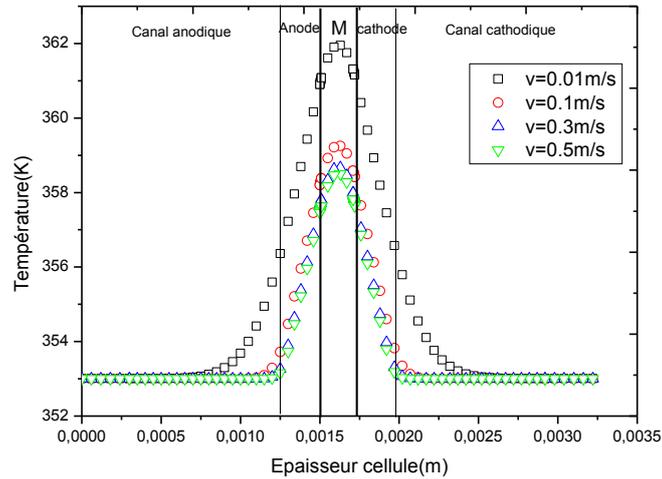


**Figure IV. 30:** Evolution de la fraction molaire d'oxygène dans le canal anodique pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz.  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T_e=353K$

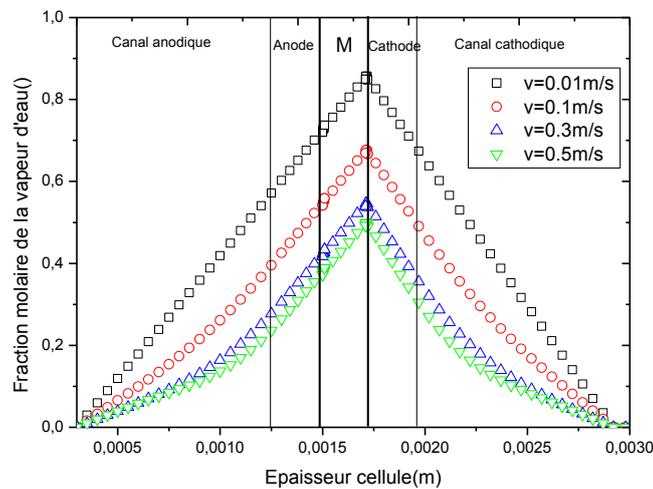
#### IV.4.2.2 Profil de température et la fraction molaire de la vapeur d'eau dans l'AME pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz

Les figures (IV. 31, 32) présentent les profils de l'évolution de la température et la fraction molaire d'eau à l'intérieur de la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz.

Cependant, à partir des résultats précédents, il devient plus clair quand on réduit la vitesse des gaz, la production de chaleur et la vapeur d'eau augmentent à cause de la présence des réactions électrochimiques qui est expliqué par la consommation d'hydrogène et d'oxygène pour des petites valeurs des vitesses d'entrée des gaz.



**Figure IV. 31:** Evolution de la température dans la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz.  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T_e=353K$



**Figure IV. 32:** Evolution de la fraction molaire de la vapeur d'eau dans la cellule pour différentes valeurs de vitesse d'entrée des gaz.  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T_e=353K$

#### IV.4.3 Effet de la température d'entrée des gaz

La température affecte essentiellement les différents phénomènes de transport à l'intérieur de la pile à combustible. Les paramètres affectés sont:

-La composition des flux gazeux entrants: La fraction molaire de la vapeur d'eau est fonction de la pression et de la température d'entrée, et la fraction molaire de l'hydrogène entrant et de l'oxygène dépend aussi de la température et de la pression [4].

- La densité de courant d'échange ( $i_0$ ) d'une réaction électrochimique dépend fortement de la température. A. Parthasarathy et al. [6] ont effectué des expériences afin de déterminer une corrélation entre la température de la cellule et la densité de courant d'échange de la réaction de réduction de l'oxygène.

- La conductivité de la membrane : une température plus élevée conduit également à une plus grande diffusivité du proton dans la membrane électrolyte, réduisant ainsi la résistance de la membrane.

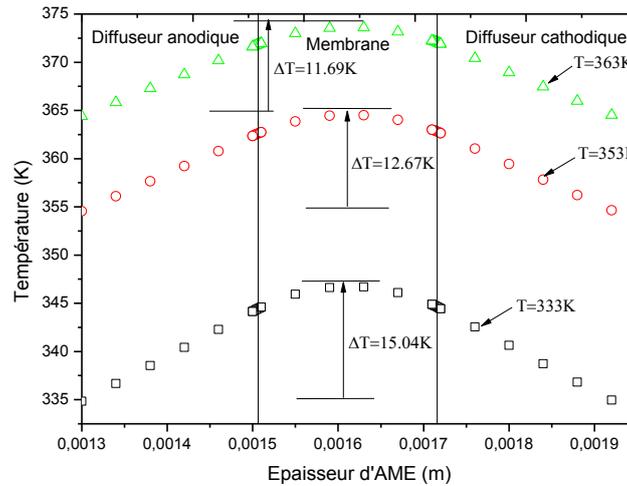
-Les diffusivités de gaz  $D_{ij}$ : une augmentation de la température entraîne une augmentation de la diffusivité du gaz [4].

#### IV.4.3.1 Profils de température dans l'assemblage-membrane-électrode (AME)

La figure (IV.33) montre les profils de température dans l'assemblage-membrane-électrode (AME) en coupant la longueur de la cellule au milieu du canal d'écoulement à  $x = 0.35\text{mm}$ , à une densité de courant de  $1,2 \text{ A / cm}^2$ .

A partir de la distribution de température à l'intérieur de la cellule les résultats montrent que la chaleur maximale se produit à la température plus élevée (363K) avec une augmentation de 374,69K, mais le gradient de température maximal ( $\Delta T = 15,04\text{K}$ ) apparaît dans le cas où la température est faible (333K) en raison du fort potentiel d'activation, ce qui entraîne une plus grande production de chaleur.

M.A.R. Sadiq Al-Baghdadi et al. [8] ont montré que la température maximale se produit au cas où la température plus élevée de (363K) avec une augmentation de 370K, mais le gradient de température maximal ( $\Delta T = 7,376\text{K}$ ) apparaît dans le cas de la température de (333K).

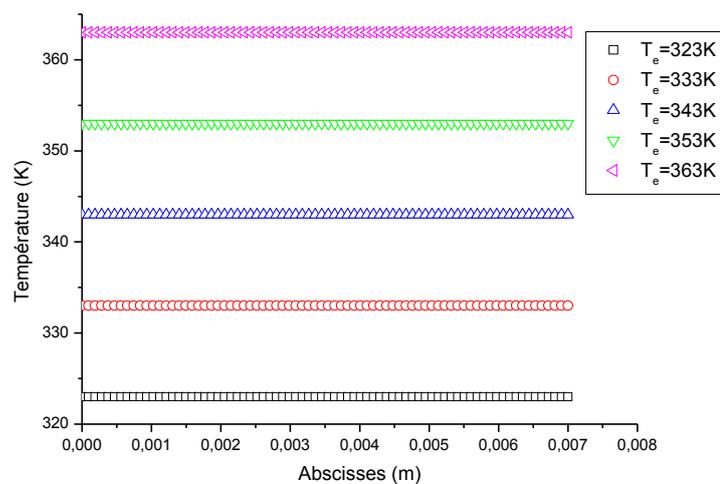


**Figure IV. 33:** Profils de température dans l'assemblage-membrane-électrodes (AME) pour différentes valeurs de températures de 333K, 353K et 363K.

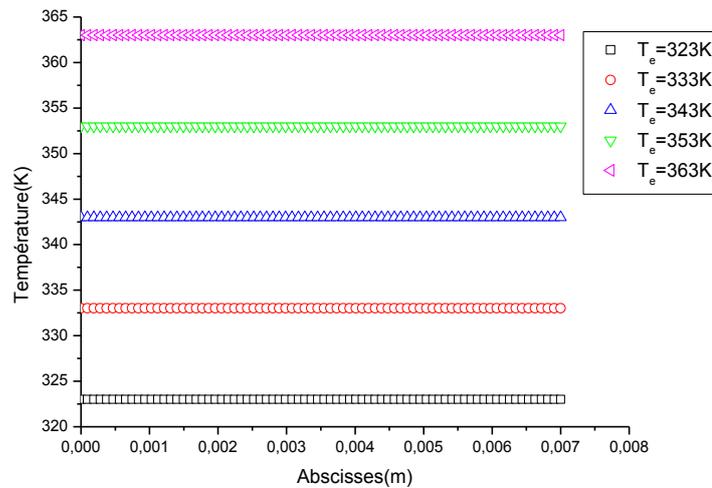
#### IV.4.3.2 profils de température dans les canaux

Les figures (IV. 34, 35) présentent l'évolution de la température selon la longueur du canal anodique et cathodique respectivement, cette évolution est obtenue pour une densité de courant de  $0.5 \text{ A/cm}^2$ . La température d'entrée des gaz est donnée pour 323, 333, 343, 353, 363K.

La température dans les canaux anodique et cathodique, les températures relativement uniformes, on remarque qu'il n'y a pas de gradient significatif dans les canaux.



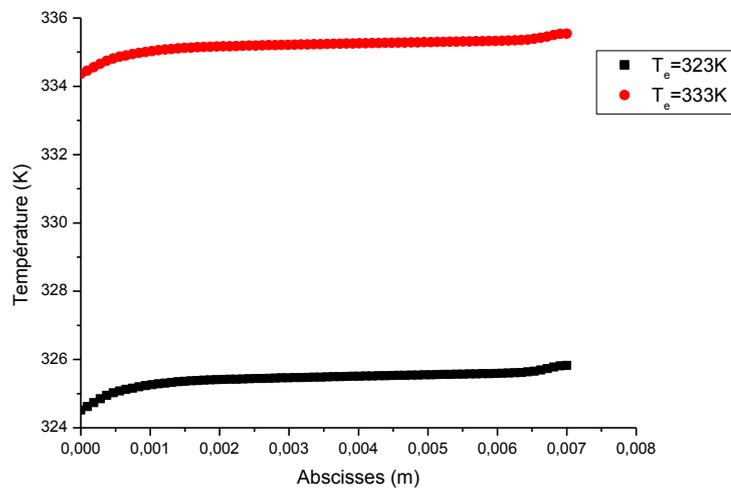
**Figure IV. 34:** Evolution de la température dans le canal anodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz.  $i=0.5 \text{ A/cm}^2$



**Figure IV. 35:** Evolution de température dans le canal cathodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz.  $i=0.5A/cm^2$

#### IV.4.3.3 profils de température dans les couches de catalyseurs

La figure (IV. 36) présente le profil des températures simulées obtenues dans la zone active anodique pour une densité de courant de  $0.5 A/cm^2$ .

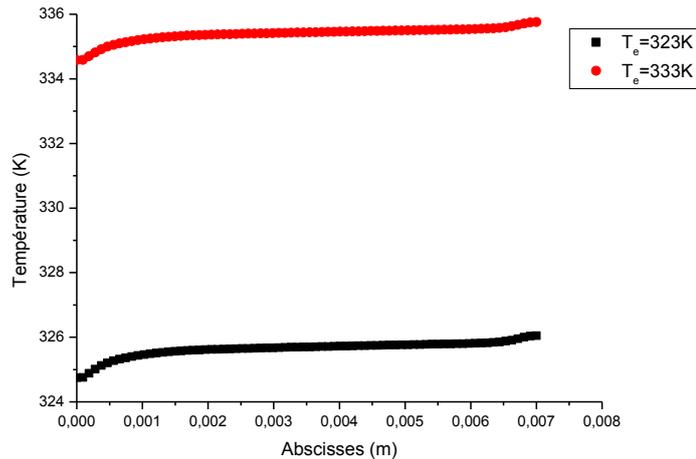


**Figure IV. 36:** Profils de température dans la couche de catalyseur anodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz.  $i=0.5A/cm^2$

La zone proche de sortie est globalement plus chaude que la zone d'entrée de la cellule. Cette zone étant encore très riche en gaz. On remarque une légère baisse de la température à l'approche de la zone d'entrée en raison de la raréfaction des gaz réactifs.

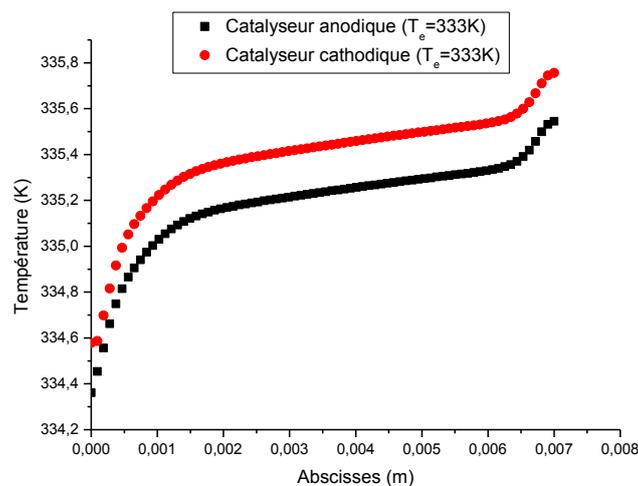
La figure (IV. 37) présente le profil des températures simulées obtenues dans la zone active cathodique pour une densité de courant de  $0.5 \text{ A/cm}^2$ .

Dans la zone active cathodique, on remarque les zones les plus chaudes sont comprises entre l'abscisse 0.006 et 0,007 m cette partie proche de la zone de sortie, et une autre partie représentant la zone d'entrée (entre 0 et 0,002) on remarque une légère baisse de la température à l'approche de cette zone.



**Figure IV.37:** Profils de température dans la couche de catalyseur cathodique pour différentes valeurs de températures d'entrée des gaz.  $i=0.5\text{A/cm}^2$

De façon globale pour la cellule, quelle que soit la densité de courant employée, la température de la zone active cathodique reste plus élevée que celle de la zone active anodique en raison de la réaction électrochimique comme montre dans la figure (IV. 38).



**Figure IV. 38:** Profils de température dans la couche de catalyseur anodique et cathodique pour  $T_e=333\text{K}$ ,  $i=0.5\text{A/cm}^2$ .

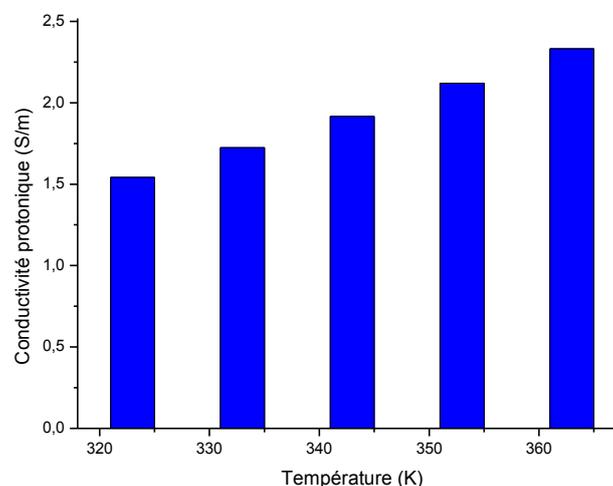
#### IV.4.3.4 Performance de la pile en fonction de température

Une manière simple de caractériser les performances électriques d'une cellule est de tracer sa courbe de polarisation. Cette courbe représente la variation de la tension de la cellule en fonction de l'intensité du courant qu'elle délivre.

##### IV.4.3.4.1 Effet de la température sur la conductivité de la membrane

Du point de vue de la gestion de l'eau, la température de la cellule détermine la pression de vapeur saturante de l'eau au sein des gaz et donc la quantité d'eau qui peut être transportée sous forme vapeur [9].

Pour éviter qu'une trop grande quantité d'eau ne condense, il suffit donc d'augmenter la température de la cellule. De plus, une augmentation de température augmente la conductivité ionique de la membrane comme présentée dans la figure (IV.39) et diminue l'énergie d'activation nécessaire à la réaction électrochimique [10], ce qui améliore les performances de la cellule. Cependant, cette augmentation doit être limitée car l'absence totale d'eau liquide et la diminution de l'humidité relative dans la cellule assécheraient la membrane [9], diminuant ainsi sa conductivité ionique.



**Figure IV. 39:** *Influence de la température sur la conductivité de la membrane.*

##### IV.4.3.4.2 Courbe de polarisation et courbe de densité de puissance

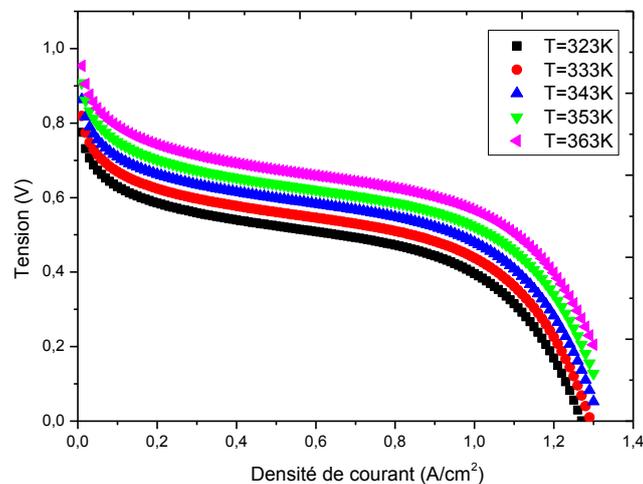
La température de la PAC est un facteur important qui affecte les réactions chimiques d'oxydation de l'hydrogène et de réduction de l'oxygène : la rapidité de ces réactions est

proportionnelle à la température [11, 12, 13]. Ainsi, elle influe sur le potentiel électrochimique  $V$  et sur les pertes d'activation  $\eta_{act}$ , ohmique  $\eta_{ohm}$  et de concentration  $\eta_{conc}$ .

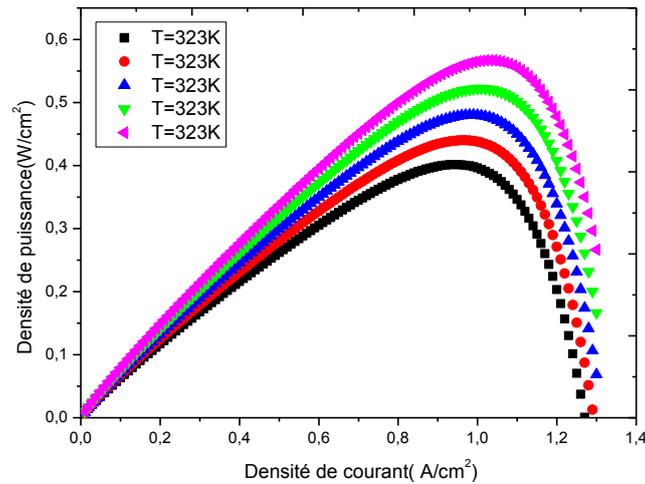
D'une façon générale, le potentiel d'activation diminue avec l'augmentation de la température de fonctionnement de la cellule. En effet, la densité de courant d'échange de la réaction de réduction de l'oxygène augmente rapidement avec la température en raison de la cinétique de réaction, ce qui réduit les pertes d'activation [4]. Une température plus élevée conduit également à une plus grande diffusivité des protons d'hydrogène dans la membrane d'électrolyte, réduisant ainsi la résistance de la membrane, et ceci conduit à réduire la perte de potentiel dans la membrane. La perte de transport de masse augmente avec l'augmentation de température en raison de la réduction de la fraction molaire d'oxygène à la couche de catalyseur.

Ce comportement est montré dans la figure (IV. 40) où nous présentons cette variation à une température variant entre 323 K et 363K.

Pour les courbes de densité de puissance figure (IV. 41), on a trouvé que la densité de puissance maximale est décalée vers des densités de courant élevées avec des températures plus élevées, en raison de la réduction des pertes ohmiques.



**Figure IV. 40:** *Courbes de polarisation pour différentes valeurs de températures.*



**Figure IV. 41:** Courbes de la densité de puissance pour différentes valeurs de températures.

Ces résultats obtenus avec notre modèle présentent un bon accord qualitatif avec les résultats de la littérature. L'allure de la courbe reste la même, quelles que soient les conditions de fonctionnement.

#### IV.4.4 Effet de la teneur en eau de la membrane

La membrane n'est un bon conducteur de protons qu'en présence d'eau. Pour cela, une humidification externe des gaz est nécessaire. Cette humidité doit être optimale, car les membranes exigent de n'être ni inondée ni sèche [14, 15].

Un taux d'humidité caractérisant la teneur en eau de la membrane s'exprime comme le rapport entre le nombre de molécules d'eau et le nombre de sites sulfoniques  $SO_3^-$  du polymère [16, 17]:

$$\lambda = \frac{n_{H_2O}}{n_{SO_3^-}}$$

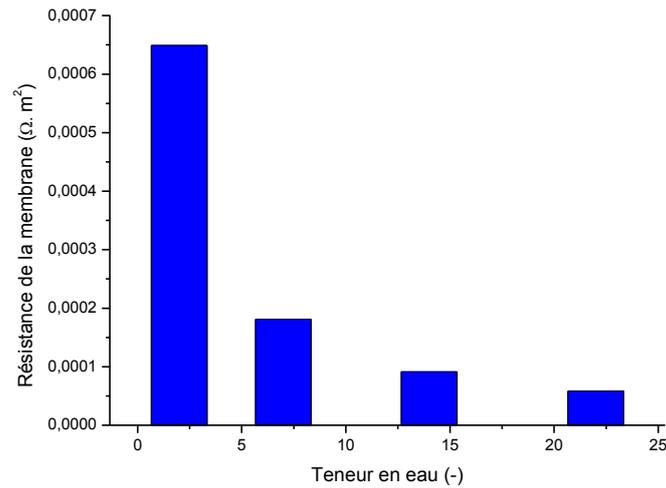
En pratique ce taux évolue entre 2 et 22 [17].

Il a été montré dans la littérature que la conductivité du Nafion est fortement dépendante de la température mais surtout de son état d'hydratation [18].

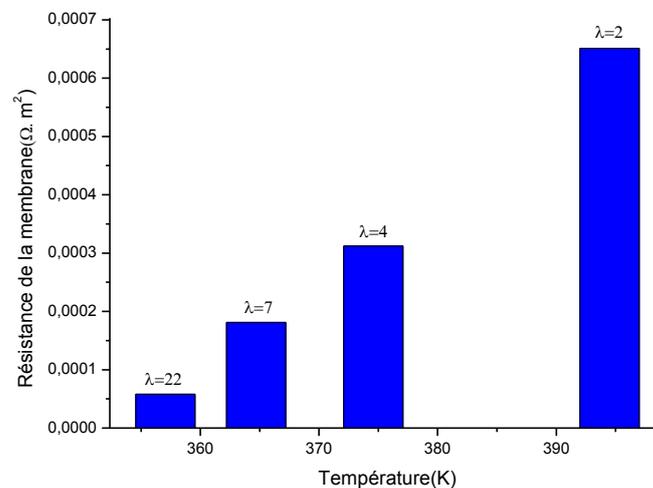
$$\sigma_m = (5.139\lambda - 3.26) \exp\left[1268\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T}\right)\right] \quad (S/m)$$

Dans notre modélisation, nous avons utilisé la corrélation proposée par Springer et al. [18]. Cette corrélation a été obtenue à partir d'une régression linéaire sur les résultats expérimentaux pour une membrane en équilibre avec de la vapeur d'eau à 30 °C.

Les figures (IV.42, 43) présentent les variations de la résistance de la membrane en fonction du taux d'humidification et de la température.



**Figure IV.42:** Influence de la teneur en eau sur la résistance de la membrane.

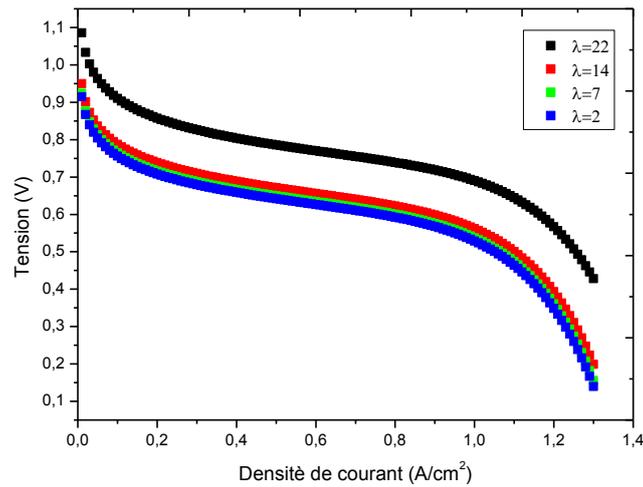


**Figure IV.43:** La résistance de la membrane en fonction de la température pour différents taux d'humidification.

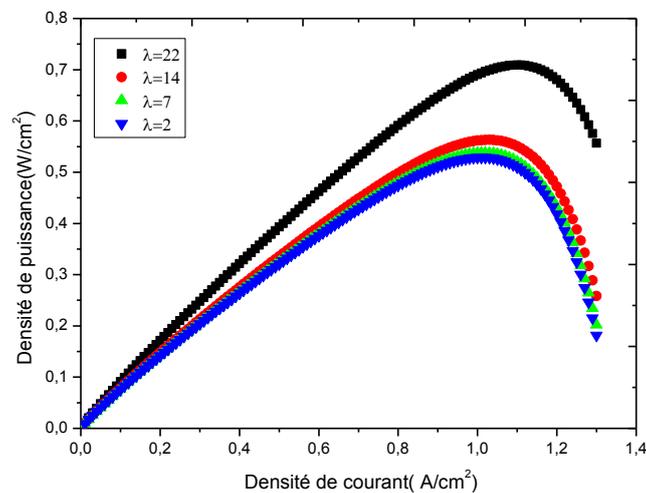
Nous remarquons que l'augmentation du taux d'humidification de la membrane implique une diminution de sa résistance  $R_m$ . Ceci a pour conséquence la diminution de la perte ohmique  $\eta_{ohm}$  et par conséquent l'augmentation de la tension de la cellule  $V$ . Inversement, la diminution

de  $\lambda$  augmente  $R_m$  provoquant ainsi une perte ohmique plus grande et par conséquent, une diminution de  $V$ .

Les figures (IV.44, 45) représentent respectivement la courbe de polarisation c'est à dire la courbe (I-V) et la courbe de densité de puissance de la cellule pour différentes valeur de la teneur en eau de la membrane.



**Figure IV.44:** Courbes de polarisation pour différentes valeurs de la teneur en eau.



**Figure IV.45:** Courbes de la densité de puissance pour différentes valeurs de la teneur en eau.

En effet, l'humidification est le facteur qui influe de plus sur les pertes électriques car il affecte la résistance de l'électrolyte. Cette dernière a la plus grande contribution au niveau des pertes ohmiques par rapport aux autres composants de la cellule.

Une meilleure performance est obtenue avec une teneur en eau plus élevée.

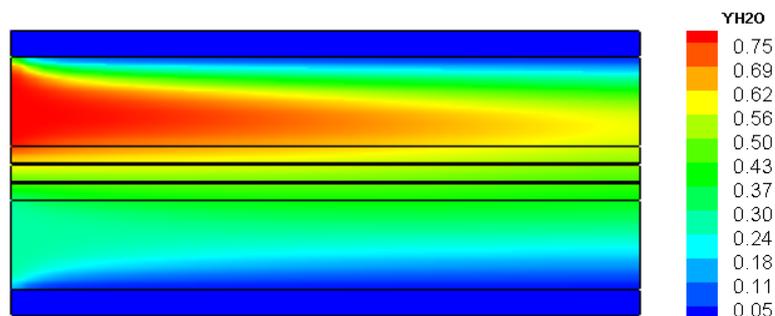
#### IV.4.5 Effet de l'humidification des réactifs (fractions molaires de la vapeur d'eau) sur le transport de l'eau dans la pile

Dans le problème de la gestion d'eau dans la membrane, le transport de l'eau au sein de la PAC est l'un des phénomènes les plus importants qui influe sur le rendement et sur les performances de la cellule [19].

Deux phénomènes antagonistes participent à l'hydratation de la membrane : l'électro-osmose et transport d'eau dû au gradient de concentration entre la cathode et l'anode. L'opposition de ces différents flux permet de répartir l'eau entre les deux compartiments d'une cellule optimisée, évitant la présence d'une quantité d'eau liquide trop importante d'un côté ou de l'autre [20].

Ainsi, la teneur en eau de la membrane est déterminée par ces deux phénomènes. La dominance de l'un sur l'autre dépend du niveau de courant fourni par la pile.

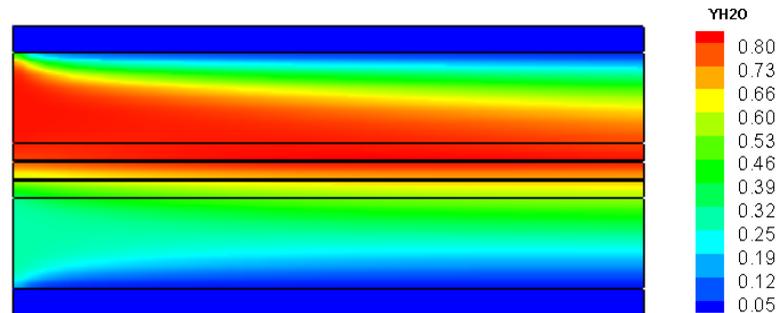
Dans la figure (IV.46), à une faible densité de courant ( $i=0.01A/cm^2$ ) et l'humidification du coté anodique moins que le coté cathodique ( $Y_{H_2Oa}=0.273$ ,  $Y_{H_2Oc}=0.8$ ) on remarque que la fraction de la vapeur d'eau est plus grande dans le coté cathodique et quantité d'eau insuffisante dans la membrane conduit à l'assèchement de la membrane du côté anode provoquant ainsi une augmentation des pertes ohmiques et une chute du rendement électrique.



**Figure IV. 46:** La répartition de la vapeur d'eau dans une pile PEMFC à une faible densité de courant  $i=0.01A/cm^2$ ,  $Y_{H_2Oa}=0.273$ ,  $Y_{H_2Oc}=0.8$ .

Si on augmente la densité de courant à une valeur de  $0.5A/cm^2$  avec l'humidification du coté anodique (figure IV.47), la production d'eau à la cathode et son humidification induit un gradient de concentration d'eau croissant de la cathode à l'anode. Ce gradient engendre un flux diffusif de la cathode vers l'anode pour éviter le problème de l'assèchement du coté anodique.

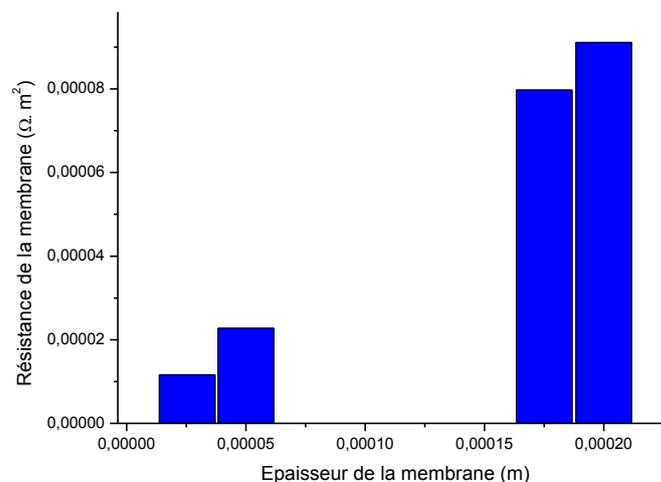
Cette diffusion augmente en fonction de la densité de courant [21]. À forte intensité, lorsque plus d'eau est produite, une humidification importante des gaz peut favoriser le noyage de la cellule [22].



**Figure IV. 47:** La répartition de la vapeur d'eau dans une pile PEMFC à une densité de courant  $i=0.5A/cm^2$ ,  $Y_{H_2Oa}=0.273$ ,  $Y_{H_2Oc}=0.8$ .

#### IV.4.6 Effet de l'épaisseur de la membrane

La recherche actuelle sur les membranes vise à comprendre les mécanismes de vieillissement ou d'empoisonnement pour augmenter leur durée de vie. Même si la membrane est l'élément central de la cellule, la gestion de l'eau dépend en grande partie des couches poreuses qui l'entourent. La seule évolution sensible des membranes est la diminution de leur épaisseur. En effet, les membranes les plus épaisses (175  $\mu m$  pour le Nafion<sup>R</sup> 117) ont tendance à se déshydrater à l'anode aux fortes intensités car la rétro-diffusion y est moins efficace [23]. Ainsi les membranes couramment utilisées aujourd'hui sont plus fines (30  $\mu m$  pour le Nafion<sup>R</sup> 211 et jusqu'à 18 $\mu m$  pour Gore<sup>R</sup>) [8].



**Figure IV. 48:** Influence de l'épaisseur de la membrane sur la résistance ohmique.

L'effet de l'épaisseur de la membrane sur la performance de la pile est montré dans la figure (IV.48). La perte de potentiel dans la membrane est due à la résistance au transport de protons à travers la membrane de la couche de catalyseur anodique vers la couche de catalyseur cathodique. Une réduction de l'épaisseur de la membrane signifie que la distance parcouru par les protons sera diminué; ce qui réduit la résistance de la membrane et conduit à réduire la perte de potentiel dans la membrane.

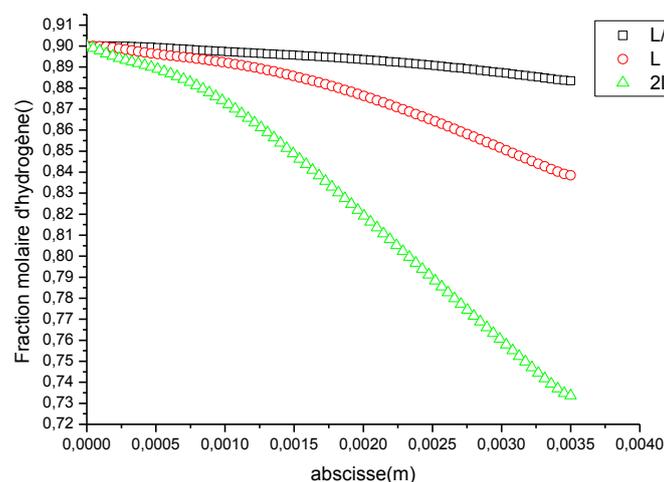
Ces résultats montrent que la réduction de l'épaisseur de la membrane joue un rôle important dans la l'amélioration de la performance de la cellule.

#### IV.4.7 Effet de la longueur du canal

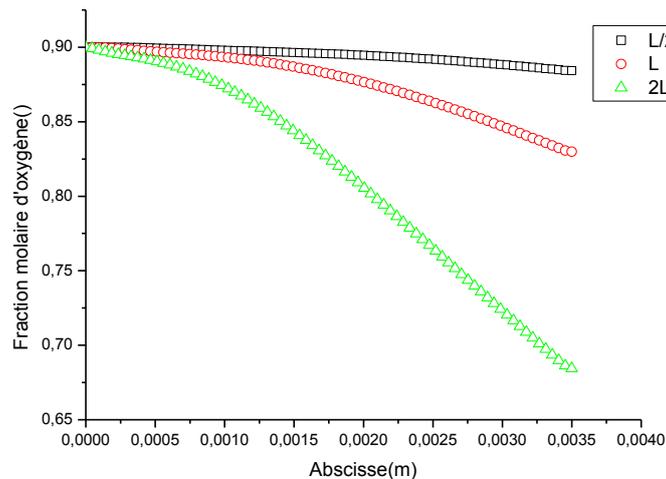
Les figures (IV.49, 50) montrent l'évolution des fractions molaire d'hydrogène et d'oxygène dans les canaux anodique et cathodique respectivement pour trois valeurs de la longueur du canal, pour la longueur (L) et la moitié de la longueur (L/2) et double longueur (2L).

Les résultats montrent que pour une augmentation de la longueur du canal les fractions molaire d'hydrogène et d'oxygène aux canaux des gaz sont diminuées.

Une augmentation de la longueur du canal améliore le transport de masse des réactions ou la consommation des réactif augmente, et devient plus petit ou nulle dans la couche de catalyseur.



**Figure IV. 49:** Evolution de fraction molaire d'hydrogène dans le canal anodique en fonction de la longueur du canal.  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T_e=353K$



**Figure IV. 50:** Evolution de fraction molaire d'oxygène dans le canal cathodique en fonction de la longueur du canal.  $i=0.8A/cm^2$ ,  $T_e=353K$

#### IV.4.8 Effet de la porosité

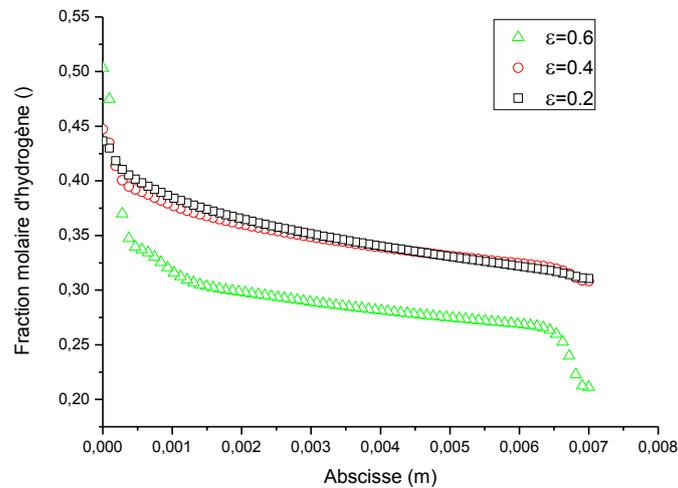
Les nombreuses caractéristiques physiques de la GDL interviennent également dans la gestion de l'eau, ainsi la porosité doit être suffisante pour permettre une bonne diffusion des gaz [24], mais une taille de pores trop importante facilite l'accumulation de l'eau [25].

La porosité de la couche de diffusion de gaz affecte la performance de la pile à combustible sous deux aspects: à une fraction de vide supérieure offre moins de résistance pour les gaz réactifs pour atteindre la couche de catalyseur d'une part, mais à son tour, conduit à une résistance de contact plus élevée [4].

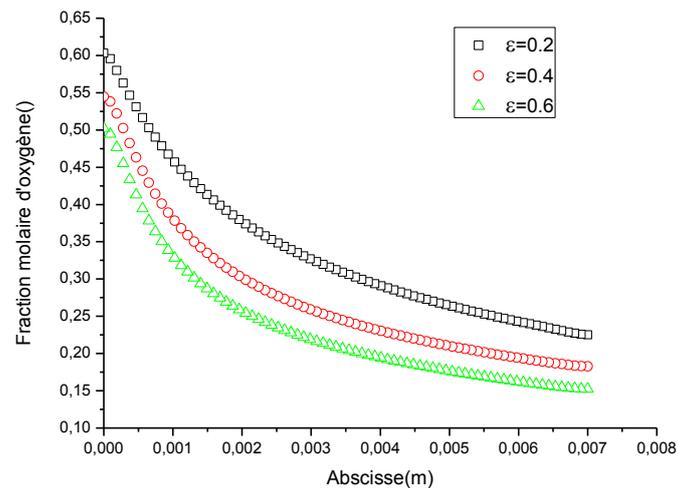
Les figures (IV.51, 52) représentent la fraction molaire d'hydrogène et d'oxygène dans la couche de diffusion de gaz pour différents valeurs de la porosité.

Plus la porosité est grande, plus la diffusion des espèces est facile dans la couche de diffusion de gaz.

Une augmentation de la porosité améliore la diffusion des espèces vers la couche de catalyseur, comme le montre la correction de Bruggemann (équation (III.7)).



**Figure IV.51:** Profils des fractions molaires d'hydrogène dans la couche de diffusion de gaz anodique pour différentes porosités.  $T_e = 353K$ ,  $i = 0,8 A/cm^2$



**Figure IV.52:** Profils des fractions molaires d'oxygène dans la couche de diffusion de gaz cathodique pour différentes porosités.  $T_e = 353K$ ,  $i = 0,8 A/cm^2$

#### IV.5 Conclusion

Une étude paramétrique, utilisant deux modèles bidimensionnels d'une pile à combustible PEM, a été réalisée. Une distribution détaillée des réactifs, la vapeur d'eau et du champ de température à l'intérieur de la pile à combustible pour différentes paramètres de fonctionnement et géométriques a été présentée.

Ce modèle est utilisé pour fournir une compréhension fondamentale des phénomènes de transport qui se produisent dans une pile à combustible, les résultats de simulation montrent une

bonne concordance entre les réponses du modèle et celles connues de la pile, ainsi notre modèle permet de prédire la performance des piles à combustible sous divers conditions de fonctionnement (du taux d'humidification et de la température).

#### IV.6 Références bibliographiques

- [1] Zina Belkhiri, Mostefa Zeroual, Hocine Ben Moussa, Moussa Zereg, Bariza Zitouni, Numerical simulation of exchange membrane fuel cells in different operating conditions, *International Journal of Hydrogen Energie*, 37 (2012) 5444-5451.
- [2] J.Paul M'Batna, Contribution à la modélisation tridimensionnelle du comportement thermo fluide d'une cellule de pile à combustible à membrane échangeuse de protons, *Thèse préparée à l'Institut FEMTO-ST département ENYSIS, de Technologie de Belfort-Montbéliard et de l'Université de Franche-Comté*, 2009.
- [3] J. Ramousse, J. Deseure, O. Lottin, S. Didierjean, D. Maillet, Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell, *Journal of Power Sources*, 145 (2005) 416–427.
- [4] Berning T, Lu DM, Djilali N, Three-dimensional computational analysis of transport phenomena in a PEM fuel cell, *J Power Sources*, 106 (1–2) (2002) 284–94.
- [5] H. Ju, H. Meng, C.Y. Wang, A single-phase, non-isothermal model for PEM fuel cells, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 48 (2005) 1303–1315.
- [6] A. Parthasarathy, S. Srinivasan, J. A. Appleby, and C. R. Martin, Temperature Dependence of the Electrode Kinetics of Oxygen Reduction at the Platinum/ Nafion on Interface – A Microelectrode Investigation, *J. Electrochem. Soc.*, 139 (9) (1992) 2530–2537.
- [7] W.Q. Tao, C.H. Min, X.L. Liu, Y.L. He, B.H. Yin, W. Jiang, Parameter sensitivity examination and discussion of PEM fuel cell simulation model validation: Part I. Current status of modeling research and model development, *Journal of Power Sources*, 160 (2006) 359–373.
- [8] M.A.R. Sadiq Al-Baghdadi, H.A.K. Shahad Al-Janabi, Modeling optimizes PEM fuel cell performance using three-dimensional multi-phase computational fluid dynamics model, *Energy Conversion and Management*, 48 (2007) 3102–3119.
- [9] X. Liu, H. Guo, and C. Ma, Water flooding and two-phase flow in cathode channels of proton exchange membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, 156 (2006) 267–280.
- [10] M.G. Santarelli and M.F. Torchio, Experimental analysis of the effects of the operating variables on the performance of a single PEMFC, *Energy Conversion and Management*, 48 (2007) 40–51.
- [11] L.S. Freire, E. Antolini, M. Linardi, E.I. Santiago, R. R. Passos, Influence of operational parameters on the performance of PEMFCs with serpentine flow field channels having different (rectangular and trapezoidal) cross-section shape, *International Journal of Hydrogen Energie*, 39 (2014) 12052-12060.
- [12] A. Gomez a, A. Raj a, A. P. Sasmito, b, T. Shamim, Effect of operating parameters on the transient performance of a polymer electrolyte membrane fuel cell stack with a dead-end anode, *Applied Energy*, 130 (2014) 692–701.
- [13] S.S.Hsieh, C.L.Feng, C.F.Huang, Development and performance analysis of a H<sub>2</sub>/air micro PEM fuel cell stack, *Journal of Power Sources*, 163 (2006) 440–449.
- [14] Fuqiang Liu, Baolian Yi, Danmin Xing, Jingrong Yu, Zhongjun Hou, Yongzhu Fu, Development of novel self-humidifying composite membranes for fuel cells, *Journal of Power Sources*, 124 (2003) 81–89.

- [15] P. Sridhar, R. Perumal, N. Rajalakshmi, M. Raja, K.S. Dhathathreyan, Humidification studies on polymer electrolyte membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 101 (2001) 72-78.
- [16] W. Friede, S. Raël, B. Davat, Mathematical model a characterization of transient behavior of a PEM Fuel Cell, *IEEE Transaction*, 2004.
- [17] Thomas A. Zawodzinski, John Dawy, Judith Valerio and Shmshon Gottesfeld, The water content dependence of electro-osmotic drag in proton-conducting polymer electrolytes, *Electrochem. Acta*, 40 (3) (1995) 297-302.
- [18] T.E. Springer, M. S. Wilson, and S. Gottesfeld. Modeling and experimental diagnostics in polymer electrolyte fuel cells. *J. Electrochem. Soc.*, 140 (12) (1993) 3513-3526.
- [19] James Larminie and Andrew Dicks, *Fuel Cell Systems Explained*, Wiley, 2003.
- [20] Sylvain Chupin, Comportement local et performances électriques d'une pile à combustible à membrane : vers un outil de diagnostic, *Thèse préparée à l'Institut National Polytechnique de Lorraine et Université du Québec à Trois-Rivières*, 2009.
- [21] H. Li, Y. Tang, Z. Wang, Z. Shi, S. Wu, D. Song, J. Zhang, K. Fatih, J.Zhang, H. Wang, Z. Liu, R. Abouatallah, and A. Mazza, A review of water flooding issues in the proton exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 178 (2008) 103–117.
- [22] N. Holmström, J. Itonen, A. Lundblad, and G. Lindbergh, The Influence of the Gas Diffusion Layer on Water Management in Polymer Electrolyte Fuel Cells, *Fuel Cells*, 7 (2007) 306–313.
- [23] T.J.P. Freire and E.R. Gonzalez, Effect of membrane characteristics and humidification conditions on the impedance response of polymer electrolyte fuel cells, *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 503 (2001) 57–68.
- [24] H.S. Chu, C. Yeh, and F. Chen, Effects of porosity change of gas diffuser on performance of proton exchange membrane fuel cell, *Journal of Power Sources*, 123 (2003) 1–9.
- [25] M. Prasanna, H.Y. Ha, E.A. Cho, S-A. Hong and I-H. Oh, Influence of cathode gas diffusion media on the performance of the PEMFCs, *Journal of Power Sources*, 131 (2004) 147–154.

# **Conclusion générale**

**et perspectives**

Dans cette thèse, deux modèles 2D, monophasique, stationnaire d'une cellule du type PEM à géométrie planaire ont été étudiés. Les modèles tiennent compte de l'assemblage-membrane-électrode (AME) et les canaux des gaz où l'écoulement est parfaitement parallèle et co-courant.

La modélisation prend en compte le transport de matière c-à-d de la phase gazeuse dans les diffuseurs anodique et cathodique, les canaux et de l'eau dans la membrane ainsi que de la chaleur dans la totalité de la pile PEM (seul le régime permanent est considéré).

Cette modélisation présente une distribution détaillée des réactifs, de la vapeur d'eau, du champ de température et de la répartition des sources de chaleur à l'intérieur de la pile à combustible pour différentes paramètres de fonctionnement et géométriques.

Dans cet objectif, Nous avons pu tirer quelques conclusions intéressantes :

L'étude des transferts thermiques a permis de mettre en évidence un échauffement du cœur de pile pouvant aller jusqu'à quelques degrés pour les fortes densités de courant. Le lien entre les performances électriques de la cellule et l'intensité des sources de chaleur dans l'AME a été montré.

Pour la gestion d'eau pour éviter qu'une trop grande quantité d'eau ne se condense, il suffit donc d'augmenter la température de la cellule. Une augmentation de température augmente la conductivité ionique de la membrane, ce qui améliore les performances de la cellule.

Nous avons en particulier pu montrer par une étude paramétrique l'influence des paramètres de fonctionnement (la densité de courant, la vitesse d'entrée des gaz, la teneur en eau, la température d'entrée des gaz, la conductivité thermique) et géométriques (l'épaisseur de la membrane, la porosité, la longueur du canal) sur le transport des réactifs et la vapeur d'eau et la répartition du champ de température dans la cellule.

L'évolution de la fraction molaire de la vapeur est directement liée à la production d'eau.

La température dans la cellule dépend fortement de la densité de courant et des réactions à l'intérieur de la pile.

Une augmentation de la densité de courant correspond à une augmentation de la consommation des réactifs.

Les gradients thermiques et l'échauffement de l'AME sont directement liés à la conductivité thermique des diffuseurs.

Une augmentation de la longueur du canal améliore le transport de masse des réactions où la consommation des réactifs augmente, et devient plus petit ou nulle dans la couche de catalyseur.

Une augmentation de la porosité améliore la diffusion des espèces vers la couche de catalyseur,

La courbe de polarisation d'une cellule varie également en fonction des conditions de fonctionnement (du taux d'humidification et de la température). Même si les valeurs de tension varient, l'allure de la courbe reste la même, quelles que soient les conditions de fonctionnement.

La tension de la cellule diminue lorsque sa densité de courant augmente à cause de pertes d'énergie dues à plusieurs phénomènes électriques et électrochimiques.

La réduction de l'épaisseur de la membrane joue un rôle important dans la l'amélioration de la performance de la cellule.

L'humidification est le facteur qui influe le plus sur les pertes électriques car il affecte la résistance de l'électrolyte. Une meilleure performance est obtenue avec une teneur en eau plus élevée.

En conclusion, ce travail a démontré l'utilité de la modélisation pour la compréhension des phénomènes physiques internes, la prédiction et l'amélioration du comportement des piles à combustible de type PEM.

Une vraie gestion de l'eau nécessite un modèle prenant en compte le caractère diphasique, travail conséquent pour la maîtrise de la condensation de l'eau et de son évacuation de la cellule. Il serait alors nécessaire de mettre en place un modèle diphasique transitoire particulièrement complexe à résoudre. Le modèle présenté dans ce travail, il pourrait donc être étendu à la modélisation pour une description du transfert diphasique de l'eau dans la cellule.

C'est dans cette optique que nous poursuivons nos travaux futurs.

# ANNEXE A

## CALCUL DES TERMES SOURCES PAR USER DEFINE FUNCTIONS (UDFs)

Dans cette annexe, nous présentons les termes sources que nous avons utilisés pour la modélisation sous le code CFD FLUENT version 6.3.

### A. Présentation des termes sources utilisés

Les termes sources utilisés pour la simulation du modèle sont particulièrement celles de la consommation des gaz, la production de la vapeur d'eau, La génération de chaleur interne dû à des changements d'entropie, la chaleur produite par la surtension d'activation des réactions dans le catalyseur ainsi que la chaleur produite par effet Joule dans la membrane sont intégrés dans le modèle par l'intermédiaire d'une commande UDFs (User Define Functions).

#### A.1 Terme de Darcy dans l'équation de quantité de mouvement

##### Selon la direction (ox)

```
#include "udf.h"
#define por 0.4
#define perm 1.76e-11
#define visco 1.9e-5
DEFINE_SOURCE (s_u, c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] = - perm/(por*visc);
C_UDMI(c, t, 0)=-perm*C_U(c,t)/(por*visc);
return C_UDMI(c,t,0);
}
```

##### Selon la direction (oy)

```
#include "udf.h"
#define por 0.4
#define perm 1.76e-11
#define visco 1.9e-5
DEFINE_SOURCE (s_v, c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] = - perm/(por*visc);
C_UDMI(c, t, 1)=-perm*C_V(c,t)/(por*visc);
return C_UDMI(c,t,1);
}
```

**A.2 Source de consommation de l'hydrogène à l'anode**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define MH2 2.e-3
#define cour 0.5e4
DEFINE_SOURCE (s_h2,c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] =0.;
C_UDMI(c, t, 2)=-cour*1.e6*MH2/(2*far) ;
return C_UDMI(c,t,2);
}
```

**A. 3 Source de consommation de l'oxygène à la cathode**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define MO2 32.e-3
#define cour 0.5e4
DEFINE_SOURCE (s_o2, c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] = 0.;
C_UDMI(c, t, 3) =-cour*1.e6*MO2/(4*far);
return C_UDMI(c,t,3);
}
```

**A.4 Source de production de la vapeur d'eau à la cathode**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define MH2O 18.e-3
#define cour 0.5e4
DEFINE_SOURCE (s_h2o,c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] = 0.;
C_UDMI(c, t, 4)=cour*1.e6*MH2O/(4*far);;
return C_UDMI(c, t, 4);
}
```

**A.5 Source de chaleur due à des changements d'entropie**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define entr -326.36
#define cour 0.5e4
DEFINE_SOURCE (s_T_cat_c_entro,c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] = 0 ;
C_UDMI(c, t, 8)=-C_T(c,t)*entro*cour*1.e6/(4*F);
return C_UDMI(c,t,8) ;
}
```

**A.6 Source chaleur produite par la surtension d'activation à l'anode**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define R 8.314
#define cour 0.5e4
#define cour_0 4.e-3
DEFINE_SOURCE (s_T_cat_a_act,c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] =R*log(cour/ cour_0)/(0.5*2*F)*cour;
C_UDMI(c, t, 13)=R*C_T(c, t)*log(cour/ cour_0). ;
C_UDMI(c, t, 11)=C_UDMI(c,t,13)*cour*1.e6 ;
return C_UDMI(c,t,10) ;
}
```

**A.7 Source chaleur produite par la surtension d'activation à la cathode**

```
#include "udf.h"
#define F 96485
#define R 8.314
#define cour 0.5e4
#define cour_0 1.e2
DEFINE_SOURCE (s_T_cat_a_act,c, t, dS, eqn)
{
dS[eqn] =R*log(cour/ cour_0)/(0.5*4*F)*cour;
C_UDMI(c, t, 12)=R*C_T(c, t)*log(cour/ cour_0). ;
C_UDMI(c, t, 10)=C_UDMI(c,t,12)*cour*1.e6 ;
return C_UDMI(c,t,10) ;
}
```

**A.8 Source de chaleur produite par effet Joule**

```
#include "udf.h"
#define lamd 14
#define Lm 0.2e-3
#define cour 0.5e4
DEFINE_SOURCE (s_T_m,c, t, dS, eqn)
{
real sigma= 0.2*(0.5139*lamd-0.326)*exp((1268/303)-(1268/C_T(c, t)));
dS[eqn] = 0 ;
C_UDMI(c, t, 16)=0.2*(0.5139*lamd-0.326)*exp((1268/303)-(1268/C_T(c, t)));
C_UDMI(c, t, 14)=cour*Lm/sigma;
C_UDMI(c, t, 5)=cour* C_UDMI(c, t, 14);
return C_UDMI(c,t,5) ;
}
```

## ظواهر النقل في الخلايا الوقودية ذات الغشاء النفوذ للبروتونات المعروفة باسم (PEMFC)

### ملخص

الخلية الوقودية ذات الغشاء النفوذ للبروتونات المعروفة باسم PEMFC، هذا النوع من الخلايا هو النوع الأكثر دراسة، في هذا العمل، نحن نركز على نمذجة تدفق الغاز والماء في خلية PEM، لهذا الغرض، تم تطوير نموذجين ثنائيي الأبعاد أحادي الطور لنقل الحرارة والكتلة.

ولقد تم تقديم المعادلات المحفوظة المتعلقة بالمشكل الفيزيائي المدروس و أيضا تم تقديم الشروط الحدودية ومختلف خصائص التدفق. من خلال هذه المعادلات التي تم تكييفها وفقا للنموذج، تم عرض للأداة الرقمية المستخدمة CFD.

ويستخدم النموذج المختار في دراستنا لتقييم تأثير العوامل الفيزيائية (كثافة التيار، وسرعة دخول الغازات، ومحتوى الماء، درجة حرارة دخول الغازات والتوصيل الحراري) والعوامل الهندسية (سمك الغشاء، المسامية، وطول القناة) على توزيع الغازات، وبخار الماء ودرجة الحرارة في مختلف مكونات الخلية. وقد أظهرت نتائج المحاكاة تأثير درجة الحرارة ونسبة الرطوبة على فعالية البطارية.

الكلمات المفتاحية: PEMFC، النمذجة، نقل المياه، وسط مسامي، الأداء.

# *Phénomènes de transport dans les piles à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC)*

## **Résumé**

*La pile à combustible à membrane échangeuse de protons appelée aussi PEMFC est le type de pile le plus étudié.*

*Dans ce travail, on s'intéresse à la modélisation des écoulements des gaz et d'eau au sein d'une cellule de type PEM, dans ce but, deux modèles bidimensionnels, monophasique, stationnaire de transport de masse et de chaleur sont développés.*

*Les équations de conservation régissant le problème physique étudié ainsi que les conditions aux limites et les différentes propriétés de l'écoulement sont présentées. A travers ces équations adaptées au modèle, une présentation de l'outil numérique utilisé CFD FLUENT est faite.*

*Le modèle choisi dans notre étude est employé, pour évaluer l'influence des paramètres physiques (la densité de courant, la vitesse d'entrée des gaz, la teneur en eau, la température d'entrée des gaz, la conductivité thermique) et les paramètres géométriques (l'épaisseur de la membrane, la porosité, la longueur du canal) sur la distribution des réactifs, la vapeur d'eau et la température dans les différents éléments constituant la pile.*

*Les résultats de simulation ont pu montrer l'influence de la température et de la teneur en eau sur les performances électriques de la pile.*

**Mots clés** : PEMFC, modélisation, transport de l'eau, milieu poreux, performance.

## ***Transport phenomena in membrane fuel cell proton exchange (PEMFC)***

### **Abstract**

*The proton exchange membrane fuel cell is known as PEMFC is the type most studied.*

*In this work, we focus on the modeling of flows of gas and water in a PEM cell, for this purpose, two 2D-dimensional models, single-phase, stationary of mass transport and heat is developed. Conservations equations governing the physical problem studied, the limited conditions and different properties of the flow are presented. Through these equations adapted to the model, a presentation of the used digital tool CFD FLUENT is made.*

*The model chosen in our study is used to evaluate the influence of physical parameters (current density, velocity inlet of gas, water content, temperature inlet of gas, thermal conductivity) and the geometric parameters (membrane thickness, porosity, channel length) on the reagent distribution, water vapor and temperature in the different components of the cell.*

*The simulation results have shown the influence of temperature and water content on the electrical performance.*

**Key words:** *Proton Exchange Membrane Fuel Cell, modeling, porous media, water transport, performance.*

## ظواهر النقل في الخلايا الوقودية ذات الغشاء النفوذ للبروتونات المعروفة باسم (PEMFC)

### ملخص

الخلية الوقودية ذات الغشاء النفوذ للبروتونات المعروفة باسم PEMFC، هذا النوع من الخلايا هو النوع الأكثر دراسة، في هذا العمل، نحن نركز على نمذجة تدفق الغاز والماء في خلية PEM، لهذا الغرض، تم تطوير نموذجين ثنائيي الأبعاد أحادي الطور لنقل الحرارة والكتلة. ولقد تم تقديم المعادلات المحفوظة المتعلقة بالمشكل الفيزيائي المدروس وأيضاً تم تقديم الشروط الحدودية ومختلف خصائص التدفق. من خلال هذه المعادلات التي تم تكييفها وفقاً للنموذج، تم عرض للأداة الرقمية المستخدمة CFD. ويستخدم النموذج المختار في دراستنا لتقييم تأثير العوامل الفيزيائية (كثافة التيار، وسرعة دخول الغازات، ومحتوى الماء، درجة حرارة دخول الغازات والتوصيل الحراري) والعوامل الهندسية (سمك الغشاء، المسامية، وطول القناة) على توزيع الغازات، وبخار الماء ودرجة الحرارة في مختلف مكونات الخلية. وقد أظهرت نتائج المحاكاة تأثير درجة الحرارة ونسبة الرطوبة على فعالية البطارية.

**الكلمات المفتاحية:** PEMFC، النمذجة، نقل المياه، وسط مسامي، الفعالية.

### *Phénomènes de transport dans les piles à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC)*

#### Résumé

*La pile à combustible à membrane échangeuse de protons appelée aussi PEMFC est le type de pile le plus étudié.*

*Dans ce travail, on s'intéresse à la modélisation des écoulements des gaz et d'eau au sein d'une cellule de type PEM, dans ce but, deux modèles bidimensionnels, monophasique, stationnaire de transport de masse et de chaleur sont développés.*

*Les équations de conservation régissant le problème physique étudié ainsi que les conditions aux limites et les différentes propriétés de l'écoulement sont présentées. A travers ces équations adaptées au modèle, une présentation de l'outil numérique utilisé CFD FLUENT est faite.*

*Le modèle choisi dans notre étude est employé, pour évaluer l'influence des paramètres physiques (la densité de courant, la vitesse d'entrée des gaz, la teneur en eau, la température d'entrée des gaz, la conductivité thermique) et les paramètres géométriques (l'épaisseur de la membrane, la porosité, la longueur du canal) sur la distribution des réactifs, la vapeur d'eau et la température dans les différents éléments constituant la pile.*

*Les résultats de simulation ont pu montrer l'influence de la température et de la teneur en eau sur les performances électriques de la pile.*

**Mots clés :** PEMFC, modélisation, transport de l'eau, milieu poreux, performance.

### *Transport phenomena in membrane fuel cell proton exchange (PEMFC)*

#### Abstract

*The proton exchange membrane fuel cell is known as PEMFC is the type most studied.*

*In this work, we focus on the modeling of flows of gas and water in a PEM cell, for this purpose, two 2D-dimensional models, single-phase, stationary of mass transport and heat is developed. Conservations equations governing the physical problem studied, the limited conditions and different properties of the flow are presented. Through these equations adapted to the model, a presentation of the used digital tool CFD FLUENT is made.*

*The model chosen in our study is used to evaluate the influence of physical parameters (current density, velocity inlet of gas, water content, temperature inlet of gas, thermal conductivity) and the geometric parameters (membrane thickness, porosity, channel length) on the reagent distribution, water vapor and temperature in the different components of the cell.*

*The simulation results have shown the influence of temperature and water content on the electrical performance.*

**Key words:** Proton Exchange Membrane Fuel Cell, modeling, water transport, porous media, performance.