



Modélisation bidimensionnelle du transfert de chaleur et de masse dans une membrane de pile à combustible de type PEM

DADDA Bachir^{#1}, ABBOUDI Saïd^{*2}

[#]Unité de Recherche Appliquée en Energies Renouvelables
Ghardaïa, Algérie

¹dadbac@gmail.com

* UTBM, Laboratoire M3M

site de Sévenans Belfort, France

²said.abboudi@utbm.fr

Abstract— Dans ce papier on présente une étude numérique du transfert de chaleur et de masse dans la membrane d'une pile à combustible de type PEM (membrane échangeuse de protons). La membrane est de type Nafion 117, elle est considérée comme un milieu poreux. La membrane est modélisée en supposant un écoulement monophasique et multi-espèces. Un modèle transitoire et bidimensionnel est utilisé. Le système d'équations régissant les phénomènes de transfert est basé sur le principe de conservation de la quantité de mouvement, de la masse et de l'énergie.

La résolution numérique du modèle bidimensionnel est basée sur la méthode des différences finies implicite avec le schéma ADI, en utilisant l'algorithme TDM (Thomas) pour la résolution de la matrice tridiagonale.

Les résultats obtenus montrent une bonne cohérence avec ceux de la littérature. Les évolutions de la température et de la concentration le long de l'épaisseur de la membrane ont été étudiées pour différents cas de conditions aux limites, afin de tester la réponse du code de calcul élaboré.

Mots clés— pile à combustible, transfert de chaleur, transfert de masse, différences finies, membrane échangeuse de proton

I. INTRODUCTION

La recherche et le développement dans les systèmes de piles à combustible pour différentes applications se sont considérablement accrus dans les dernières années. Le système de piles à combustible à membrane échangeuse de protons s'avèrent l'un des candidats les plus prometteurs à remplacer les systèmes traditionnels tels que les machines à combustion interne vue les avantages qu'elles présentent, à savoir : un rendement énergétique élevé, moins de gaz à effet de serre rejetés dans l'atmosphère, pas d'usure mécanique, pas de nuisance sonore et peu d'entretien exigé.

Bien que la technologie des piles PEM ait prouvé des avantages multiples par rapport aux autres technologies, il

reste beaucoup de chose à faire avant qu'elle soit destinée à la commercialisation. Parmi les problèmes qui nécessitent d'être résolus, on trouve ; le coût de fabrication du matériau, les frais et la difficulté de production du combustible, le transport et le stockage et le manque d'usines de fabrication. De plus la gestion de l'eau dans la pile à combustible PEM reste un aspect critique. La conductivité ionique de la pile PEM est fortement dépendante de l'hydratation de la membrane. L'hydratation non adéquate de la membrane provoque l'augmentation de la résistance électrique aussi bien que la formation de pores secs menant à la destruction de la membrane. Par contre l'excès de l'eau liquide dans la couche catalyseur produite par la réaction électrochimique et due à l'effet de l'électro-osmose, peut bloquer l'accès des gaz réactifs au site de réaction et diminuer ainsi les performances de la pile. D'où, l'eau liquide est l'un des facteurs clés responsable de la dégradation de la membrane électrolyte et de la réduction des performances de la pile.

Il y a plusieurs types de modèles pour les piles à combustible dans la littérature. En particulier, des modèles de gestion de l'eau et de la chaleur dans les PEMFC. Les premiers travaux ont été réalisés par Nguyen et White [1] et Fuller et Newman [2]. Dans le premier article [1], les auteurs ont développé un modèle bidimensionnel de PEMFC avec un transfert de chaleur unidimensionnel dans la direction de l'écoulement, alors que dans le second [2], un modèle bidimensionnel pour l'ensemble membrane électrode (MEA) d'une pile à combustible, a été proposé. Le modèle considère le transfert de chaleur, la gestion de l'eau et l'utilisation du combustible à travers les canaux.

Plusieurs études se sont intéressées à la gestion de l'eau dans les MEA comportant la membrane et les électrodes [3-9], tandis que d'autres se sont consacrées uniquement à la membrane [10,11].

Pour notre part, on s'intéresse à l'étude du transfert de chaleur et de masse uniquement dans la partie membrane de la pile à combustible. Le modèle proposé est supposé



bidimensionnel et transitoire; il est élaboré à partir du modèle unidimensionnel décrit par B. M. Eaton [12].

II. MODEL MATHÉMATIQUE

Une pile à combustible de type PEM utilise l'hydrogène comme combustible et l'oxygène comme oxydant. Elle est constituée de :

- collecteur de courant (canaux de gaz inclus),
- couches de diffusion de gaz,
- couches catalyseur
- membrane polymère comme conducteur d'ion.

Les réactifs entrent dans la pile à travers les canaux de gaz qui sont usinés dans les plaques collectrices. Le réseau des canaux de gaz est conçu de façon à distribuer uniformément les réactifs à travers la surface des couches de diffusion de gaz (GDL). Ces GDLs sont construites à base du papier carbone et servent à distribuer uniformément les réactifs à travers la surface des couches catalyseurs, comme ils servent à assurer une connexion électrique entre les couches catalyseur et les collecteurs de courant. Le rôle de la membrane est de fournir un passage pour les protons tout en restant imperméable aux électrons. La membrane doit aussi éviter le mélange de l'oxydant et des réactifs, fig. 1.

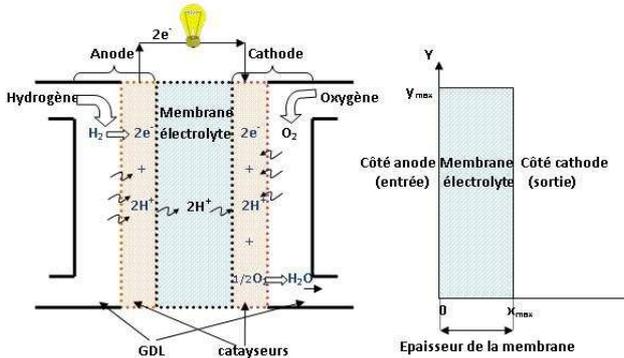


Fig. 1 Principe de fonctionnement d'une cellule d'une PEMFC et le domaine d'étude

Dans ce travail, on considère une membrane d'une pile à combustible de type PEM de 0.227 mm d'épaisseur et 5 cm de longueur. Un flux d'eau et de protons entre dans la membrane avec une certaine température et concentration. La membrane est considérée comme un milieu poreux homogène et isotrope. L'écoulement dans la membrane est supposé monophasique et laminaire, avec une variation linéaire de la pression de l'eau. Sur la fig. 1, un schéma représentatif du principe de fonctionnement d'une cellule de pile à combustible de type PEM ainsi que le domaine d'étude sont présentés. Les équations gouvernant les phénomènes de transfert sont basées sur le principe de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie.

A. Equation du mouvement

Elle prend la forme de l'équation de Darcy généralisée :

$$U_x = -\frac{K k_r^g}{\mu} \frac{\partial p}{\partial x}, U_y = -\frac{K k_r^g}{\mu} \frac{\partial p}{\partial y} \quad (1)$$

La viscosité dynamique du mélange est donnée par la relation :

$$\mu = \frac{M_{H^+} C_{H^+}}{\rho} \mu_{H^+} + \frac{M_{H_2O} C_{H_2O}}{\rho} \mu_{H_2O} \quad (2)$$

avec $\rho = M_{H_2O} C_{H_2O} + M_{H^+} C_{H^+}$ la masse volumique du mélange.

B. Equation de conservation des espèces

Pour l'eau :

$$\frac{\partial C_{H_2O}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{C_{H_2O}} \frac{\partial C_{H_2O}}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_{C_{H_2O}} \frac{\partial C_{H_2O}}{\partial y} \right) - U_x \frac{\partial C_{H_2O}}{\partial x} - U_y \frac{\partial C_{H_2O}}{\partial y} - \frac{\partial}{\partial x} \left(n_{drg} \frac{i_x}{F} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(n_{drg} \frac{i_y}{F} \right) \quad (3)$$

Pour les protons, en supposant l'électro-neutralité et l'homogénéité de la distribution des sites de charge, l'équation de conservation devient :

$$\frac{\partial C_{H^+}}{\partial t} = 0, \frac{\partial C_{H^+}}{\partial x} = 0, \frac{\partial C_{H^+}}{\partial y} = 0 \quad (4)$$

C. Equation de l'énergie

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\lambda_m}{\rho C_p} \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{\lambda_m}{\rho C_p} \frac{\partial T}{\partial y} \right) - \frac{M C_p N_x}{\rho C_p} \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{M C_p N_y}{\rho C_p} \frac{\partial T}{\partial y} + \frac{i_x^2}{\rho C_p \sigma_m} + \frac{i_y^2}{\rho C_p \sigma_m} \quad (5)$$

D. Conditions initiales et aux limites

- A $t=0$, on impose un profil linéaire entre l'entrée et la sortie de la membrane pour la concentration d'eau et la température :

$$\text{en } x=0, 0 < y < y_{max}: T=69,85^\circ C$$

$$C_{H_2O}=6000 \text{ mol/m}^3 \quad (6)$$

$$\text{en } x=x_{max}, 0 < y < y_{max}: T=72,85^\circ C$$

$$C_{H_2O}=18000 \text{ mol/m}^3 \quad (7)$$

- Pour $t>0$,

$$\text{en } y=0 \text{ et } y=y_{max}, \text{ on impose : } \frac{\partial C_{H_2O}}{\partial y} = \frac{\partial T}{\partial y} = 0 \quad (8)$$

$$\text{en } x=0, 0 < y < y_{max}: T=69,85^\circ C \quad (9)$$

en $x=x_{max}, 0 < y < y_{max}$:



- flux d'eau constant : $q_c = 9.10^7 \text{ mol/m}^4$ (10)
- flux de chaleur constant : $q_T = 22 \text{ W/m}^2$ (11)

Les conditions à l'entrée de la membrane pour la concentration d'eau et la température sont détaillées dans la partie Résultats selon les cas considérés.

E. Méthode numérique

Le système d'équations (1), (3) et (5) munit des conditions initiales (6) et (7) et aux limites (8), (9), (10) et (11) est discrétisé par la méthode des différences finies implicite selon un schéma de type ADI (Alternating Direction Implicit). L'algorithme TDMA (TriDiagonal Matrix Algorithm dit algorithme de Thomas) est utilisé pour la résolution des systèmes algébriques résultants, avec des coefficients variables dans chaque direction. Le maillage utilisé est constitué de grilles rectangulaires avec des pas réguliers dans les deux directions.

III. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Dans cette partie nous présentons quelques résultats correspondant aux différents cas de conditions aux limites. Nous considérons qu'à l'entrée de la membrane (côté anode), la concentration d'eau est linéaire et croissante le long de la direction 'y', et à la sortie (coté cathode) nous imposons un flux d'eau constant et positif. quant a la température, à l'entrée de la membrane on considère deux cas, elle est linéaire et croissante (dans le même sens que celui de la concentration) dans l'un, et linéaire et décroissante (dans le sens opposé à celui de la concentration) dans l'autre cas. A la sortie de la membrane, un flux de température positif est imposé. Cette étude nous permet de tester la réponse du code de calcul élaboré à ces différents cas de conditions.

La fig. 2 montre les profils de la concentration d'eau le long de l'épaisseur de la membrane (en fonction de x) à deux instants différents (10s et 50s) et trois positions dans la direction 'y' (50, 100 et 150 pas) correspondant respectivement à (1,25 cm, 2,5 cm et 3,75 cm). Pour ce cas, la température et la concentration à l'entrée de la membrane sont linéaires et croissantes le long de la direction 'y'. Les courbes correspondantes montrent que la concentration d'eau augmente le long de l'épaisseur de la membrane à cause du flux de l'eau qui arrive du côté cathode de la membrane. Néanmoins, il faut noter que dans la partie supérieure de la membrane ($y > 100$) au premiers instants, cette concentration commence d'abord par diminuer puis elle remonte près du centre, par ce qu'à l'état initial la concentration était beaucoup plus faible par rapport à la condition imposée dans cette région. Les résultats montrent aussi qu'au cours du temps, la concentration d'eau augmente dans la partie supérieure de la membrane et diminue dans la partie inférieure.

Lorsque la température à l'entrée de la membrane est décroissante le long de la longueur 'y' (fig. 3), les valeurs de la concentration deviennent plus grandes que celles du cas précédent. De plus, l'écart entre ces deux cas devient plus grand quand on s'éloigne de l'entrée. D'après ces deux figures, on peut déduire que le fait de changer le sens de variation de la température à l'entrée de la membrane et de l'imposer dans le sens opposé à ce lui de la concentration, engendre une augmentation de la concentration de l'eau dans l'ensemble de la membrane.

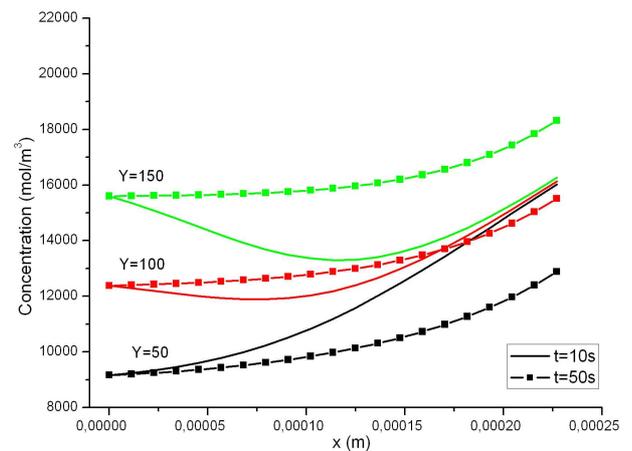


Fig. 2

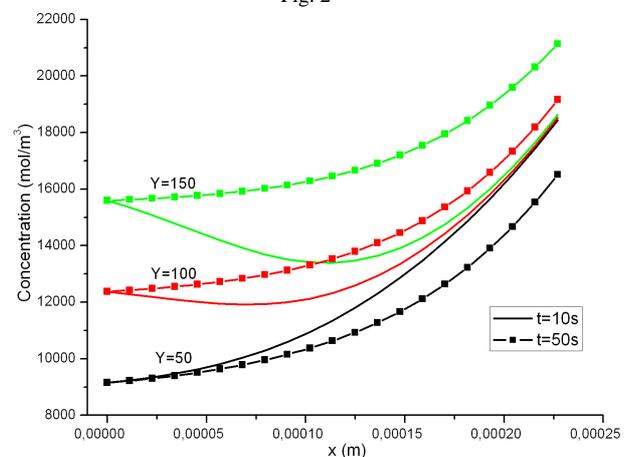


Fig. 3

Quant à la concentration d'eau, nous avons tracé les profils le long de la longueur 'y' de la membrane pour trois différentes valeurs de la position x (5, 10 et 21 pas) correspondant respectivement à (56,75 μm, 113,5 μm et 227 μm) aux instants $t = 10s$ et $50s$ (fig. 4 et 5). D'après la fig. 4, on remarque que la concentration d'eau augmente le long de la direction 'y' pour toutes les sections de la membrane ($x = 5, 10$ et 21). En outre, à l'instant $t = 10s$, un fort gradient de la



concentration d'eau suivant la direction 'y' est présent près de l'entrée de la membrane ($x=5$). Ce gradient s'affaiblit quand on se rapproche de la sortie ($x=21$). Ce ci est dû à la condition aux limites imposée à l'entrée de la membrane. D'autre part, on note que la concentration commence par décroître dans le temps près de l'entrée de la membrane puis à une position 'y' elle augmente. Cette position est décalée vers la partie supérieure de la membrane quand on se déplace vers la sortie. Lorsque le sens de variation de la température à l'entrée est opposé à celui de la concentration d'eau (fig. 5), on ne constate pas un grand changement. Néanmoins, au niveau de la partie supérieure de la membrane les valeurs de la concentration augmentent par rapport à l'autre cas.

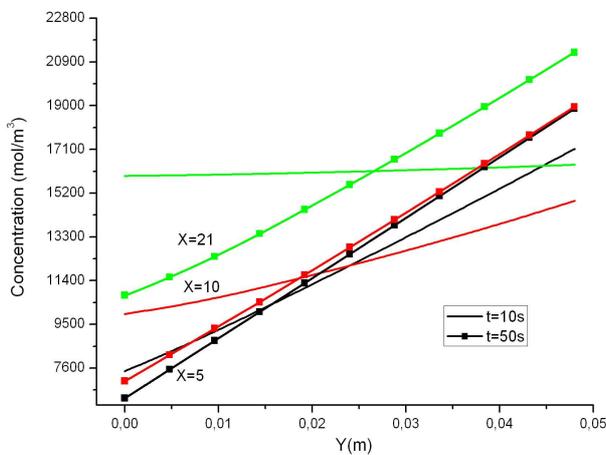


Fig. 4

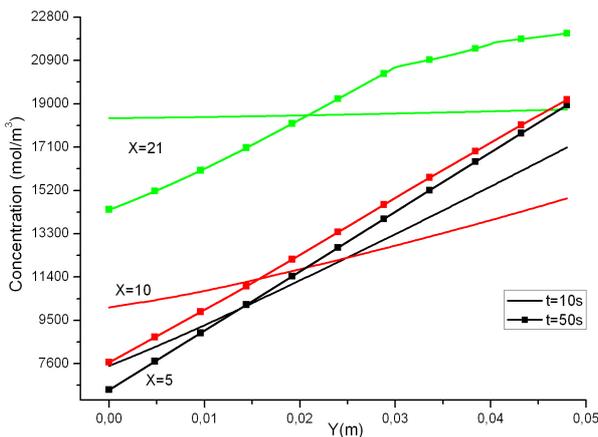


Fig. 5

En considérant les mêmes cas de conditions aux limites, nous avons tracé les profils de la température au sein de la membrane en fonction de x et de y pour un profil de

température à l'entrée de la membrane croissant suivant 'y' (fig. 6 et 8) et décroissant (fig. 7 et 9).

Sur les figures 5 et 6, la température croit le long de l'épaisseur de la membrane en prenant une forme parabolique. Les figures montrent aussi qu'au cours du temps, la température augmente dans la partie inférieure de la membrane, contrairement à la partie supérieure. En comparant les courbes des deux fig. 6 et 7 nous remarquons que l'écart de température entre l'entrée et la sortie de la membrane est plus important dans le cas où la température à l'entrée de la membrane est décroissante suivant 'y' (fig. 7). C'est ainsi que le gradient de température dans ce dernier cas est plus important que dans l'autre cas de conditions aux limites. De plus, on peut remarquer sur la fig. 5 qu'à la position $y=100$ la température ne varie pratiquement pas dans le temps. Mais dans la fig. 6 cela se produit bien avant cette position ($y < 100$).

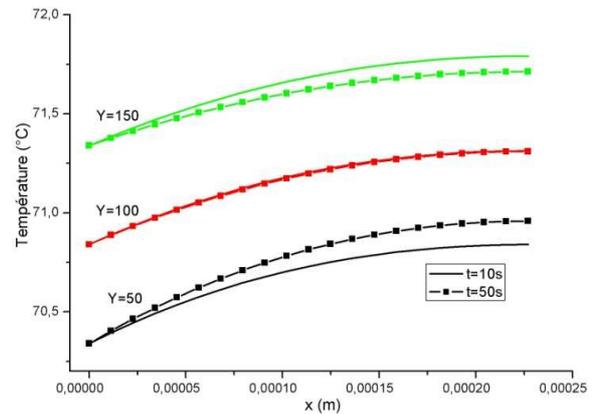


Fig. 6

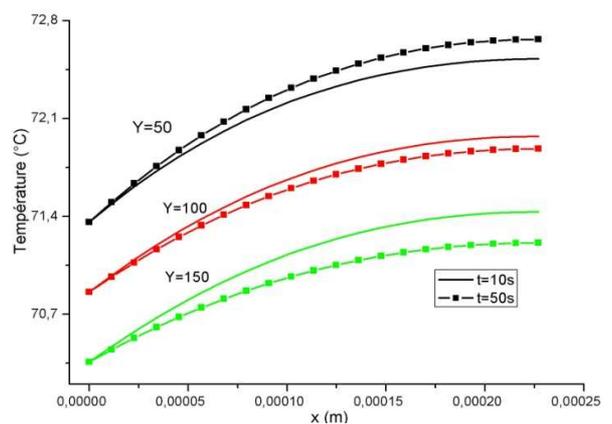


Fig. 7

Les fig. 8 et 9 nous donnent un aperçu sur la variation des températures suivant la direction y.



Sur la fig. 8 on trouve les profils de la température le long de la direction 'y'. Les courbes montrent que la température augmente le long de la direction 'y' sur toutes les sections de la membrane et tous les instants. On note que sur la partie inférieure de la membrane, la température croît dans le temps, puis à partir de $y=2\text{cm}$ (près du milieu) elle devient décroissante. On remarque aussi que l'écart entre les températures aux différentes sections de la membrane est presque le même. A l'instant $t=10\text{s}$ le gradient de température suivant y est quasiment constant sur toutes les sections, et à $t=50\text{s}$ il a tendance à diminuer près de l'entrée de la membrane.

Pour le cas où la température imposée à l'entrée de la membrane est décroissante (fig. 9), les courbes restent décroissantes le long de la direction 'y' et à tout instant. De plus, les températures sont plus élevées comparées à celle de la fig. 8. Ainsi, on peut déduire que le sens de variation de la température à l'entrée de la membrane influe sur les valeurs de la température à l'intérieur de la membrane.

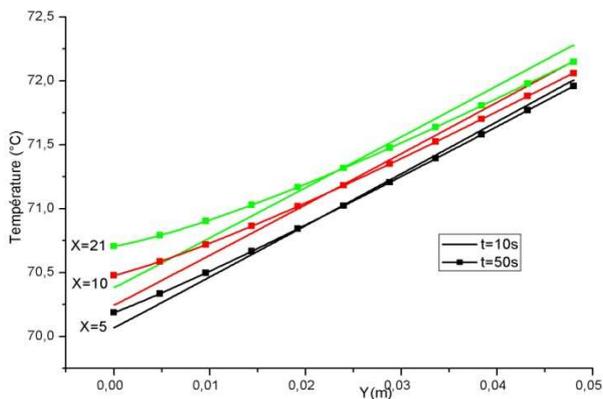


Fig. 8

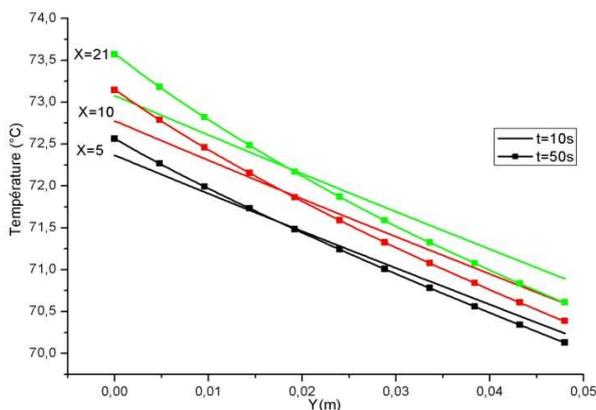


Fig. 9

IV. CONCLUSION

Dans ce travail, une étude sur les variations de la concentration de l'eau et de la température dans une membrane d'une pile à combustible de type PEM, a été effectuée. Un modèle bidimensionnel et transitoire a été proposé pour traduire les phénomènes de transfert de chaleur et de masse au sein d'une membrane électrolyte considérée comme un milieu poreux homogène et isotrope. La résolution numérique du modèle nous a permis d'étudier l'effet des différents cas de conditions aux limites, sur les variations de la concentration de l'eau et de la température aussi bien le long de l'épaisseur de la membrane que dans le temps. Cela nous a permis de tester la réponse du code de calcul au différents cas de conditions aux limites. Les résultats montrent bien que le code élaboré est sensible aux différents cas de conditions considérés. D'après les résultats, on constate que le fait d'imposer une température qui varie dans le sens opposé à celui de la concentration d'eau à l'entrée de la membrane provoque une légère augmentation de la concentration notamment près du côté cathode de la membrane par rapport à l'autre cas. De même pour les variations de la température, où on note une élévation de celle-ci dans le cas où elles varient dans le sens opposé à celui de la concentration. Donc à partir de là on peut réduire l'effet de l'assèchement de la membrane ou bien son engorgement en faisant un choix judicieux des conditions aux limites.

REFERENCES

- [1] T.V. Nguyen, R. E White, A water and thermal management model for proton exchange membrane fuel cells. J. Electrochem. Soc. 140 (1993) 2178-2186.
- [2] T. F. Fuller, J. Newman, Water and Thermal management in solid-polymer-electrolyte fuel cells. J. Electrochem. Soc. 140 (1993) 1218-1225.
- [3] T.E. Springer, M.S. Wilson, S. Gottesfeld, "Modeling and Experimental Diagnostics in Polymer Electrolyte Fuel Cells", J. Electrochem. Soc. 140 (1993) 3513-3526.
- [4] M. Wakizoe, O.A. Velev, S. Srinivasan, Analysis of proton exchange membrane fuel cell performance with alternate membranes. Electrochimica Acta. 1995, 40(3) 335-344.
- [5] J. Kim, S.M. Lee, S. Srinivasan, Modeling of proton exchange membrane fuel cell performance with an empirical equation. J. Electrochem. Soc. 142 (1995) 2670-674.
- [6] M. Wöhr, K. Bolwin, W. Schnurnberger, M. Fischer W. Neubrand, G. Eigenberger, Dynamic modelling and simulation of a polymer membrane fuel cell including mass transport limitation, Int. J. Hydrogen Energy 23 (1998) 213-218.



**Le 2^{ème} Séminaire International sur les Energies Nouvelles et
Renouvelables**
**The 2nd International Seminar on New and Renewable
Energies**

**Unité de Recherche Appliquée en Energies Renouvelables,
Ghardaïa – Algérie 15, 16 et 17 Octobre 2012**



- [7] D.L. Wood III, J.S. Yi, T.V. Nguyen, Effect of direct liquid water injection and interdigitated flow field on the performance of proton exchange membrane fuel cells, *Electrochim. Acta* 43 (24) (1998) 3795–3809.
- [8] R.F. Mann, J.C. Amphlett, Mi. A.I. Hooper, H.M. Jensen, B.A. Peppley, P.R. Roberge, Development and application of a generalized steady-state electrochemical model for a PEM fuel cell, *J. Power Sources* 86 (2000) 173–180.
- [9] G. Maggio, V. Recupero, L. Pino, Modelling polymer electrolyte fuel cells: an innovative approach, *J. Power Sources* 101 (2001), 275–286.
- [10] T. Okada, G. Xie, Y. Tanabe, Theory of water management at the anode side of polymer electrolyte fuel cell membranes, *J. Electroanal. Chem.* 413 (1996) 49-65.
- [11] T. Okada, G. Xie, M. Meeg, Simulation for water management in membranes for polymer electrolyte fuel cells, *Electrochim. Acta* 43(14–15) (1998) 2141–2155.
- [12] Brandon M. Eaton. One dimensional transient model of heat, mass and charge transfer in a proton exchange membrane. Thèse de Master of Science 2001, Université de Virginia, USA.