

Engorgement/drainage dans les canaux d'une pile à combustible

Jérôme DILLET*, Gaël MARANZANA, Olivier LOTTIN et Sophie DIDIERJEAN

Laboratoire d'Energétique et Mécanique Théorique Appliquée, Nancy Université - CNRS
2 avenue de la forêt de Haye, BP 160, F-54504 Vandoeuvre les Nancy Cedex

*(Auteur correspondant : jerome.dillet@ensem.inpl-nancy.fr)

Résumé - Le bon fonctionnement d'une pile à combustible est lié à une gestion optimale de l'eau dans les canaux d'alimentation en gaz. Une pile prototype, transparente et segmentée est utilisée pour simultanément visualiser l'engorgement et le drainage de gouttes d'eau coté cathode (caméra rapide) et en mesurer les effets sur la densité de courant locale. Deux régimes sont mis en évidence. A faible débit d'air, un bouchon d'eau se forme puis est évacué, à un débit plus élevé, l'évacuation de l'eau se fait sous forme de gouttelettes inhomogènes.

1. Introduction

Les piles à combustible sont les objets de recherches intensives de la part de la communauté scientifique et des industriels (automobile, aérospatial, filière hydrogène). Dans une pile à combustible à membrane échangeuse de protons –PEMFC–, la production d'électricité se fait grâce à l'oxydation sur une électrode (l'anode) d'un combustible (par exemple l'hydrogène : $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$) couplée à la réduction d'oxygène sur l'autre électrode (la cathode), ce qui produit de l'eau ($1/2 O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$). Une cellule de pile à combustible a une structure de type multicouches ; de chaque coté de l'assemblage membrane électrode (AME) sont positionnées une couche de diffusion (Gas Diffusion Layer : GDL) et une plaque polaire collectrice du courant. Des mini canaux sont usinés dans les plaques bipolaires. Ils assurent l'approvisionnement en H_2 et O_2 (de l'air) sur la surface active et l'évacuation des gaz en excès et de l'eau produite.

Une pile à combustible en fonctionnement fait intervenir des phénomènes de transport de matière, de chaleur et de charges. Pour faciliter l'étude et la compréhension de ces phénomènes, différentes équipes de recherche ont développé des piles prototypes transparentes. *Mench et al* [1] ont élaboré une pile monocanal avec une collecte de courant segmentée à la cathode. Cette étude met en évidence une distribution non-homogène du courant au sein de la pile en fonction des conditions de fonctionnement, de l'assèchement au noyau. Les articles de *Maranzana et al* [2] et *Hakenjos et al* [3] présentent des travaux expérimentaux réalisés avec des piles à canaux parallèles avec mesure locale du courant. Des thermocouples [2] ou une observation par thermographie infrarouge [3] montrent une forte corrélation entre l'intensité des courants et la température locale. Outre la cartographie des densités de courant et de la température [2, 3], *Su et al* [4], *Weng et al* [5] et *Ous et Arcoumanis* [6] ont souhaité localiser l'eau dans les canaux d'alimentation à l'aide de caméras ou d'appareils photos. Les observations sont généralement réalisées en régime stationnaire. Les études [2, 3, 5] illustrent la présence d'un front d'eau liquide dans des canaux parallèles. Dans l'article [4], les auteurs utilisent la visualisation pour déterminer une géométrie optimale de canaux minimisant la rétention d'eau. D'autres techniques plus délicates à mettre en œuvre et réclamant des moyens importants peuvent permettre la localisation de l'eau. *Hartnig et al* [7] ont réalisé des visualisations à l'aide de rayons X (synchrotron) tandis que *Bedet et al* [8] ont utilisé l'imagerie par résonance magnétique nucléaire (IRM). L'objectif général des ces

travaux [1-8] est de parvenir à une gestion optimale de l'eau dans une pile PEMFC qui ne doit être -en tous points- ni trop sèche, ni trop humide, afin de réduire les pertes de performances (induites par une membrane trop sèche ou par un engorgement en eau liquide) et d'optimiser sa durée de vie.

Dans cet article, nous cherchons à caractériser les écoulements d'eau liquide dans les canaux des plaques bipolaires ou monopolaires et leur impact sur les performances électriques de la pile. Ces écoulements sont par nature transitoires. Pour ce faire nous disposons d'une cellule transparente et d'une caméra rapide permettant la visualisation de l'eau liquide, d'une collecte segmentée du courant, d'une mesure globale de la tension, et enfin d'une mesure des pertes de charge entre l'entrée et la sortie de l'air.

Après une description de la pile à combustible utilisée et de la chaîne expérimentale, nous présenterons les deux types d'écoulement de l'eau liquide observés.

2. Dispositif expérimental

2.1. La pile segmentée

La pile prototype (*figure 1*) est un assemblage d'une plaque d'aluminium dorée (anode - H₂), de 18 lamelles de laiton dorées (cathode) et d'une plaque de plexiglas transparente. Un canal millimétrique est usiné dans la plaque anodique et les lamelles de laiton dessinent un canal identique en vis-à-vis, à la cathode. La collecte du courant s'effectue par l'intermédiaire des 18 lamelles en contact avec la GDL. Le monocanal visible entre les lamelles induit une perte de charge importante variant (de 0 à 150mbar) quasi-linéairement avec le débit d'air (de 0 à 40nL/h).

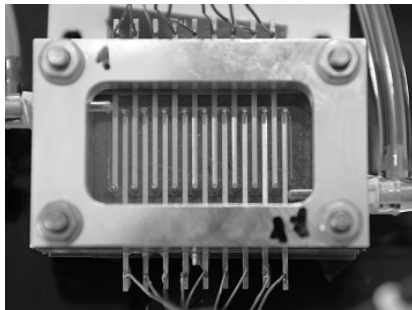


Figure 1 : photographie de la pile segmentée

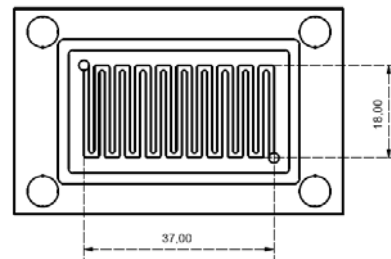


Figure 2 : schéma du monocanal millimétrique de section 0,7x1mm² (cathode)

La température de la pile est régulée à l'aide d'un élément plan chauffant collé sur la plaque anodique. Néanmoins, des gradients de température sont probablement présents à cause des diverses résistances thermiques au sein des composants ainsi qu'à leurs interfaces. Les débits des gaz (air et hydrogène) sont contrôlés à l'aide de débitmètres massiques. Avant son entrée dans la pile, l'air est humidifié à l'aide d'un bulleur dont la température est contrôlée. L'humidité relative de l'air est supposée égale au rapport entre les pressions de vapeur saturante aux températures de la pile et du bulleur ; celles-ci sont déterminées à l'aide de la formule de Rankine : $P_{sat} = \exp(13,7 - 5096/T(K)) P_0$.

2.2. La chaîne d'acquisition

Un boîtier d'électronique passif a été développé pour la mesure des 18 courants locaux. Chacune des lamelles est reliée à un shunt de 10mΩ aux bornes duquel la mesure de la tension

permet de déduire le courant. Une attention particulière a été portée au boîtier de manière à minimiser et uniformiser autant que possible les résistances de mesure et de contact, ainsi l'on considère la cellule comme étant équipotentielle au niveau de la GDL. À la sortie du boîtier l'ensemble des courants locaux est collecté sur une charge électronique *Amrel FEL-60-1*. Les données numériques sont acquises à une fréquence de 200 Hz et avec une résolution de 16 bits à l'aide d'une centrale *SCXI National Instrument* et d'un logiciel programmé sous *Labview*. La pile fonctionne soit à tension imposée soit à courant imposé. La visualisation des écoulements dans les canaux est réalisée avec une caméra rapide *Photron (FASTCAM MS3000APX)* équipée d'un capteur CMOS $1024 \times 1024\text{ pixels}$ en 8 bits pouvant acquérir jusqu'à 3000 images/s en pleine résolution. Une synchronisation par trigger a été mise en place entre la caméra et la centrale d'acquisition.

2.3. Performances de la pile

La pile segmentée fonctionne avec un assemblage membrane-électrodes-GDL fourni par Johnson-Matthey. La membrane échangeuse de protons est un polymère perfluorosulfoné d'une épaisseur de $30\text{ }\mu\text{m}$ d'une surface active de $7,87\text{ cm}^2$. Les charges en platine des couches catalytiques sont respectivement de $0,406\text{ mg.cm}^{-2}$ et de $0,385\text{ mg.cm}^{-2}$ à l'anode et à la cathode. L'air est d'hydrogène circulent à contre-courant et à une pression proche de la pression atmosphérique. La température de la pile est voisine de 52°C . L'air humidifié ($HR \approx 70\%$) entre dans la pile près de la lamelle N°1 et ressort au niveau de la lamelle N°18. C'est l'inverse pour l'hydrogène sec. La caractéristique courant tension de la pile segmentée est illustrée par la courbe de polarisation de la *figure 3*. Ces mesures sont réalisées à courant imposé $0 \leq I \leq 13\text{ A}$, avec des stœchiométries $S_{air} = 3$ et $S_{H_2} = 1.4$. L'assemblage membrane-électrodes Johnson-Matthey offre de bonnes performances avec une densité de courant pouvant atteindre $1,8\text{ à }2\text{ A.cm}^{-2}$ et une densité de puissance maximum supérieure à $0,55\text{ W.cm}^{-2}$.

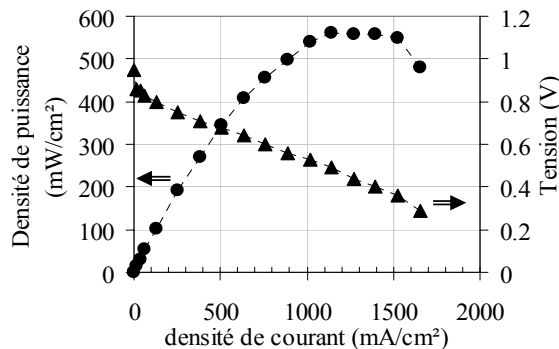


Figure 3 : courbe de polarisation et de puissance (▲ tension et ● densité de puissance)

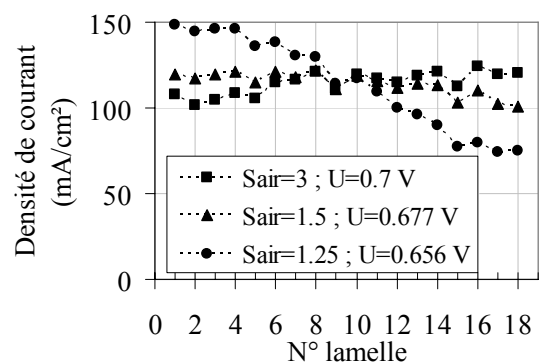


Figure 4 : profils de densité de courant à différentes stœchiométries en air

Le profil de courant dans la pile est riche en informations sur les zones de bon et mauvais fonctionnement. La *figure 4* montre par exemple l'influence de la stœchiométrie en air. Une diminution de la stœchiométrie engendre une inclinaison du profil vers la zone de sortie de l'air s'accompagnant d'une légère diminution des performances de la pile. Pour un fonctionnement optimum en termes d'uniformité du courant, il est préférable de fonctionner avec une stœchiométrie en air supérieure à $1,5$. L'observation du profil de courant peut également apporter des informations sur la répartition de l'eau dans la pile : les zones trop humides ou trop sèches se traduisent par des densités de courant locales plus faibles.

3. Écoulement de type bouchon

Pour bien observer les gouttelettes d'eau, une expérimentation atypique à faible densité de courant ($j = 127 \text{ mA.cm}^{-2}$) et à faible stœchiométrie en air ($S_{\text{air}} = 1.5$) a été réalisée. La température de la pile est fixée à 52°C et l'humidité relative de l'air en entrée est égale à 80% en entrée. Après quelques minutes de fonctionnement, il apparaît dans la pile des bouchons d'eau qui sont évacués rapidement. L'intervalle de temps entre deux bouchons varie entre 1 et 5 minutes ; ils se forment généralement entre les lamelles 5 et 12. La *figure 5* montre la rapidité du phénomène d'engorgement/drainage : la goutte est évacuée en $1,5 \text{ s}$. L'apparition du bouchon s'accompagne d'un accroissement des pertes de charge ainsi que d'une diminution de la tension se traduisant par une perte de puissance d'environ 12% .

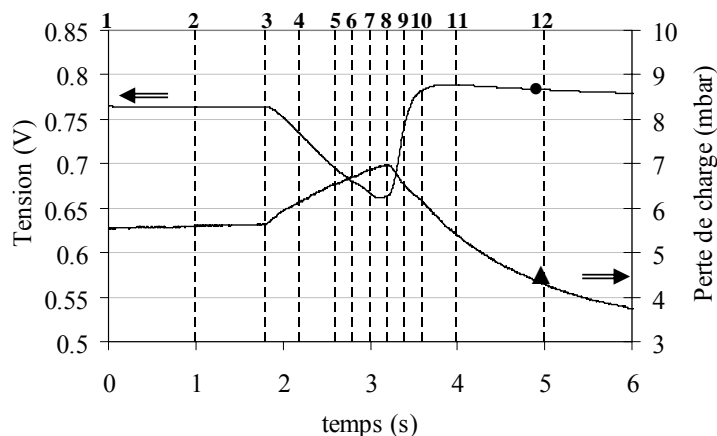


Figure 5 : évolution de la tension ● et des pertes de charge ▲ lors d'un écoulement de type bouchon. Les traits discontinus correspondent aux images de la figure 8.

La caméra rapide permet un suivi dynamique du bouchon (*figure 8*) et il est possible de déduire des images la vitesse (au niveau des ménisques amont et aval) et le volume de la goutte. Celle-ci se propage avec une vitesse quasi constante de 190 mm/s (*figure 6*). Cette vitesse est 3 fois inférieure à la vitesse théorique de l'air dans le monocanal, le débit imposé de $1,5 \text{ l/h}$ correspondant à 550 mm/s . Cette différence peut s'expliquer d'une part par l'augmentation de la pression dans le tube d'alimentation et dans le bulleur (qui représente un volume d'air important) et d'autre part par l'écoulement d'une partie de l'air dans la GDL, sous les lamelles. Le second graphique (*figure 7*) montre que le volume des gouttes croît de façon linéaire, ce que l'on peut relier à une production homogène du courant le long de la cellule.

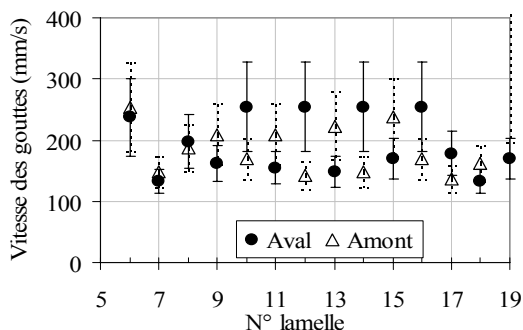


Figure 6 : vitesse d'une goutte

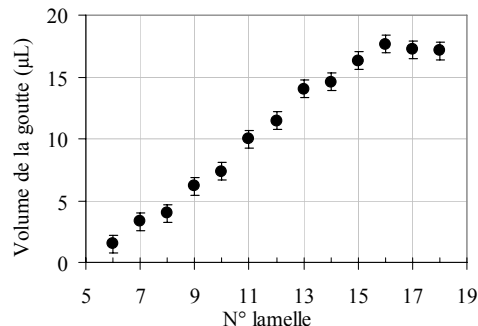


Figure 7 : volume d'une goutte

La synchronisation des images et du profil de courant apporte une bonne compréhension de l'écoulement et du mode de fonctionnement de la pile (*figure 8*). Le bouchon obstruant le canal, induit un appauvrissement en oxygène en aval. L'expérience étant réalisée à courant

total imposé, la chute de courant en aval est compensée par une augmentation en amont.

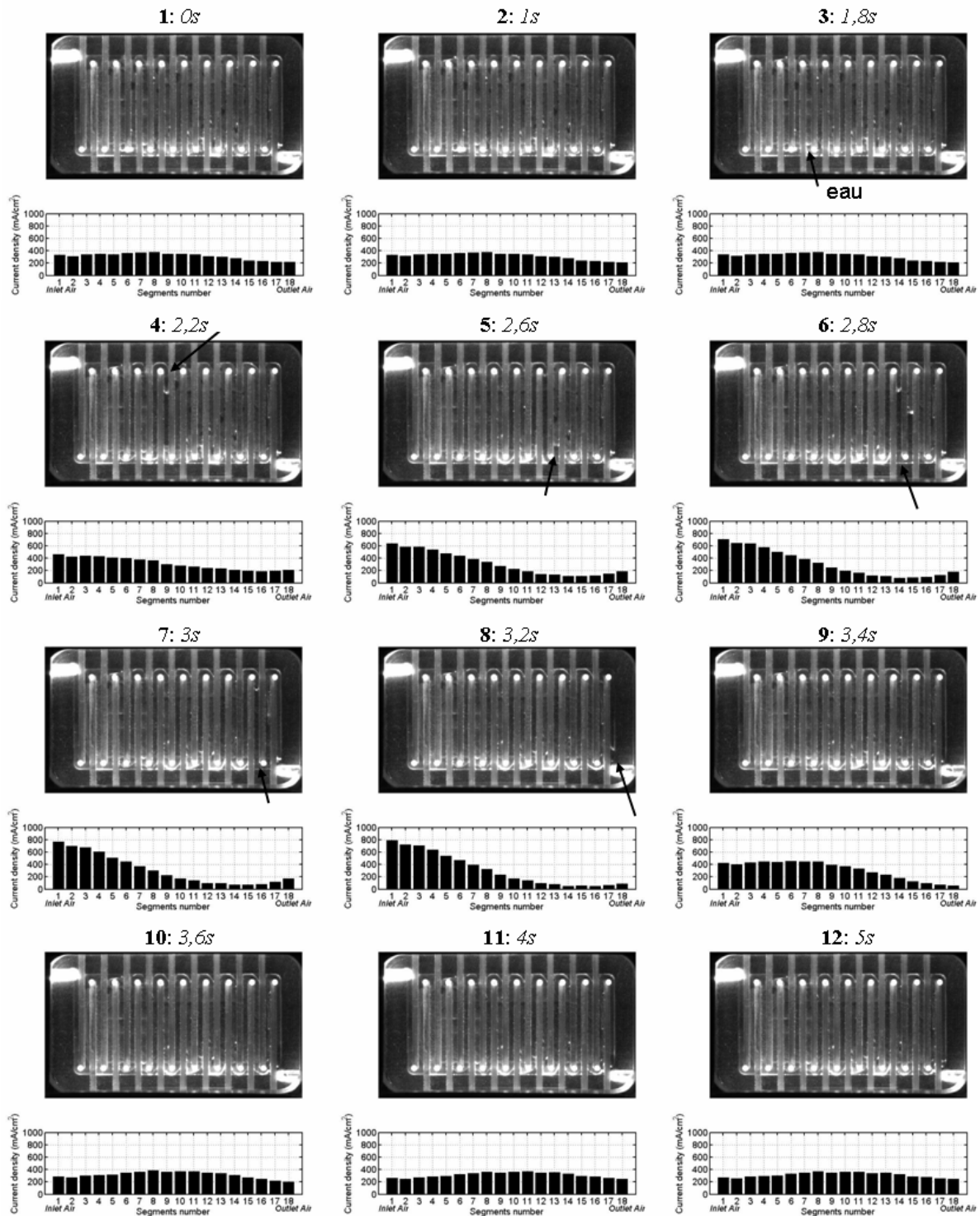


Figure 8 : Visualisation de l'écoulement du bouchon liquide et des densités de courant à courant imposé ($j = 127 \text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$)

Des mesures réalisées dans des conditions similaires mais à tension imposée ont apporté des résultats semblables en termes de vitesse et de dimension du bouchon. Néanmoins, avec ce mode de fonctionnement, il n'y a plus de compensation en amont de la baisse d'intensité provoquée par l'eau en aval du bouchon, ce qui se traduit par une perte de puissance globale plus importante, d'environ 37 %.

4. Écoulement de gouttelettes inhomogènes

Une nouvelle série de mesures avec une stœchiométrie en air $S_{air} = 3$ a été réalisée. Ce changement, qui multiplie la vitesse de l'air par deux et induit une perte de charge supérieure de 12 mbar modifie totalement l'écoulement. Le profil de courant, la tension et la perte de charge ne sont plus les objets de variations brusques. Les images de la *figure 9* montrent une évacuation discontinue de fines gouttelettes. Par exemple, on observe sur les images 1 et 2 un écoulement lent d'une goutte contre une lamelle de laiton dorée puis une évacuation rapide de la goutte entre les images 2 et 3.

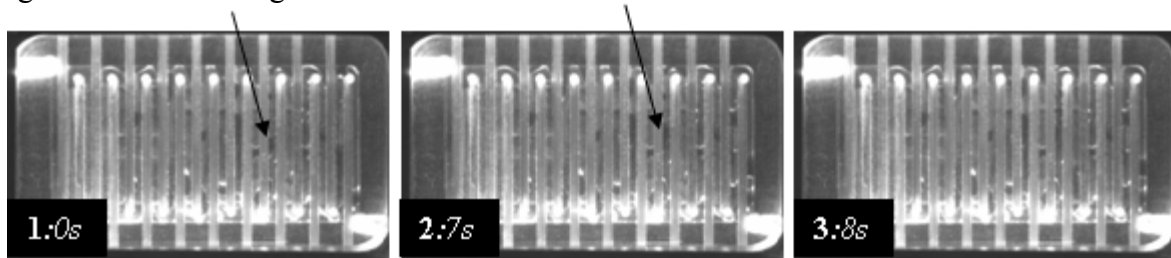


Figure 9 : Gouttelettes inhomogènes

5. Conclusion

La pile segmentée complétée par une acquisition vidéo constitue une technique performante de diagnostic du fonctionnement des piles à combustible. Le débit d'air dans le canal semble contrôler deux phénomènes différents d'évacuation de l'eau liquide :

- Un écoulement atypique de type bouchon où ce dernier introduit simultanément une variation des densités de courant, un accroissement des pertes de charge et une perte de puissance de la pile.
- Un second écoulement plus conventionnel de type gouttelette n'ayant aucune incidence sur les performances de la pile.

Il importe maintenant de caractériser plus en détails ces écoulements et de définir le critère de transition.

Références

- [1] M.M. Mench, C.Y. Wang, M. Ishikawa, In situ current distribution measurements in polymer electrolyte fuel cells, *J. Electrochem. Soc.* 150 (2003) A1052–A1059.
- [2] G. Maranzana, O. Lottin, T. Colinart, S. Chupin and S. Didierjean, A multi-instrumented polymer exchange membrane fuel cell: Observation of the in-plane non-homogeneities, *J. Power Sources* 180 (2008) 748–754.
- [3] A. Hakenjos, H. Muentert, U. Wittstadt and C. Hebling, A PEM fuel cell for combined measurement of current and temperature distribution, and flow field flooding, *J. Power Sources* 131 (2004) 213–216.
- [4] A. Su, F.-B. Weng, C.-Y. Hsu and Y.-M. Chen, Studies on flooding in PEM fuel cell cathode channels, *Int. J. of Hydrogen Energy* 31 (2006) 1031–1039.
- [5] F.-B. Weng, A. Su, C.-Y. Hsu and C.-Y. LeeMickey, Study of water-flooding behaviour in cathode channel of a transparent, *J. Power Sources* 157 (2006) 674–680.
- [6] T. Ous and C. Arcoumanis, Visualisation of water droplets during the operation of PEM fuel cells, *J. Power Sources* 173 (2007) 137–148.
- [7] Ch. Hartnig, R. Kuhn, P. Krüger, J. Schloesser and I. Manke, In situ observation of liquid water evolution and transport in PEM fuel cells, *Proceeding FDFC-2008*, Nancy.
- [8] J. Bedet, P. Mutzenhardt, D. Canet, G. Maranzana, S. Leclerc, O. Lottin, C. Moyne et D. Stemmelen, Etude du comportement de l'eau dans une pile à combustible à membrane échangeuse d'ions (PEMFC) : étude par RMN et IRM, *C. R. Chimie* 11 (2008) 465-473.