



Mémoire de fin d'étude

Pour l'obtention du diplôme de Master

Filière : Electrotechnique
Spécialité : Energie et environnement

Présenté par : TOUAIBIA Zoheir

Thème

Etude de l'influence du changement de la géométrie des canaux de flux dans une pile à combustible PEMFC sur la puissance délivrée.

Soutenu publiquement, le 08/07/2019, devant le jury composé de :

Dr.ABDELLAOUI Ghouti	Maître de Conférences B	ESSA. Tlemcen	Président
Dr.ABDEREZZAK Bilal	Maître de Conférences A	U. DB Khemis milina	Directeur de mémoire
Dr.BOUKLI Fouad	Maître de Conférences A	ESSA. Tlemcen	Co- Directeur de mémoire
Pr.SELADJI Chakib	Professeur	U. Abou Bekr Belkaid Tlemcen	Examineur 1
Dr.KERBOUA Abdelfatah	Maître de Conférences B	ESSA. Tlemcen	Examineur 2

Année universitaire : 2018 /2019

REMERCIEMENTS

Alors que je m'apprête à couronner mon parcours universitaire par ce modeste mémoire de fin d'étude, je voudrais remercier l'ensemble des professeurs pour leur assistance si précieuse et les nombreux conseils et suggestions qu'ils m'ont prodigués, en particulier Mr Abderzzak et Mr Boukli, mes deux encadreurs, avec qui j'ai eu la chance et le plaisir de travailler.

Je voudrais remercier aussi le comité pédagogique de l'École Supérieure des Sciences Appliquées de Tlemcen d'avoir répondu favorablement à ma proposition quant aux choix du thème et de l'encadreur, ainsi que les membres du jury d'avoir eu l'amabilité de prendre en charge l'évaluation de ce projet.

Mes remerciements vont également à tous ceux qui ont spontanément répondu à mes multiples appels, je pense notamment aux étudiants et enseignants de l'Université Djilali Bounaama Khemis Miliana.

Enfin, je voudrais remercier particulièrement tous les membres de ma famille pour leur soutien indéfectible et leur encouragement constant durant tout le parcours universitaire accompli.

RÉSUMÉ

L'objectif de ce travail est d'étudier la sensibilité de la géométrie du canal de flux, et de voir l'influence de cette dernière sur la puissance délivrée de la pile PEM. Dans la première partie de ce travail, La simulation est faite pour deux canaux de flux d'une différente géométrie, à savoir une géométrie rectangulaire et circulaire pour le coté anodique (hydrogène qui circule dans les canaux de flux). Dans la deuxième partie, la simulation est faite aussi pour les deux géométries mais dans la cathode cette fois-ci (l'oxygène). L'étude montre que la géométrie circulaire présente des meilleures performances que la géométrie rectangulaire, notamment à cause des chutes des pression et les frottements qui sont plus important dans la deuxième forme.

Mots Clés : géométrie circulaire et rectangulaire, canaux de flux, Plaques bipolaires, Pile à combustible de type PEM.

ABSTRACT

The objective of this work is to study the sensitivity of the geometry of the flow channels, and to see her influence on the power delivered from the PEMFC stack. In the first part of the work, the simulation was done for two flow channels, a rectangular geometry and circular, and for anode side (hydrogen). In the second part, the simulation is also done for the two geometries but in the cathode this time (oxygen). The study shows that the circular geometry performs better than the rectangular geometry, especially because of pressure drops and friction that are more important in the second form.

Keywords: circular and rectangular geometry, flow channels, bipolar plates, PEM fuel cell.

ملخص

الهدف من هذا العمل هو دراسة حساسية هندسة قناة التدفق، ورؤية تأثير هذا الأخير على القدرة المقدمة من مكس في الجزء الأول من العمل، تم إجراء المحاكاة لقناتين متدفقتين، هندسة معرفة مستطيلة ودائرية لتدفق انودي. في الجزء الثاني، تتم المحاكاة أيضًا للهندسين ولكن في الكاثود هذه المرة (الأكسجين). توضح الدراسة أن الهندسة الدائرية تعمل بشكل أفضل من الهندسة المستطيلة، خاصة بسبب انخفاض الضغط والاحتكاك الأكثر أهمية في النموذج الثاني.

كلمات مفتاحية: هندسة دائرية ومستطيلة، قنوات تدفق، لوحات ثنائية القطب، خلية وقود

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	II
RÉSUMÉ.....	III
ABSTRACT	III
ملخص	III
TABLE DES MATIÈRES	IV
LISTE DES TABLEAUX.....	VII
LISTE DES FIGURES	VIII
LISTE DES SYMBOLES	IX
INTRODUCTION GENERALE.....	11
CHAPITRE I GENERALITES SUR LES PILES A COMBUSTIBLES	13
I.1 Introduction	14
I.2 Historique des piles à combustible.....	14
I.3 Présentation de la pile PEM	17
I.3.1 Description de la cellule	19
I.4 Description du stack	25
I.5 Les différents types de piles à combustibles	27
I.5.1 Principe de fonctionnement des piles à combustibles.....	28
I.5.2 Les domaines potentiels d'utilisation de chaque type de technologie	32
I.6 Rendements	33
I.7 Avantages et problèmes de la Pile PEM	36
I.8 Conclusion.....	36
CHAPITRE II LES PHÉNOMÈNES PHYSICO-CHIMIQUE	37
II.1 Introduction	38

II.2	Le transfert de charges	38
II.2.1	Thermodynamique et chimie de la pile PEM.....	39
II.2.2	Les débits des réactifs et des produits	43
II.2.3	Électrochimie de la pile.....	46
II.2.4	Phénomènes de polarisations	48
II.3	Le transfert de masse.....	52
II.3.1	Les flux de matière.....	54
II.3.2	Le transfert de masse par convection	55
II.3.3	Les lois paramétriques.....	56
II.4	Le Transfert de masse dans les couches de réaction (électrodes)	57
II.5	Le transfert de chaleur.....	57
II.5.1	La gestion thermique dans une pile PEM.....	57
II.5.2	Les systèmes de refroidissement.....	58
II.5.3	L'effet de la température sur les performances de la pile PEM	58
II.6	Conclusion.....	58
CHAPITRE III ETUDE D'INFLUENCE DE LA GÉOMÉTRIE DES CANAUX DE FLUX		
59		
III.1	Introduction	60
III.2	Présentation du logiciel (Matlab)	60
III.3	Modélisation des canaux de flux.....	61
III.3.1	La mise en œuvre du modèle choisi	62
III.4	Résultats et interprétations	66
III.4.1	Dans le coté Anode (l'hydrogène)	66
III.4.2	Dans le coté cathode (air).....	70

III.5 Conclusion.....	73
CONCLUSIONS GÉNÉRALES ET PERSPECTIVES	74
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUE	75
ANNEXE A – FICHIER MATLAB 1	79
ANNEXE B – FICHIER MATLAB 2	82

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I-1 Composants de base de la pile à combustible PEM	20
Tableau I-2 Comparaison des piles à combustibles	27
Tableau I-3 Domaines potentiels d'utilisation des piles à combustibles	33
Tableau I-4 Rendement en fonction de la température et de la forme de l'eau produite	34
Tableau II-1 Les valeurs numériques des coefficients empiriques [28].....	42
Tableau II-2 Les valeurs des densités de courant pour le système H ₂ /O ₂	47
Tableau II-3 Le rôle du transfert de masse dans une cellule de pile PEM [25]	52
Tableau III-1 Données utiliser dans la simulation	65

LISTE DES FIGURES

Figure I-1 Bref historique de l'évolution des piles à combustible.....	15
Figure I-2 Configuration d'une cellule d'une pile PEM [66].....	19
Figure I-3 Assemblage d'une cellule d'un stack de pile à combustible – H2SYS [8].....	20
Figure I-4 Différentes structures géométriques de canaux [23].....	22
Figure I-5 Empilement de cellules (Stack)[66].....	26
Figure I-6 Modularité d'un stack : 3 Exemples de conception d'une PAC de 5kW.....	27
Figure I-7 Schéma récapitulatif des différents types de piles à combustibles [19].....	28
Figure I-8 Principe de fonctionnement d'une SOFC ©Connaissance des Énergies.....	32
Figure II-1 Influence du changement de pression sur la courbe de polarisation [48].....	43
Figure II-2 Schéma des flux de la pile à combustible.....	44
Figure II-3 Courbe de polarisation d'une pile à combustible PEMFC fonctionnant à 80°C [39] .	52
Figure II-4 Schéma descriptif du transfert de masse [48].....	54
Figure II-5 Les différents flux de matières dans une pile PEM [48].....	55
Figure III-1 Exemple d'un modèle de champ d'écoulement [66].....	61
Figure III-2 Comparaison entre les chutes de pression tout au long du canal (Hydrogène).....	67
Figure III-3 Comparaison entre les vitesses d'entrées (Hydrogène).....	67
Figure III-4 Comparaison entre le nombre de Reynolds (Anode).....	68
Figure III-5 Comparaison entre les frottements (Anode).....	69
Figure III-6 Comparaison entre les densités de puissances.....	70
Figure III-7 Comparaison entre les chutes de pression (Oxygène).....	71
Figure III-8 Comparaison entre les vitesses d'entrées (Oxygène).....	72
Figure III-9 Comparaison entre le nombre de Reynolds (Cathode).....	72
Figure III-10 Comparaison entre les facteurs de frottements (Cathode).....	73

LISTE DES SYMBOLES

Nomenclature

A_c	Surface de la géométrie circulaire	[Cm ²]
A_{ch}	Surface de la géométrie rectangulaire	[Cm ²]
D	Coefficient de diffusion	[A.m ⁻²]
E°	Tension réversible	[V]
F	Constante de Faraday	[C.mol ⁻¹]
h	Coefficient de convection	[W.m ⁻² . K ⁻¹]
J	Densité de courant	[A.cm ⁻²]
j_0	Densité de courant d'échange	[A.cm ⁻²]
I	Courant	[A]
g	Gravité	[m.s ⁻²]
K	Conductivité thermique	[W.m ⁻¹ . K ⁻¹]
MEA	Membrane Electrode Assembly	–
m	Coefficient empirique	[V]
n	Coefficient empirique	[cm ² .A ⁻¹]
N_c	Nombre de cellules	–
n_e	Nombre d'électrons transféré	–
PaC	Pile à combustible	–
PEM	Membrane électrolyte polymère	–
P	Puissance	[Watt]
P_{atm}	Pression atmosphérique	[Atm]

Q	Quantité de chaleur	[J]
q_i	Débit massique de l'élément i	[Kg/s]
\dot{Q}	Flux de chaleur	[W]
\dot{q}	Débit molaire	[mol/s]
R	Constante des gaz parfait	[J.K ⁻¹ .mol ⁻¹]
S _{xi}	Coefficient stœchiométrique	–
T	Température	[K]
V _{cell}	Tension de la cellule	[V]

Notations associées à l'alphabet grec

α	Coefficient de transfert de charge	–
ΔH	Variation d'enthalpie	[J.mol ⁻¹]
ΔG	Energie libre de Gibbs	[J.mol ⁻¹]
ΔP	Différence de pression	[Atm]

Indice et exposant

Ac	Anode catode
act	Activation
Circ	Circulaire
max	Maximum
ohm	Ohmique
Rect	Rectangulaire

INTRODUCTION GENERALE

La dégradation de l'environnement, la hausse du coût de l'énergie fossile et la baisse des réserves, ont fait apparaitre combien il est urgent de trouver de nouvelles sources énergétiques. Le développement des énergies renouvelables est devenu essentiel, cependant ils restent encore freinés par des problèmes liés à leur nature répartie, à faible densité énergétique et à production irrégulière.

Un autre paramètre apparait comme un réel handicap pour l'utilisation de ces sources, il s'agit du stockage d'énergie. Pour la plupart des énergies renouvelables, le stockage se fait à court terme. En effet, dans le cas du photovoltaïque, le stockage d'énergie électrique dans des batteries ne peut durer que quelques heures. L'hydrogène se présente comme un très bon candidat à cette fonction pour le futur, ça sa capacité de stockage est trois fois plus élevée que celle de l'essence et une utilisation bien maîtrisée ne présente que peu de risques, tout comme celle du gaz naturel [3].

Cependant, l'une des applications prometteuses de la filière hydrogène est la pile à combustible, tant par son aspect énergétique que par son aspect environnemental. Ce convertisseur électrochimique fonctionnant selon le principe inverse de l'électrolyse de l'eau, peut jouer le rôle d'un élément de diversification des ressources énergétiques [1].

Parmi différents types de pile à combustible existants, la pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) est particulièrement la technologie qui suscite de nombreux travaux de recherche scientifiques et technologiques et gros efforts de développement car les applications sont multiples. En comparaison avec d'autres types des piles à combustibles, la pile de PEM a plusieurs caractéristiques attractives (haute densité de puissance, un haut rendement énergétique, un électrolyte solide, un temps de démarrage court, et une basse température de fonctionnement (<100°C)).

La thématique de ce mémoire porte sur l'étude de la sensibilité de la géométrie des canaux de flux d'une pile à combustible à membrane échangeuse de proton (PEMFC) ou pile PEM. L'objectif de ce mémoire est de mettre en évidence les équations gouvernantes de chaque côté (anode et cathode) et de faire une étude qualitative sur la meilleure géométrie utiliser.

Ce mémoire comporte trois chapitres dont le premier est une introduction au domaine de la pile à combustible et ces différents types, il présente tous les types de piles à combustibles connus à ce jour, leurs domaines d'application, ensuite il se concentre sur l'entourage technique de la pile de type PEM notamment le principe de fonctionnement de la pile à combustible du type PEMFC.

Le deuxième chapitre est consacré à la description des phénomènes de transfert au cœur d'une pile PEM. En effet, ce chapitre comporte quatre parties. Dans la première partie de ce chapitre on commence par une description générale du transfert de charge, les principales lois de transport des charges électriques dans les couches de diffusion ainsi que la conservation de charge dans les électrodes, La description des phénomènes de transfert de masse au cœur d'une cellule de la PEMFC fera l'objet dans la deuxième partie. Cette partie regroupe toutes les équations gouvernantes du transfert par convection dans les canaux de flux, par diffusion binaire et ternaire dans les couches de diffusion, ainsi que le transfert de l'eau dans la membrane. La troisième partie concerne la description du transfert de chaleur en donnant un aperçu sur les sources de chaleur dans une pile à combustible PEMFC. Nous présenterons en dernière partie de ce chapitre le couplage des trois phénomènes de transferts déjà décrit dans les parties précédentes, et sont influencés sur les performances de la pile PEM.

La sensibilité de la géométrie du canal de flux au cœur d'une pile à combustible à membrane échangeuse de proton fera l'objet du troisième chapitre. D'abord, une description de l'outil utilisé pour la simulation numérique est présentée avec tous les détails du modèle mathématique utilisé ainsi que les conditions prise en compte. Ensuite, une analyse du transfert de l'hydrogène et d'oxygène dans les canaux de flux de deux formes différentes de la pile PEMFC est illustrée.

Une conclusion générale, à la fin de ce manuscrit, viendra récapituler les résultats et constatations trouvés.

***CHAPITRE I GENERALITES SUR LES PILES A
COMBUSTIBLES***

I.1 Introduction

Bien que le principe de fonctionnement des piles à combustible soit relativement simple, les différents éléments utilisés pour former une cellule sont très spécifiques. Chaque élément a un rôle précis et doit satisfaire à de nombreuses exigences (mécanique, chimique, électrique...).

Les pile PEM plus précisément constituent un assemblage complexe de matériaux, une phase de descriptions est nécessaire à la compréhension des phénomènes et à la conception de ces procédés.

I.2 Historique des piles à combustible

On attribue à William Grove l'invention de la première pile à combustible en 1839 [1]. Les piles à combustibles n'ont pas fait l'objet de nombreuses recherches au cours des années 1800 et de la plupart des années 1900. Des recherches approfondies sur les piles à combustible ont débuté dans les années 1960 à la NASA. Pendant la dernière décennie, les piles à combustible ont fait l'objet de recherches approfondies et sont finalement proche de la commercialisation. Un résumé de l'historique des piles à combustible est présenté à la figure I-1.

Le processus d'utilisation de l'électricité pour transformer l'eau en hydrogène et l'oxygène (électrolyse) a été décrit pour la première fois en 1800 par William Nicholson et Anthony Carlisle [2]. William Grove a inventé la première pile à combustible en 1839, utilisant l'idée de Nicholson et Carlisle de « recomposer l'eau ». Il a accompli cela en combinant des électrodes dans un circuit en série, avec électrodes de platine séparées dans l'oxygène et l'hydrogène immergé dans un dilué solution électrolytique d'acide sulfurique. La batterie à gaz, ou « cellule de Grove », générée 12 ampères de courant à environ 1,8 volts³. Quelques autres individus qui ont contribué à l'invention des piles à combustible se résument comme suit :

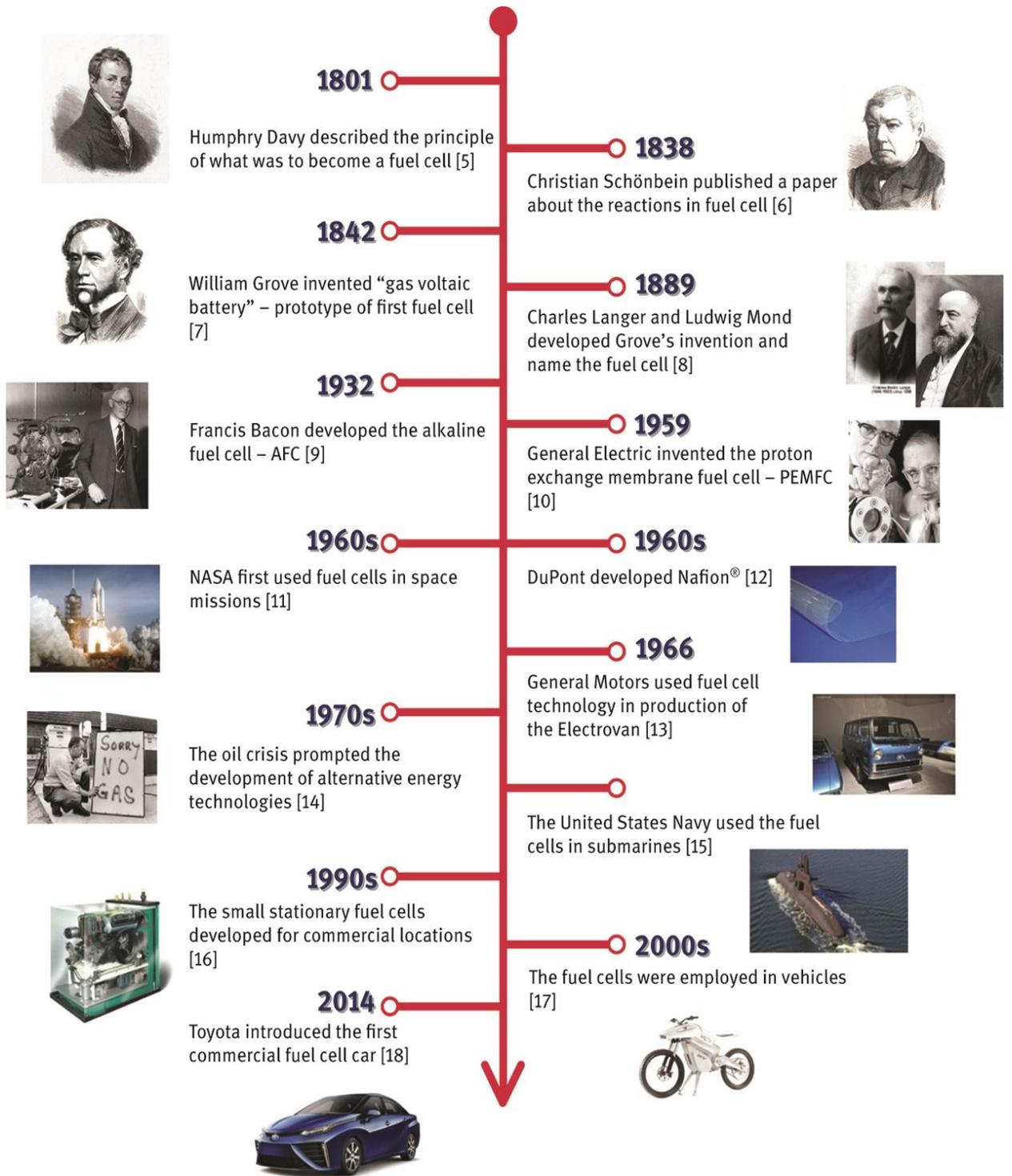


Figure I-1 Bref historique de l'évolution des piles à combustible

- Friedrich Wilhelm Ostwald (1853-1932), l'un des fondateurs de chimie physique, a fourni une grande partie de la compréhension théorique de la façon dont les piles à combustible fonctionnent. En 1893, Ostwald expérimentalement déterminé les rôles de nombreux composants de piles à combustible [4].
- Ludwig Mond (1839–1909) était un chimiste qui a passé la plupart de ses développements de carrière dans la fabrication de la soude et le raffinage du nickel. En 1889, Mond et son assistant Carl Langer ont effectué de nombreuses expériences utilisant un gaz dérivé du charbon. Ils ont utilisé des électrodes en fine platine perforée et présentait de nombreuses difficultés avec les électrolytes liquides [5].
- Charles R. Alder Wright (1844-1894) et C. Thompson ont développé une pile à combustible similaire à peu près et au même moment. Ils ont eu des difficultés pour empêcher les gaz de fuir d'une chambre à l'autre. Ceci avec d'autres causes ont empêché la batterie d'atteindre des tensions hautes tel qu'un volt (1V) [6].
- Louis Paul Cailletton (1832–1913) et Louis Joseph Colardeau (France) ont parvenue à la même conclusion, ils ont estimé que le processus n'était pas pratique en raison de la nécessité de « métaux précieux ». De plus, de nombreux documents ont été publiés pendant ce temps en disant que le charbon était peu couteux, et donc un nouveau système ne baisserait pas les prix de l'électricité [7].
- William W. Jacques (1855-1932) a construit une « pile au carbone » en 1896. L'air était injecté dans un électrolyte alcalin pour réagir avec une électrode de carbone. Il pensait atteindre une efficacité de 82% mais n'a obtenu qu'un rendement de 8% [8].
- Emil Baur et ses étudiants (1873-1944) (Suisse) ont dirigé de nombreuses expériences sur différents types de piles à combustible au début des années 1900. Leur travail comprenait des dispositifs à haute température et une unité utilisant un électrolyte solide constitué d'argile et d'oxydes métalliques [9].
- Thomas Grubb et Leonard Niedrach ont inventé la technologie des piles à combustible PEM chez General Electric au début des années 1960. GE a développé une petite pile à

combustible pour le Bureau des navires de la marine américaine (division électronique) et le Corps des transmissions de l'armée américaine. La pile à combustible était alimentée à l'hydrogène générés en mélangeant de l'eau et de l'hydrure de lithium. C'était compact, mais les catalyseurs au platine étaient chers.

La NASA a initialement étudié la technologie des piles à combustible PEM pour le projet Gemini au début du programme spatial américain. Les piles ont été utilisées pour le précédent Projet Mercury, mais le projet Apollo nécessitait une source d'alimentation qui durerait plus longtemps. Malheureusement, les premières cellules PEM développées avaient des difficultés répétées avec la contamination cellulaire interne et fuite d'oxygène à travers la membrane. GE a repensé sa pile à combustible, et le nouveau modèle a fonctionné de manière adéquate pour le reste des vols Gemini.

Les concepteurs du projet Apollo et de la navette spatiale ont finalement choisi utiliser des piles à combustible alcalines. GE a poursuivi ses travaux sur les piles à combustible PEM dans les années 1970 et a conçu la technologie d'électrolyse de l'eau PEM, qui a conduit à l'oxygène US Navy Usine Génératrice. La Royal Navy britannique utilisait des piles à combustible PEM au début des Années 1980 pour leur flotte sous-marine et, au cours de la dernière décennie, les piles à combustible PEM ont fait l'objet de nombreuses recherches de la part de sociétés commerciales pour le transport, marchés de l'énergie fixes et portables. Sur la base de la recherche, du développement et des progrès réalisés au cours de siècle dernier, les obstacles techniques sont résolus par un réseau mondial des scientifiques. Les piles à combustible sont utilisées depuis plus de 40 ans dans l'espace programme, et la commercialisation de la technologie des piles à combustible est rapidement approchant.

I.3 Présentation de la pile PEM

Une pile à combustible comprend une électrode chargée négativement (anode), une électrode chargée (cathode) et une membrane électrolytique. L'hydrogène est oxydé sur l'anode et l'oxygène est réduit sur la cathode. Les protons sont transportés de l'anode à la cathode à travers la membrane électrolytique, et les électrons sont transportés à la cathode sur le circuit externe.

Dans la nature, les molécules ne peuvent pas rester dans un état ionique, elles sont donc immédiatement recombinaisonnées avec d'autres molécules afin de revenir à l'état neutre. Les protons

d'hydrogène dans les piles à combustible restent à l'état ionique en voyageant de molécule à molécule en utilisant des matériaux spéciaux.

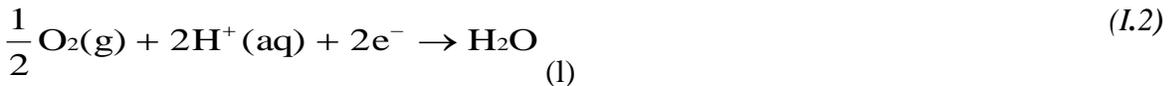
Les électrons sont attirés par les matériaux conducteurs et voyagent à la charge en cas de besoin. Sur la cathode, l'oxygène réagit avec les protons et des électrons, formant de l'eau et produisant de la chaleur. L'anode et cathode contiennent un catalyseur pour accélérer les processus électrochimiques, comme on peut le voir à dans la figure I-2.

Une pile à combustible PEM typique (pile à combustible à membrane échangeuse de protons) a la réaction suivante :

➤ **Anode**



➤ **Cathode**



➤ La réaction global :



Cette équation globale résume le principe de fonctionnement de la pile PEM, où l'énergie chimique (fournie par les débits d'hydrogène et d'oxygène) est transformée en énergie électrique (circulation des électrons entre anode et cathode) tout en produisant de l'eau et de la chaleur.

Les réactifs sont transportés par diffusion et / ou convection vers les surfaces d'électrodes catalysées où se déroulent les réactions électrochimiques.

L'eau et la chaleur perdue générées par la pile à combustible doivent être éliminées en permanence et peuvent présenter des problèmes critiques pour les piles à combustible PEM.

La pile à combustible PEM de base comprend une membrane échangeuse de protons (PEM), des couches de catalyseur et de diffusion de gaz, des plaques de flux, des joints d'étanchéité et des plaques d'extrémité.

Une pile avec de nombreuses cellules contient des MEAs « pris en sandwich » entre des plaques de champ de flux bipolaires et un seul jeu de plaques d'extrémité.

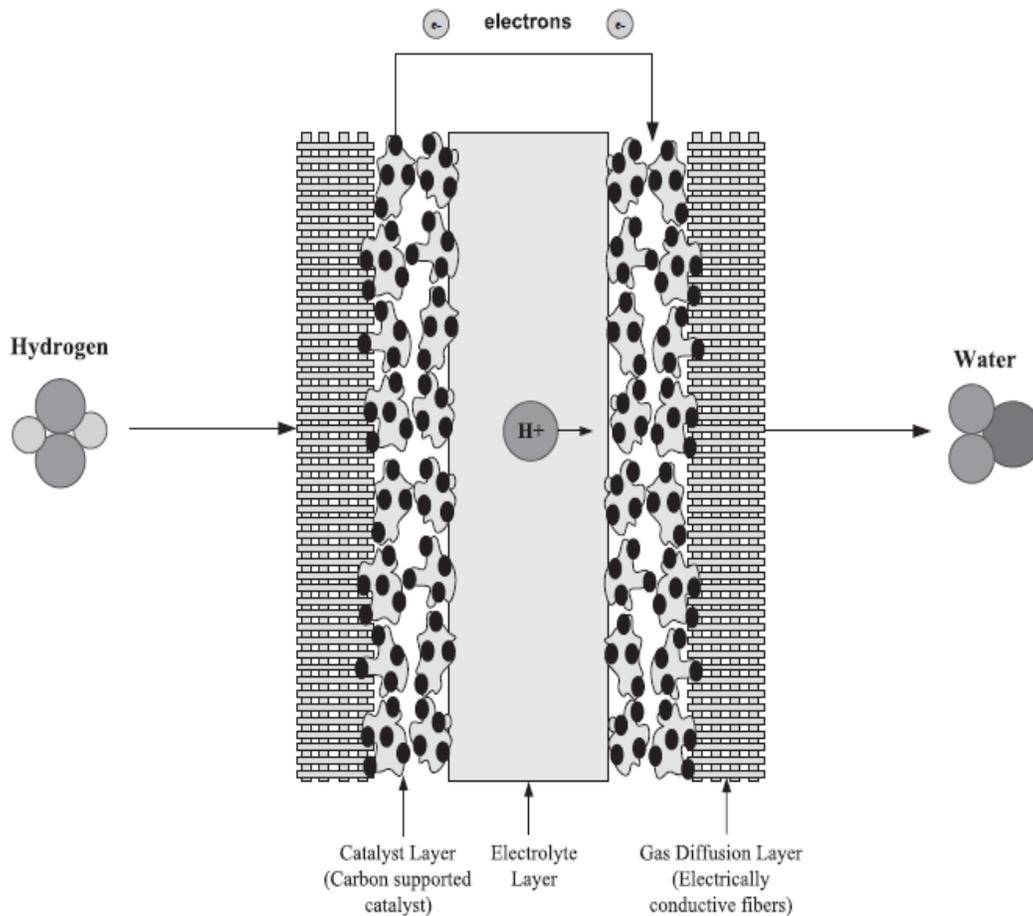


Figure I-2 Configuration d'une cellule d'une pile PEM [66]

I.3.1 Description de la cellule

L'élément de base principal du cœur de la pile est la cellule élémentaire. Celle-ci est constituée d'un empilement regroupant les électrodes (anode et cathode), l'électrolyte (membrane), les couches de diffusion et les plaques bipolaires [6]. La figure I.3 illustrent les différents composants de la cellule.

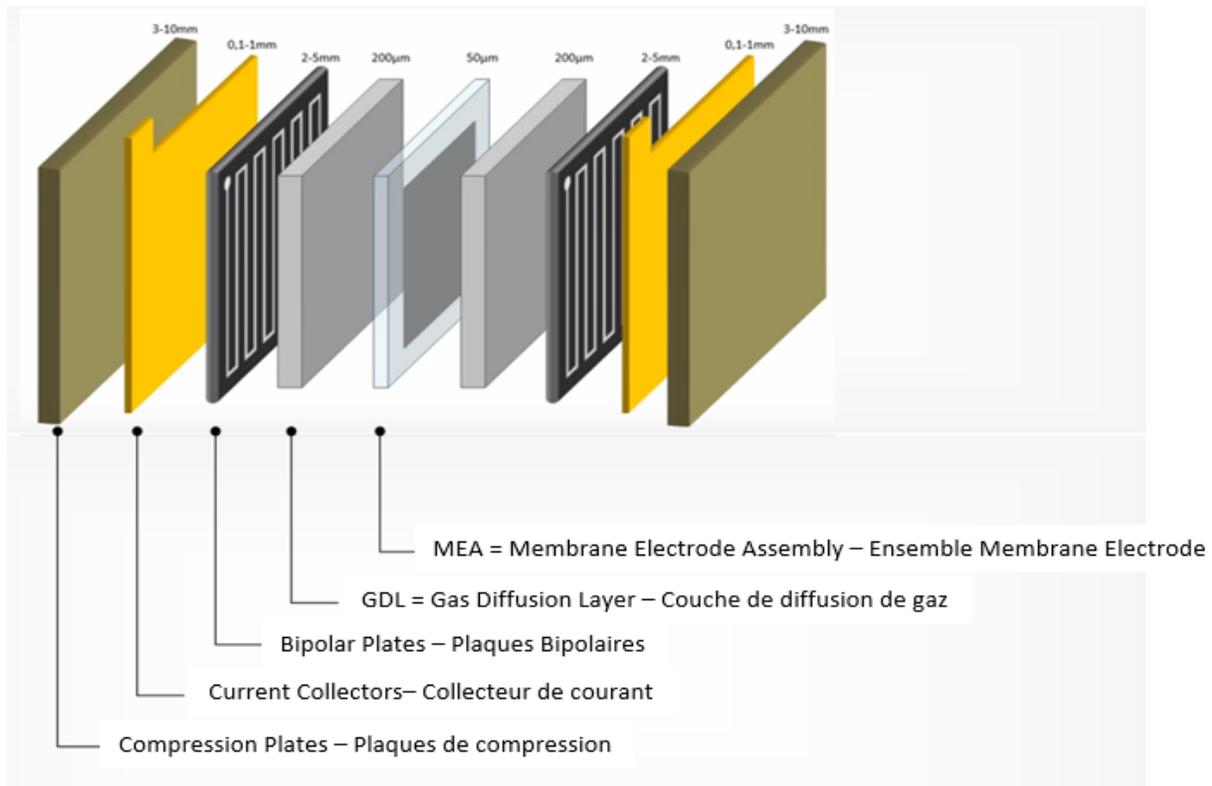


Figure I-3 Assemblage d'une cellule d'un stack de pile à combustible – H2SYS [8]

Tableau I-1 Composants de base de la pile à combustible PEM

Composant	Description	Type commun
L'ensemble membrane électrode (MEA)	Permet le transfert des protons d'hydrogène de l'anode vers la cathode.	Persulfonic acid membrane [Nafion 112, 115, 117]
Couches catalytiques	Divise le combustible en protons et électrons, les protons se combinent avec l'air pour former l'eau dans la	Catalyseur Platiniun/Carbon

cathode, et les électrons vont à la charge.

Couche de diffusion de gaz (GDL)	Permet au carburant / oxydant de voyager à travers la couche poreuse, tout en collectant les électrons.	Tissu de carbone ou Papier Toray
Plaques d'écoulement de flux	Répartit le combustible et l'oxydant à la couche de diffusion de gaz	Graphite, acier inoxydable
Joints	Prévenir les fuites de carburant et aider à répartir la pression uniformément.	Silicium, Tefl
Les plaques d'extrémité ou les plaques de compressions	Maintiennent les précédentes couches de la pile en place.	Acier inoxydable, graphite, polyéthylène, PVC

I.3.1.1 Les plaques bipolaires

Les plaques bipolaires comportent des canaux de distribution qui fournissent le combustible sur l'une des surfaces et le comburant sur l'autre surface. Elles ont plusieurs fonctions ([7], [8]) :

- La collecte des électrons libérés au niveau des électrodes afin d'assurer la conduction du courant électrique.
- La séparation des gaz à l'anode et à la cathode.
- L'évacuation de l'eau produite, de la chaleur et des excès de gaz.
- La tenue mécanique de la cellule.

Les plaques doivent avoir un bon niveau de conductivité, une bonne inertie chimique notamment par rapport à l'eau et aux acides ainsi qu'une perméabilité très faible à l'hydrogène. Elles doivent également être très résistantes à la corrosion et être légères afin que les empilements nécessaires pour réaliser une PAC ne soient pas trop lourds.

Elles contribuent au refroidissement par des technologies différentes soit par circulation d'un fluide caloporteur dans leurs canaux de distribution, soit par utilisation d'un ventilateur : dans ce cas, les plaques bipolaires sont équipées par des ailettes afin d'assurer l'échange de chaleur par convection.

Pour les piles PEM, les plaques les plus utilisées sont réalisées en graphite et les gaz sont acheminés par des canaux usinés dans ces plaques.

Les différentes structures géométriques existantes sont données dans la figure 1.4 : structure points en carré 1.4(D), structure en serpentins 1.4(A), structure à canaux stratifiés 1.4(C) et structure en cascade 1.4(B).

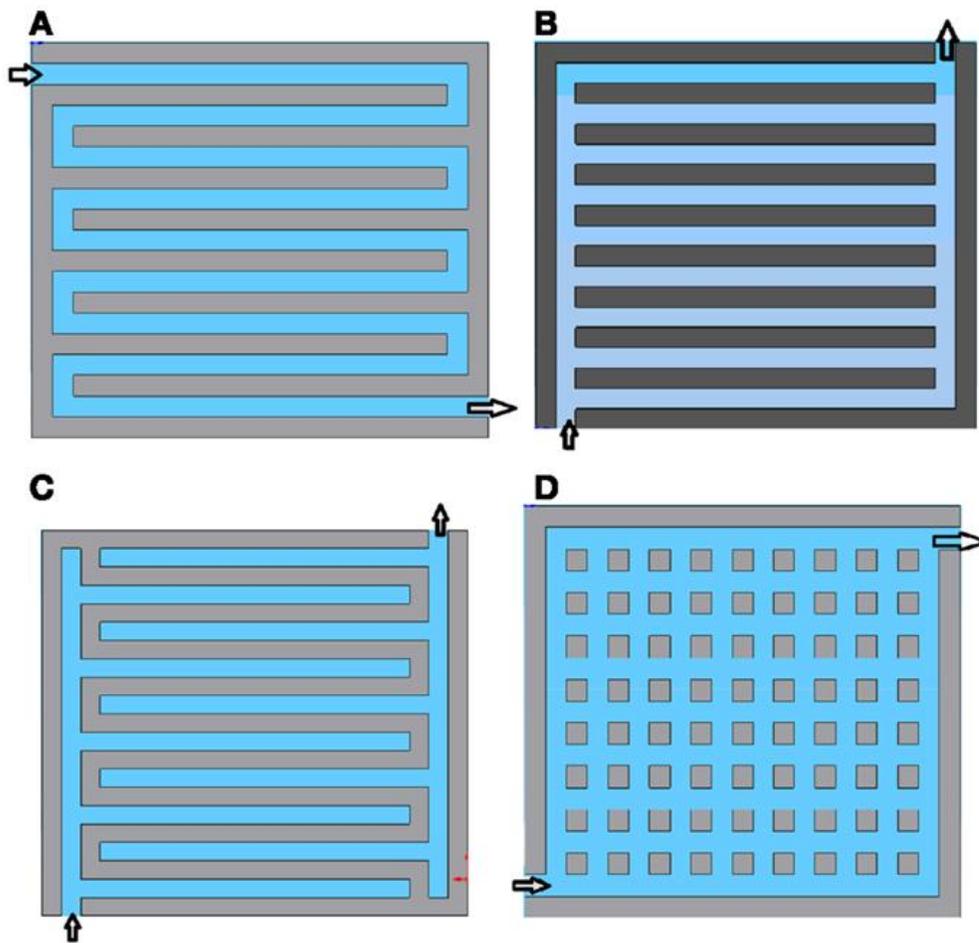


Figure I-4 Différentes structures géométriques de canaux [23]

La géométrie habituellement adaptée dans les piles PEM est une mise en parallèle de plusieurs canaux de section rectangulaire serpentant sur la surface de la plaque (figure I.4(A)).

Le nombre de canaux et leurs dimensions conditionnent fortement le transport des gaz et de l'eau dans la cellule.

I.3.1.2 Les couches de diffusions

Les couches de diffusion ont pour rôle :

- D'assurer l'approvisionnement de la couche active de l'électrode (couche de réaction) en gaz réactif généralement hydraté.
- D'effectuer la conduction électrique entre la couche active et les plaques bipolaires.
- D'évacuer l'eau produite du côté cathode afin d'éviter une accumulation d'eau liquide qui augmente la résistance au transport des gaz et limite ainsi leur diffusion.

Les composants des couches de diffusion doivent garantir une alimentation uniforme en gaz afin d'éviter les points chauds (dus au caractère isotherme de la réaction électrochimique) qui peuvent provoquer des fissures dans l'électrode. Ils doivent avoir aussi une bonne inertie chimique du fait qu'ils sont dans un milieu très corrosif.

I.3.1.3 Les électrodes (anode et cathode)

Les électrodes sont le siège des réactions chimiques d'oxydoréduction qui mettent en jeu à la fois l'oxygène, les protons en solution (H^+) et le platine (catalyseur solide). Elles créent ainsi une zone de triple contact au niveau du site réactionnel. Les électrodes ont trois fonctions [9] :

- Supporter le catalyseur finement divisé et permettre son contact avec les gaz.
- Permettre aux protons de se déplacer depuis les sites catalytiques d'oxydation de l'hydrogène, vers les sites de réduction de l'oxygène.
- Évacuer les électrons des sites catalytiques anodiques et les redistribuer sur les sites catalytiques cathodiques.

Le catalyseur le plus utilisé pour les électrodes est le platine pur ou allié à un élément de transition (Chrome, Manganèse, Nickel, Cobalt, Fer). En effet, le platine est le seul métal qui

possède l'activité électro-catalytique suffisante vis-à-vis de la réduction d'oxygène et de l'oxydation de l'hydrogène. De plus, il résiste durablement à la corrosion dans un tel environnement chimique très acide. Afin de favoriser la création de la zone du triple contact, les électrodes doivent présenter les caractéristiques suivantes :

- Être poreuses pour permettre la diffusion des gaz jusqu'aux sites des réactions. Elles sont généralement en feutre de carbone ou en papier carbone.
- Être imprégnées d'une pâte constituée de catalyseur contenant du carbone platiné sur la face en contact avec l'électrolyte. La partie de l'électrode imprégnée de pâte constitue la zone active et la partie non imprégnée constitue la zone diffusionnelle.
- Avoir un caractère hydrophobe pour faciliter l'évacuation de l'eau. Un matériau de type PTFE (Téflon) est généralement ajouté. L'évacuation de l'eau est primordiale pour la pile afin d'éviter le noyage qui représente une source de dysfonctionnement.
- Être de bons conducteurs électroniques pour assurer la collecte des électrons et leur conduction vers les plaques bipolaires.
- Être flexibles pour augmenter la surface de contact avec l'électrolyte.

I.3.1.4 L'électrolyte

L'électrolyte (cœur de la cellule) est une membrane conductrice protonique. Il est pris entre deux électrodes intégrées entre les couches de diffusion. L'ensemble de tous ces éléments est assemblé entre deux plaques bipolaires comme le montre la précédente figure I.3.

Son rôle principal est de permettre le transfert des protons (H^+) de l'anode vers la cathode tout en évitant le passage des électrons [10]. Cette fonction est d'une grande importance puisque ce sont ses propriétés de conduction qui conditionnent la recombinaison électrochimique de l'hydrogène avec l'oxygène, et donc les performances de la cellule. Les pertes ohmiques qui limitent le fonctionnement à hautes densités de courant sont principalement associées à la résistance électrique de la membrane qui est fonction de son épaisseur et de sa conductivité.

L'électrolyte sert aussi de séparateur entre les deux demi réactions chimiques d'oxydo-réduction. De ce fait, il doit être imperméable pour l'hydrogène et l'oxygène afin d'éviter le mélange des deux gaz. Il doit présenter aussi de bonnes propriétés de résistances mécanique et

chimique face aux contraintes thermiques de pression et d'hydratation. En outre, il doit avoir la capacité de maintenir une teneur en eau élevée à haute température car cela conditionne les propriétés de conduction :

Il doit rester bien hydratée pour permettre le déplacement des protons H^+ mais en même temps il ne faut pas qu'il soit trop humidifié pour éviter le phénomène de noyage. En effet, une sur-humidification de la membrane conduit à son noyage et bloque par conséquent la diffusion des protons. En revanche, son assèchement augmente sa résistance électrique et provoque par suite une chute de rendement. Pour cette raison, la gestion de l'eau dans ce composant est l'un des problèmes majeurs dans les piles à combustibles.

La conductivité de l'électrolyte dépend essentiellement de sa température de fonctionnement et de son taux d'hydratation. Ce dernier point peut particulièrement complexifier la fabrication de l'électrolyte qui résulte d'un compromis entre ces divers paramètres : les caractéristiques mécaniques, la conductivité ionique, la perméation des gaz, la stabilité face aux réactifs chimiques, les caractéristiques d'hydratation et le coût de fabrication.

I.4 Description du stack

Une seule cellule n'est capable de fournir qu'une faible tension entre ces bornes. Ce qui est insuffisant pour la majorité des applications, Donc Pour obtenir une tension de sortie correspondante à la charge électrique placée aux bornes de la PAC, il est nécessaire d'empiler plusieurs cellules en série pour former un Stack [11].

Dans un Stack (figure I.4), toutes les cellules sont alimentées en même temps et parallèlement par de l'hydrogène et de l'oxygène à travers les canaux de distribution des plaques bipolaires. Au niveau de chaque cellule, les électrons libérés par l'oxydation de l'hydrogène à l'anode sont collectés par les plaques bipolaires et ramenés à la cathode de la cellule précédente. Une partie de l'eau produite du côté cathode se diffuse vers l'anode à travers la membrane et sort avec l'hydrogène en excès.

Une autre partie est évacuée directement avec l'oxygène en excès du côté cathode. Les canaux de distribution des gaz sont reliés ensemble à travers les composants des cellules avec une entrée et une sortie au niveau des plaques terminales [10].

Chapitre I Généralités sur les piles à combustible

Le dimensionnement du Stack est déterminé en fonction de la conception et du cahier des charges de la PAC. Nous disposons de deux degrés de liberté pour choisir les dimensions du Stack

- Le nombre de cellules empilées en série pour déterminer la tension de sortie totale aux bornes du Stack. La tension nominale élémentaire d'une cellule étant de l'ordre de 0,7 V. La tension de sortie totale est égale à la tension élémentaire multipliée par le nombre de cellules.
- La surface d'une cellule pour déterminer le courant maximal que le Stack peut délivrer. Ce courant est proportionnel à la surface de contact des gaz avec les électrodes. En effet, plus cette surface de contact est grande plus le nombre de molécules d'hydrogène qui réagissent est grand, c.-à-d. plus d'électrons libérés. On parle alors d'une densité de courant du Stack qui représente la quantité de courant fournie par unité de surface de la cellule.

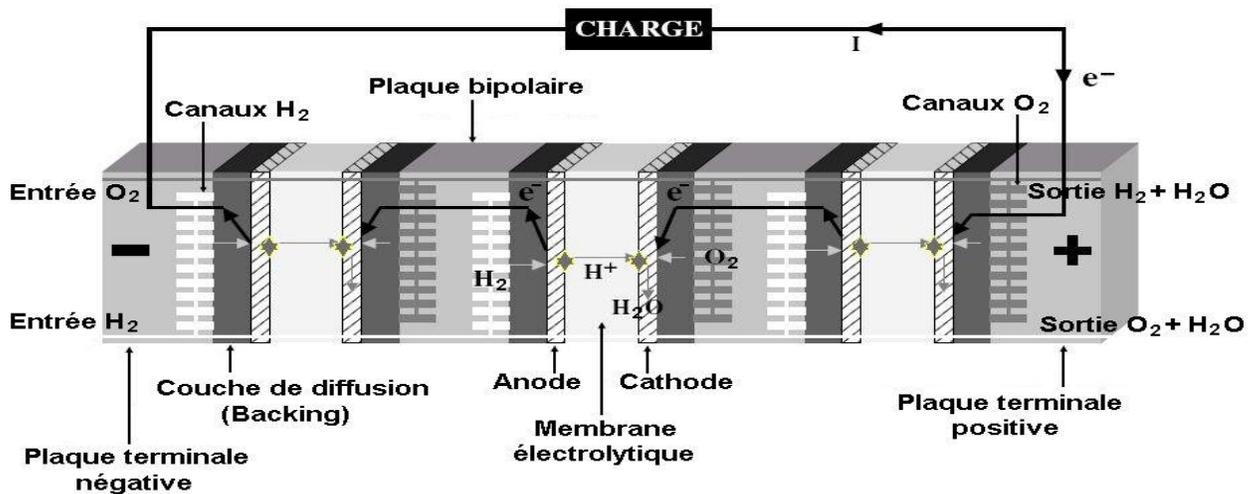
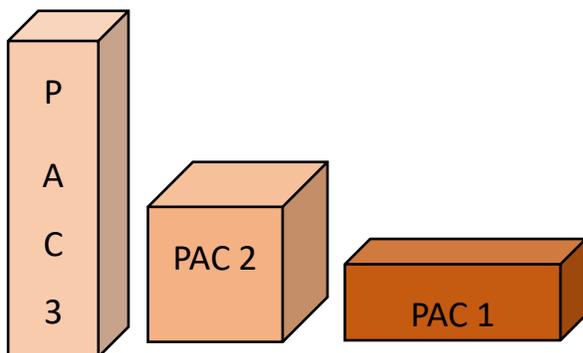


Figure I-5 Empilement de cellules (Stack)[66]

Cependant, il faut tout de même rappeler que le dimensionnement du Stack est limité technologiquement au nombre de cellules, à la densité de courant et à la surface de contact.



	N° de cellules en série	Tension nominale	Tension à vide	Courant nominal
PAC 1	100	70V	100V	70 A
PAC 2	35	25V	35V	200 A
PAC 3	14	10V	14V	500 A

Figure I-6 Modularité d'un stack : 3 Exemples de conception d'une PAC de 5kW

Ainsi, le Stack est conçu suivant la puissance demandée par le cahier des charges, en jouant sur le nombre de cellules à empiler et la surface d'une cellule. La figure 1.6 illustre cette notion de modularité.

I.5 Les différents types de piles à combustibles

La pile PEM n'est pas la seule à voir le jour, il existe différentes technologies des piles à combustibles, et souvent on les divise en deux grandes familles, selon la nature de leur électrolyte, car celui-ci détermine d'une part, la température de fonctionnement de la pile, et d'autre part le type d'ions assurant la conduction ionique, par exemple un électrolyte acide lorsque les ions d'hydrogène migrent de l'anode à la cathode [14].

Les détails concernant le fonctionnement des différentes piles à combustible figurent dans les paragraphes suivants, Le tableau I.2 présente le type d'électrolyte et les domaines d'applications des piles à combustibles [15].

Tableau I-2 Comparaison des piles à combustibles

Type de pile	AFC	PEMFC	DMFC	PAFC	MCFC	SOFC
Électrolyte	Solution KOH	Membrane polymère conductrice de proton	Membrane polymère conductrice de proton	Acide phosphorique	Li ₂ CO ₃ KCO ₃ fondu dans LiAlO ₃	ZrO ₂ et Y ₂ O ₃
Ions dans l'électrolyte	OH ⁻	H ⁺	H ⁺	H ⁺	CO ₃ ²⁻	O ₂ ⁻
Température	60-80 °C	60-100 °C	60-100 °C	180-220 °C	600-660°C	700-100°C

Combustible	H2	H2(pur ou réformé)	Méthanol	H2 (pur ou reformé)	H2 (pur ou reformé)	H2 (pur ou reformé)
Domaines d'application	Spatial	Automobile, portable, maritime	Portable	Cogénération	Cogénération, production centralisée d'électricité, maritime	

I.5.1 Principe de fonctionnement des piles à combustibles

Le principe de fonctionnement des piles à combustibles est similaire à celui de la pile PEM, pour être exacte c'est le contraire, car la pile PEM n'est qu'un type parmi plusieurs d'autres dans les piles à combustibles, la figure I.7 montre les différents types connus à ce jour. Ils dépendent principalement des réactifs (H₂, méthanol, etc.), de la nature de l'électrolyse (solide ou liquide), des résidus de la réaction électrochimique et de la température de fonctionnement.

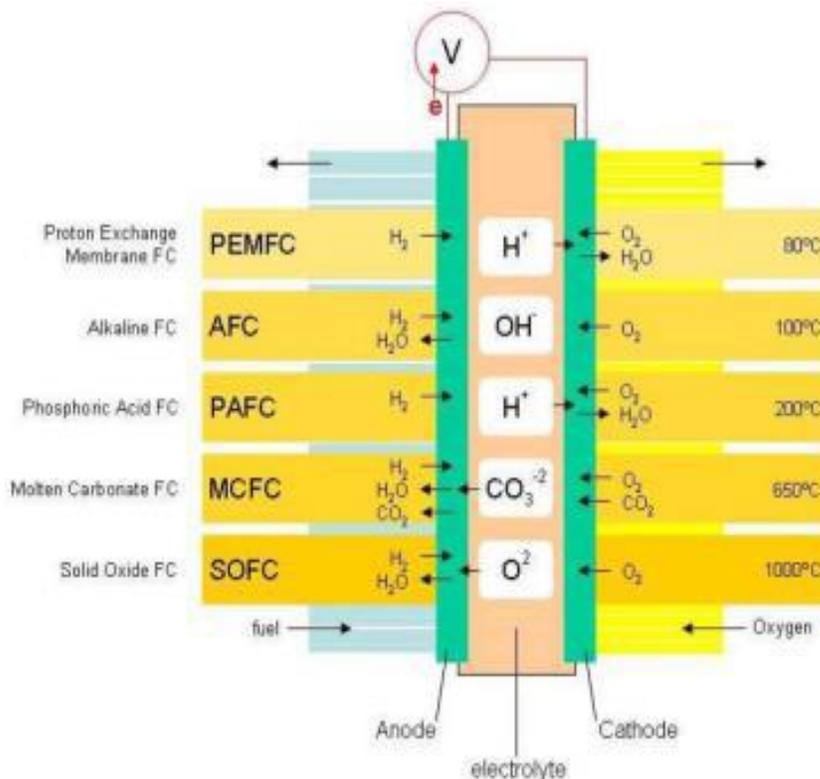


Figure I-7 Schéma récapitulatif des différents types de piles à combustibles [19]

Les sections suivantes présentent une illustration du mode de fonctionnement pour chaque type de pile.

I.5.1.1 Pile à combustible à membrane polymère (PEMFC)

C'est la pile étudiée, on a déjà présenté le fonctionnement de cette pile, mais rappelons qu'elle fournit une haute densité de puissance et un poids moindre, un cout raisonnable et un faible volume.

Ces piles travaillent à une température inférieure à 100 °C pour un rendement l'ordre de 50%. La faible température de fonctionnement leur confère une aptitude à démarrer relativement rapidement. Ils sont principalement développés pour alimenter en énergie des véhicules et des installations fixes de petite et moyenne taille.

La gamme de puissance des piles PEM se situe de quelques dizaines de watts à une dizaine de mégawatts [20].

I.5.1.2 Pile à combustible à méthanol direct (DMFC)

Le grand potentiel pour les utilisations portables des piles à combustibles a eu un grand intérêt pour des piles qui fonctionnent directement à base de méthanol, la pile à méthanol directe (DMFC) utilise la même membrane polymère que la pile PEM, la différence se situe sur le combustible qui est le méthanol au lieu de l'hydrogène. Le méthanol se déplace à travers l'anode et il se décompose en protons, électrons, en eau et dioxyde de carbone. Bien que sa densité énergétique ne soit que le cinquième de celle de l'hydrogène par unité de poids, puisqu'il est sous forme liquide, il offre plus de quatre fois la quantité d'énergie par volume comparativement à l'hydrogène sous une pression de 250 atmosphères [13].

Le transfert du méthanol de l'anode vers la cathode à travers la membrane a pour conséquence l'empoisonnement du catalyseur du côté oxygène. Pour résoudre ce problème, il faut penser à concevoir des membranes moins perméables au méthanol que celles utilisées en ce moment.

La basse température d'oxydation du méthanol demande une grande quantité de catalyseur par rapport à la pile PEM, cependant, elle présente l'avantage d'utiliser un combustible liquide et de ne nécessiter aucun reformeur.

I.5.1.3 Pile à combustible à acide phosphorique (PAFC)

La pile à combustible à acide phosphorique (PAFC) est l'une des rares piles disponibles dans le commerce, la plupart de ces installations fournissant une puissance allant de 50 à 200 kW, parfois même des centrales de 1 MW et 5 MW ont vu le jour. La plus grande centrale installée à ce jour fournit 11MW [12].

Les piles à combustibles PAFC possèdent des rendements de production d'électricité de 40%, la température de fonctionnement entre 150 et 300 °C. Les PAFC sont de mauvais conducteurs ioniques sous basse température, et le monoxyde de carbone (CO) a tendance à empoisonner le platine du catalyseur [12].

La technologie de la pile PAFC est plus mûre en termes de développement et de commercialisation contrairement à d'autres types, car des installations stationnaires allant jusqu'à 50 MW ont déjà été réalisées, leur application principale est la cogénération, la gamme de puissance des piles PAFC se situe entre 200 kW et 50 MW [14].

I.5.1.4 Pile à combustible alcaline (AFC)

Les piles à combustibles alcaline (AFC) ont été utilisées très souvent dans le domaine spatial, elles peuvent atteindre un rendement allant jusqu'à 70% en génération de puissance. La température de fonctionnement de ces piles varie entre 150 et 200 °C.

Une solution aqueuse de potassium alcalin hydroxyde noyé dans une matrice sert d'électrolyte. Il s'agit d'une configuration avantageuse car la réaction à la cathode devient rapide, ce qui permet d'avoir de meilleure performance. Ces piles offrent typiquement des puissances allant de 300 watts à 5 kW [16].

Au voisinage de la pression atmosphérique, leur température de fonctionnement est limitée entre 60 °C et 70 °C pour un rendement de l'ordre de 50 %. Cependant cette température peut être élevée (à 250 °C) dans le cas d'un fonctionnement sous pression et avec un électrolyte très concentré [16].

Les raisons pour lesquelles cette pile a été mise à l'écart pour les applications de transport sont leur sensibilité au dioxyde de carbone (CO_2) d'une part, l'état liquide et corrosif de leur électrolyte, qui soumis aux contraintes des transports pourrait fuir de la pile.

I.5.1.5 Pile à combustible à carbone fondu (MCFC)

Dans ce type de pile, les réactions mise en jeu sont plus complexes que dans les piles PEM, alcalines ou à acide phosphorique. La conduction ionique est assurée par la migration d'ions carbonates (CO_3^{2-}) de l'anode vers la cathode, à travers de l'électrolyte constitué par des carbonates fondus. Une des particularités des piles MCFC (comme la pile SOFC) est que la température de fonctionnement permet d'utiliser le monoxyde de carbone (CO) en tant que combustible. Il peut y avoir donc deux sortes de réactions électrochimiques à l'anode. La première est la réaction principale qui consiste convertir l'énergie contenue dans l'hydrogène en électricité. La seconde est la réaction qui peut avoir lieu si du monoxyde de carbone est présent dans le combustible (elle n'aura pas lieu si la pile est alimentée en hydrogène pur), celle-ci est favorable à la pile puisqu'elle permet également de produire de l'électricité [15].

La température de fonctionnement se situe entre 600 et 700 °C. les carbonates sont fondus et maintenus par capillarité dans la matrice. Les applications des piles MCFC se trouvent principalement dans le stationnaire avec une gamme de puissance allant de 500kW jusqu'à 10MW.

I.5.1.6 Pile à combustible à oxyde solide (SOFC)

Les piles à combustibles à oxyde solide (SOFC) sont destinées aux grandes installations de haute puissance telles que des centrales de production d'électricité pour l'industrie.

Un système à oxyde solide est généralement constitué d'un matériau céramique dur comportant de l'oxyde solide de zirconium et d'une petite quantité d'yttria pour remplacer l'électrolyte liquide.

La température de fonctionnement de ces piles peut atteindre 1 000 °C, la céramique présente une très bonne conductivité ionique dans ces hautes températures. Quant au rendement, il peut atteindre 60 à 85 %, avec une gamme de puissance de 1 kW jusqu'à 10 MW [14].

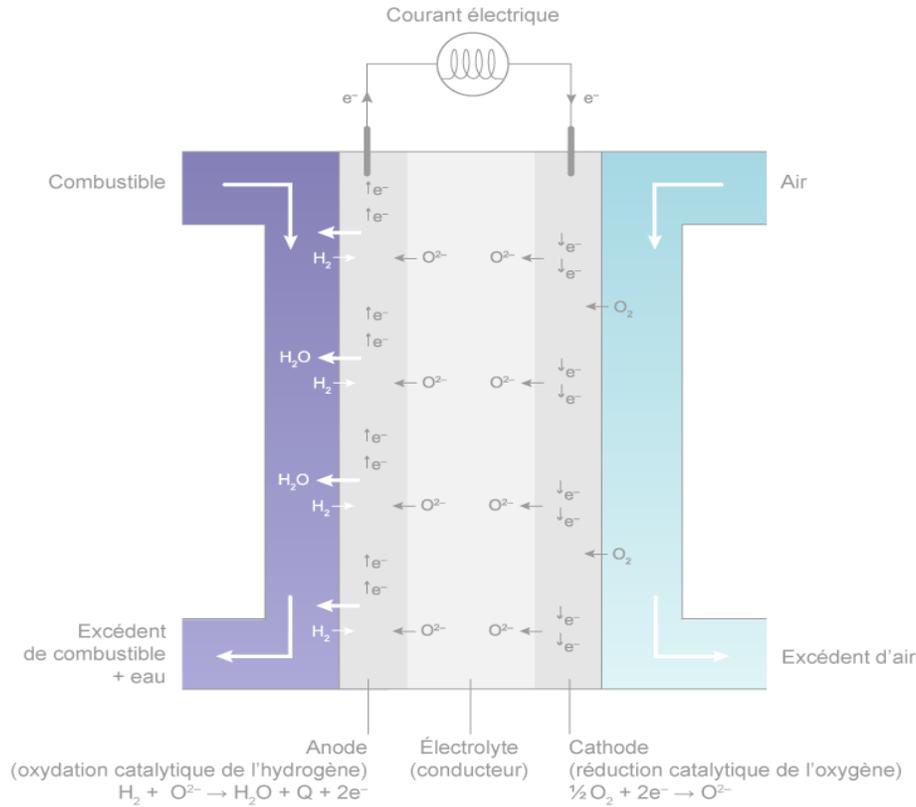


Figure I-8 Principe de fonctionnement d'une SOFC ©Connaissance des Énergies

I.5.2 Les domaines potentiels d'utilisation de chaque type de technologie

Chaque type de technologies des piles à combustibles a des avantages et des inconvénients, et de ce fait, chaque type a un domaine bien précis où il peut être le mieux exploiter.

Les piles à combustibles représenteraient un complément très utile au choix des énergies a sa disposition car elles fournissent de l'énergies électrique pour des utilisations actuellement limitées en capacité énergétique.

Chaque secteur nécessite des piles à combustibles pour différentes raisons, comme le décrivent les paragraphes suivants. Les piles à combustibles ont de multiples applications que l'on divise en plusieurs catégories :

- Automobile: véhicule, bus, etc.;
- Stationnaire : génération de chaleur et d'électricité (résidentiel, bâtiment public type piscine, hôpital, école, résidences, générateurs de secours);

- Portable : téléphone, ordinateur portable, caméra, matériel militaire;
- Spatiale: véhicule spatial, satellite ect.

Tableau I-3 Domaines potentiels d'utilisation des piles à combustibles

Application	Portable	Résidentiel	Transport	Centrale
Puissance	1-100 W	1-10 kW	10-100 kW	100 kW 10MW
PEMFC				
DMFC				
PAFC				
AFC				
MCFC				
SOFC				

I.6 Rendements

Le rendement d'une pile à combustible est calculé en se basant sur l'énergie libérée lors de la combustion des réactants (enthalpie de formation, ou pouvoir calorifique du combustible Δh) et sur l'énergie libre de Gibbs de formation. L'expression suivante suppose que toute l'énergie libre de Gibbs de formation peut être convertie en énergie électrique. Donc, cette énergie électrique maximale disponible est égale à Δg_f et le rendement énergétique maximal est alors donné par :

$$\eta_{\max} = \frac{\Delta g_f}{\Delta h_f} \quad (\text{I.4})$$

L'enthalpie de formation indiquée au-dessus dépend de l'état des gaz réactifs avant et après la réaction. Par exemple, pour la réaction (1.12) à 25°C, si l'eau est produite sous forme gazeuse, l'enthalpie de formation est de -241,83 kJ.mol⁻¹. Elle vaut -285,84 kJ.mol⁻¹ si l'eau est produite sous forme liquide. La différence entre ces deux valeurs (44 kJ.mol⁻¹) correspond à l'enthalpie

d'évaporation de l'eau. Il est donc important d'expliquer quelle valeur utiliser lors du calcul du rendement. D'autre part, ce rendement dépend également de la température, comme indiqué tableau I.4.

Tableau I-4 Rendement en fonction de la température et de la forme de l'eau produite

Etat de l'eau produite	Température (°C)	Δg_f (kJ.mol ⁻¹)	E (V)	η_{\max} (%)
Liquide	25	-237,2	1,23	83
Liquide	80	-228,2	1,18	80
Gaz	100	-225,2	1,17	79
Gaz	200	-220,4	1,14	77
Gaz	400	-210,3	1,09	74
Gaz	600	-199,6	1,04	70
Gaz	80	-188,6	0,98	66
Gaz	1000	-177,4	0,92	62

Entre deux températures différentes T1 et T2, il est possible de comparer le rendement énergétique maximal avec celui d'un moteur thermique, à savoir (formule de Carnot) :

$$\eta = \frac{T_1 - T_2}{T_1} \quad (I.5)$$

Les températures sont en Kelvin (K). Par exemple, pour une turbine à vapeur fonctionnant à T₁ = 400 °C (673 K), et une eau à T₂ = 50 °C (323 K) en sortie du condenseur, le rendement est de 52 %. La figure I.9 présente une comparaison entre le rendement maximal d'une pile à combustible et le rendement maximal de Carnot, ce en fonction de la température. Il apparaît clairement que la pile à combustible a un meilleur rendement que le moteur thermique à basse température.

La tension à vide théorique maximale de la pile serait, en supposant une eau produite sous forme liquide, de :

$$E_{\max} = \frac{\Delta g_f(\text{eau}_{\text{liquide}})}{2F} = 1,23V \quad (\text{I.6})$$

En réalité, la tension de la pile à combustible n'atteint pas cette valeur théorique maximale, en raison de différentes pertes :

- Les pertes d'activation, liées à l'énergie nécessaire pour démarrer la réaction électrochimique,
- Les pertes de concentration, dues à la chute de concentration des réactants au niveau des sites réactionnels,
- Les pertes ohmiques associées au courant électronique dans les électrodes, et au courant ionique dans la membrane,
- Les fuites de combustible à travers la membrane,
- Le courant de fuite de la membrane.

Le rendement électrique d'une pile peut être défini par le rapport entre la tension effectivement délivrée et la tension déduite de l'énergie libre de Gibbs de formation de l'eau liquide

$$\eta_{\text{électrique}} = \frac{V_{\text{effective}}}{1,23} \quad (\text{I.7})$$

En pratique, les piles sont suralimentées, et tout le combustible entrant dans la pile n'est pas consommé. Une partie du combustible ne participe donc pas à la réaction électrochimique. Dans ce cas, un coefficient d'utilisation est défini [13] :

$$ut = \frac{\text{quantité de combustible consommée par la réaction}}{\text{quantité de combustible entrant dans la pile}} \quad (\text{I.8})$$

Ce coefficient correspond aussi au rapport entre le courant effectivement délivré, et le courant obtenu si tout le combustible avait réagi. Le rendement corrigé s'écrit donc :

$$\eta_{\text{électrique}} = ut \frac{V_{\text{effective}}}{1,23} \quad (\text{I.9})$$

I.7 Avantages et problèmes de la Pile PEM

Les principaux avantages des piles à combustible PEMFC sont :

- L'électrolyte solide de la membrane échangeuse d'ions, qui garantit une excellente conduction des protons et une bonne résistance au passage des gaz,
- L'eau, seule espèce liquide dans la pile, ce qui minimise les problèmes de corrosion,
- Une température de fonctionnement relativement faible, qui autorise des cycles démarrage/arrêt plus rapides, et donc une plus grande souplesse de fonctionnement,
- Un large spectre de puissance, lié à des densités de courant élevées (au-delà de 2 kW.L^{-1} et 2 W.cm^{-1}), qui autorise des applications variées (traction, unités de puissance auxiliaires).

Les inconvénients sont :

- La plage de température basse et étroite ($60\text{-}90^\circ\text{C}$) imposée par le matériau polymère, qui rend la gestion thermique difficile, particulièrement aux densités de courant élevées,
- La gestion de l'eau dans la membrane, qui est critique pour le rendement de la pile : celle-ci fonctionne dans des conditions optimales lorsque la membrane est bien hydratée,
- La sensibilité à l'empoisonnement par le CO, les espèces sulfurées et l'ammoniac, qui sont des poisons pour la pile à basse température.

I.8 Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons pu introduire et définir les éléments les plus importants qui sont en relation directe avec notre thématique. Nous avons vu les différents types de pile à combustible et leurs domaines d'applications. Des descriptions plus détaillées sur la pile PEM ont été données puisqu'elle va être le sujet de notre mémoire. A la fin nous avons présenté les différents avantages de ce type de pile et les défis à relever pour promouvoir ce chapitre qui est une nécessité pour le bon déroulement et la bonne compréhension du chapitre suivant.

***CHAPITRE II LES PHENOMENES PHYSICO-
CHIMIQUE***

II.1 Introduction

Les phénomènes de transferts jouent un rôle primordial dans le fonctionnement de la pile PEM, chaque phénomène a un impact bien précis sur la pile, et donc pour bien comprendre les différents aspects internes de la pile, il devient nécessaire d'étudier ces différents transferts. Ce chapitre présente ces différents aspects dans l'ordre suivant.

D'abord, rappelons que le mouvement des espèces chargées dans le cœur de la pile PEM est à l'origine de la création d'un courant électrique. Les protons et les électrons sont les charges mise en jeu, leur production à l'anode et leur recombinaison à la cathode sont respectivement assurées par les réactions catalysées d'oxydation de l'hydrogène et la réduction de l'oxygène. Ces deux demi-réactions permettent la conversion de l'énergie chimique en énergie électrique. La description des transferts de charges au cœur de la pile PEM et la présentation de ses performances électriques seront décrites dans un premier temps dans ce chapitre.

Ensuite, pour assurer la production de cette électricité, la pile PEM doit être d'une part, alimentée de façon continue en carburant (hydrogène) et en comburant (oxygène). Et d'autre part, les produits de la réaction au cœur de la pile doivent aussi être continuellement dégagés pour une efficacité maximale. Donc l'étude de transfert de masse des différentes espèces intervenant est tout autant importantes, une mauvaise gestion des flux massiques peut engendrer des défaillances significatives dans les performances de la pile.

Enfin, pour optimiser les performances de la pile PEM et contribuer à améliorer sa durabilité, il faut comprendre les phénomènes de transfert thermique et la gestion d'eau au cœur d'une pile à combustible.

II.2 Le transfert de charges

Le transfert de charge nous donne un aperçu sur la caractérisation théorique de la puissance électrique réversible pour un tel système. L'introduction des grandeurs thermodynamiques H , S et G vont permettre de définir respectivement l'énergie totale fournie au système, la part dissipée en chaleur et finalement l'énergie électrique disponible.

L'étude du fonctionnement réel (non réversible) de la pile, les différentes surtensions dans la pile PEM sont identifiées puis quantifiées. Pour cela, quelques rappels d'électrochimie sont donnés

pour introduire les équations de Nernst et de Butler-Volmer. Nous présenterons également le calcul de la tension en fonctionnement d'une cellule en vertu des conditions d'alimentation de la température et de la densité de courant désirée [23].

II.2.1 Thermodynamique et chimie de la pile PEM

La pile à membrane échangeuse de proton est un système électrochimique mettant en jeu un transfert d'électrons à la surface des électrodes, le courant produit est proportionnel à la surface de l'électrode et est exprimé sous forme de densité de courant. La compréhension des phénomènes se produisant au cœur de la pile à combustible fait appel à des notions diverses : thermodynamique, chimie, électrochimie, hydraulique et électrique [24].

II.2.1.1 La réaction de base

La réaction électrochimique, dans le cas de la pile PEM, se produit simultanément dans les deux côtés de la membrane, rappelons la réaction globale :



II.2.1.2 La chaleur de réaction

La réaction globale donnée par l'équation (II.1) est une réaction exothermique et elle est la même réaction de combustion de l'hydrogène. L'enthalpie de la réaction chimique est la différence entre les chaleurs (enthalpies) de formation des produits et des réactifs [25]. Ce qui conduit à la réaction suivante :

$$\Delta H = (h_f)_{\text{H}_2\text{O}} - (h_f)_{\text{H}_2} - \frac{1}{2} (h_f)_{\text{O}_2} \quad (\text{II.2})$$

L'enthalpie de formation d'un élément, par convention, est égale à zéro ; cependant, la chaleur de formation de l'eau liquide (à 25 °C) est égale à - 286 KJ.mol⁻¹.

Le signe négatif représente un dégagement de chaleur et l'équation (1.1) devient :



Dans la réaction le signe de la valeur devient positif du fait qu'il est dans le coté des produits. Il est à noter que l'équation (II.3) est valide pour les conditions de température et de pression respectivement 25 °C et à pression atmosphérique. Cette quantité de chaleur libérée par la réaction électrochimique, est aussi appelée le pouvoir calorifique et est autrement définie par la quantité de chaleur libérée par combustion complète d'une mole d'hydrogène [24,25].

II.2.1.3 Le travail électrique

Dans une pile à combustible il n'existe pas de combustion, et donc la notion du pouvoir calorifique supérieur (PCS) ou inférieur (PCI) représente la quantité maximale d'énergie thermique qui pourrait être extraite de l'hydrogène lors de la réaction électrochimique [15].

La récupération d'énergie électrique via la conversion de l'hydrogène n'est pas totale, quel que soit la réaction chimique (ou électrochimique), il existe un désordre qui apparaît, dans notre cas c'est la création d'entropie. En d'autres termes, c'est l'aspect irréversible de la réaction, et uniquement une partie du PCS va être convertit en électricité. Il s'agit de l'énergie libre de Gibbs (G) ou travail électrique théorique (maximal) de la pile, donné par l'équation suivante :

$$W_e = n \cdot F \cdot E = -\Delta G \quad (\text{II.4})$$

Et :

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (\text{II.5})$$

Avec :

- n : nombre d'électrons échangés dans la réaction électrochimique élémentaire dans le cas de la réaction hydrogène/oxygène, $n_e = 2$;
- F : constante de Faraday, charge électrique d'une mole d'électrons, $F = 96\,485 \text{ C}\cdot\text{mol}^{-1}$;
- E : force électromotrice (f.é.m) de la pile.

De la même manière, comme les enthalpies de formation dans l'équation (1.2), l'équation suivante représente la différence entre les entropies des produits et des réactifs :

$$\Delta S = (S_f)_{\text{H}_2\text{O}} - (S_f)_{\text{H}_2} - \frac{1}{2} (S_f)_{\text{O}_2} \quad (\text{II.6})$$

Seulement 237.34 KJ.mol⁻¹ de la totalité de l'énergie thermique mise en jeu (286.02 KJ.mol⁻¹) pourra être convertie en électricité, alors que le reste sera transformé en chaleur [15].

II.2.1.4 La tension à vide

La tension électrique à vide (théorique) d'une pile à combustible est la différence de potentiel entre la cathode et l'anode, cette tension est notée (E). Le caractère (0) en exposant désignera la tension de la pile dans les conditions standard de température et de pression (25 °C, 1 atm) [14]. Elle est dite à vide à cause du fait qu'elle est calculable sans la présence d'une charge électrique qui consomme le courant délivré par la pile.

A l'équilibre, l'équation de Faraday reliant l'énergie libre au potentiel de l'électrode s'écrit :

$$\Delta G^0 = -n \cdot F \cdot E^0 \quad (\text{II.7})$$

(F) étant la constante de Faraday, sa valeur est de 96 485 C.mol⁻¹ et le nombre ou l'e d'électrons échangés étant toujours égal a « 2 ». Dans le cas où l'eau formée est sous forme liquide, la tension théorique d'une pile PEM est :

$$E^0 = \frac{-\Delta G^0}{n \cdot F} = \frac{-273.34}{2 \times 96,485} = 1.23V \quad (\text{II.8})$$

Et dans le cas où l'eau formée est sous forme de vapeur, la tension théorique d'une pile PEM est :

$$E^0 = \frac{-\Delta G^0}{n \cdot F} = \frac{-228.6}{2 \times 96,485} = 1.185V \quad (\text{II.9})$$

La différence est due au changement de l'énergie libre de Gibbs lors de la vaporisation de l'eau. Ces équations sont valables pour une pression égale à la pression atmosphérique, alors que la pile peut opérer à différentes pressions. De même pour la température, si l'on considère que la pile travaille à une température inférieure à 100 °C, on peut ignorer les variations (ΔH) et (ΔS).

II.2.1.5 Effet de température et de pression

Pour des températures inférieures à 100 °C, la variation de la valeur de (C_p), (ΔH) et (ΔS) n'est pas très importante, mais à haute températures comme dans le cas des piles SOFC, ce changement ne doit pas être négligé.

L'utilisation des tableaux et équations suivants nous permettent de calculer les potentiels théoriques à l'anode et à la cathode pour n'importe quelle température donnée [40,41]

Tableau II-1 Les valeurs numériques des coefficients empiriques [28]

Substance	α (J. mol ⁻¹ . K ⁻¹)	β (J. mol ⁻¹ . K ⁻¹)	γ (J. mol ⁻¹ . K ⁻¹)
Hydrogène H ₂	29.038	-0.8356 . 10 ⁻³	2.0097 . 10 ⁻⁶
Oxygène O ₂	25.699	12.9666 . 10 ⁻³	-3.8581 . 10 ⁻⁶
Eau H ₂ O	30.33	9.6056 . 10 ⁻³	1.1829 . 10 ⁻⁶

De sa part, la chaleur spécifique C_p est en fonction de la température, comme le montre l'équation empirique suivante :

$$C_p = \alpha + \beta T + \gamma T^2 \quad (\text{II.8})$$

Où T désigne la température de fonctionnement de la pile, α , β et γ sont des coefficients qui dépendent du gaz, le tableau II.1 donne les valeurs de ces coefficients.

La pression est un autre paramètre qui est susceptible d'influencer sur la performance de la pile PEM. Quand la cellule débite un courant, la tension à ses bornes $U(I)$ est inférieure à E du fait des différentes pertes (activation, diffusion, chutes ohmiques...). L'influence de la pression sur le niveau de tension peut être expliquée par la disponibilité des molécules de gaz au niveau des sites réactionnels. Quand la pression est plus élevée, il y a plus de molécules dans un volume donné. On s'attend donc à une amélioration des performances de la pile quand la pression monte. L'augmentation de la pression des réactifs doit alors permettre d'améliorer de façon significative les performances de la pile PEMFC. On peut d'ailleurs constater l'effet de la pression sur les courbes de polarisation qu'il montre la figure

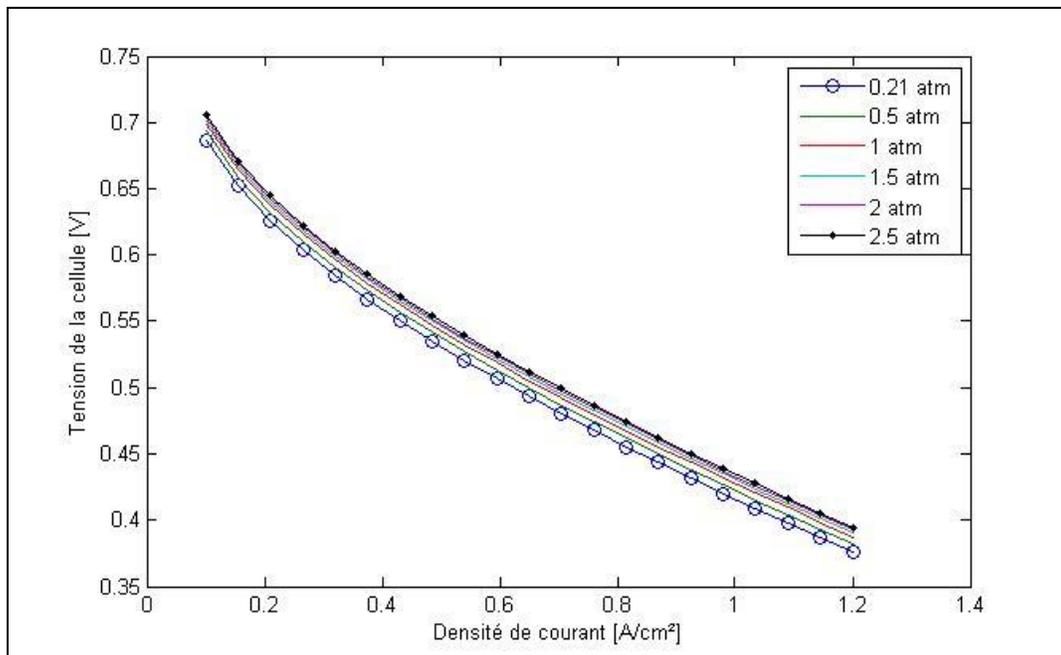


Figure II-1 Influence du changement de pression sur la courbe de polarisation [48]

II.2.2 Les débits des réactifs et des produits

Il existe une relation entre le courant délivré par la pile, le débit, la consommation des réactants, la production d'eau et de chaleur. Ces paramètres sont appelés « les flux de la pile » [14].

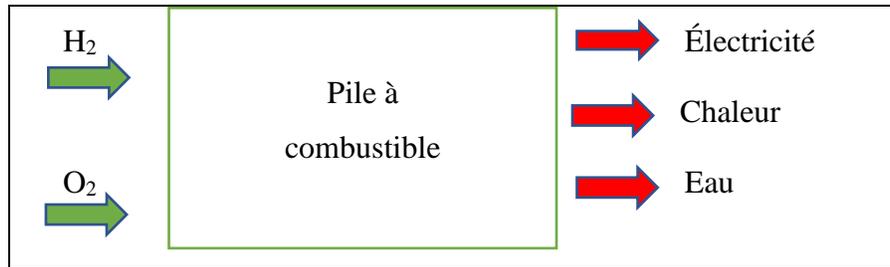
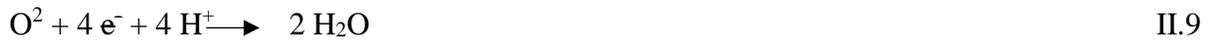


Figure II-2 Schéma des flux de la pile à combustible

II.2.2.1 Débit d'oxygène

D'après les demi-équations décrivant la réaction à la cathode :



On déduit que quatre électrons sont transférés par mole de dioxygène, la charge transférée sera :

$$Q = 4F \times \text{quantité d'O}_2 \quad \text{II.10}$$

La constante de Faraday (F) est définie comme étant la charge globale d'une mole de charge élémentaire. En divisant par le temps ($J = dQ/dt$), on obtient le débit molaire ($\text{mol} \cdot \text{S}^{-1}$) de dioxygène en fonction du courant, pour une cellule élémentaire de la pile à combustible, on aura :

$$\dot{n}_{\text{O}_2} = \frac{J}{4F} \quad \text{II.11}$$

Pour une pile à combustible contenant (n_c) cellules, on multiplie par le nombre de cellules ce qui donne :

$$\dot{n}_{\text{O}_2} = \frac{J}{4F} \cdot n_c \quad \text{II.12}$$

On utilise parfois la puissance brut (P_{Brute}) dans l'expression du débit de dioxygène. La puissance de la pile est donnée par expression :

$$P_{\text{Brute}} = V \cdot J \cdot n_c \quad \text{II.13}$$

Et donc l'expression du débit molaire devient :

$$\dot{n}_{O_2} = \frac{P_{\text{brute}}}{4F \cdot V} \quad \text{II.14}$$

II.2.2.2 Débit d'hydrogène

Le débit du dihydrogène consommé est déduit de la même façon que celui du dioxygène.

D'après la demi-réaction décrivant la réaction à l'anode :



On remarque clairement que deux électrons sont libérés par mole de dihydrogène et le débit du dihydrogène devient :

$$\dot{n}_{H_2} = \frac{J}{2F} \cdot n_c \quad \text{II.17}$$

Et pour l'expression qui contient la puissance brute, on écrit :

$$\dot{n}_{H_2} = \frac{P_{\text{brute}}}{2F \cdot V} \quad \text{II.18}$$

II.2.2.3 La quantité d'eau produite

D'après la demi-équation électrochimique, on peut déduire qu'une mole d'eau est produite pour deux électrons. Donc la production d'eau en mol.s⁻¹ est :

$$\dot{n}_{H_2O} = \frac{P_{\text{brute}}}{2F \cdot V} \quad \text{II.20}$$

II.2.3 Electrochimie de la pile

La tension théorique (E_{th}) diminue une fois que la pile est branchée à un circuit externe, et donc il faudra désormais calculer la tension réelle de la pile. Pour ce faire, plusieurs phénomènes doivent être considérés tels que la cinétique des électrodes, la surtension d'activation ainsi que les courants et les potentiels qui apparaissent dans la pile [18]. Ces phénomènes décrivent la vitesse de la réaction électrochimique ainsi que ce qui en résulte comme pertes d'énergie.

II.2.3.1 La cinétique des électrodes

Lors du contact d'une électrode métallique avec un électrolyte, une différence de potentiel caractéristique se crée entre le potentiel interne de l'électrode et le potentiel interne de l'électrolyte. Cette différence de potentiel est appelée potentiel standard de l'électrode (E^0) ou potentiel de Galvani.

II.2.3.2 Energie d'activation

La surface des électrodes est donc le siège de réactions électrochimiques. Ces réactions résultent de la collision des différentes molécules présentes. L'énergie cinétique de chaque molécule est la principale source d'énergie pour le démarrage d'une réaction. Mais il existe une énergie minimale à atteindre pour que deux molécules réagissent : l'énergie d'activation (barrière énergétique à franchir). Une partie de l'énergie est perdue car utilisée pour franchir la barrière d'activation. La perte de tension correspondante est la surtension d'activation mentionnée (η_{act}).

II.2.3.3 Vitesse de réaction

L'utilisation d'un catalyseur diminue l'énergie d'activation nécessaire pour qu'une réaction ait lieu, en mettant en jeu des réactions intermédiaires se produisant à la surface du catalyseur.

A partir de la loi d'Arrhenius, qui donne la relation entre la vitesse de réaction et température, il est possible de déterminer l'effet d'une variation de l'énergie d'activation (E_a) [15,20] :

$$k = A \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad \text{II.22}$$

Avec (k) constante de vitesse, fonction de la température, et (A) une constante en fonction de la réaction. Une faible diminution de l'énergie d'activation entraîne une forte augmentation de la vitesse de réaction.

II.2.3.4 Courant d'échange

En circuit ouvert, même en absence de circulation de courant dans la pile, à chaque interface électrode/électrolyte règne un équilibre dynamique et les charges (électrons) traversent cette interface dans les deux sens. La densité de courant résultante créée par le passage des électrons est appelée densité de courant d'échange et elle notée par (j_0) et exprimé en ($A \cdot cm^{-2}$). C'est la mesure du transfert de charge à l'équilibre. Plus elle élevée plus la réaction est facile à initier.

Pour les systèmes électrochimiques, (j_0) varie entre quelques nanomètres par centimètre carré et quelques ampères par centimètre carré [17], ces valeurs pour un système H_2/O_2 sont résumées dans le tableau suivant :

Tableau II-2 Les valeurs des densités de courant pour le système H_2/O_2

	Catalyseur	Milieu	J_0 (A/cm^2)
Hydrogène	Platine	Acide	10^{-3}
Oxygène	–	Basique	10^{-4}
L'électrolyte membrane	Platine	Acide	10^{-9}

II.2.3.5 Densité de courant

La réaction qui a lieu dans la pile se fait sur la surface, donc la densité de courant est une grandeur caractéristique d'une pile à combustible. Exprimée aussi en ampères par centimètre carré. Elle est en fonction de nombreux paramètres (type de pile, débit de combustible, ect.) [14].

Hors équilibre, la densité de courant (j) est liée à la surtension d'activation (η_{act}) par la relation de Butler-Volmer :

$$j = j_0 \left[\exp\left(\frac{\alpha n F}{RT} \eta_{act}\right) - \exp\left(-\frac{(1-\alpha)n F}{RT} \eta_{act}\right) \right] \quad \text{II.23}$$

Avec (α), le coefficient de transfert de charge qui indique la répartition de la surtension d'activation entre l'anode et la cathode.

Cette équation décrit au niveau macroscopique, la cinétique de transfert des électrons en milieu hétérogène, on utilise une autre équation simplifiée, établie empiriquement, dite de Tafel qui est en fait une approximation de celle de Butler-Volmer [25,26,27]. Elle permet de déterminer expérimentalement les valeurs de (j_0) et de (α), l'équation de Tafel demeure ainsi :

$$j = j_0 \left[\exp\left(\frac{\alpha n F}{RT} \eta_{act}\right) \right] \quad \text{II.24}$$

Et pour des valeurs de surtension inférieures à 10mV, elle peut se simplifier en une équation linéaire :

$$j = j_0 \left[\exp\left(\frac{n F}{RT} \eta_{act}\right) \right] \quad \text{II.25}$$

II.2.4 Phénomènes de polarisations

Lorsqu'on relie les bornes de la pile à la charge traversée par un courant d'intensité (j), la tension aux bornes de la pile diminue par rapport la tension théorique suite aux phénomènes de polarisation dont on distingue trois formes : d'activation, ohmique et de concentration.

II.2.4.1 Polarisation d'activation

La polarisation d'activation est plus importante à la cathode à cause de la cinétique de la réduction de l'oxygène, plus lente que la réduction de l'hydrogène à l'anode.

Cette polarisation est due à l'énergie d'activation des réactions aux électrodes, la cinétique chimique aux électrodes est le résultat d'étapes réactionnelles complexes avec chacune sa propre cinétique.

Cette polarisation peut être estimée en utilisant l'équation empirique de Tafel sous sa forme détaillée [14,17] :

$$\eta_{act} = -\frac{RT}{\alpha n F} \cdot \ln j_0 + \frac{RT}{\alpha n F} \cdot \ln j \quad \text{II.26}$$

Cette équation donne la chute de tension sur une électrode seulement, afin de connaître la chute de tension sur une cellule de pile, il est nécessaire de connaître les chutes de tension à la cathode ainsi que l'anode.

$$\eta_{act} = A_a \cdot \ln\left(\frac{j}{j_{0_a}}\right) + A_c \cdot \ln\left(\frac{j}{j_{0_c}}\right) \quad \text{II.27}$$

Avec (j_{0_a}) et (j_{0_c}) les courant d'échanges, et (A_a) et (A_c) les coefficients de l'équation de Tafel à l'anode et à la cathode respectivement.

La valeur de (j_{0_c}) étant beaucoup plus petite que la valeur (j_{0_a}), on admet alors que la surtension au niveau de la cathode est négligeable, d'où l'équation suivante :

$$\eta_{act} = A_{ac} \cdot \ln\left(\frac{j}{b}\right) \quad \text{II.28}$$

Avec (A_{ac}), exprimé en (V) et caractérisée par la relation suivante :

$$A_{ac} = A_a + A_c \quad \text{II.29}$$

Et (b) exprimée en (mA/cm²) et caractérisée par la relation suivante :

$$b = j_{a_0}^{\left(\frac{A_a}{A}\right)} + j_{c_0}^{\left(\frac{A_c}{A}\right)} \quad \text{II.30}$$

A étant la pente de la droite de Tafel :

$$A = \frac{RT}{cnF} \quad \text{II.31}$$

II.2.4.2 Polarisation ohmique

Avec l'augmentation du débit de combustible, la densité de courant augmente mais la résistance interne de l'électrolyte entraîne une diminution de la tension aux bornes des électrodes. On observe une chute de tension (η_{ohm}) aussi appelée pertes ohmiques, qui est principalement en fonction de la résistance électrique de la membrane. Ces pertes sont dues à des phénomènes conjugués qui sont la résistance électrique de l'électrode, les résistances de contact et la résistance de l'électrolyte au passage des ions.

La chute de tension provoquée par les pertes ohmiques, est exprimée tout simplement par la loi d'Ohm [17] :

$$\eta_{ohm} = R_m \cdot j \quad \text{II.32}$$

Ou (R_m) est la résistance surfacique spécifique de la membrane, elle est aussi notée (ASR : *Area Specific Resistance*) et est exprimée en ($\Omega \cdot cm^2$). Elle de la conductivité ionique (protonique) de la membrane (H^+) et de son épaisseur (e_m) exprimée en (cm) :

$$R_m = \frac{e_m}{\delta_{H^+}} \quad \text{II.33}$$

II.2.4.3 Polarisation de concentration

Les pertes par concentration ont pour origine la baisse de concentration des réactifs sur la surface des électrodes, Elles apparaissent pour des courants élevés ou la concentration des réactifs diminue très fortement en surface des électrodes.

L'équation de Nernst permet de calculer la perte de tension, si l'on passe d'une concentration initiale à une concentration finale. Le cas extrême étant celui ou la concentration finale est égale à

zéro, dans ce cas, on définit une densité de courant limite (j_L) [17] et la surtension de concentration peut se mettre sous forme :

$$\eta_{conc} = \frac{RT}{nF} \cdot \ln\left(\frac{j_L}{j_L - j}\right) \quad \text{II.34}$$

La densité de courant limite (j_L) est une mesure du débit maximal des gaz, la densité de courant (i) ne peut être supérieure à (j_L). A cette densité de courant limite, la concentration des gaz au niveau des électrodes devient quasi nulle et la tension chute très fortement.

L'utilisation de l'équation de Butler-Volmer conduit à un résultat similaire avec une équation de forme :

$$\eta_{conc} = C \cdot \ln\left(\frac{j_L}{j_L - j}\right) \quad \text{II.35}$$

Ou (C) est une constante obtenue empiriquement.

II.2.4.4 Tension réelle et plage optimale de fonctionnement

Les effets combinés de toutes les polarisations, nommés aussi irréversibilités, peuvent être synthétisés en une seule équation donnant la tension réelle de la pile à combustible en fonction de la densité de courant (j) [20] :

$$V(j) = E_{t_{heo}} - \eta_{act} - \eta_{ohm} - \eta_{conc} \quad \text{II.36}$$

Les phénomènes de polarisation qui font baisser la tension lorsque la densité de courant augmente obligent à une utilisation de la pile à combustible hors des zones limites (très faibles ou très fortes densités de courant).

En général, le point optimal se situe dans la zone linéaire. Suivant ces phénomènes et de la charge externe (moteur, etc.) la tension réelle varie de 0.5 à 1 V en fonction de l'intensité requise, du type de pile et des conditions opératoires de températures, pressions, etc [18].

II.2.4.5 Courbe de polarisation

La caractéristique principale d'une pile à combustible peut se résumer dans la courbe de polarisation. Cette courbe est un graphique représentant la tension aux bornes de la pile en fonction de l'intensité du courant. Une courbe (I_V) est la méthode la plus courante de caractériser ou de comparer une pile à combustible à une autre. La figure Montre une courbe de polarisation typique d'une pile à combustible PEM, ainsi que tous les points caractéristiques.

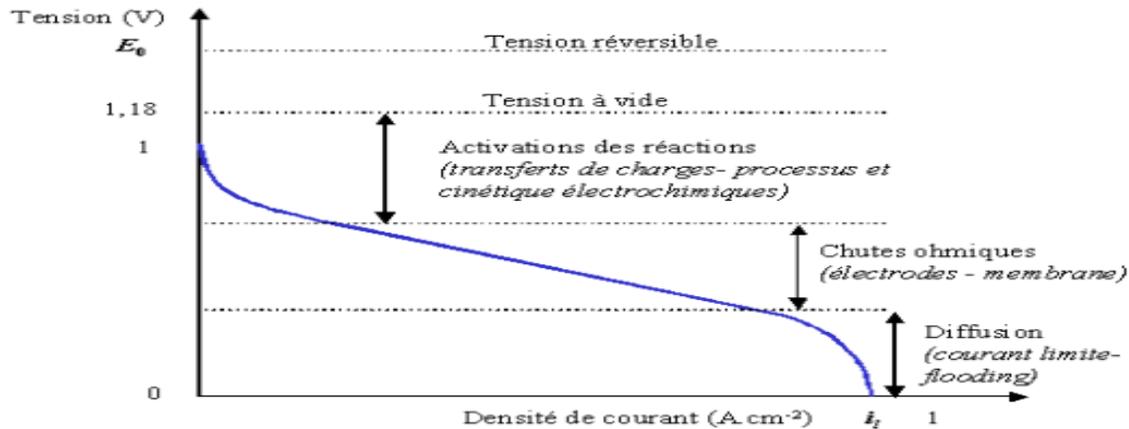


Figure II-3 Courbe de polarisation d'une pile à combustible PEMFC fonctionnant à 80°C [39]

II.3 Le transfert de masse

La concentration des réactifs et produits aux couches catalytiques ont une forte influence pour la détermination des performances de la pile. Les pertes en concentration peuvent être minimisées en optimisant le transport de ces espèces sur le long du parcours allant des canaux de flux jusqu'aux électrodes en passant par les couches de diffusion (GDL).

Le tableau suivant résume le rôle du transfert de masse dans chaque composant de cellule d'une PEMFC [25].

Tableau II-3 Le rôle du transfert de masse dans une cellule de pile PEM [25]

Composants	Implication du transfert de masse	Limitation existante
------------	-----------------------------------	----------------------

Les canaux de flux (H ₂ /O ₂)	Assurer une distribution homogène des réactifs à travers la surface d'électrode, tout en minimisant la perte de charge et en maximisant la capacité d'évacuation d'eau	Épuisement des réactifs, Contamination des sites des catalyseurs par les impuretés (N ₂ par exemple)
Les GDL	Permet l'accès facile des gaz vers les couches catalytiques (électrodes) et améliore la conductivité thermique.	L'eau liquide (non évacuée) bloque les pores du catalyseur (l'électrode)
Les électrodes	La réaction électrochimique prend place dans l'interface du catalyseur, elle consomme les réactifs (H ₂ /O ₂) et produit de l'eau.	Réaction lente si la charge du catalyseur est faible dans les électrodes.
La membrane	La bonne gestion de l'eau pour un bon transport des ions (protons H ⁺).	Assèchement de la membrane (à température élevée), ce qui en résulte la perte de sa capacité conductrice de protons.

Deux principaux phénomènes de transferts de masse se produisent dans la pile PEM, la diffusion dans les couches (GDL) et les électrodes, et la convection dans les structures d'écoulement des flux (canaux de flux). Cela peut se rapporter à la différence dans les dimensions. Car en effet, l'échelle de longueur dans les structures d'écoulement est de l'ordre des millimètres. Pour les couches de diffusion et électrodes, les structures poreuses sont de l'ordre des micromètres ou même des nanomètres. La figure suivante représente un schéma récapitulatif des différents phénomènes de transferts de masse opérant au cœur de la cellule d'une PEM [69].

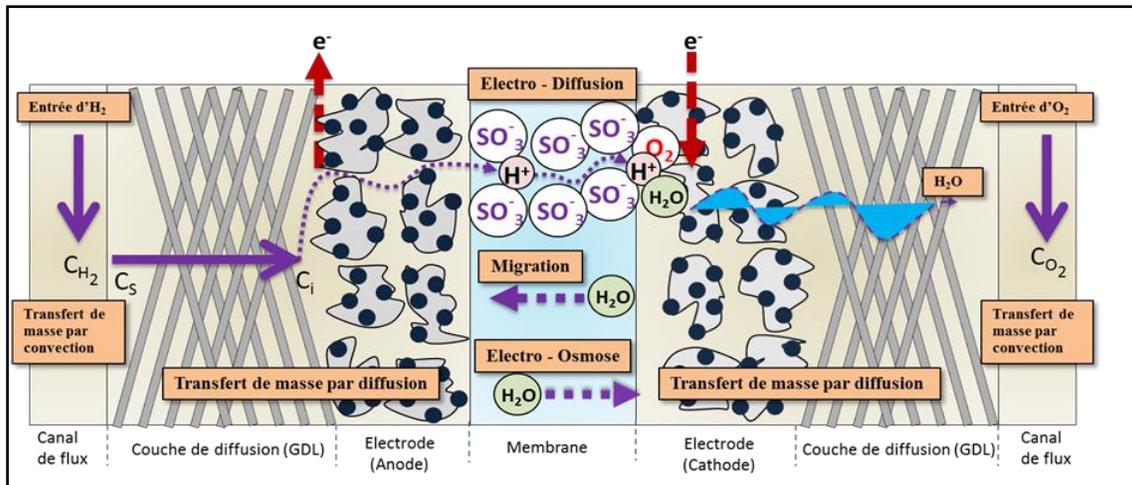


Figure II-4 Schéma descriptif du transfert de masse [48]

II.3.1 Les flux de matière

Les forces convectives qui dominent le transfert de masse dans les canaux de flux sont principalement imposées par le flux du carburant (hydrogène), alors que les conditions opératoires du flux de l'oxydant peuvent être contrôlées par l'utilisateur. Les vitesses de flux élevés des réactifs peuvent assurer une bonne distribution sur les sites catalytiques des électrodes, mais cela peut engendrer des problèmes dans l'ensemble du stack et peut même aller jusqu'à endommager la membrane polymère [68].

La consommation des réactifs gazeux et la production d'eau à la cathode sont en fonction du flux d'électrons traversant le circuit externe, donc de l'intensité, par le biais des réactions électrochimiques. En d'autres termes, les densités de flux de matière sont directement liées à la densité de courant débitée par la pile [70].

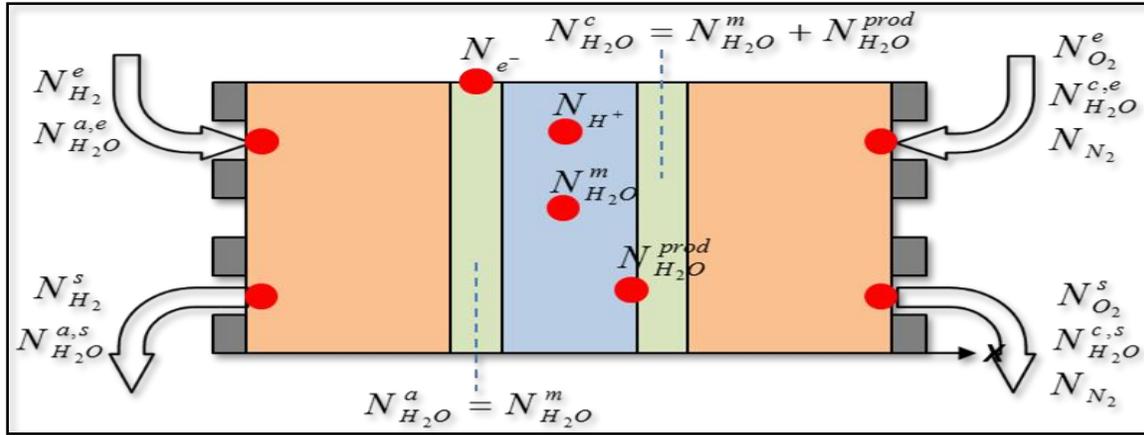


Figure II-5 Les différents flux de matières dans une pile PEM [48]

II.3.2 Le transfert de masse par convection

Les gaz réactifs se trouvant dans les canaux de flux ont une concentration (C_0). Ils sont transportés, par convection vers les couches de diffusion pour être bien répartis sur la surface des électrodes. La concentration devient alors (C_s).

Le transfert de masse par convection pour cet ensemble s'écrit [60] :

$$\dot{m} = A_{elec} \cdot h_m \cdot (C_0 - C_s) \quad \text{II.37}$$

Où A_{elec} représente la surface des électrodes et h_m le coefficient de transfert de masse, ce dernier dépend de la géométrie des canaux et des propriétés des espèces.

L'équation généralisée de la conservation de masse, valable pour la description des phénomènes de transfert de masse se trouvant à l'intérieur de la pile à combustible (écoulements, diffusion, changement de phase ainsi que les réactions électrochimiques), [53], l'équation de conservation de la masse du mélange gazeux s'écrit en dynamique :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \cdot \varepsilon_s) + \vec{\nabla} \cdot (\rho \cdot \vec{u}) = 0 \quad \text{(II.38)}$$

Dans laquelle :

ε_s = la porosité du milieu (rapport entre le volume poreux et le volume total),

ρ = la masse volumique du mélange de gaz [kg.m^{-3}],

\bar{u} = la vitesse superficielle [m.s^{-1}].

La loi de Darcy qui décrit la convection d'un mélange gazeux dans un milieu poreux (les couches de diffusion) est basée sur l'homogénéisation des milieux poreux et fluides dans un endroit où la description géométrique détaillée de la structure des pores n'est pas nécessaire [54]. Dans ce cas, le volume du milieu est considéré relativement large par rapport à la taille des pores, en conséquence de quoi la vitesse du mélange de gaz est déterminée par le gradient de la pression, la viscosité et la structure du milieu poreux, [55] :

$$\bar{u} = -\frac{k_p}{\mu} \vec{\nabla} p \quad \text{II.39}$$

Avec :

μ = la viscosité du gaz [$\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$],

K_p = la perméabilité [m^2],

P = la pression [Pa].

II.3.3 Les lois paramétriques

II.3.3.1 Pression de saturation

Différentes formules ont été proposées pour déterminer la pression de saturation de l'eau (en [Pa]). Wöhr a présenté, dans ses travaux, la formule empirique suivante [86] :

$$P_{sat}(T) = 10^{\left(A - \frac{B}{C+T-273}\right)} \cdot 100 \quad \text{II.40}$$

Dans cette relation, la température est en kelvin, et les autres coefficients ont des valeurs constantes. ($A=8.0730$, $B=1656.39$, $C=226.86$).

II.3.3.2 Isotherme de sorption

L'eau, liquide dans la membrane et à l'état vapeur dans les diffuseurs, subit un changement de phase aux interfaces membrane/diffuseurs (au niveau des électrodes en réalité), ce phénomène est nommé sorption. Le mécanisme de sorption est responsable d'un dégagement de chaleur, la structure poreuse du site polymère permet l'adsorption de l'eau existante dans les couches de diffusion sous forme de gaz [46,47].

II.4 Le Transfert de masse dans les couches de réaction (électrodes)

Les couches de réaction (*Catalyst Layers* : CL) sont les lieux dans lesquels les réactions électrochimiques se produisent. On peut distinguer deux modèles pour décrire le transfert de masse dans les couches catalytiques, le modèle à faible courant de Butler-Volmer et le modèle à fort courant (d'agglomérats) [48].

II.5 Le transfert de chaleur

Pour une meilleure optimisation des performances des piles PEM et pour avoir une contribution à leurs durabilités, il est primordial de comprendre les phénomènes de transfert thermique au cœur de la pile. Le dégagement de chaleur dans une pile est relatif à l'énergie électrique qu'elle délivre.

Dans une pile PEM la chaleur est dissipé par un système de refroidissement ou transférée par conduction-convection à travers les interfaces de l'empilement. Différents modes de transfert de chaleur sont observés dans les différents composants de la pile, le transfert de chaleur à travers la membrane est entièrement assuré par la conduction thermique, tandis que la conduction et la convection sont présent dans les couches catalytiques (CL) et les couches de diffusion (GDL).

Il faut noter que le transfert de chaleur et le transport d'eau dans la pile sont toujours couplés [48].

II.5.1 La gestion thermique dans une pile PEM

Pour son fonctionnement constant, la pile PEM doit être maintenue à une température désirée. Le contrôle en continu de la température d'une pile PEM passe par une bonne gestion thermique des différents flux qui apparaissent au cœur de la pile. L'évacuation de ces flux est primordiale, et donc un système de refroidissement est à prévoir.

II.5.2 Les systèmes de refroidissement

Il existe plusieurs systèmes ou méthodes de refroidissement d'un *stack* de pile, le choix dépend en premier temps de l'application de ce *stack* et de sa taille notamment. Les piles dont les puissances ne dépassent pas les 200W peuvent être refroidis uniquement par l'air qui entre du côté de la cathode, pour les piles qui ont une puissance entre 200W et 2kW peuvent être refroidis par des canaux d'air séparés de ceux des réactifs. Les piles avec une puissance supérieure à 10kW nécessitent un liquide de refroidissement [58].

II.5.3 L'effet de la température sur les performances de la pile PEM

La variation de température affecte les phénomènes reliés à la cinétique de la réaction, le transport de l'eau, le taux d'humidité, la conductivité de la membrane, la tolérance du catalyseur et la dissipation de chaleur. Une bonne revue concernant le rôle de la température dans les piles à combustibles a été présentée par Zhang et al. [64] et Song et al.[65], les auteurs ont conclu que les performances de la pile accroissent avec l'augmentation de la température allant de celle ambiante à celle de 80°C. ils ont aussi constaté qu'à faible densité de courant, l'augmentation de la température diminue les performances de la pile.

II.6 Conclusion

A travers ce chapitre, dans un premier temps, nous avons pu mettre en évidence les différentes valeurs théoriques de la tension réversible et de chute de tension, quant à la tension réelle, on a pu voir qu'elle dépend du type de pile, de l'intensité de courant requise et des conditions opératoires (température, pressions, ...etc) et qu'elle est de l'ordre de 0.5 à 1.0 V, plusieurs modèles analytiques, empiriques ou semi-empiriques ont été présentés, certains vont être utilisés après dans la partie simulation. Dans un second temps, les équations décrivant le transfert de masse dans les différentes couches d'une cellule de la pile PEM ont été présentées, puisque cette étude est essentielle pour le bon fonctionnement de la pile, ainsi pour une durée de vie plus étendue. Pour finir, la gestion d'eau dans la membrane a aussi été incluse, puisqu'elle permet de traduire le comportement de la cellule, on a retenu le rôle important de la teneur en eau de la membrane, elle doit toujours être maintenue dans un état d'hydratation pour garantir une bonne conductivité des ions et par conséquent de bonne performance.

***CHAPITRE III ETUDE D'INFLUENCE DE LA
GEOMETRIE DES CANAUX DE FLUX***

III.1 Introduction

Les plaques bipolaires jouent de nombreux rôles dans les piles à combustible. Ils distribuent carburant et oxydant dans la cellule, séparent les cellules individuelles dans la pile, collectent le courant, évacuent l'eau de chaque cellule, humidifient les gaz et maintiennent les cellules au frais. Afin de remplir simultanément ces fonctions, des matériaux et des conceptions de plaque spécifiques sont utilisés. Les conceptions couramment utilisées peuvent inclure des champs d'écoulement droits, serpentins, parallèles, interdigités ou à broche. Le but dans ce chapitre est de présenter un modèle mathématique qui va nous permettre de voir l'influence que peuvent apporter ces différentes conceptions. Nous commencerons par présenter le logiciel utilisé dans la simulation (Matlab), ensuite on fera une récapitulation de toutes les équations, les hypothèses et les données d'entrées permettant la réalisation de ce modèle mathématique, qui sera ensuite traduit en fichier Script, Ce fichier va nous permettre de voir l'influence du changement de la géométrie des canaux de flux pour les deux côtés de la pile (anode et cathode) pour deux formes différentes, à savoir une forme rectangulaire et une forme circulaire. La dernière partie sera consacré à l'interprétation des résultats.

III.2 Présentation du logiciel (Matlab)

Le logiciel MATLAB est construit autour du langage MATLAB. Une interface en ligne de commande, permet d'exécuter des commandes simples. Des séquences de commandes peuvent être sauvegardées dans un fichier texte, typiquement avec l'éditeur MATLAB, sous la forme d'un « script » ou encapsulées dans une fonction. Cette plate-forme est optimisée pour résoudre les problèmes scientifiques et techniques. Son langage est basé sur les matrices, c'est le moyen le plus naturel au monde pour exprimer les mathématiques computationnelles. Les graphiques intégrés permettent de visualiser facilement les données afin d'en dégager des informations. Grâce à la vaste bibliothèque de boîtes à outils prédéfinies, vous pouvez commencer directement par les algorithmes essentiels à votre domaine. L'environnement bureau encourage l'expérimentation, l'exploration et la découverte. Les outils et les fonctionnalités MATLAB sont tous testés rigoureusement. Ils sont conçus pour fonctionner conjointement [Wiki].

III.3 Modélisation des canaux de flux

Les plaques bipolaires ont un poids et un volume important dans la pile, par conséquent, il est souhaitable de les produire avec les plus petites dimensions possibles (largeur < 3 mm) surtout pour les applications portables et automobiles.

La géométrie des canaux de flux a un effet sur les vitesses d'écoulement des réactifs et le transfert de masse, et donc sur les performances de la pile à combustible. Par conséquent, la modélisation des canaux de champ d'écoulement est utile pour décider du transfert de masse optimal, de la perte de charge et de la gestion de l'eau des piles à combustible.

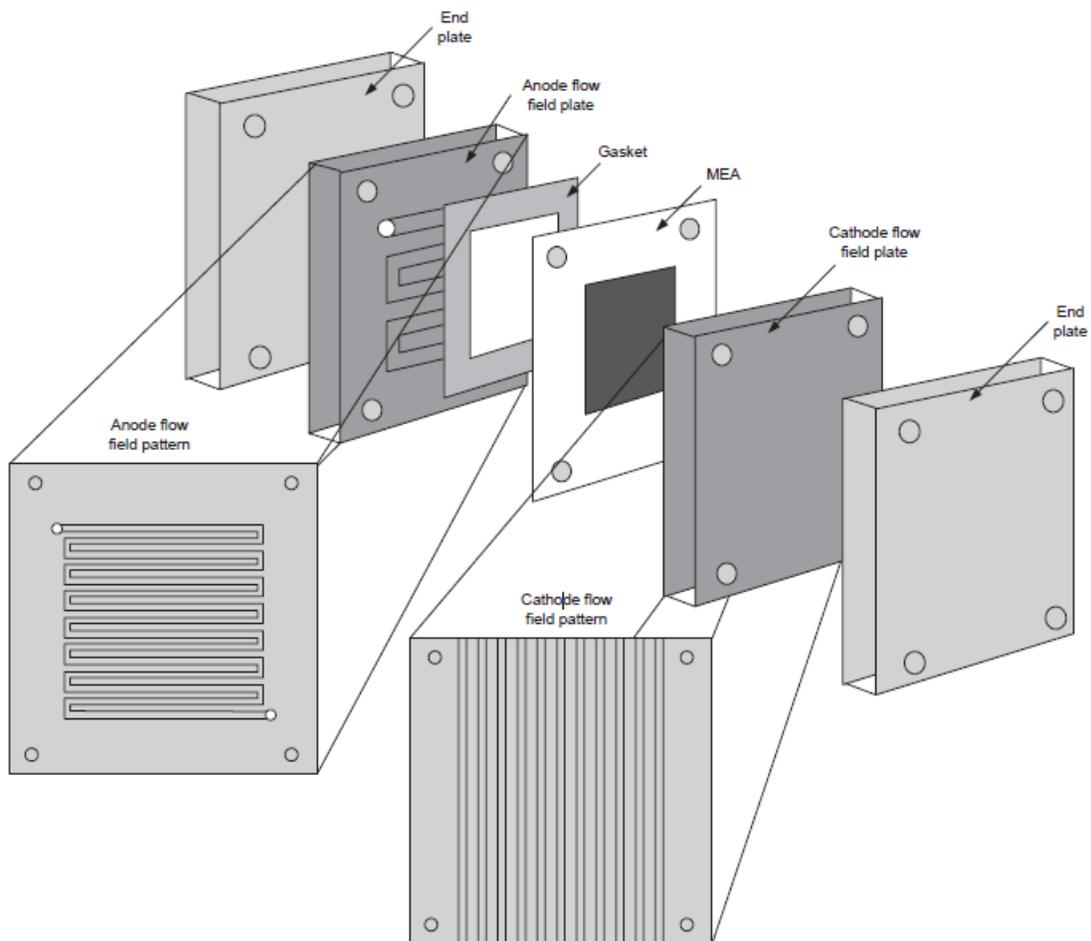


Figure III-1 Exemple d'un modèle de champ d'écoulement [66]

III.3.1 La mise en œuvre du modèle choisi

Tout d'abord, les hypothèses simplificatrices pour cette simulation sont les suivantes :

- Les gaz réactifs sont (H₂/Air).
- La température est supposée invariante dans toute la cellule.
- Les réactifs sont sous forme gazeuse dans les couches de diffusion (pas d'eau liquide).
- Les domaines (couches de diffusion et membrane) sont considérés isotropes et homogènes.
- La membrane est supposée isolante et imperméable aux gaz.
- Toutes les résistances électriques de contact sont négligées.

Les champs d'écoulement sont généralement disposés en un certain nombre de canaux parallèles comme le montre la figure (III.1). Par conséquent, la chute de pression le long d'un canal correspond également à la chute de pression dans tout le champ d'écoulement. Dans un canal de flux typique, le gaz se déplace d'une extrémité à l'autre à une certaine vitesse moyenne. La différence de pression entre l'entrée et la sortie détermine le débit du fluide. En augmentant la chute de pression entre la sortie et l'entrée, la vitesse augmente. Le flux à travers les canaux de la plaque bipolaire est typiquement laminaire et proportionnel au débit. La chute de pression peut être approximée à l'aide des équations du débit incompressible dans les conduites :

$$\Delta P = f \frac{L_{chan}}{D_H} \rho \frac{\bar{v}^2}{2} + \sum K_L \rho \frac{\bar{v}^2}{2} \quad \text{III.1}$$

Où :

- f est le facteur de friction
- L_{chan} est la longueur du canal (m)
- D_H est le diamètre hydrolique (m)
- ρ est densité du fluide (kg/m³)
- v est la vitesse moyenne (m/s)
- K_L est la résistance locale

Le diamètre hydraulique pour canal de flux circulaire est donné par :

$$D_H = \frac{4 \times A_c}{P_{cs}} \quad \text{III.2}$$

Où :

- A_c est la surface en coupe transversale (m^2)

- P_{cs} est le périmètre (m)

Pour un canal de flux rectangulaire :

$$D_H = \frac{2 \times w_c \times d_c}{w_c + d_c} \quad \text{III.3}$$

Où w_c est la largeur du canal et d_c est la profondeur.

La longueur du canal peut être défini par :

$$L_{chan} = \frac{A_{cell}}{N_{ch} (w_c + w_L)} \quad \text{III.4}$$

Où A_{cell} est la surface active de la cellule (m^2), N_{ch} est le nombre des canaux en parallèles et w_L est l'espace entre les canaux (m).

Le facteur de friction est défini par cette relation :

$$f = \frac{56}{Re} \quad \text{III.5}$$

La vitesse d'écoulement à l'entrée :

$$v = \frac{Q_{stack}}{N_{cell} N_{ch} A_{ch}} \quad \text{III.6}$$

Où :

- V est la vitesse dans le canal (m/s)

- Q_{stack} est le débit (air dans la cathode/ hydrogène dans l'anode) à l'entrée du canal (m^3/s)

Le débit d'air total du stack à l'entrée :

$$Q_{stack} = \frac{I}{4F} \frac{S_{O_2}}{r_{O_2}} \frac{RT_{in}}{P_{in} - \phi P_{sat}(T_m)} N_{cell} \quad \text{III.7}$$

Pour le coté anode :

$$Q_{stack} = \frac{I}{2F} \frac{S_{H_2}}{r_{H_2}} \frac{RT_{in}}{P_{in} - \phi P_{sat}(T_m)} N_{cell} \quad \text{III.8}$$

Où :

- I est le courant du stack (A)
- S ratio stœchiométrique
- r_{O_2} et r_{H_2} , l'oxygène disponible dans l'air (21% et le reste nitrogène 79%) et l'hydrogène utiliser (99%).

Remarque : Les flux liquide ou gaz confinés dans les canaux peuvent être laminaires, turbulents ou transitoires et se caractérisent par un nombre important sans dimension connu sous le nom de Nombre de Reynold (Re). Ce nombre est le rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses et il est donné par :

$$Re = \frac{\rho v_m D_{ch}}{\mu} = \frac{v_m D_{ch}}{\nu} \quad \text{III.8}$$

Ou :

- V_m est la vitesse caractéristique du débit (m/s)
- D_{ch} est le diamètre du canal (m)
- ρ est la densité de flux (kg/m^3)
- μ est la viscosité du fluide

Lorsque Re est petit (<2300), le débit est laminaire. Lorsque Re est supérieur à 4000, le débit est turbulent, ce qui signifie qu'il a des fluctuations aléatoires. Lorsque Re est compris entre 2300 et 4000, il est connu qu'il se situe dans la plage « transitionnelle », où le débit est principalement laminaire, avec éclats occasionnels de comportement irrégulier. On constate que, quelle que soit la taille ou la vitesse du canal, $f * Re = 16$ pour les canaux circulaires.

Tableau III-1 Données utiliser dans la simulation

Paramètres	Unités	Valeurs
F Constante de Faraday	–	96 485
R	–	8.134
T_in	K	333
P_in	Pa	101 325
Psi (Humidité relative)	–	1
P_sat	Pa	19 944
N_cell	–	1
wc	cm	0.1 (deux cas)
dc	cm	0.1 et 0.15 (cathode)
A_cell	m ²	100
N_ch	–	1 :50
wl	cm	0.1
be	–	0
n (Anode/cathode)	–	(2/4)
i	A/cm ²	0.7
S_O2	–	1

S_H2	–	2
X_O2	–	0.21
X_H2	–	0.99
M_air	g/mol	28
M_H2	g/mol	2
M_H2O	g/mol	18
u (anode/cathode)	g/cm.s	(0.00001/0.00002)

III.4 Résultats et interprétations

III.4.1 Dans le coté Anode (l'hydrogène)

Les résultats du premier fichier script sont données dans cette partie, les différents paramètres utilisés sont donnés dans le tableau (III.1)

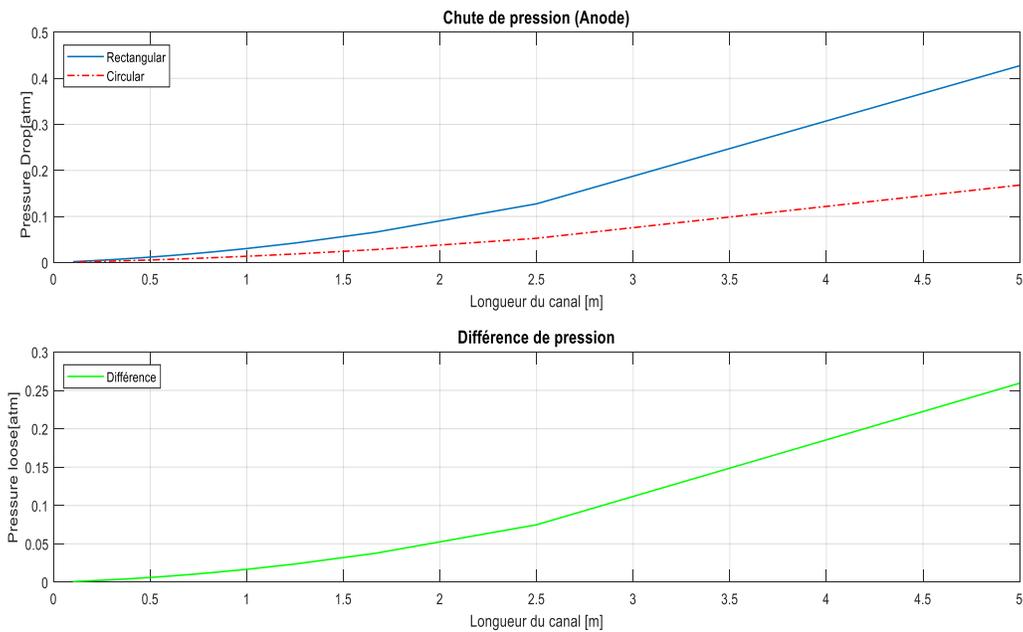


Figure III-2 Comparaison entre les chutes de pression tout au long du canal
(Hydrogène)

Dans la première partie (figure en haut) de la figure (III.2) on a les deux graphes qui représentent la chute de pression pour la forme rectangulaire et circulaire. Les deux formes ne présentent pas de perte initialement (à $L=0$ m), à ($L=0.5$ m) la différence commence à se voir, et a la fin du contour on trouve que la chute de pression pour la géométrie rectangulaire atteint une valeur de 0.42 Atm tandis que la géométrie circulaire a une valeur de 0.18 Atm.

La deuxième partie de la figure présente la différence entre les deux géométries tout au long du canal, elle arrive jusqu'à 0.25 Atm et donc la différence est flagrante.

La chute de pression est un paramètre important pour déterminer les performances de la pile, donc ces résultats seront importants pour appuyer notre choix.

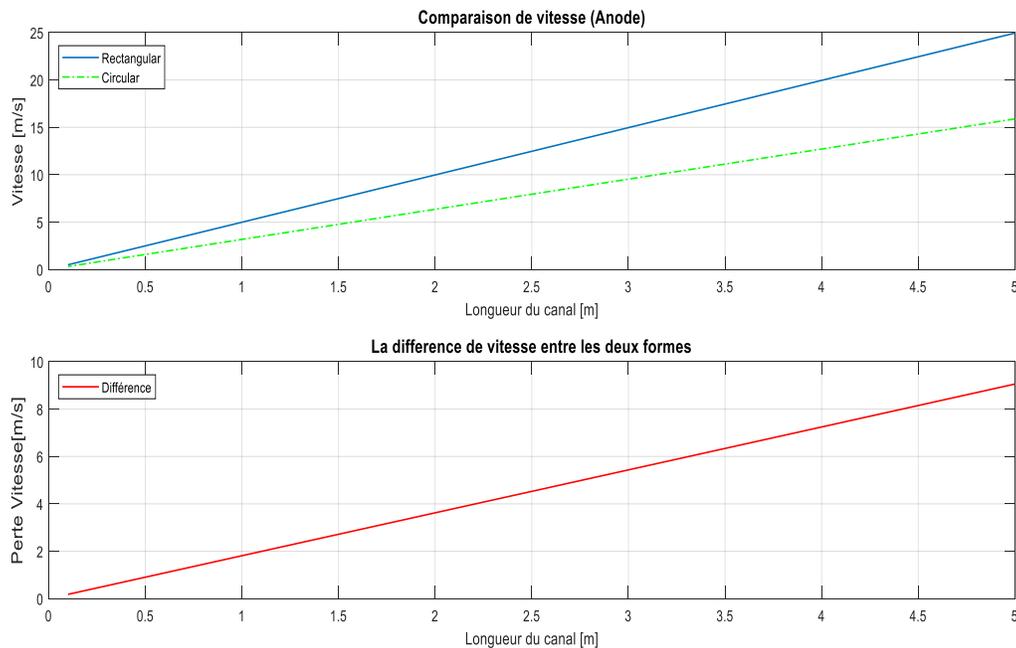


Figure III-3 Comparaison entre les vitesses d'entrées (Hydrogène)

Les deux graphes des vitesses ont une forme linéaire, ils sont en relation étroite avec le débit d'entrée et la surface de la géométrie utilisée.

La figure (III.3) montre clairement que pour cette fois, c'est la géométrie rectangulaire qui l'emporte, puisqu'elle présente une meilleure vitesse d'entrée, ceci est dû notamment à la différence des deux sections (la section pour la forme circulaire est supérieure à la forme rectangulaire).

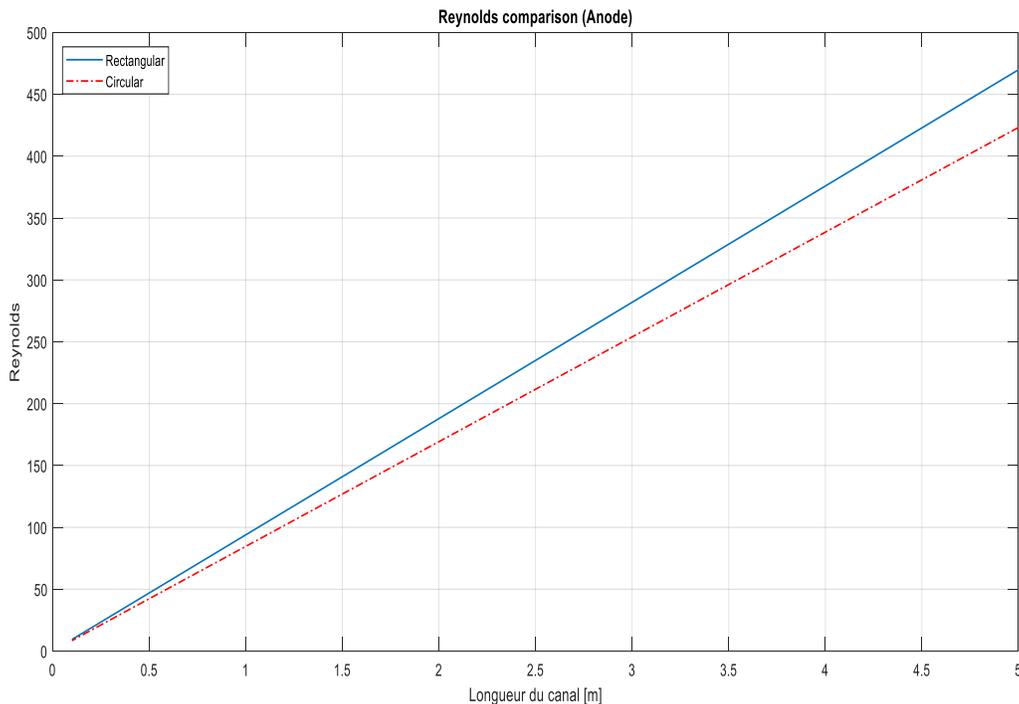


Figure III-4 Comparaison entre le nombre de Reynolds (Anode)

La figure (III.4) nous montre la différence pour le nombre de Reynolds entre les deux géométries, cette différence est insignifiante, puisque ce paramètre est utilisé généralement pour déterminer quel coefficient utilisé dans le calcul du transfert de chaleur à partir des canaux, la conduction du transfert de chaleur peut être approximé si le nombre de Reynolds nous indique qu'on est dans un régime laminaire ($Re < 2400$) ce qui est le cas ici, donc du moment qu'on est dans le même régime on considère qu'ils sont égaux.

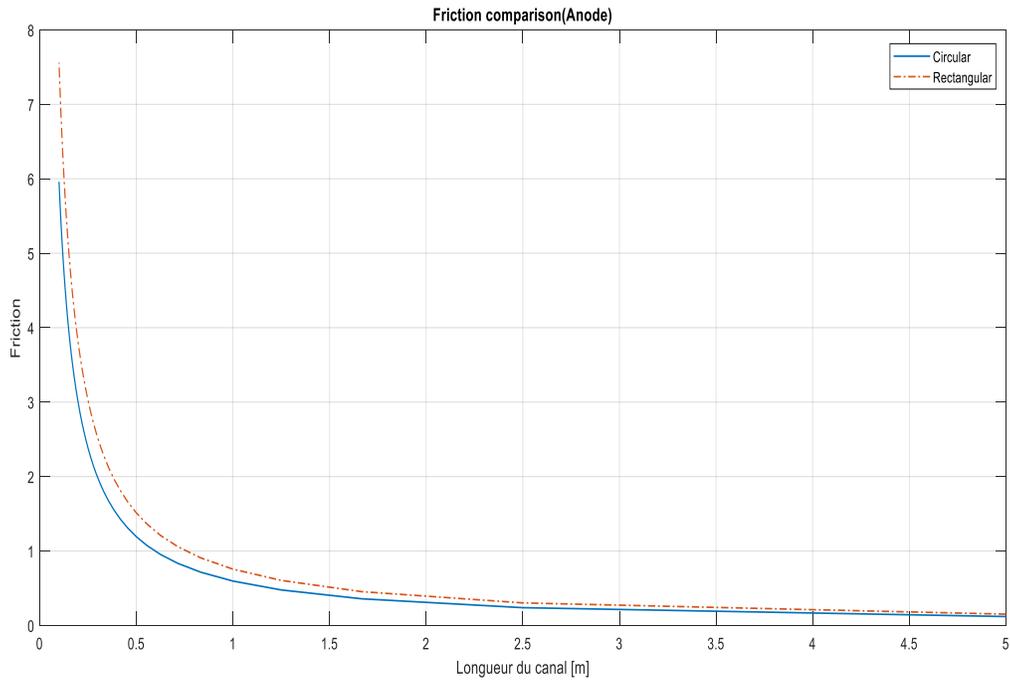


Figure III-5 Comparaison entre les frottements (Anode)

La figure (III.5) nous donne l'évolution du facteur de frottement au long du canal, on remarque que le frottement est important au début et il commence à baissé jusqu'à atteindre des valeurs presque nul. Dans la même figure on remarque aussi que le facteur de frottement pour la géométrie rectangulaire est légèrement supérieur au circulaire.

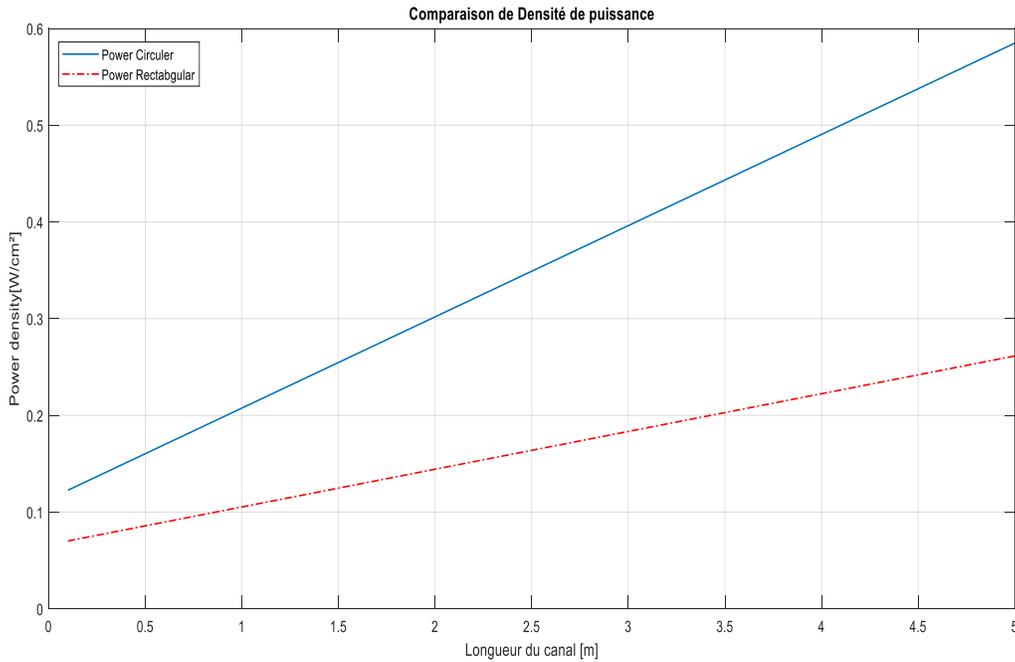


Figure III-6 Comparaison entre les densités de puissances

Les résultats trouver dans cette la figure (III.6) sont calculé à partir de la loi de Darcy et les lois de transfert de la matière, on remarque clairement que la densité de puissance pour la géométrie circulaire est plus importante que celle en rectangulaire. Donc nous avons une idée sur la géométrie optimale pour le canal d'hydrogène.

III.4.2 Dans le coté cathode (air)

De la même manière que la partie précédente, on va procéder a quelques comparaisons des variables les plus important, et nous allons voir si la même logique s'applique au canal d'air (coté cathode)

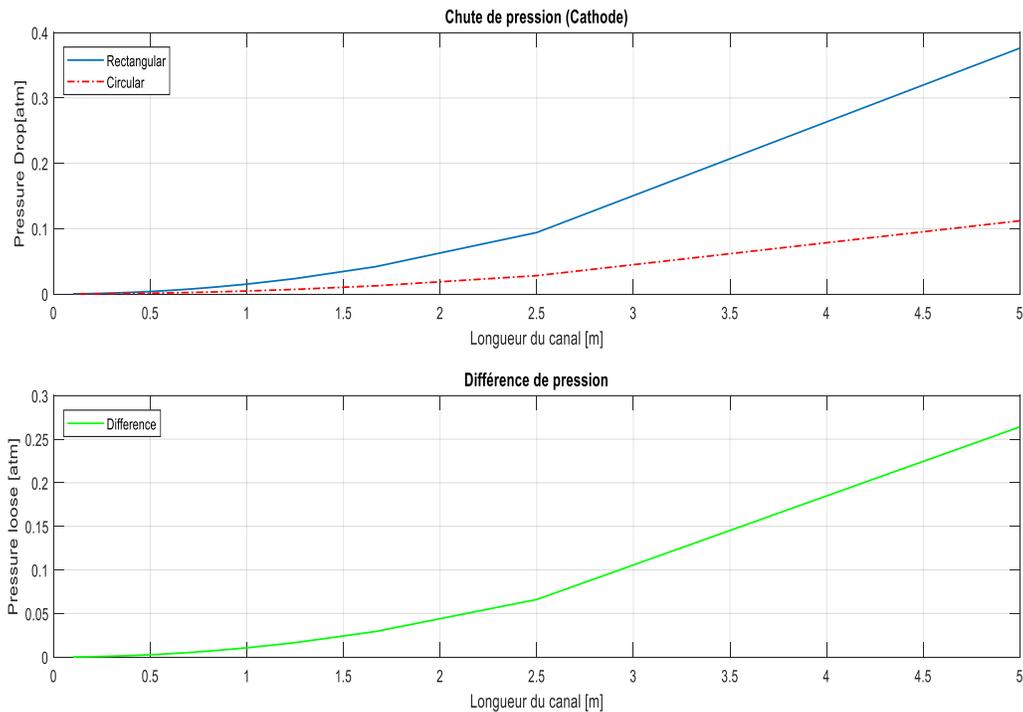


Figure III-7 Comparaison entre les chutes de pression (Oxygène)

Tout comme la première partie (Coté anode) la figure (III.7) nous donne les deux courbes qui représentent la chute de pression pour la forme rectangulaire et circulaire pour le canal de flux d'oxygène cette fois-ci. Les deux formes ne présentent pas de perte initialement (à $L=0$ m), cette fois-ci la différence ne commence à se voir qu'à ($L=0.8$ m), et a la fin de la longueur du canal on trouve que la chute de pression pour la géométrie rectangulaire atteint une valeur de 0.39 Atm tandis que la géométrie circulaire a une valeur de 0.11 Atm.

La deuxième partie de la figure présente la différence entre les deux géométries tout au long du canal, elle à peu près la même que dans celle trouvé dans la 1ère partie.

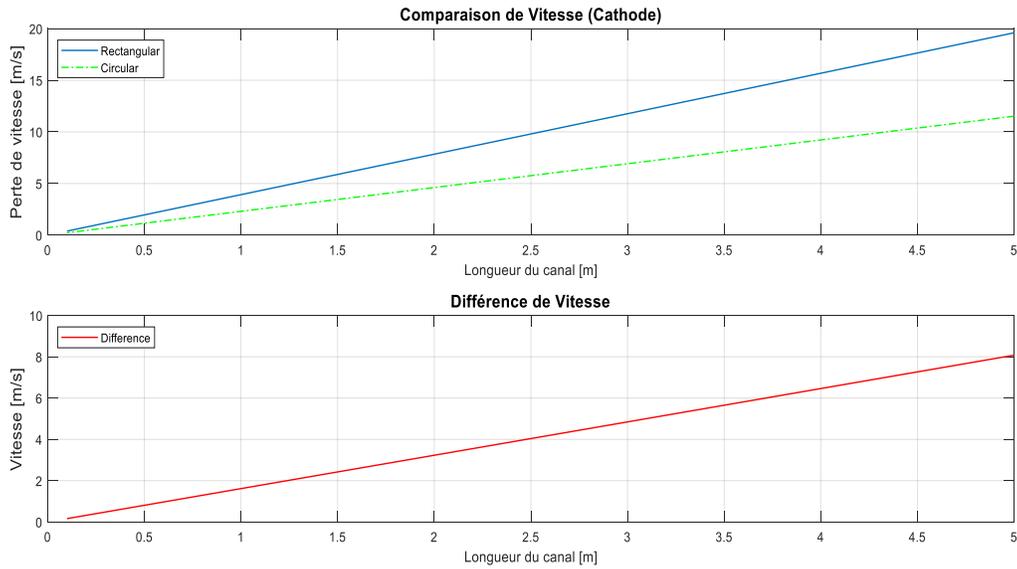


Figure III-8 Comparaison entre les vitesses d'entrées (Oxygène)

La figure (III.8) montre également le même résultat trouvé dans le coté anode, c'est la géométrie rectangulaire qui l'emporte, puisqu'elle présente une meilleure vitesse d'entrée, ceci est due à la différence des deux sections (la section pour la forme circulaire est supérieure à la forme rectangulaire).

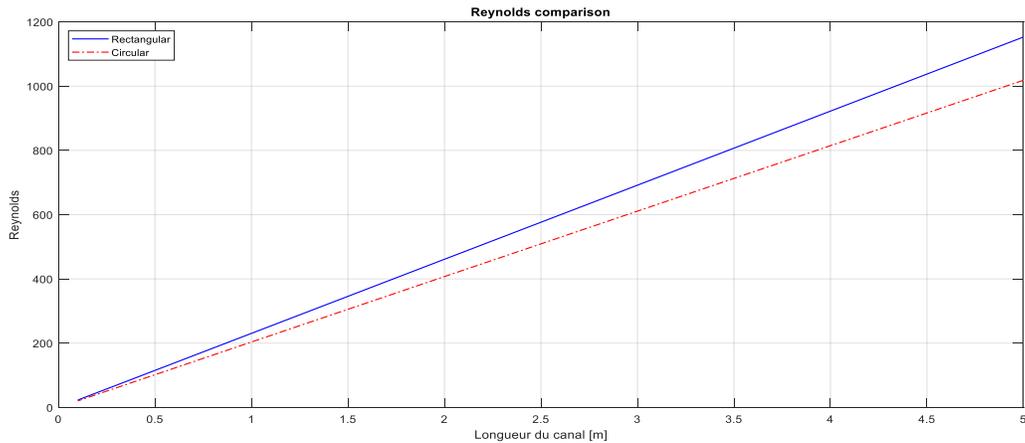


Figure III-9 Comparaison entre le nombre de Reynolds (Cathode)

La figure (III.9) nous montre la différence pour le nombre de Reynolds entre les deux géométries, même déduction que dans la partie anode, à une différence près est Re dans la partie cathode arrive jusqu'à la valeur de 1200 comparé a 420 dans la partie anode.

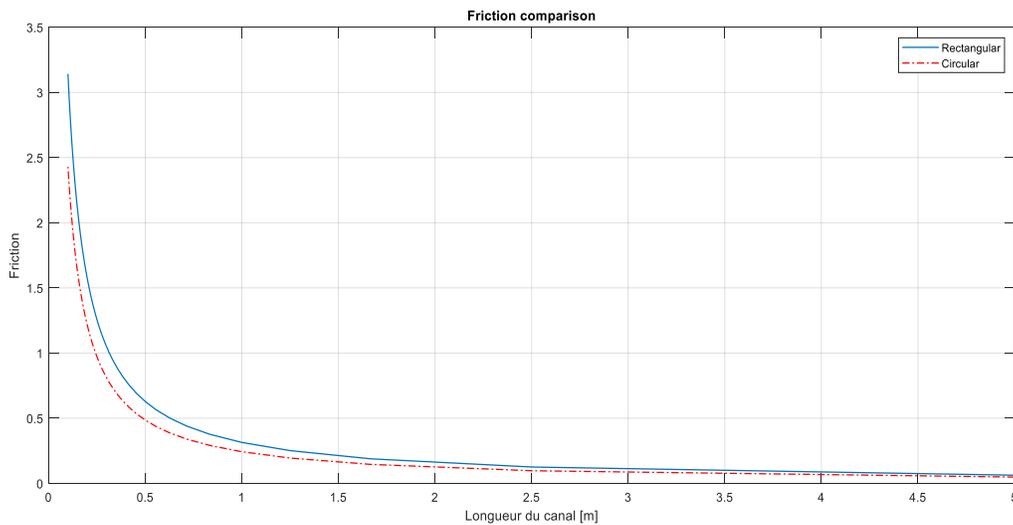


Figure III-10 Comparaison entre les facteurs de frottements (Cathode)

La figure (III.10) nous donne l'évolution du facteur de frottement au long du canal, on remarque dans cette partie aussi des ressemblances similaires au côté anode, le frottement est important au début et il commence à baisser jusqu'à atteindre des valeurs presque nul. Le facteur de frottement pour la géométrie rectangulaire est légèrement supérieur au circulaire.

III.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons réalisé un modèle linéaire qui nous a permis de voir l'influence du changement de la géométrie de flux, en utilisant deux formes différentes (rectangulaire et circulaire). A travers les différents résultats trouvés dans la simulation on a pu conclure que la géométrie circulaire est mieux que celle rectangulaire, surtout à cause des chutes de pression qui sont plus importantes dans la géométrie rectangulaire. Ces résultats nous ont finalement amenés à voir que la puissance débitée par la pile sera un peu plus importante lorsqu'on utilise une géométrie circulaire pour les canaux de flux, Pourtant dans la littérature, et donc la pratique on utilise plus souvent une géométrie rectangulaire, ceci est dû à la complexité de mise en évidence de la géométrie circulaire, donc la majorité des constructeurs privilégie les modèles simples rectangulaire et estiment que cette différence de puissance n'est pas plus importante que le coût de fabrication.

CONCLUSIONS GÉNÉRALES ET PERSPECTIVES

Bien que la pile PEM est un convertisseur électrochimique ayant un principe de fonctionnement assez simple, on ne pas en dire autant pour son assemblage et sa configuration interne complexe qui regroupe plusieurs phénomènes et plusieurs domaines d'étude. De la propriété des matériaux, de la mécanique des fluides, transfert de chaleur... etc. Pour assurer le bon fonctionnement de la pile, et pour améliorer ses performances, la compréhension des ces différents phénomènes devient indispensable.

L'objectif principal de ce mémoire était d'étudier l'influence d'un changement de géométrie dans les canaux de flux sur la puissance délivrée par la pile. Il semble être atteint, même si beaucoup de points reste à éclaircir et d'autres à faire, nous les verrons après dans perspectives

Dans la première partie de ce travail, nous avons réalisé un modèle linéaire qui nous a permis de voir l'influence du changement de la géométrie de flux, en utilisant deux formes différentes (rectangulaire et circulaire). A travers les différents résultats trouvés dans la simulation on a pu conclure que la géométrie circulaire est mieux que celle rectangulaire, surtout à cause des chutes de pression qui sont plus important dans la géométrie rectangulaire.

Ces résultats nous ont finalement amener à voir que la puissance débité par la pile sera un peur plus importante lorsqu'on utilise une géométrie circulaire pour les canaux de flux, Pourtant dans la pratique on utilise plus souvent une géométrie rectangulaire, ceci est due à la complexité de mise en évidence de la géométrie circulaire, donc la majorités des constructeurs privilégies les modèles simples rectangulaire et estiment que cette différence de puissance n'est pas plus importante que le cout de fabrication.

D'autres géométries sont utilisées généralement pour des applications spécifiques, dans notre étude nous nous sommes intéresser qu'a deux formes, alors que dans la pratique il existe plus de cinq formes, chacune présentant des avantages et des inconvénients.

L'utilisation d'un autre logiciel tel que COMSOL, ANSYS, est fortement recommandé, ces logiciels peuvent faciliter grandement la tâche, et ils disposent des modèles 3D prédéfinis qui peuvent être directement utiliser grâce a leur interface simple d'utilisation. Des équations plus élaborées et plus précises sont utilisées dans ces logiciel, donc les résultats trouvés seront plus précis.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUE

- [1] U.S. Energy Information Administration, *How much energy is consumed in the world by each sector?* URL: <http://www.eia.gov/tools/faqs/faq.cfm?id=447&t=3>
- [2] OBSERV'ER, « 6e Bilan. Etat des Energies Renouvelables en Europe », *Rapport technique*, EurObserv'ER, 2006.
- [3] Rémi SAISSET, *Contribution à l'étude systémique de dispositifs énergétiques à composants électrochimiques*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2 Avril 2004.
- [4] *Historique des Piles à combustible*
URL: <https://tpepilecombustible.wordpress.com/category/i-la-pile-a-combustible-historique-et-fonctionnement/> Consulté le 02 janvier 2019
- [5] B. GOU, W. KI NA and B. DIONG, "FUEL CELLS: Modeling, Control, and Applications," CRC Press Taylor & Francis Group, 2010.
- [6] GUPTA R.B, *Hydrogen Fuel: Production, Transport and Storage*, CRC Press, Boca Raton, 2008
- [7] *Les piles a combustible*
URL: <https://diren.mines-paristech.fr/Sites/Thopt/DiapJS/S60.html> Consulté le 22 février 2019
- [8] URL : <https://www.netinform.net/H2/Start.aspx> Consulté le 15 mars 2019
- [9] URL : <https://jancovici.com/transition-energetique/transports/que-peut-on-espérer-des-piles-a-combustible-et-de-l-hydrogene/> Consulté le 06 janvier 2019
- [10] R. Jiang and D. Chu. *Stack design and performance of polymer electrolyte fuel cells*. *Journal of Power Sources*, 93 :25-31, 2001.
- [11] Sylvain CHUPIN, *Comportement local et performances électrique d'un pile à membrane : vers un outil de diagnostic*. Thèse de doctorat. Université du Québec à Trois-Rivières. 11 décembre 2009
- [12] Guillaume Fontès, "Modélisation et caractérisation de la pile PEM pour l'étude des interactions avec les convertisseurs statiques ", thèse au Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, 2005, INPL, France.)
- [13] B. BLUNIER, A. MIRAOUI, "Piles à combustible - Principes, modélisation, application", éditions Ellipses - Technosup, 2007
- [14] Vincent Reguillet. *Caractérisation d'un système pile à combustible en vue de garantir son démarrage et fonctionnement à température ambiante négative*. *Energie électrique*. Université de Franche-Comté, 2013. Français. <NNT : 2013BESA2035>. <tel-01175993>
URL: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01175993>
- [15] BOUDELLAL M. *La Pile À Combustible - Structure, Fonctionnement, Applications* 2007

- [16] *Fuel Cell Systems Explained, Second Edition. Author(s):. James Larminie · Andrew Dicks. First published:18 February 2003. Print ISBN:9780470848579*
- [17] *S. Escribano, P. Aldebert, and M. Pineri. Volumic electrodes of fuel cells with polymer electrolyte membranes: electrochemical performances and structural analysis by thermoporometry. Electrochimica Acta, 43(14-15) :2195-2202,1997.*
- [18] *Sylvain CHUPIN, Comportement local et performances électrique d'une pile à membrane : vers un outil de diagnostic. Thèse de doctorat. Université du Québec à Trois-Rivières. 11 décembre 2009.*
- [19] *APPLEBY A., FOULKES F.R, Fuel Cell Handbook, Van Nostrand Reinhold New York 2008*
- [20] *Julien Ramousse. Transferts couplés masse-charge-chaleur dans une cellule de pile à combustible à membrane polymère :. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2005 : tel-0175252*
- [21] *J. Chen, H. Xu, H. Zhang, B. Yi. Facilitating mass transport in gas diffusion layer of PEMFC by fabricating micro-porous layer with dry layer preparation. Journal of Power Sources, 182 : 531-539, 2008.*
- [22] *J.P. Owejan, J.E. Owejan, W. Gu, T.A. Trabold, T.W. Tighe, M.F. Mathias. Water transport mechanisms in PEMFC gas diffusion layers. Journal of The Electrochemical Society, 157 : B1456-B1464, 2010.*
- [23] *K. Karan, H. Atiyeh, A. Phoenix, E. Halliop, J. Pharoah, B. Peppley. An experimental investigation of water transport in PEMFCs. Electrochemical and Solid-State Letters, 10 : B34-B38, 2007.*
- [25] *H.K. Atiyeh, K. Karan, B. Peppley, A. Phoenix, E. Halliop, J. Pharoah. Experimental investigation of the role of a microporous layer on the water transport and performance of a PEM fuel cell. Journal of Power Sources, 170 : 111-121, 2007.]*
- [26] *8 février 2019: Cette liste fournit un instantané des véhicules disponibles. L'AFDC héberge une base de données en ligne (afdc.energy.gov/vehicles/search).
<https://afdc.energy.gov/vehicles/how-do-fuel-cell-electric-cars-work>*
- [27] *Hydrogen Fuel Cell -Hydrogen Fuel-Cel Cars
URL : <http://www.automotivetechnologies.com/hydrogen-fuel-cell-cars> consulté le 27 février 2019*
- [28] *Fonctionnement des voitures électriques, URL :
<http://www.fiches-auto.fr/articles-auto/fonctionnement-d-une-auto/s-1946-fonctionnement-d-une-voiture-electrique.php> Consulté le 28 février 2019*
- [29] *Benefits and Challenges URL: https://www.fueleconomy.gov/feg/fcv_benefits.shtml
Consulté le 03 mars 2019*
- [30] *S. B. Beale. Calculation procedure for mass transfer in fuel cells. Journal of Power Sources, 128 :185{192, 2004.*
- [31] *A. Biyikoglu. Review of proton exchange membrane fuel cell models. International journal of hydrogen energy, 30 :1181{1212, 2005.*

- [32] S. Bories and M. Prat. *Transfert de chaleur dans les milieux poreux. Technical Report B 8 250, Techniques de l'ingénieur, traite de Génie énergétique.*
- [33] P. Choi and R. Datta. *Sorption in proton-exchange membranes - an explanation of schroeder's paradox. Journal of Electrochemical Society, 150(12) :E601{ E607, 2003.*
- [34] HydroGenLLC: <http://www.hydrogenllc.net/hydrov2/>
- [35] Bautista M., Bultel Y., Ozil P., "Polymer electrolyte membrane fuel cell modelling : d.c. and a.c.solutions", *Chemical Engineering Research and Design*, vol 82, 2004
- [36] Julien RAMOUSSE, *Transferts couplés Masse – Charge – Chaleur dans une cellule de pile à combustible à membrane polymère. Thèse de doctorat. Institut National Polytechnique de Lorraine. 26 Novembre 2005.*
URL: http://pegase.scd.inpl-nancy.fr/theses/2005_RAMOUSSE_J.pdf
- [38] C. Gittleman, S. Jorgensen, J. Waldecker, S. Hirano, M. Mehall. *Automotive fuel cell R&D needs. In DOE fuel cell pre-solicitation workshop, Department of Energy, 2010*
- [39] R. Borup, J. Davey, H. Xu, A. Ofstad, F. Garzon, B. Pivovar. *PEM fuel cell durability. In 2008 DOE hydrogen program review June, 9-13, 2008.*
http://www.hydrogen.energy.gov/pdfs/review08/fc_26_borup.pdf
- [40] W. Schmittinger, A. Vahidi. *A review of the main parameters influencing longterm performance and durability of PEM fuel cells. Journal of Power Sources, 180 : 1-14, 2008.*
- [41] Y. Wang, K.S. Chen, J. Mishler, S.C. Cho, X.C. Adroher. *A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: Technology, applications, and needs on fundamental research. Applied Energy, 88 : 981–1007, 2011.*
- [42] Spiegel C., *Designing and building fuel cells, 2007, Mc Graw Hill, 1st ed., New York, USA.*
- [43] Bilal ABDEREZZAK, *Contribution à l'étude des transferts couplés au cœur d'une pile à combustible à basse température, Thèse de doctorat. Université de chlef. 2015.*
- [44] Li, Xianguo. *Principles of Fuel Cells.2006. New York: Taylor & Francis Group.*
- [45] F. Barbir, H. Gorgun, X. Wang, "Relationship between pressure drop and cell resistance as a diagnostic tool for PEM fuel cells", *Journal of Power Sources, Volume 141, Issue 1, 16 February 2005, Pages 96-101*
- [46] Barbir F., *PEM Fuel Cells: Theory and Practice, 2005, Elsevier Academic Press, 1st ed., Oxford, UK.* F. Barbir, H. Gorgun, X. Wang, "Relationship between pressure drop and cell resistance as a diagnostic tool for PEM fuel cells", *Journal of Power Sources, Volume 141, Issue 1, 16 February 2005, Pages 96-101*
- [47] André Lallemand. *Energétique, Phénomènes de Transfert, 2012.Ellipses, Technosup.*
- [48] Dinh An NGUYEN, *Modélisation dynamique du cœur de pile a combustible de type PEM, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 09 Juillet 2010.*
URL : http://docnum.univ-lorraine.fr/public/INPL/2010_NGUYEN_D_A.pdf
- [49] T E Springer, T A Zawodzinski, S Gottesfeld, *Polymer electrolyte fuel cell model, Journal of the Electrochemical Society, 138 (8), 1991, pp 2334-2342.*

- [50] N Djilali, D Lu. *Influence of Heat Transfer on Gas and Water Transport in Fuel Cells. International Journal of Thermal Sciences.* 41:29 – 40, 2002.
- [51] R B Bird, W E Stewart, E N Lightfoot. *Transport Phenomena, 2nd ed, New York, John*
- [52] T E Springer, T A Zawodzinski, S Gottesfeld, *Polymer electrolyte fuel cell model, Journal of the Electrochemical Society,* 138
- [53] Berg, Peter & Promislow, Keith et al.(2003). *Water management in PEM fuel cells. Journal of The Electrochemical Society.* 23. 10.1149/1.1641033.
- [54] Feindel, K.W.; Bergens, S.H.; Wasylshen, R.E. *The influence of membrane electrode assembly water content on the performance of a polymer electrolyte membrane fuel cell as investigated by 1H NMR microscopy. Phys. Chem. Chem. Phys.* 2007, 9
- [55] Teranishi, K.; Tsushima, S.; Hirai, S. *Analysis of water transport in PEFCs by magnetic resonance imaging measurement. J. Electrochem. Soc.* 2006, 153, A664-A668.
- [56] Yousfi S., Hissel, D& al. *A review on PEM voltage degradation associated with water management : Impacts, influent factors and characterization. J. Power Sources* 2008.
- [57] S Mazumder, J V Cole, *Rigorous 3-D Mathematical Modeling of PEM Fuel Cells, Journal of the Electrochemical Society, Vol 150, No. 11, 2003*
- [58] Zhang J, Song C, Xia Z, Wang H, et al. *Effect of relative humidity on PEM fuel cell performance at elevated temperatures*
- [59] Song C, Chaojie & Tang Y, Yanghua J et al. (2007). *PEM fuel cell reaction kinetics in the temperature range of 23–120°C. Electrochimica Acta.* 52. 2552-2561. 10.1016/j.electacta.2006.09.008.
- [60] Wagner HA, *Space – shuttle fuel cell, dans “Handbook of Fuel Cells, Fundamentals technology and application, Vol 4, p. 1224 – 1229. Wiley, 2003.*
- [61] Hirschenhofer JH et al, *The Fuel Cell Handbook, 4th ed, 1998. Reading, PA: Parsons Corporation.*
- [62] C Y Wang, *Fundamentals Models for Fuel Cell Engineering, Chemical Reviews, vol 104, pp 4727 – 4766, 2004.*
- [63] A Z Weber, J Newman, *Modeling Transport in Polymer Electrolyte Fuel Cells, Chemical Reviews, vol 104, pp 4679 – 4726, 2004.*
- [64] C Siegel, *Review of computational heat and mass transfer modeling in polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cells, Energy, vol 33, pp. 1331-1352, 2008.*
- [65] K. Kinoshita, *Electrochemical Oxygen Technology, The Electrochemical Society Series, Wiley-Interscience, 1992, ISBN : 0-471-57043-5*
- [66] Colleen Spiegel :*PEM Fuel Cell Modeling and Simulation Using Matlab 1st Edition 2006*

ANNEXE A – FICHER MATLAB 1

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% L'influence de la géométrie des canaux de flux sur la puissance
% Oxygen (Cathode side)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
clc;
clear all
% Inputs
F = 96485; % Faraday constant
R = 8.314; % Universal gas constant
T_in = 333.15; % Inlet temperature (K)
P_in = 101325; % Inlet pressure (Pa)
psi = 1; % Relative humidity
P_sat = 19944; % Saturation pressure (Pa)
N_cell = 1; % Number of cells in the stack
wc = 0.1; % Channel width (cm);
dc = 0.15; % Channel depth (cm);
N_ch = 1:50; % Number of parallel channels
wl = 0.1; % Space between channels (cm)
be = 0; % # of bends
n = 4; % Cathode
A_cell = 100; % Active cell area (cm^2)
i = 0.7; % Cell current (A/cm^2)
I = i*A_cell; % Stack current (A)
S_O2 = 1; % Stoichiometric ration for O2
x_O2 = 0.21; % O2 content in the air
M_air = 28.96; % Molecular weight of air (g/mol)
M_H2O = 18; % Molecular weight of water (g/mol)
u = 0.0002; % Viscosity air (g/cms)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Calculate Pressure drop in flow channels (Cathode side)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Hydraulic diameter
diametre_rectangle=sqrt((wc^2)+(dc^2));
Ac=(3.14.*(diametre_rectangle^2))/4;% Circular cm^2
A_ch = wc*dc; % Channel area rectangular shape
P_cs=3.14.*diametre_rectangle;
Dhcirc=(4*Ac)./P_cs; % circular flowfield
Dh =(2*wc.*dc)./(wc + dc); % rectangular flowfield
% Channel length
Lc = A_cell ./ (N_ch*(wc + wl));
Lcirc = A_cell ./ (N_ch*((2*(wc +dc))/3.14)+ wl));
% Flow rate at the fuel cell stack entrance (m^3/s) (anode)
Q_stack = (I ./ (n*F)).*(S_O2 ./ x_O2).*((R.*T_in) ./ (P_in-
(psi.*P_sat))).*N_cell; % m^3/s
Q_stack1 = Q_stack.*1000000; % convert to cm^3/s
% Velocity in a fuel cell channel at the channel entrance
v = Q_stack1 ./ ((N_cell).*N_ch.*A_ch);% cm/s
vcirc=Q_stack1 ./ ((N_cell).*N_ch.*Ac);% cm/s
% Reynold's number at the channel entrance
R1 = 8314;
den = ((P_in-P_sat)*M_air)+(P_sat*M_H2O))./(R1*T_in);% kg.m^3
den1 = den ./1000; % convert to g.cm^3

```

```

Re = (den1.*v.*Dh)./u;
Recirc=(den1.*vcirc.*Dhcirc)./u;
% Friction Factor
f = 56./Re; % for rectangular fields
fcirc=64./Recirc; % for circular fields
% Pressure Drop
Lc1 = Lc./100;
Lcirc1=Lcirc./100;
Dh1 = Dh./100;
Dhcirc1=Dhcirc./100;
v1 = v./100;
vcirc1=vcirc./100;
Kl = be.*30.*f;
Klcirc=be.*30.*fcirc;
P = (f.*(Lc1./Dh1).*den.*((v1.^2) ./ 2))+(Kl.*den.*((v1.^2)./2)); %pressur
Pcirc = (fcirc.*(Lc1./Dhcirc1).*den.*((vcirc1.^2) ./
2))+(Klcirc.*den.*((vcirc1.^2)./2));
P_atm = P.*9.86923e-6; % Convert from Pa to atm
P_atmcirc = Pcirc.*9.86923e-6; % Convert from Pa to atm
delta_p=P_atm-P_atmcirc;
delta_v=v1-vcirc1;
kd=5e-12;% coeff de darcy (m²)
u_o2=2e-5;%gas viscosity (pa)
V_cell=0.7; % (V)
Qc = (Pcirc.*kd*Ac*10e-4) ./ (Lcirc1.*u_o2); % Volumetric flow rate (m³/s)
Qc1= Qc./0.00042; %flow rate (kg/s)
Qr = (P.*kd*A_ch*10e-4) ./ (Lc1.*u_o2); % Volumetric flow rate (m³/s)
Qr1= Qr./0.00042; %flow rate (kg/s)
Pc=(Qc.*4*F*V_cell)/Ac;
Pr=(Qr.*4*F*V_cell)/A_ch;
%Graph Generation
figure(1)
subplot(2,1,1)
plot (Lc1,P_atm,Lc1,P_atmcirc,'-.')
title('Chute de pression (Cathode)')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Pressure Drop[atm]')
legend({'Rectangular', 'Circular'}, 'location', 'northwest')
grid on
subplot(2,1,2)
plot (Lc1,delta_p)
title('Différence de pression')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Pressure loose [atm]')
legend({'Difference'}, 'location', 'northwest')
grid on
figure(2)
subplot(2,1,1)
plot (Lc1,v1,Lc1,vcirc1,'-.')
title('Comparaison de Vitesse')
xlabel('Channel length [m]')
ylabel('velocity loose[m/s]')
legend({'Rectangular', 'Circular'}, 'location', 'northwest')
grid on
subplot(2,1,2)

```

```

plot (Lc1,delta_v)
title('Différence de Vitesse')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Vitesse [m/s]')
legend({'Difference'}, 'location', 'northwest')
grid on
figure(3)
plot (Lc1,Re,Lc1,Recirc,'-.')
title('Reynolds comparison')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Reynolds')
legend({'Rectangular', 'Circular'}, 'location', 'northwest')
grid on
figure(4)
plot (Lc1,fcirc,Lc1,f,'-.')
title('Friction comparison')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Friction')
legend({'Rectangular', 'Circular'}, 'location', 'northeast')
grid on
figure(5)
plot (Lc1,Pr,Lc1,Pc,'-.')
title('Power density')
xlabel('Longueur du canal [m]')
ylabel('Power density [W/cm²]')
legend({'Power Circular Shape', 'Power Rectangular
Shape'}, 'location', 'northwest')

```

```

grid on

```

ANNEXE B – FICHER MATLAB 2

```

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% L'influence de la géométrie des canaux de flux sur la puissance
% Hydrogen (Anode side)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
clc;
clear all;
% Inputs
F = 96485; % Faraday's constant
R = 8.314; % Universal gas constant
T_in = 333.15; % Inlet temperature (K)
P_in = 101325; % Inlet pressure (Pa)
psi = 1; % Relative humidity
P_sat = 19944; % Saturation pressure (Pa)
N_cell = 1; % Number of cells in the stack
wc = 0.1; % Channel width (cm);
dc = 0.1; % Channel depth (cm);
N_ch = 1:50; % Number of parallel channels
wl = 0.1; % Space between channels (cm)
be = 40; % # of bends
n = 2; % Anode
A_cell = 100; % Active cell area (cm^2)
i = 0.7; % Cell current (A/cm^2)
I = i*A_cell; % Stack current (A)
S_H2 = 2; % Stoichiometric ration for O2
x_H2 = 0.99; % H2 utilization
M_H2 = 2,01588; % Molecular weight of air
M_H2O = 18; % Molecular weight of water
u = 0.0001; % Viscosity hydrogen (g/cms)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Calculate Pressure drop in flow channels (Cathode side)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Hydraulic diameter
diametre_rectangle=sqrt((wc^2)+(dc^2)); % (cm)
A_ch = wc*dc; % Channel area rectangular shape (cm^2)
Ac=(3.14.*(diametre_rectangle^2))/4;% Channel area circular shape (cm^2)
P_cs=3.14.*diametre_rectangle;% circonference (cm)
Dh =(2*wc.*dc)./(wc + dc); % rectangular flowfield
Dhcirc=(4*Ac)./P_cs; % circular flowfield
% Channel length
Lc = A_cell ./ (N_ch*(wc + wl)); % (cm)
Lcirc = A_cell ./ (N_ch*((2*(wc +dc))/3.14)+ wl)); % (cm)
% Flow rate at the fuel cell stack entrance (m^3/s) (anode)
Q_stack = (I ./ (n*F)).*(S_H2 ./ x_H2).*((R.*T_in) ./ (P_in-
(psi.*P_sat))).*N_cell; % m^3/s
Q_stack1 = Q_stack.*1000000; % convert to cm^3/s
% Velocity in a fuel cell channel at the channel entrance
v = Q_stack1 ./ ((N_cell).*N_ch.*A_ch);% rect (cm/s)
vcirc=Q_stack1 ./ ((N_cell).*N_ch.*Ac);% circular (cm/s)
% Reynold's number at the channel entrance
R1 = 8314;
den = ((P_in-P_sat)*M_H2)+(P_sat*M_H2O)./(R1*T_in);% kg.m^3
den1 = den ./1000; % convert to g.cm^3

```

```

Re = (den1.*v.*Dh)./u; % Rect shape
Recirc=(den1.*vcirc.*Dhcirc)./u; % Circular Shape
% Friction Factor
f = 56./Re; % for rectangular fields
fcirc=64./Recirc; % for circular fields
% Pressure Drop
Lc1 = Lc./100; %cm to m
Lcirc1=Lcirc./100;
Dh1 = Dh./100;
Dhcirc1=Dhcirc./100;
v1 = v./100;
vcirc1=vcirc./100;
Kl = be.*30.*f;
Klcirc=be.*30.*fcirc;
P = (f.*(Lc1./Dh1).*den.*((v1.^2) ./ 2))+(Kl.*den.*((v1.^2)./2)); %pressure
drop on Pa
Pcirc = (fcirc.*(Lc1./Dhcirc1).*den.*((vcirc1.^2) ./
2))+(Klcirc.*den.*((vcirc1.^2)./2));
P_atm = P.*9.86923e-6; % Convert from Pa to atm
P_atmcirc = Pcirc.*9.86923e-6; % Convert from Pa to atm
% Difference pressure between the two shapes
delta_p=P_atm-P_atmcirc;
delta_v=v1-vcirc1;
% Power calculation
kd=5e-12;% coeff de darcy (m2)
u_o2=2e-5;%gas viscosity (pa)
V_cell=0.7; %(V)
Qc =(Pcirc.*kd*Ac*10e-4) ./ (Lcirc1.*u_o2); % Volumetric flow rate (m3/s)
Qc1= Qc./0.00042; %flow rate (kg/s)
Qr =(P.*kd*A_ch*10e-4) ./ (Lc1.*u_o2); % Volumetric flow rate (m3/s)
Qr1= Qr./0.00042; %flow rate (kg/s)
Pc=(Qc.*4*F*V_cell)/Ac;
Pr=(Qr.*4*F*V_cell)/A_ch;

%Graph Generaation

```