

1. Introduction

La pile à combustible à membrane échangeuse de protons appelée aussi PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cells), est le type de pile le plus étudié. Ces points forts sont une température de fonctionnement basse comprise entre 40°C et 100°C (énergie d'activation faible) et la simplicité de sa technologie. L'utilisation d'une membrane solide ce qui augmente sa durée de vie par rapport à d'autres types de piles à combustibles. Enfin, elle est insensible à la présence de CO₂ dans l'air.

Une cellule électrochimique PEM met en oeuvre une membrane conductrice de protons, et théoriquement imperméable aux gaz H₂ et O₂. La membrane est prise entre deux électrodes, sur lesquelles sont déposées des petites quantités de catalyseur (Platine), afin de créer les zones de catalyse. L'ensemble constitue l'Assemblage Membrane Electrodes de la pile (figure 1). Lorsque le courant débités par la pile dépasse une valeur seuil la quantité de vapeur d'eau générée par la réaction de réduction d'oxygène devient suffisante pour que la pression de la vapeur d'eau atteigne la pression de vapeur saturante dans la phase gazeuse. Ainsi, l'eau liquide apparaît à l'interface cathode/membrane et diffuse dans la cathode sous l'effet des phénomènes de capillarité. A des hautes densités de courant (I > 0.7 A/cm²), la quantité d'eau liquide augmente, ce qui provoque le noyage de la cathode et rend les surfaces électrochimiques inactives. Dans la littérature plusieurs études sont présentées pour décrire les écoulements et les transferts dans le coeur d'une pile à combustible de type PEMFC ([3-6]). Notre but est la résolution numérique des équations de conservation dans la cathode poreuse d'une pile à combustible de type PEMFC par la méthode des volumes de contrôle à base d'éléments finis (MVCF) (Omri et al.[1]). Nous présentons d'abord la configuration du problème physique étudié. Ensuite, les équations de conservations régissant le problème physique ainsi que les conditions aux limites. Le système d'équations est résolu en utilisant la méthode MVCF. Les résultats concernant l'évolution de la concentration d'oxygène et l'évolution de la saturation de l'eau liquide sont présentés.

2. Formulation mathématique

On considère une pile alimentée avec de l'oxygène pur. Le système physique étudié est constitué d'une couche poreuse placée horizontalement (Figure 2). Les deux faces latérales sont imperméables. A l'interface cathode/membrane, en y = H, il y a consommation d'oxygène et production d'eau. La face inférieure, en y = 0, est accolée au canal d'alimentation d'oxygène. La longueur de la couche poreuse est prise égale 0.05m. Le problème est bidimensionnel est sera résolu en transitoire.

2.1. Équations de conservation

Le modèle est basé sur la méthode des phases séparées (Ben Nasrallah et al. [2]). Le système d'équations régissant les écoulements et les transferts dans la cathode poreuse comporte trois équations : le bilan de masse du liquide, du gaz et d'oxygène.

2.1.1 Equation de conservation de la masse

Les équations de conservation de la masse pour les deux phases, liquide et gaz sont données par :

$$\frac{\partial(\epsilon\rho_1^{H_2O}S)}{\partial t} - \text{div}[\rho_1^{H_2O} \frac{k_{rl}}{\mu_l} \vec{\text{grad}}(p_1)] = \dot{m}_{H_2O} - \dot{m}_{ev} \quad (1)$$

$$\frac{\partial[\epsilon\rho_g(I-S)]}{\partial t} - \text{div}\left[\rho_g \frac{\mathbf{k}\mathbf{k}_{rg}}{\mu_g} \text{grad}(p_g)\right] = \dot{m}_{ev} - \dot{m}_{O_2} \quad (2)$$

2.1.2 Equation de conservation des constituants dans le gaz

Oxygène

$$\frac{\partial[\epsilon\rho_g C_g^{O_2}(I-S)]}{\partial t} - \text{div}\left[\rho_g C_g^{O_2} \frac{\mathbf{k}\mathbf{k}_{rg}}{\mu_g} \text{grad}(p_g) + \epsilon^{3/2} D_g^{O_2} (1-S)\rho_g \text{grad} C_g^{O_2}\right] = -\dot{m}_{O_2} \quad (3)$$

Vapeur d'eau

$$\frac{\partial[\epsilon\rho_g C_g^{H_2O}(I-S)]}{\partial t} - \text{div}\left[\rho_g C_g^{H_2O} \frac{\mathbf{k}\mathbf{k}_{rg}}{\mu_g} \text{grad}(p_g) + \epsilon^{3/2} D_g^{H_2O} (1-S)\rho_g \text{grad} C_g^{H_2O}\right] = \dot{m}_{ev} \quad (4)$$

2.2.4. Conditions aux limites

À l'interface membrane cathode les flux de consommation d'oxygène et de génération d'eau sont donnés par la loi de Faraday :

$$\frac{\dot{m}_{O_2}}{m} = \frac{M_{O_2}}{4F} I, \quad \frac{\dot{m}_{H_2O}}{m} = -\frac{M_{H_2O}}{2F} I \quad (5)$$

À l'interface cathode canal de gaz, la pression du gaz et la concentration en oxygène sont constantes dans l'air. Les conditions aux limites à l'interface sont :

$$p_g = p_{atm} \quad C_g^{O_2} = C_0^{O_2} \quad S = S_{ini} \quad (6)$$

A t=0s

$$p_g = p_{atm} \quad C_g^{O_2} = C_0^{O_2} \quad S = S_{ini} \quad (7)$$

3. Résultats

Pour résoudre le système d'équation de conservation, nous avons utilisé la méthode des Volumes de Contrôle à base d'Eléments Finis (MVCEF) (Omri et al.[1]). Les calculs numériques appliqués au problème étudié, sont effectués dans les conditions indiquées dans le tableau 1. La valeur de la densité du courant seuil est égale à 0.64A/cm² (Wang et al. [3]). Des profils de concentrations d'oxygène sont représentés sur les figures 3 à t=5s pour une densité de courant $I = 0.7 A/cm^2$. On remarque que la concentration d'oxygène diminue de l'interface canal/cathode vers l'interface cathode/membrane (fig.3). L'oxygène doit diffuser à travers la couche d'eau liquide générée par la réaction électrochimique à l'interface cathode/membrane pour être consommé. D'autre part la concentration d'oxygène diminue de l'entrée de la cathode vers la sortie (fig.3). En effet, l'oxygène est consommé le long de l'interface canal/cathode. La figure 4 montre la distribution de la saturation de l'eau liquide dans la cathode poreuse à t=5s pour une densité de courant $I = 0.7 A/cm^2$. On remarque que pour une intensité de courant légèrement supérieure au courant seuil, l'eau liquide apparaît à l'interface membrane/cathode. La quantité d'eau liquide augmente dans la direction de l'écoulement et elle est plus importante dans le coin droit de la cathode poreuse (fig 4). En

effet, la concentration de la vapeur d'eau a une variation opposée à la concentration d'oxygène. Ces résultats sont conformes à ceux présentés par Wang et al. [3]. Les figures 5 et 6 montrent la variation de la concentration d'oxygène et de la saturation en fonction de la largeur de la cathode ($x=L/2$), à différents instants. On remarque bien que pour un courant donné, la quantité d'eau liquide générée par la réaction électrochimique dans la zone active évolue au cours du temps et s'étend sur la totalité de la cathode poreuse sous l'effet des phénomènes de transport par capillarité. En parallèle la concentration d'oxygène diminue au cours du temps. La figure 7 montre l'évolution au cours du temps de la saturation d'eau liquide en un point donné ($y=H$ et $x=L/2$) de la cathode poreuse pour une densité de courant fixe. On remarque que la saturation évolue au cours du temps et devient constante lorsque le régime stationnaire est atteint. Cet instant correspond à un équilibre entre la génération et le transport par capillarité de l'eau liquide à l'interface canal/cathode.

5. conclusion

Dans cette étude nous avons développé un modèle d'écoulement dans la cathode poreuse d'une pile à combustible. Ce modèle est utilisé pour observer l'apparition de l'eau liquide dans la pile et son influence sur le transport de l'oxygène. En effet lorsque le courant dépasse une valeur seuil l'eau liquide apparaît dans la cathode poreuse. A partir de cette étude on peut tirer les conclusions suivantes :

- Pour des densités du courant légèrement supérieures à la densité du courant seuil ($I = 0.64 \text{ A/cm}^2$), l'eau liquide apparaît à l'interface cathode/membrane et la concentration d'oxygène diminue de l'interface canal/cathode vers l'interface cathode/membrane.
- pour une densité du courant donnée, la quantité d'eau liquide générée par la réaction électrochimique dans la zone active évolue au cours du temps et s'étend sur la totalité de la cathode poreuse sous l'effet des phénomènes de transport par capillarité. En parallèle la concentration d'oxygène diminue au cours du temps à l'interface cathode/membrane.

Références

- [1] Omri Ahmed, Etude de la Convection Mixte à travers une Cavité par la Méthode des Volumes de Contrôle à base d'Eléments Finis, thèse faculté des sciences Mathématiques,
- [2] S. Ben Nasrallah and P. Perre, Detailed study of a model of heat and mass transfer during convective drying of porous media, *Int. J. Heat Mass Transfer*, vol. 31, pp. 957–967, 1987.
- [3] Wang, Z.H., Wang, C.Y. and Chen, K.S., Two-phase flow and transport in the air cathode of PEM fuel cells, *J. Power Sources*, vol. 94, pp. 40–50, 2001.
- [4] Hu, M., Gu, A., Wang, M., Zhu, X. and Yu, L., Three dimensional, two phase flow mathematical model for PEM fuel cell: Part I. Model development, *J. Energy Conversion and Management*, vol. 45, pp. 1861-1882, 2004.
- [5] Pasaogullari, U., Wang, C.Y., Liquid water transport in gas diffusion layer of polymer electrolyte fuel cells, *J. Electrochem. Soc.*, vol.151, pp. A399–A406, 2004.
- [6] You, L. and Liu, H.T., A two-phase flow and transport model for the air cathode in PEM fuel cells, *Int. J. Heat Mass Transfer*, vol. 45, pp. 2277–2287, 2002.

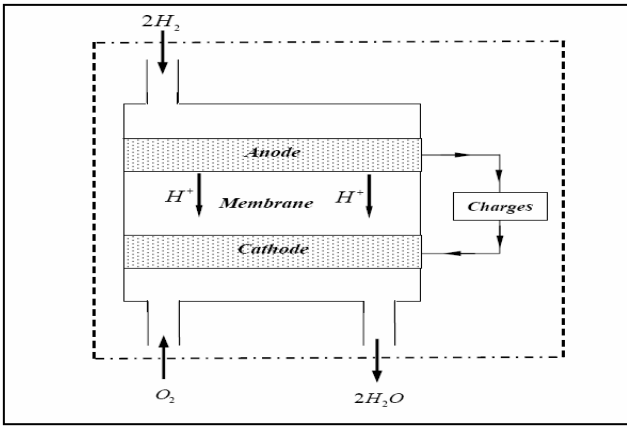


Figure 1. Description d'une pile à combustible

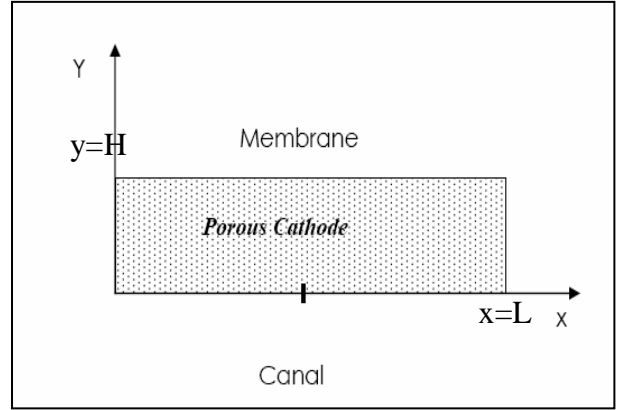


Figure 2. Problème physique étudié

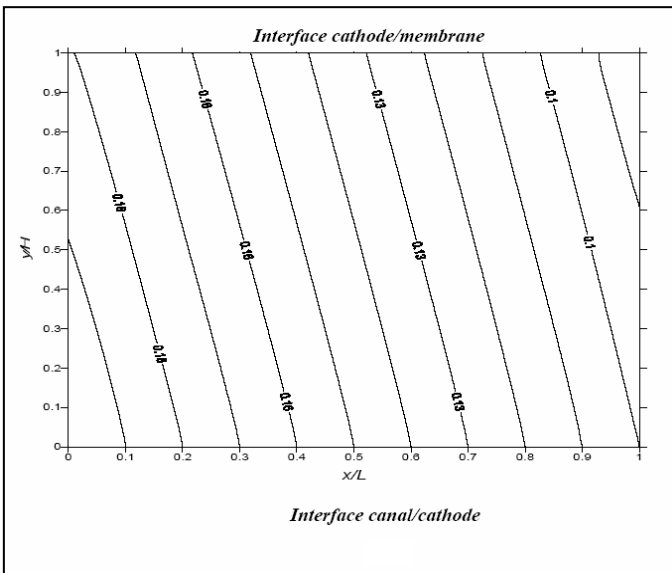


Figure 3. Concentration d'oxygène
à $t=5s$ ($I = 0.7 \text{ A/cm}^2$)

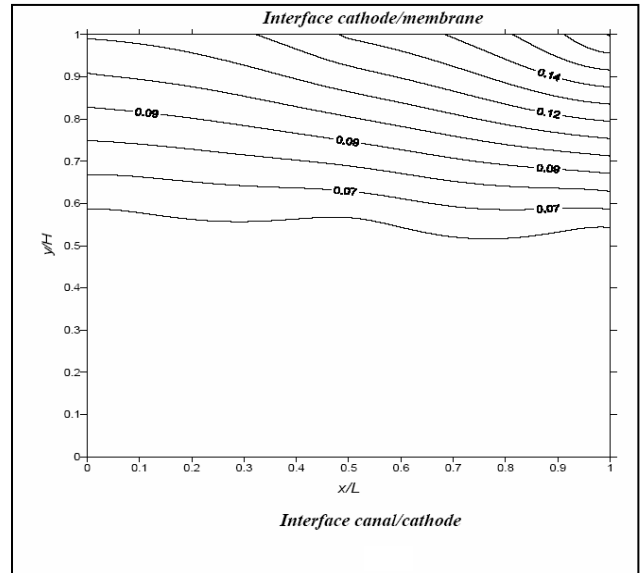


Figure 4. Saturation de l'eau liquide
à $t=5s$ ($I = 0.7 \text{ A/cm}^2$)

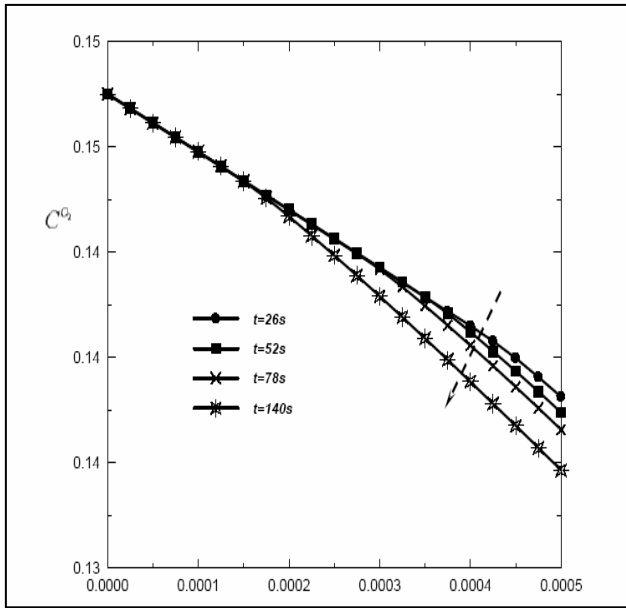


Figure 5. Evolution de la concentration d'oxygène à différents instants ($I = 0.7 \text{ A} / \text{ cm}^2$ et $x=L/2$)

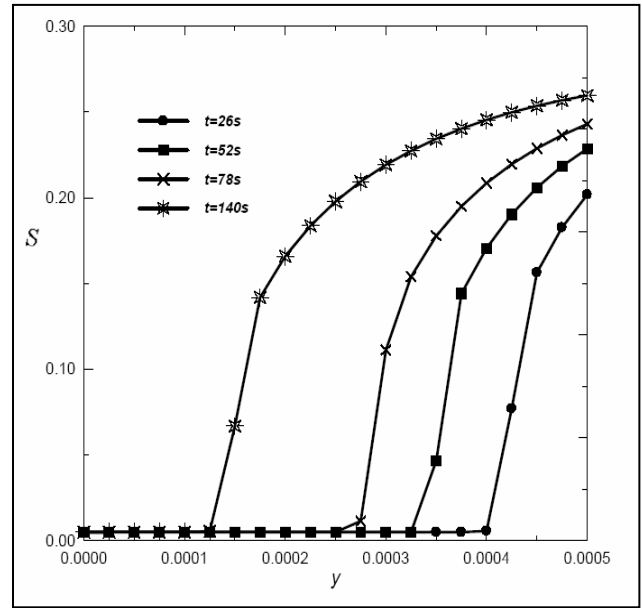


Figure 6. Evolution de la saturation de l'eau liquide à différents instants ($I = 0.7 \text{ A} / \text{ cm}^2$ et $x=L/2$)

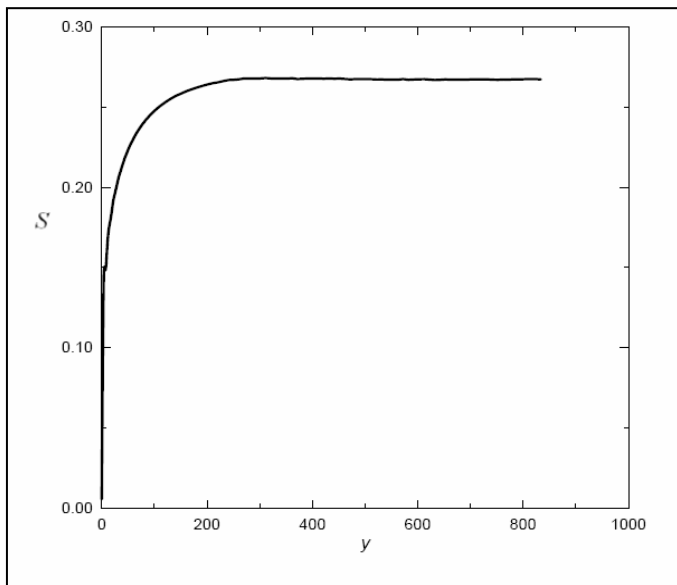


Figure 7. Evolution de la saturation de l'eau liquide au cours du temps ($I = 0.7 \text{ A} / \text{ cm}^2$ et $x=L/2$)

Parameter	Symbol	value	reference
Largeur de la couche poreuse	H	0.05 cm	
Longueur de la couche poreuse	L	5 cm	
Concentration de l'oxygène à l'entrée de la cathode	$C_0^{O_2}$	0.2	[3]
Porosité de la cathode	ϵ	0.4	[4]
Perméabilité du GDL	k	1.10^{-11} m^2	[3]
température	T	80° C	[3]
Tension superficielle	σ	$6.26.10^{-2} \text{ N} / \text{ m}$	[5]
Coefficient de diffusion de l'oxygène	$D_g^{O_2}$	$0.284.10^{-4} \text{ m}^2 . \text{ s}^{-1}$	[6]
Coefficient de diffusion de l'eau	$D_g^{H_2O}$	$0.335.10^{-4} \text{ m}^2 . \text{ s}^{-1}$	[6]
Saturation initiale	S_{ni}	0.005	

Tableau 1 : Données numériques