



# Influence des forces convectives sur le transfert de chaleur et de masse dans une membrane échangeuse de protons

DADDA Bachir<sup>\*1</sup>, ABOUDI Saïd<sup>2</sup>, GHEZAL Abderrahmane<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Unité de Recherche Appliquée en Energies Renouvelables, URAER, Centre de Développement des Energies Renouvelables, CDER 47133, Ghardaïa, Algeria

<sup>2</sup>Institut IRTES-M3M, EA 7274, UTBM, site de Sévenans Belfort, France

<sup>3</sup>Département EMF, Faculté de physique USTHB Algiers, Algeria

\**dadbac@gmail.com*

**Abstract**— Dans ce papier, nous présentons 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). Le modèle adopté dans cette étude repose sur l'hypothèse d'un écoulement monophasique et multi-espèces, supposé bidimensionnel et transitoire. Pour le transport de l'eau, les forces principales mises en jeu sont une force convective, résultant du gradient de pression, une force osmotique, due au gradient de la concentration et une force électrique causée par la migration des protons de l'anode à la cathode. Le système d'équations régissant les phénomènes de transfert est basé sur le principe de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie. La résolution numérique du modèle est basée sur la méthode des volumes finis.

Les résultats obtenus montrent une bonne cohérence avec ceux de la littérature. La solution du modèle nous a démontré les différents phénomènes observés dans la membrane échangeuse de protons et nous a donné accès à davantage de détails.

Les évolutions de la température et de la concentration le long de l'épaisseur de la membrane sont présentées pour différents gradients de pression indiquant ainsi l'influence des forces convectives sur le comportement de la concentration de l'eau et de la température.

**Keywords**— pile à combustible, transfert de chaleur, transfert de masse, volumes finis, forces convectives.

## I. INTRODUCTION

La modélisation peut aider à mieux comprendre les différents processus physicochimiques complexes présents dans les systèmes de piles à combustible (PAC). Ce travail est essentiel pour améliorer la performance des PACs et les rendre économiquement plus rentables. Les efforts de modélisation des PEMFC se sont accentués sur le développement des modèles (1D, 2D et 3D). Les modèles aux plus grandes dimensions comportent des descriptions plus réalistes et plus précises des processus des PACs; néanmoins, ils impliquent aussi plus de complexité et demandent des moyens de calculs relativement considérables. D'où, en dépit des modèles en

plus grandes dimensions disponibles, ceux en faibles dimensions gardent leur pertinence et sont largement utilisés. En 1990, Verbrugge et Hill [1] ont développé un modèle mathématique pour simuler le transport des ions et des solvants dans une membrane échangeuse de protons. Ils ont utilisé l'équation (II-1) de Nernst Planck pour décrire le transport des ions à travers la membrane par diffusion, migration et convection.

$$N_i = -z_i \frac{F}{RT} D_i c_i \nabla \Phi - D_i \nabla c_i + c_i v$$

L'équation exprime le flux ionique en fonction des gradients du potentiel et de la concentration et de la quantité de mouvement causés respectivement par la migration, la diffusion et la convection. Ce travail leur a permis en particulier d'identifier un nombre de Peclet électrocinétique, pour lequel les grandes valeurs indiquent la dominance du mode de transport de masse par convection.

Une année après, Springer et al [2] ont présenté un modèle isotherme et unidimensionnel d'une PEMFC en se focalisant sur le phénomène de transport de l'eau à travers une membrane Nafion<sup>®</sup> et sur les effets qui lui sont liés, tel que la conductivité de la membrane. Ils ont trouvé que le transport convectif de l'eau est limité à la force de trainée causée par le flux des protons sur les molécules d'eau. Plus tard, Bernardi et Verbrugge [3] ont développé un modèle unidimensionnel et isotherme pour le processus physique et électrochimique dans une PEMFC. Ils ont montré que grâce aux forces de capillarité, les pressions du liquide et du gaz évoluent séparément à l'intérieur de la couche de retour. Ce résultat implique que les phases liquide et gazeuse ne sont pas en équilibre avec la couche de retour cathodique. L'inconvénient de leur modèle est qu'il est valable uniquement pour des membranes complètement hydratées, et ne prend pas en considération la force de trainée causée par le flux des protons sur les molécules d'eau. De plus il est incapable de prédire la noyade due à l'eau liquide présente dans la couche de retour



cathodique, et dans le cas de densités de courant élevées, la courbe de polarisation trouvée diverge des résultats expérimentaux.

Fuller et Newman [4] ont proposé en 1993 un modèle mathématique de transport dans la PEMFC. Ils ont considéré un modèle bidimensionnel de l'assemblage MEA. Leur étude portait sur la gestion de l'eau et de la chaleur et l'utilisation du carburant. Ils ont trouvé que la gestion de l'eau et la gestion de la chaleur sont interdépendantes, car l'équilibre de sorption de l'eau entre le gaz et l'électrolyte polymère dépend fortement de la température. Leurs résultats montrent aussi que le taux d'élimination de chaleur présente un paramètre essentiel dans le fonctionnement des PEMFC.

Un modèle bidimensionnel et dynamique a été développé par Hubertus P.L.H. van Bussel et al. [5] pour déterminer l'effet des conditions de fonctionnement sur les performances de la PAC. Dans ce modèle les équations d'équilibre de l'eau sont écrites pour chaque élément de la pile en tenant compte de la production, de la force de trainée et de la diffusion de l'eau dans la membrane et de la diffusion de la vapeur d'eau dans la couche de diffusion de gaz. Ce modèle a permis aux auteurs de reproduire les courbes de polarisation d'une cellule de PAC fonctionnant avec différentes fractions d'oxygène et de décrire qualitativement l'effet de différentes conditions de fonctionnement (les gaz secs, le niveau de densité de courant, le co-courant et le contre-courant, la recirculation anodique) sur le comportement de la pile.

## II. EQUATIONS GOUVERNANTES

Dans ce travail, nous avons considéré une membrane d'une pile à combustible de type PEM, d'épaisseur  $h=0.227 \text{ mm}$  et de longueur  $l=50 \text{ mm}$ . Un flux d'eau et de protons entre dans la membrane avec une certaine température et concentration; la fig. 1 montre le domaine étudié.

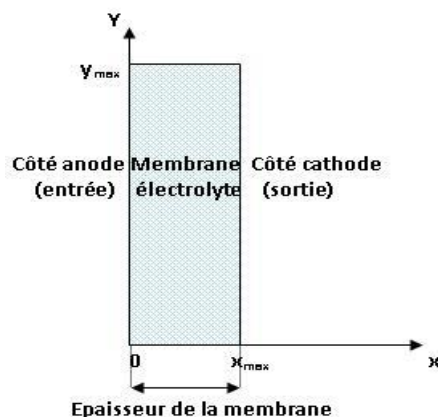


Fig. 1 Le domaine d'étude.

### A. Equation de conservation de la quantité de mouvement

La vitesse du mélange (eau, protons) dans la membrane est évaluée à l'aide de l'équation de conservation de quantité de mouvement. La membrane, considérée comme un milieu poreux, permet donc de réduire les équations du mouvement à la forme généralisée de la loi de Darcy [6].

$$\begin{cases} U_x^m = -\frac{K k_r^g}{\mu} \frac{\partial p}{\partial x} \\ U_y^m = -\frac{K k_r^g}{\mu} \frac{\partial p}{\partial y} \end{cases}$$

Où  $K$  est la perméabilité absolue de la membrane et  $k_r^g$  sa perméabilité relative.

$U_m$  est la vitesse du mélange (eau, protons),  $P$  la pression et  $\mu$  la viscosité dynamique du mélange.

Le gradient de pression suivant la direction 'y' est supposé nul, d'où la vitesse de mélange nulle dans la direction y.

### B. Equations de conservation des espèces

L'équation de conservation de l'espèce eau s'écrit donc:

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

Où  $C_{H_2O}$  représente la concentration de l'eau et  $D_{H_2O}$  le coefficient de diffusion de l'eau, tenant compte des variations de la température et de la teneur en eau, Springer et al. [2].

$$D_{H_2O} = D' \left( \exp \left[ 2416 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \lambda_{H_2O/30} \frac{1}{a} \frac{1}{17.81 - 79.7a + 108a^2} \right)$$

$D'$  représente le coefficient de diffusion mesuré à 30 °C en coordonnées variant avec le gonflement de la membrane, Springer, et al. [2].

Pour les protons, en considérant l'hypothèse de l'électroneutralité, l'équation de conservation de la masse des protons devient alors:

$$\frac{\partial C_{H^+}}{\partial x} = \frac{\partial C_{H^+}}{\partial y} = \frac{\partial C_{H^+}}{\partial t} = 0$$

### C. Equation de conservation de l'énergie

Dans l'équation de conservation de l'énergie, les effets des pertes ohmiques dans la membrane sont pris en compte sous forme de termes sources. Elle prend alors la forme suivante:

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

$\lambda_m$  est le coefficient de conductivité thermique,  $C_p$  la chaleur spécifique du mélange et  $i$  le courant protonique. Les deux



premiers termes du second membre de l'équation représentent la diffusion de la chaleur, les deux termes suivants expriment le flux de l'énergie dû à la convection et les deux derniers traduisent les sources de chaleur générée par l'effet Joule qui sont dues à la résistance ohmique de la membrane.

Le problème revient donc à résoudre le système d'équation suivant :

Pour la conservation des espèces :

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

Pour la conservation de l'énergie :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{\lambda_m}{\rho C p} \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \frac{\lambda_m}{\rho C p} \frac{\partial T}{\partial y} \right) - \frac{MCpN_x}{\rho C p} \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{MCpN_y}{\rho C p} \frac{\partial T}{\partial y} + \frac{i_x^2}{\rho C p \sigma_m} + \frac{i_y^2}{\rho C p \sigma_m}$$

#### D. Conditions initiales et aux limites

Le modèle présenté dans ce travail nécessite l'introduction de conditions initiales et aux limites sur les quatre côtés de la membrane (anode, cathode, supérieur et inférieur) qui peuvent être soit de type Dirichlet (température et concentration d'eau) soit de type Neumann (gradients de température et de concentration d'eau). Le gradient de pression est supposé constant et les densités de courant correspondent à celles utilisées par Eaton [6].

Pour les conditions initiales, nous avons supposé que la concentration de l'eau et la température varient linéairement le long de l'épaisseur de la membrane (suivant la direction 'x') selon les relations suivantes:

$$C_{H_2O}(x) = \frac{(C_{H_2O})_{max} - (C_{H_2O})_{min}}{h} x + (C_{H_2O})_{min} \quad \text{pour } 0 < x < x_{max}, 0 < y < y_{max}$$

$$T(x) = \frac{T_{max} - T_{min}}{h} x + T_{min} \quad \text{pour } 0 < x < x_{max}, 0 < y < y_{max}$$

Avec:

$$T_{min} = 343 \text{ °C}, (C_{H_2O})_{min} = 6000 \text{ mol.m}^{-3} \quad \text{pour } x=0 \text{ et } 0 < y < y_{max}$$

$$T_{max} = 343,05 \text{ °C}, (C_{H_2O})_{max} = 18000 \text{ mol.m}^{-3} \quad \text{pour } x=x_{max} \text{ et } 0 < y < y_{max}$$

$0 < y < y_{max}$

Pour les conditions aux limites, nous avons considéré:

- Flux d'eau et de chaleur nuls sur les côtés supérieur et inférieur de la membrane:

$$\frac{\partial C_{H_2O}}{\partial y} = \frac{\partial T}{\partial y} = 0 \quad \text{pour } y=0 \text{ et } y=y_{max}$$

- Flux de chaleur et d'eau constants sur les côtés cathode de la membrane.

$$q_r = 6.6 \text{ W m}^{-2}, q_c = 1.2 \times 10^7 \text{ mol m}^{-4} \quad \text{pour } x=x_{max}, 0 < y < y_{max}$$

#### E. Méthode numérique de résolution

Les équations de conservation de l'énergie et de la concentration en eau dans la membrane peuvent être écrites sous la forme générale suivante:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( a_x \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( a_y \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) + b_x \frac{\partial \phi}{\partial x} + b_y \frac{\partial \phi}{\partial y} + S$$

Avec comme coefficients:

TABLEAU I

	$a_x$	$a_y$	$b_x$	$b_y$	S
Equation de conservation de l'eau	$D_{H_2O}$	$D_{H_2O}$	$-U_x$	$-U_y$	$-\frac{\partial}{\partial x} \left( n_{drg} \frac{i_x}{F} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left( n_{drg} \frac{i_y}{F} \right)$
Equation de conservation de l'énergie	$\frac{\lambda_m}{\rho C p}$	$\frac{\lambda_m}{\rho C p}$	$-\frac{MCpN_x}{\rho C p}$	$-\frac{MCpN_y}{\rho C p}$	$\frac{i_x^2 + i_y^2}{\rho C p \sigma_m}$

Dans ce travail nous avons utilisé la technique des volumes finis (Patankar [7]) qui consiste à fractionner le domaine physique en un nombre fini de volumes, appelés volumes de contrôle, et d'intégrer ensuite les équations de conservation dans chacun de ces volumes.

Pour déterminer le champ de la variable  $\phi$  dans le domaine d'étude par la méthode des volumes finis, les étapes à suivre sont essentiellement:

- Diviser le domaine d'étude en (III-2) domaines appelés volumes de contrôle et construire le maillage.
- Intégrer l'équation de transport sur chaque volume de contrôle.
- Discrétiser les différents termes de la forme intégrée de l'équation de transport (transformer l'équation différentielle ponctuelle en un système d'équations algébriques).
- Introduire les conditions initiales et aux limites appropriées.
- Résoudre le système algébrique final pour obtenir enfin un champ approché de  $\phi$  aux points de discrétisation du domaine considéré.

### III. DISCUSSION DES RÉSULTATS

Avant de procéder au traitement des résultats, il est indispensable d'examiner la fiabilité du modèle à travers une validation avec la littérature. Pour se faire, nous avons confronté nos résultats avec ceux trouvés par Eaton [6].

En supposant que les deux côtés supérieur et inférieur de la membrane ( $y=0$  m,  $y=y_{max}$ ) sont isolés, et en imposant des conditions de Dirichlet sur les côtés anode et cathode de la membrane (température et concentration d'eau uniformes), les conditions aux limites ainsi imposées doivent donner des



résultats similaires à ceux correspondant au cas unidimensionnel. Sur la fig. 2, on trouve les profils de la concentration de l'eau à travers la membrane (suivant la direction  $x$ ), pour différentes positions ' $y$ '. D'après cette figure, nous pouvons constater que les courbes sont les mêmes pour toutes les positions ' $y$ '. En comparant ces courbes avec celle de Eaton [6], relatives au cas unidimensionnel, nous remarquons qu'elles sont parfaitement superposées (fig. 3). Les résultats trouvés sont donc en bon accord avec la littérature. Ce qui nous permet de considérer que le modèle utilisé ainsi que le processus de calcul sont valides.

ce cas, la température sur les deux côtés de la membrane est considérée uniforme ( $T_a=343\text{ K}$  et  $T_c=343,05\text{ K}$ ). Quant à la concentration, elle varie linéairement suivant la direction ' $y$ ' du côté de l'anode et elle est supposée uniforme du côté de la cathode  $C_{H_2O_c}=18000\text{ mol m}^{-3}$ . Ce type de conditions aux limites nous permet de tester aussi la sensibilité du code de calcul par rapport à l'aspect bidimensionnel du phénomène de transport.

La fig. 4 (a, b, c) illustre les variations de la concentration de l'eau dans la membrane suivant la direction ' $x$ ' en trois positions différentes (le bas  $y=0,25\text{ cm}$ , le milieu  $y=2,14\text{ cm}$  et le haut  $y=4,75\text{ cm}$ ). Les courbes montrent que la concentration de l'eau est croissante le long de l'épaisseur de la membrane quelle que soit la différence de pression considérée. Ceci est dû au fait que la concentration imposée du côté de la cathode représente la valeur maximale. Les résultats montrent aussi que la teneur en eau dans la membrane est d'autant plus grande que le gradient de pression est élevé. Nous pouvons constater aussi que la concentration de l'eau est plus importante sur la partie supérieure de la membrane. Ce qui est en bonne concordance par rapport à la condition imposée du côté de l'anode.

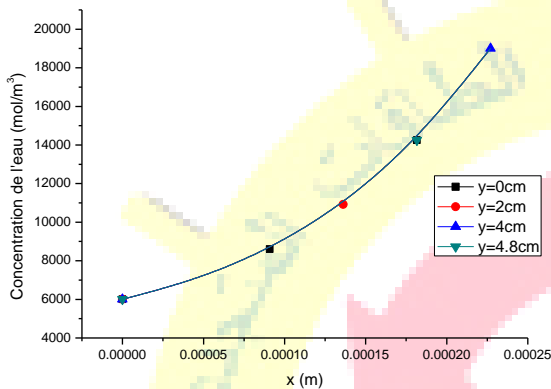


Fig. 2 Profil de la concentration de l'eau dans différentes positions ' $y$ '.

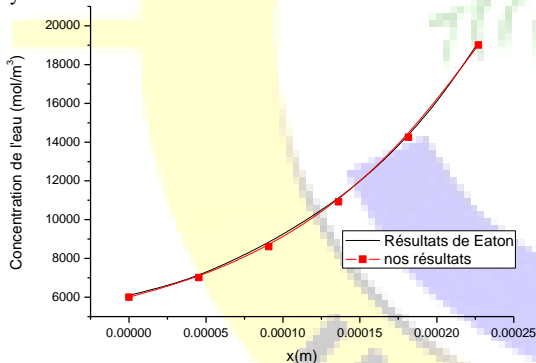
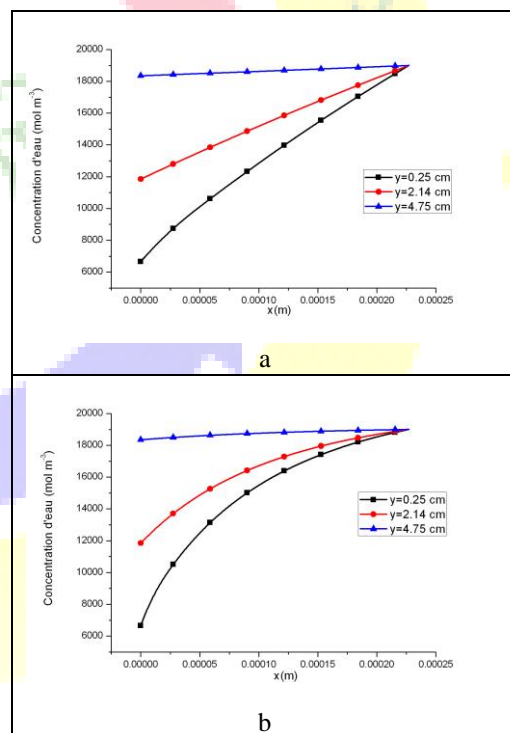


Fig. 3 Comparaison avec les résultats de Eaton [52].

#### A. Influence des forces Convectives sur la concentration en eau

Parmi les forces responsables du transport de l'eau au sein de la membrane, on trouve la force de convection qui est interprétée par la différence de pression entre l'entrée et la sortie de la membrane. Dans cette partie nous allons étudier l'influence de cette force sur le comportement de la concentration de l'eau et de la température dans le domaine d'étude. Pour se faire, nous avons considéré différentes valeurs du gradient de la pression entre les bornes de la membrane ( $\Delta P=0\text{ atm}$ ,  $2.9\text{ atm}$  et  $10\text{ atm}$ ) (Fig. 4 et 5). Dans



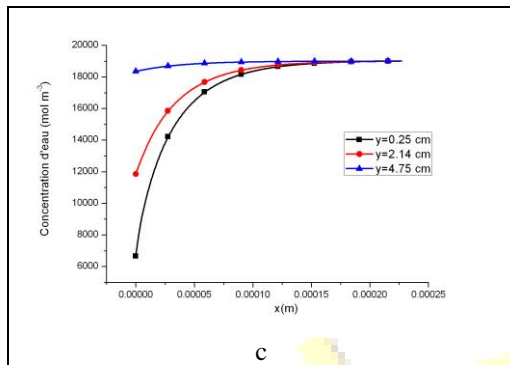


Fig.4 Les profils de la concentration d'eau en différentes positions 'y' pour différentes valeurs de  $\Delta P$  ; -a-  $\Delta P=0$  atm, -b-  $\Delta P=2.9$  atm, -c-  $\Delta P=10$  atm.

### B. Influence des forces Convectives sur la température

L'influence du gradient de la pression sur le champ thermique est présentée sur la fig. 5. Les courbes montrent que la température est croissante le long de l'épaisseur de la membrane pour toute valeur du gradient de pression. Pour un gradient de pression nul, le profil de la température est presque linéaire. Lorsque ce gradient augmente, les profils de température prennent une forme parabolique indiquant ainsi une diminution de la température au sein de la membrane. Nous remarquons ici que les valeurs de température diminuent avec l'augmentation des valeurs de la concentration. Ce qui est tout à fait normal, puisque l'augmentation de la teneur en eau contribue au refroidissement de la membrane.

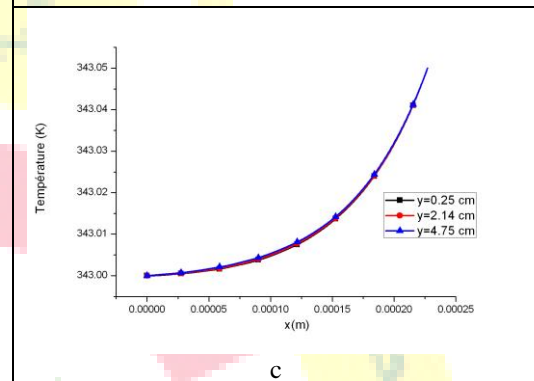
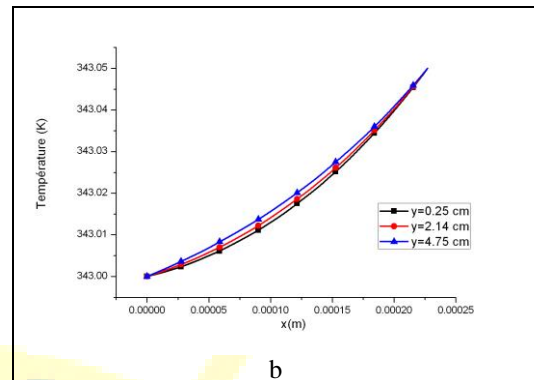


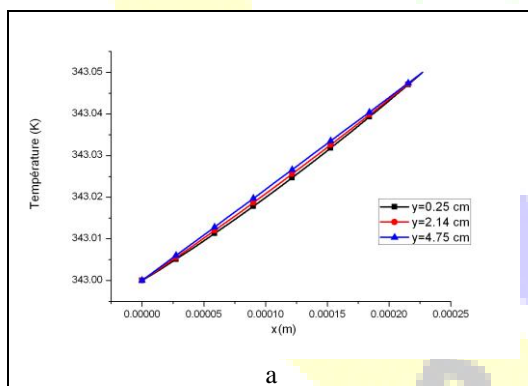
Fig.5 Les profils de la température en différentes positions 'y' pour différentes valeurs de  $\Delta P$  : -a-  $\Delta P=0$  atm, -b-  $\Delta P=2.9$  atm, -c-  $\Delta P=10$  atm.

### IV. CONCLUSIONS

Ce travail de recherche a porté sur la modélisation des phénomènes de transport et de transfert au sein d'une membrane d'une pile à combustible de type PEM. Le modèle considéré est une extension en deux dimensions d'un modèle transitoire unidimensionnel présenté par Eaton [6] dans sa thèse de « Master of Science » réalisée à la faculté polytechnique de Virginia.

Le modèle utilisé dans ce travail a été choisi de par sa complétude en termes d'interprétation des phénomènes de transport existant dans la membrane échangeuse de protons, ainsi que de par sa simplicité à l'implémentation dans un code de calcul. Il est constitué d'un système d'équations couplées régissant les phénomènes de transport des espèces et de la chaleur. Pour la résolution du problème, nous avons eu recours à la méthodes des volumes finis. Nous avons utilisé un maillage régulier de  $21 \times 31$  nœuds avec un pas de temps de  $10^{-2}$  s.

La résolution du système obtenu nous a permis d'étudier les variations de la température et de la concentration de l'eau au sein de la membrane en fonction des différents paramètres responsables du phénomène de transport et leur influence sur les performances d'une pile à combustible à travers les variations du potentiel. Les résultats obtenus ont été





**Le 4<sup>ème</sup> Séminaire International sur les Energies Nouvelles et  
Renouvelables**  
**The 4<sup>th</sup> International Seminar on New and Renewable  
Energies**

**Unité de Recherche Appliquée en Energies Renouvelables,  
Ghardaïa - Algeria 24 - 25 Octobre 2016**



confrontés ensuite à ceux de la littérature et un bon accord a été constaté.

La solution du modèle nous a démontré les différents phénomènes observés dans la membrane échangeuse de protons et nous a donné accès à davantage de détails.

L'analyse des effets des forces convectives, nous a permis de montrer que :

- Plus le gradient de pression est élevé, plus la teneur en eau de la membrane est grande.

- L'augmentation de la concentration de l'eau contribue à la diminution de la température. Des valeurs élevées de la pression entraînent donc une diminution de la température de la membrane.

- La différence de pression appliquée entre les bornes de la membrane joue un rôle important dans la détermination des performances de la pile à combustible.

**REFERENCES**

- [1] Mark W. Verbrugge, R. F. Hill, Ion and Solvent Transport in Ion-Exchange Membranes : I . A Macrohomogeneous Mathematical Model, J. Electrochem. Soc., Vol. 137, pp 886-893. 1990.
- [2] T. E. Springer, T. A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, Polymer Electrolyte Fuel Cell model, J. Electrochem. Soc., Vol. 138, pp 2334-2342, 1991.
- [3] D. M. Bernardi, M. W. Verbrugge, Fuel Cell A Mathematical Model of the Solid-Polymer-Electrolyte J. Electrochem. Soc., Vol. 139, pp 2477-2491. 1992.
- [4] T. F. Fuller, J. Newman, Water and Thermal Management in Solid-Polymer-Electrolyte Fuel Cells, J. Electrochem. Soc., Volume 140, Pages 1218-1225. 1993.
- [5] H. P. L. H. van Bussel, F. G. H. Koene, R. K. A. M. Mallant, Dynamic model of solid polymer fuel cell water management, Journal of Power Sources, Volume 71, Pges 218-222. 1998.
- [6] B. Eaton One-dimensional, transient model of heat, mass, and charge transfer in a proton exchange membrane, Master of Science thesis in mechanical engineering. Blacksburg Virginia; 2001.
- [7] S. Patankar, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, McGraw Hill, New York, 1980.

