

Modélisation et mesure des températures dans les PEMFCs

Ludovic MADIER*, Jean-Philippe GARNIER, Alina ILIE, Sergei MARTEMIANOV

Laboratoire d'études thermiques, UMR 6608

ENSMA et ESIP

40 Av, du recteur Pineau – 86022 Poitiers

*(auteur correspondant : ludovic.madier@etu.univ-poitiers.fr)

Résumé - La modélisation de pile à combustible PEM présentée ici s'intéresse aux distributions de températures dans l'ensemble de la pile en fonctionnement. Nous avons étudié des effets instationnaires dus à l'injection progressive de puissance thermique pendant le relevé d'une courbe courant/tension. Les résultats numériques sont comparés aux mesures des températures moyennes dans le cœur de pile, ces mesures sont obtenues par capteurs thermorésistifs placés à proximité de l'interface membrane/couche active. La concordance entre les résultats expérimentaux et numériques valide notre code de calcul et permet de localiser les points chauds du cœur de pile. Par ailleurs, il apparaît que la température de la pile au niveau de l'interface membrane/couche active s'éloigne (jusqu'à 10°C) de la température de la consigne mesurée par un thermocouple dans la plaque bipolaire. Enfin, l'effet de l'anisotropie de la conductivité thermique de la couche de diffusion sur la distribution de la température a été étudié.

Nomenclature

C_p	Capacité calorifique $J.kg^{-1}.K^{-1}$
F	Constante de Faraday $C.mol^{-1}$
h	Coefficient de transfert de chaleur $W.m^{-2}.K^{-1}$
i	Densité de courant $A.cm^{-2}$
k	Conductivité thermique $W.m^{-1}.K^{-1}$
\mathbf{n}	Vecteur normal
P	Densité de puissance $W.cm^{-2}$
Pe	Nombre de Peclet $Pe=RePr$
Q	Densité de puissance thermique $W.cm^{-2}$
R	Résistance Ω
T	Température °C
U	Tension V

Symboles grecs

α	Coefficient de thermo-résistance K^{-1}
ρ	Masse volumique $kg.m^{-3}$

Indices et exposants

\perp	Perpendiculaire au plan
\parallel	Parallèle au plan
a	Ambiante
$cell$	Cellule
e	Électrique
i	Condition aux limites
j	Type de matériaux
th	Thermique
tot	Totale

1. Introduction

L'impact de la température sur les performances des piles à combustible a été largement étudié [1]. La température des plaques bipolaires est habituellement identifiée comme étant la température de fonctionnement des piles. Cependant cette température ne reflète pas la température réelle de l'AME (Assemblage Membrane Electrodes).

De nombreux modèles numériques ont été développés [2] pour évaluer les champs de température dans l'AME et présentent des résultats disparates sans validations expérimentales. D'autre part, des mesures ont été effectuées sur des maquettes assez éloignées des cellules que l'on trouve aujourd'hui [3]. A l'heure actuelle, la question reste toujours ouverte.

L'objectif de ce travail est double: d'une part, il s'agit de développer un modèle permettant d'évaluer l'écart entre la température mesurée dans la plaque de maintien et la température

réelle dans les différents composants de la pile à combustible. D'autre part, le deuxième objectif est la validation expérimentale de ce modèle. Enfin, les propriétés thermiques de la GDL (Gas Diffusion Layer) étant mal connues [4], les cas d'une conductivité thermique isotrope et anisotrope seront étudiés.

2. Modélisation

2.1. Description géométrique

La figure 1 détaille les différents composants d'une mono-cellule de pile à combustible. La géométrie réelle de la pile est modélisée. Les propriétés physiques des matériaux des composants sont résumées dans le tableau 1.

Pour minimiser les coûts de calcul, seul un quart de la pile est modélisé (voir figure 2). L'équation de la chaleur instationnaire (1) est résolue par un code de calcul commercial (Comsol Multiphysics 3.3®).

$$\rho_j C_{p,j} \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla \cdot (k_j \nabla T) = 0 \quad (1)$$

Les conditions aux limites sont résumées dans le tableau 2. Précisons que le transfert de chaleur par convection des gaz d'alimentations dans la GDL est négligeable [4], ce qui est confirmé par la faible valeur du nombre de Peclet ($Pe=10^{-6}$).

Composant	N° (Fig.1, 2)	Matériaux	ρ $kg.m^{-3}$	C_p $J.kg^{-1}.K^{-1}$	k $W.m^{-1}K^{-1}$
GDL	1	Tissus de Carbone	9,4	$1,2.10^5$	$k^\perp=0,3$ $k^\parallel=2,4$
Joint	2	Téflon	1760	1050	0,2
Plaque bipolaire	3	Graphite résiné	1770	700	95
Collecteur	4	Cuivre	8700	385	400
Plaque de maintient	5	Acier inox	7850	475	44,5

Tableau 1 : Matériaux et leurs propriétés physiques.

Repère (Fig. 1, 2)	Conditions aux limites
A, B, C, D, E, F, G	$\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T) = h_i (T^a - T)$
1	$\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T) = Q(t)$
6	$T = T_{cell}$
8	$\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T) = 0$

Tableau 2 : Conditions aux limites utilisées dans la modélisation.

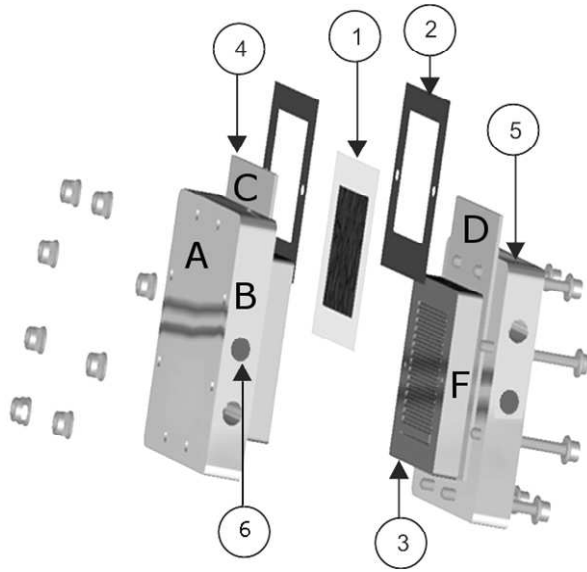


Figure 1 : Pile réelle du laboratoire : 1-AME 2-Joints 3-Plaque bipolaire 4-Collecteur de courant 5-Plaque de maintien 6-Thermostat

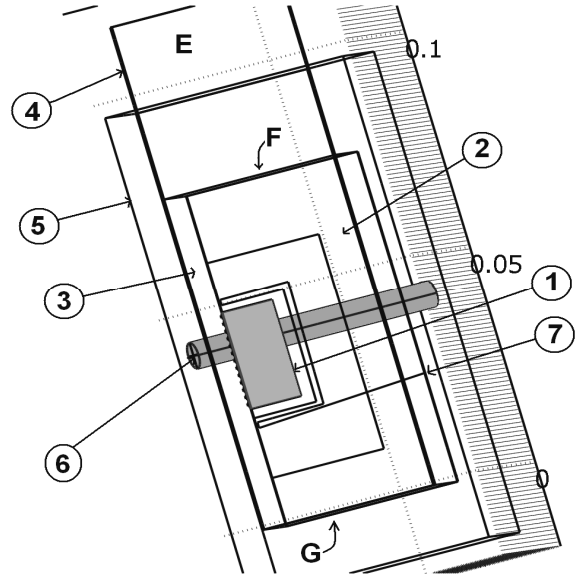


Figure 2 : Quart de pile modélisé. 7-fil de Platine. Les lettres repèrent les conditions aux limites. À droite, l'échelle (m).

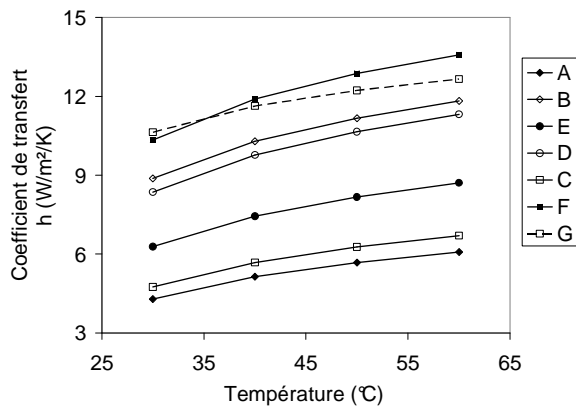


Figure 3: Coefficients de transfert thermo-dépendant utilisés dans la modélisation.

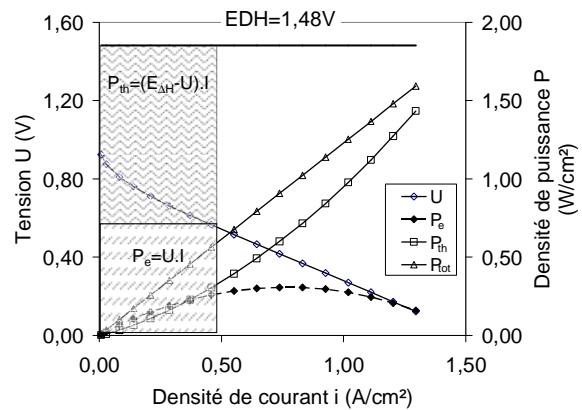


Figure 4: Courbe de polarisation expérimentale et puissances thermique, électrique et totale associées.

2.2. Sources de chaleur

Les sources de chaleur prises en compte sont globalisées: la puissance thermique est injectée au niveau de l'électrode et calculée à partir de la courbe de polarisation. La chaleur est évacuée par convection naturelle à l'interface extérieure de la cellule. Les coefficients d'échange thermique par convection naturelle sont thermo-dépendants et déterminés à partir de relations empiriques [5] et sont différents suivant la géométrie de chaque surface. Les coefficients de transfert de chaleur sont tracés sur la figure 3, la surface i à laquelle ils se rattachent est indiquée sur les figures 1 et 2.

La figure 4 présente la courbe courant-tension de $U(i)$ de l'assemblage testé; les puissances électrique et thermique en sont déduites. La puissance électrique maximum obtenue avec cet assemblage est de $0,3\text{W/cm}^2$. À ce point de fonctionnement la puissance thermique dissipée est de $0,6\text{W/cm}^2$ (Figure 4). La puissance thermique se déduit de la

puissance électrique : elle correspond à la quantité d'énergie totale (ΔH) moins l'énergie électrique. En termes de puissance on écrit :

$$P_{th} = P_{tot} - P_e ; \quad (2)$$

$$P_{th}(t) = \Delta H \frac{i(t)}{2F} - U(t).i(t), \quad (3)$$

où $Q(t)$ correspond à P_{th} lors d'un tracé de courbe de polarisation. En effet, le potentiel aux bornes de la pile est imposé et varie de 1V à 0,2V par pas de 0,05V toutes les 15s. Alors, la réponse en courant évolue également au cours du temps (voir figures 7 et 9).

3. Expérimentation

3.1.1. Capteur de température

Un capteur en fil de platine de 25 μm de diamètre est inséré dans le joint entre l'AME et la plaque bipolaire. Par la mesure de la résistance électrique, on obtient la température moyenne de ce fil qui reflète la moyenne spatiale de la température au voisinage de la membrane.

On calcul la température du fil de platine avec:

$$R_\theta = R_0(1 + \alpha\Delta T), \quad (3)$$

où $\alpha = 3,85.10^{-3} \text{ K}^{-1}$. Le capteur est préalablement étalonné à l'aide d'un thermocouple. Dans le modèle, on intègre la température le long du chemin décrit par le fil. On obtient la température moyenne par la mesure de résistance. Une étude préliminaire a montré que ce capteur avait une précision de l'ordre de 0,05 °C.

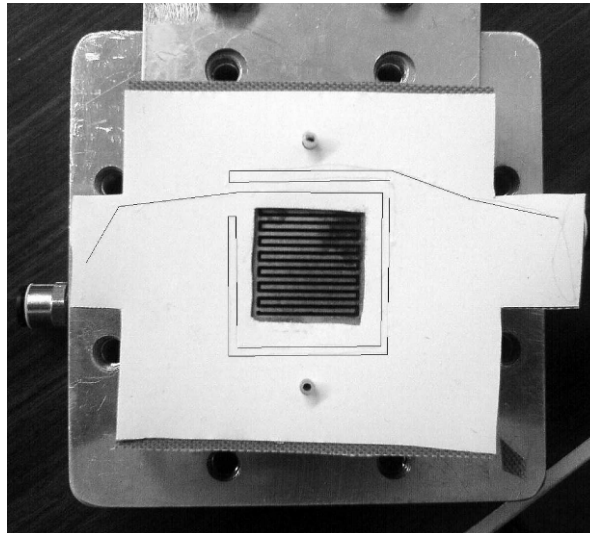


Figure 5 : Position du capteur à proximité de l'électrode.
Le capteur a été surligné pour être visible.

4. Résultats

4.1. Température réelle du cœur de pile en circuit ouvert (pile hors de fonctionnement)

En mode stationnaire, les températures modélisées et mesurées au niveau de la membrane concordent à $0,05^{\circ}\text{C}$ près à $58,5^{\circ}\text{C}$ pour une température de consigne mesurée dans la plaque bipolaire à 60°C . En régime transitoire on porte la cellule à 60°C et on laisse la pile se refroidir. La concordance des deux résultats valide le modèle et le système de mesures (Figure 6).

4.2. Température du cœur de pile en fonctionnement

La puissance thermique calculée *a posteriori* à partir de la courbe de polarisation est utilisée comme condition aux limites en (1) dans notre modèle. Les résultats (Figure 7) montrent une bonne adéquation entre les calculs et les mesures. La précision du capteur est suffisante et permet de mesurer une élévation de la température de $0,7^{\circ}\text{C}$ au niveau de la membrane au maximum de puissance thermique, ce que confirme la simulation.

Le modèle étant validé, nous pouvons alors estimer l'élévation de température dans l'AME. Deux cas sont étudiés : la modélisation précédente considère une GDL anisotrope selon les données du fabricant. Le cas d'une GDL isotrope est aussi étudié pour estimer l'effet de l'anisotropie. La comparaison de deux cas (figure 8) indique que l'anisotropie de la GDL réduit fortement les gradients de température à la surface de l'électrode (dans la couche active). En revanche elle ne modifie pas la température moyenne de cette dernière et n'induit pas de différence de température au niveau du capteur comme l'indique la figure 9. Néanmoins, la distribution de la température est fortement non-uniforme même dans le cas réel (GDL anisotrope) avec des gradients supérieurs à $100^{\circ}\text{C}/\text{m}$. L'augmentation de température de la couche active dans la pile en fonctionnement peut atteindre 10°C par rapport à la pile préchauffée en circuit ouvert ($I = 0$), (Figure 9).

5. Conclusion

La connaissance des champs thermiques dans le cœur de pile reste un problème à part entière et intervient systématiquement dans le dimensionnement des piles. L'étude montre qu'un écart d'une dizaine de degrés peut s'établir entre la température de consigne dans les plaques de maintien de la cellule et la température réelle de l'AME. Par ailleurs, les gradients thermiques dans la couche de diffusion et la membrane peuvent endommager la cellule à fort courant puisqu'un écart de 10°C entre l'électrode et la plaque bipolaire s'établit aux fortes densités de courant. Enfin, l'anisotropie, à un effet important et positif sur la réduction des gradients à la surface de l'électrode. Bien que les modélisations non-isothermes de pile à combustible considèrent une GDL isotrope, il apparaît que cette propriété a un impact important sur la distribution de température.

Références

- [1] S.G. Kandlikar and Z. Lu. Thermal management issues in a PEMFC stack—A brief review of current status. *Applied Thermal Engineering*, 2008.
- [2] A.Z. Weber and J. Newman. Modeling Transport in Polymer-Electrolyte Fuel Cells. *Chemical Reviews*, 104 :4679-4726, 2004.
- [3] A.M. Abdullah, T. Okajima, A.M. Mohammad, F. Kitamura, and T. Ohsaka. Temperature gradients measurements within a segmented H₂/air PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 172(1) :209-214, 2007.
- [4] J. Ramousse, J. Deseure, O. Lottin, S. Didierjean, and D. Maillet. Modelling of heat, mass and charge transfer in a PEMFC single cell. *Journal of Power Sources*, 145(2) :416-427, 2005.
- [5] W.M. Rohsenow, J.P. Hartnett, and Y.I. Cho. Handbook of Heat Transfer. 1998.

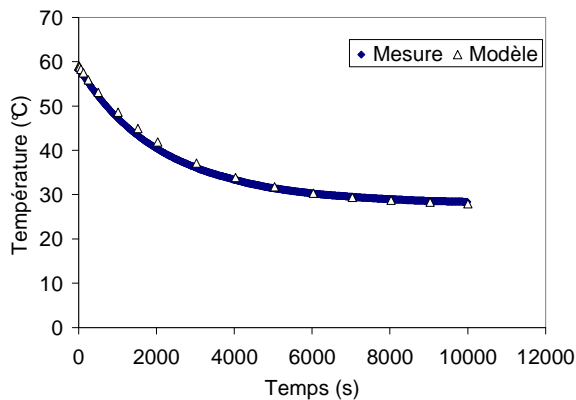


Figure 6 : Comparaison des températures réelles et issues du modèle lors d'un refroidissement à refroidissement de la pile à courant nul.

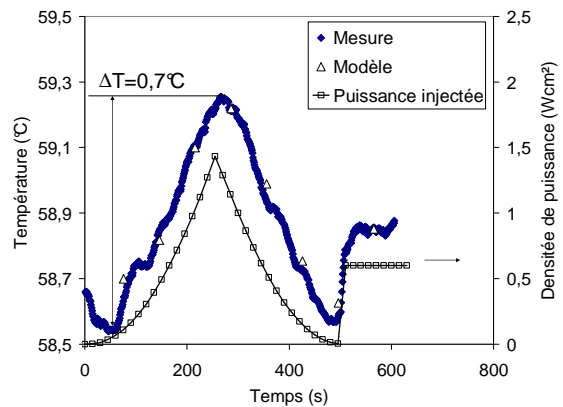


Figure 7 : Comparaison de la température moyenne du capteur issue de la simulation et de l'expérience.

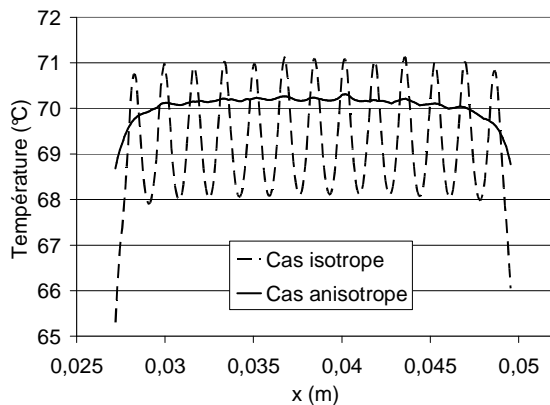


Figure 8: Température le long de l'axe de symétrie au niveau de l'électrode : comparaison des cas de GDL isotrope ou anisotrope.

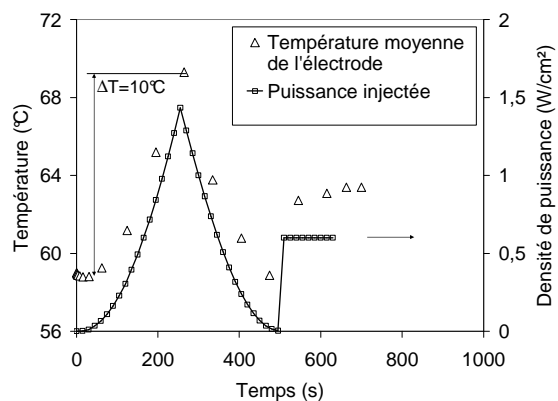


Figure 9: Température moyenne de l'électrode.