

## ETUDE DE L'INFLUENCE DES GRADIENTS DE PRESSION SUR LA DISTRIBUTION DE L'EAU DANS LE COEUR DE LA PILE PEMFC

<sup>1</sup>Zina BELKHIRI, <sup>1</sup>Mostefa ZEROUAL, <sup>2</sup>Hocine BENMOUSSA

<sup>1</sup>LPEA, Département de physique, Université de Batna, Algérie  
<sup>2</sup>LESEI, Département de Mécanique, Université de Batna, Algérie

Reçu le 05 Avril 2012 – Accepté le 15 Décembre 2016

### Résumé

Cet article présente les résultats d'une étude d'un travail de modélisation numérique, bidimensionnelle, stationnaire de la pile à combustible à membrane échangeuse de protons, alimentée en hydrogène, dont le but est la compréhension de phénomènes du transport de l'eau dans le cœur de la pile PEMFC.

Au terme de cette problématique, le gradient de pression est un paramètre important pour le fonctionnement de la pile PEMFC pour forcer le transport de l'eau de la cathode à l'anode pour éviter l'assèchement de la membrane.

Donc, nous avons modélisé le phénomène de transport de l'eau à différentes valeurs de gradient de pression. Les simulations effectuées avec un code numérique de FORTRAN 6.6, les résultats obtenus donnent les profils de concentration de l'eau à travers l'épaisseur du cœur de la pile PEMFC à différents valeurs du gradient de pression.

**Mots clés :** Pile à combustible, Membrane, PEMFC, Hydrogène, Assèchement, résistance ohmique.

### Abstract

This article presents the results of a study of numerical modeling, two-dimensional, stationary of fuel cell proton exchange membrane, fed with hydrogen, which aims to understand phenomena of water transport in the heart of the PEMFC.

Furthermore, the pressure gradient is an important parameter for the operation of the PEMFC to force the transport of water from the cathode to the anode to prevent drying of the membrane.

Therefore, we modeled the phenomenon of water transport at different values of pressure gradient. Simulations with a numerical code for FORTRAN 6.6, the results obtained give the concentration profiles of water through the thickness of different layers of the PEMFC at different values of the pressure gradient

**Key words:** Fuel cell, Membrane, PEMFC, hydrogen, drying, ohmic resistance

### ملخص

تقدم هذه المقالة نتائج لدراسة نموذج رقمي، ثنائي الأبعاد، لخلية وقودية ذات غشاء نافذ للبروتونات، مغذاة بالهيدروجين، الهدف من هذه الدراسة هو فهم ظواهر نقل الماء في قلب الخلية الوقودية.

الفرق في الضغط هو عامل هام لتشغيل خلية من هذا النوع لفرض نقل المياه من القطب السالب إلى القطب الموجب لمنع جفاف الغشاء البروتوني.

لذلك النتائج المحصل عليها تعطي منحنيات لتركيز الماء عند قيم مختلفة من التدرج في الضغط بواسطة برنامج فورتران 6.6 فإن النتائج تعطي منحنيات لتركيز الماء من خلال سمك الخلية عند قيم مختلفة من الضغط

**الكلمات المفتاحية :** خلايا الوقود، الغشاء، الهيدروجين، الجفاف، مقاومة أومية

La pile à combustible alimentée en hydrogène est présentée sans doute parmi les technologies envisagées pour l'avenir en terme de conversion d'énergie, elle permet de convertir l'énergie chimique de l'hydrogène, vecteur énergétique fortement suscite un intérêt grandissant dans le monde entier, en une énergie électrique, utilisable directement, et une énergie thermique [1]. La pile à combustible permet une production d'énergie décentralisée et de plus, présente une réponse à des préoccupations liées à l'environnement et à la maîtrise de la consommation d'énergie. Elle est considérée comme une solution très prometteuse qui participera à la diversification des sources d'énergie et à la réduction des émissions de polluants [2]. Parmi les différents types de pile à combustible existants, la pile PEMFC à membrane échangeuse de protons, a été retenue dans le domaine des transports, pour les applications portables et les résidentielles. Pour ces applications, la maîtrise de leur gestion présente un défi qui est extraordinairement complexe, car elle est influencée de manière absolument non triviale par la gestion simultanée des transferts de réactifs (hydrogène et oxygène), de l'eau (produite par la réaction, solvant et vecteur du proton). En effet, la membrane est un bon conducteur de protons: en présence en  $SO_3^-$  (charge fixe) et  $H^+$  (charge mobile), et donc les protons rencontrent une faible résistance en se déplaçant à travers un gradient de potentiel. La membrane accomplit deux fonctions de transfert  $H^+$  de l'anode à la cathode et la séparation des réactifs, être imperméable aux gaz [3]. L'hydrogène est le combustible habituel dans PEMFC, et les réactions électrochimiques se lire comme suit:

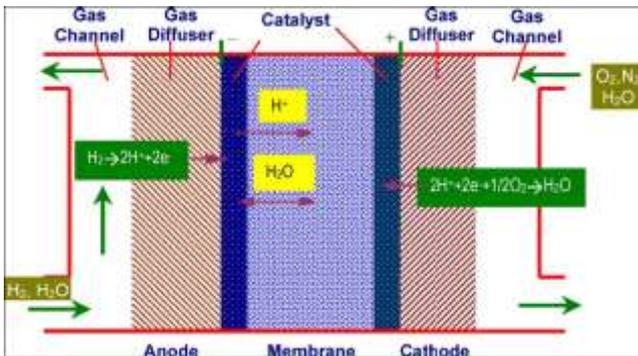
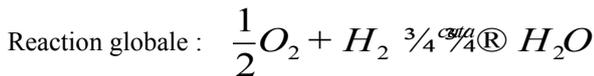
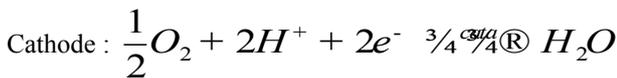


Figure 1 : Schéma d'une pile à combustible PEMFC.

Plusieurs modèles approches ont été proposées pour décrire les phénomènes de transport dans PEMFCs et l'impact du l'équilibre de l'eau sur le rendement des cellules [4]. En général, il existe deux modèles de transport de l'eau dans la membrane: le modèle hydraulique et le modèle diffusif. Dans le modèle hydraulique développé par

Bernardi et Verbrugghe [5], les auteurs supposent que la membrane est entièrement saturée avec de l'eau liquide, en grande partie transporté à partir des électrodes en phase liquide. Ce modèle ne peut pas être applicable dans le cas de l'alimentation par des gaz sec ou insaturés. Springer et al. [6], présentent un modèle de diffusion qui décrit les mécanismes de la drague électro-osmotique et de la diffusion du transport de l'eau ainsi que le coefficient net de transport de l'eau dans la membrane en dehors de la réaction électrochimique dans la couche de catalyseur. Toutefois leur modèle de la couche de catalyseur n'est pas bien couplé avec les autres composants. A.Rowe et X.Li [7], développent un modèle unidimensionnel, non-isotherme d'une pile PEMFC pour étudier l'effet des diverses conceptions et des conditions de fonctionnement sur, les performances de la cellule, la gestion thermique et de l'eau pour essayer de comprendre les mécanismes fondamentaux. J. Ramousse et al. [8], présentent un modèle unidimensionnel qui tient compte: de la diffusion de gaz dans les électrodes poreuses; de la diffusion de l'eau et du transport électro-osmotique au niveau de la membrane polymère; du transfert thermique dans l'ensemble électrodes-membrane (MEA) et des plaques bipolaires. Le modèle unidimensionnel est si simple qu'il néglige les variations de la teneur en eau de la membrane et la concentration des gaz le long du canal. Ce modèle ne peut pas simuler la variation de concentration d'espèces dans la section transversale et la direction de l'écoulement. Il ne peut pas être employé pour optimiser des conditions de fonctionnement et pour prévoir les performances des PEMFC à grandes surfaces actives. Pour étudier et optimiser la distribution des gaz, la teneur en eau de la membrane, la densité de courant et le transport de l'eau le long du canal, des modèles bidimensionnels ont été développé par de nombreux auteurs: Singh et al. [9], présentent un modèle bidimensionnel isotherme pour une cellule complète. Le modèle explique: le transport d'électrons; la diffusion des gaz dans l'anode et la cathode; l'activation des réactions électrochimiques; la migration des protons de l'anode à la cathode par l'intermédiaire de la membrane; le transport de l'eau dans la membrane et les électrodes. I.M.Hsing et P.Futerko [4], développent un modèle bidimensionnel basé sur, l'électrochimie, le transport de masse dans les canaux de gaz, la diffusion des gaz dans les électrodes, et la membrane d'une PEMFC.

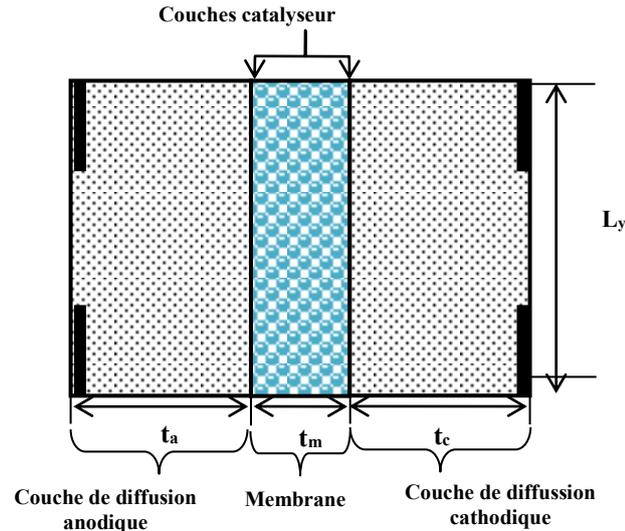
L'objectif du présent travail est de développer un modèle qui décrit, le transport de l'eau dans le cœur de la pile PEMFC à différentes valeurs de gradient de pression. Cette étude sera utile pour la conception et le fonctionnement des piles PEMFC.

## 1. MODELE MATHEMATIQUE ET SOLUTION NUMERIQUE

La figure (2) présente schématiquement le modèle bidimensionnel d'une cellule PEMFC divisée en trois régions: la couche de diffusion de gaz anodique, la membrane polymère, la couche de diffusion de gaz cathodique; les couches de catalyseur anodique et cathodique sont assimilées à des interfaces.

Le flux des gaz dans les canaux n'est pas inclut dans ce modèle. Pour ce modèle, aussi nous supposons qu'il n'ya pas d'eau liquide dans les couches de diffusion. De cette manière, il ne reste qu'une phase gazeuse à considérer pour la diffusion.

Nous considérons une pile alimentée en hydrogène coté anodique et en oxygène coté cathodique. Des deux cotés les gaz sont humidifiés avant leur entrée en pile afin de réduire la résistance protonique de la membrane. Les réactions d'oxydation de l'hydrogène et de réduction de l'oxygène sont supposées se dérouler dans les couches réactives catalytiques.



$t_a$  : Épaisseur de GDL anodique ;  
 $t_c$  : Épaisseur de GDL cathodique ;  
 $t_m$  : Épaisseur de membrane ;  
 $L_y$  : Longueur d'électrode.

**Figure 2** : Présentation de domaine d'étude de la pile PEMFC.

### 1.1. Hypothèses du modèle

Le présent modèle suppose que :

- Régime permanent,
- Modèle monophasique: La phase est gazeuse dans les diffuseurs et liquide dans la membrane,
- La membrane est considérée imperméable aux gaz,
- La résistance de contact est négligeable,
- Les mélanges gazeux sont parfaits,
- Les électrodes, les couches catalytiques et la membrane sont homogènes et isotropes,
- Les couches du catalyseur sont beaucoup plus minces de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  que les couches de diffusion de l'électrode ou de la membrane, et sont traités en tant qu'interfaces minces.

### 1.2. Equations gouvernantes

Dans ce modèle, La forme des équations mathématiques de transport et les termes sources présentés peuvent changer d'un composant à un autre de la pile à combustible, c'est-à-dire chaque élément possède sa propre équation.

La couche de diffusion, la couche de catalyseur et la membrane sont considérées comme des milieux poreux.

Les équations de conservation sont écrites sous forme vectorielle.

#### ❖ Continuité

$$\tilde{N}(er\vec{U})=0 \quad (1)$$

#### ❖ Equation de quantité de mouvement (la loi de Darcy)

La loi de Darcy considère que le vecteur vitesse est déterminée en fonction du gradient de pression, de la viscosité de fluide, et de la structure des milieux poreux:

$$\vec{U} = - \frac{\tau}{me} \tilde{N}P \quad (2)$$

#### ❖ Equation de conservation de masse

$$\tilde{N}(e\vec{U}C_k) = \tilde{N}(D_k^{eff} \tilde{N}C_k) + S_k \quad (3)$$

$D_k^{eff}$  : représente le coefficient de diffusion du milieu poreux; il est obtenu par l'utilisation de la corrélation de Bruggeman [10] :

$$D_k^{eff} = D_k e^{1.5} \quad (4)$$

$D_k$  : Coefficient de diffusion, fonction de la température et de la pression S.Um et al. [11]:

$$D(T) = D_0 \frac{\partial T}{\partial T_0} \frac{\partial P_0}{\partial P} \quad (5)$$

$\varepsilon$  : la porosité de chaque zone de milieu poreux.

Le terme source  $S_k$  qui est le taux de consommation ou de production de chaque espèce dans les couches de catalyseur anodique et cathodique.

$$S_{H_2} = - \frac{1}{2F} J_a, \quad S_{O_2} = \frac{1}{4F} J_c, \quad S_{H_2O} = - \frac{1}{2F} J_c$$

La densité de courant volumique  $J_a$ ,  $J_c$  est définie par l'équation de Butler-Volmer (équations ci-dessous) :

$$J_a = a j_0^{ref} \frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \frac{\partial P}{\partial P_0} \frac{\partial T}{\partial T_0} e^{\frac{a_c F}{RT} h_a} - \frac{1}{e^{\frac{a_c F}{RT} h_a}} \quad (6)$$

$$J_c = a j_0^{ref} \frac{C_{O_2}}{C_{O_2}^{ref}} \frac{\partial P}{\partial P_0} \frac{\partial T}{\partial T_0} e^{\frac{a_c F}{RT} h_c} - \frac{1}{e^{\frac{a_c F}{RT} h_c}} \quad (7)$$

### 1.3. Résolution numérique

La méthode de discrétisation utilisée est la méthode des volumes finies, qu'elle est souvent utilisée en phénomène de transport de masse et transfert de chaleur et elle est un outil numérique efficace. La simulation est procédée avec un code numérique (Fortran) inventé.

## 2. RESULTATS

Le transport de l'eau dans la membrane résulte de trois mécanismes: drag électro-osmotique, la diffusion et la convection.

A basse densité de courant, le gradient de la teneur en eau dans la membrane n'est pas raide et la teneur en eau de la membrane sur le côté anodique est suffisamment élevée pour maintenir une meilleure conductivité protonique.

À haute densité de courant, le transport de l'eau, par drag électro-osmotique est élevée et la diffusion de l'eau par le gradient de concentration d'eau est insuffisante pour reconstituer la perte d'eau.

La membrane sur le côté de l'anode sera déshydratée et augmente la résistance membranaire dans ce cas. Un gradient de pression peut être employé pour forcer le transport de l'eau de la cathode à l'anode.

Les figures (3 et 4) montrent l'effet du gradient de la pression d'entrée anodique et cathodique sur la concentration de l'eau. Une différence nulle entre les pressions d'entrées implique une localisation d'eau dans la couche de diffusion, couche catalyseur et membrane (coté cathodique).

Une différence entre ces pressions (valeurs de pression anodique inférieure à celle du coté cathodique) amène à une diffusion du champ de concentration d'eau vers le coté anodique à travers la membrane.

Une fois cette variation augmente, le champ de concentration d'eau se diffuse vers le coté anodique pour éviter son assèchement.

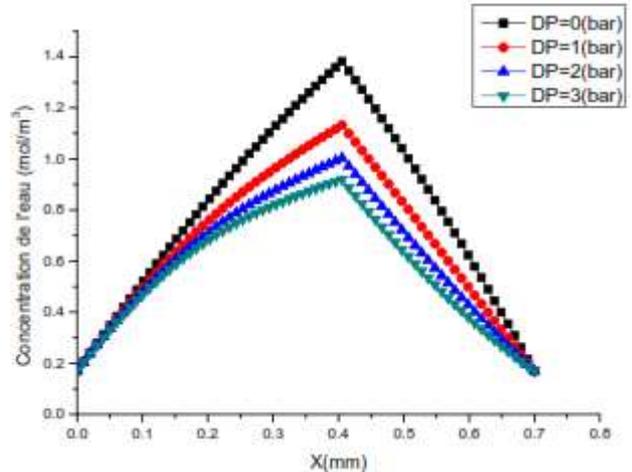


Figure 4: Influence de gradient de la pression sur la concentration d'eau

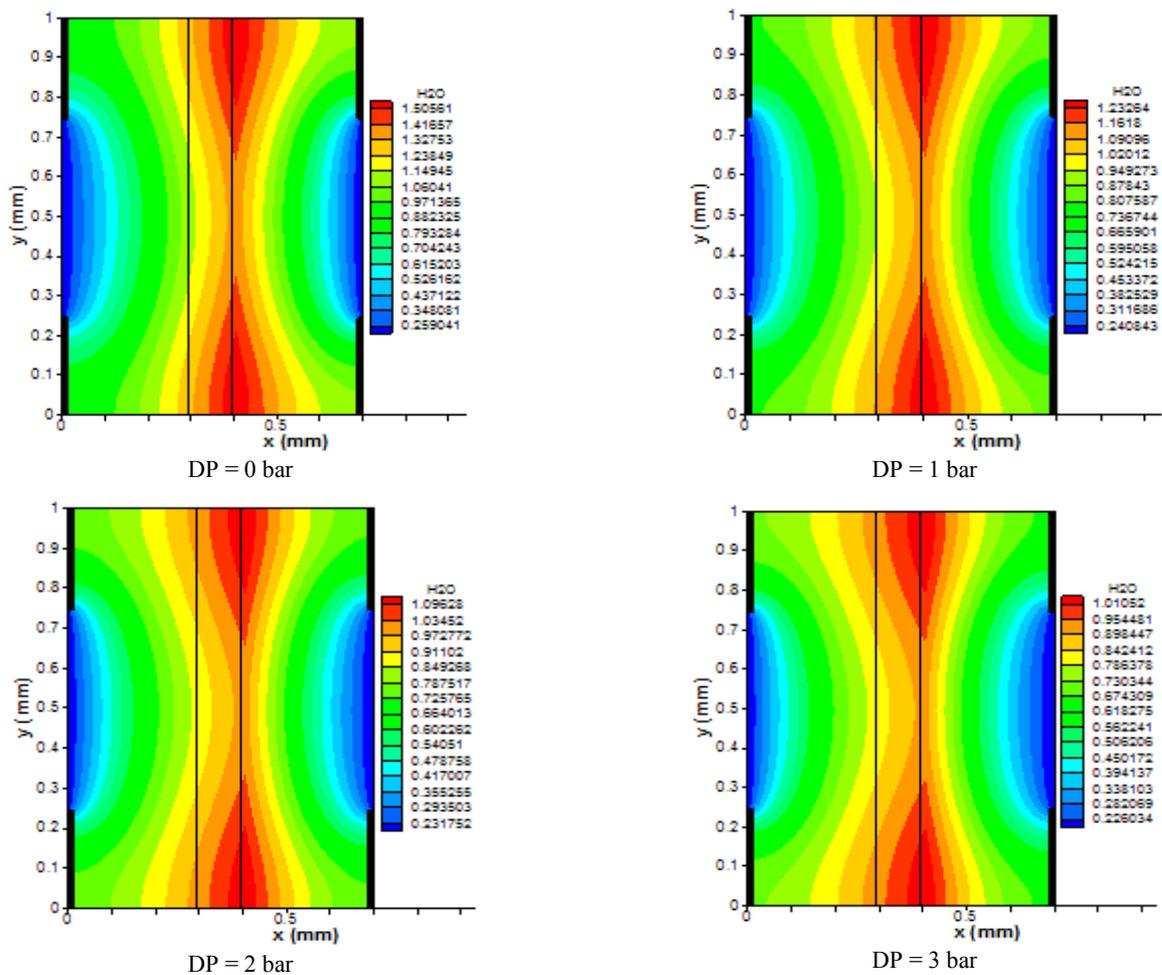


Figure 3 : Distribution de la concentration de l'eau pour différentes valeurs du gradient de la pression d'entrée anodique et cathodique

## CONCLUSIONS

Un modèle bidimensionnelle, stationnaire est développé pour l'assemblage membrane électrode (MEA) dans la pile PEMFC. Le modèle est utilisé pour étudier l'effet du gradient de pression sur la distribution de l'eau dans le cœur de la pile PEMFC.

Les conclusions suivantes peuvent être tirées:

- La performance de la cellule peut être améliorée en augmentant le gradient de pression entre l'anode et la cathode.
- Les résultats montrent que l'augmentation de la pression cathodique à celle de l'anode peut être utilisée pour réduire le problème de déshydratation d'anode.
- Cette étude sera utile pour la conception et le fonctionnement des piles PEMFC

## REFERENCES

- [1] S.H. Ge, B.L. Yi, "A mathematical model for PEMFC in different flow modes", *Journal of Power Sources*, 124 (2003) 1-11.
- [2] G. Karimi, X. Li, "Electroosmotic flow through polymer electrolyte membranes in PEM fuel cells", *Journal of Power Sources* 140 (2005) 1-11
- [3] P. Costamagna, "Transport phenomena in polymeric membrane fuel cells", *Chemical Engineering Science* 56 (2001) 323-332
- [4] I.M. Hsing, P. Futerko, "Two-dimensional simulation of water transport in polymer electrolyte fuel cells", *Chemical Engineering Science* 55 (2000) 4209-4218
- [5] D.M. Bernardi, M.W. Verbrugge, "A mathematical model of the solid-polymer-electrolyte fuel cell", *Journal of Electrochemical Society* 139 (1992) 2477-2491
- [6] T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, "Polymer electrolyte fuel cell model", *Journal of Electrochemical Society* 138 (1991) 2334-2342.
- [7] A. Rowe, X. Li, "Mathematical modeling of proton exchange membrane fuel cell", *Journal of Power Sources* 102 (2001) 82-96
- [8] 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.
- [9] 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
- [10] B. Cheng, O. Minggao, Y. Baolian, "Analysis of Water Management in Proton Exchange Membrane Fuel Cells", *Tsinghua Science and Technology* 11 (2006) 54-64
- [11] S. Um, C.Y. Wang, K.S. Chen, "Computational fluid dynamics modeling of proton exchange membrane fuel cells", *Journal of Electrochemical Society* 147 (2000) 4485-4493