

Comportement des Conductivités Thermique et Electrique de la GDL d'une pile de type PEMFC soumise à Compression.

Mohammed HAMOUR¹, Ahmed OUIBRAHIM²

Laboratoire d'Energétique Mécanique et Matériaux – LEMM Université Mouloud Mammeri, Tizi-Ouzou, Algérie

¹hamour_md@yahoo.fr

²ouibraa@yahoo.fr

Abstract— La société moderne est confrontée à de nombreux problèmes cruciaux parmi lesquels l'épuisement des sources pétrolières et la dégradation de l'environnement. Ainsi la pollution, le réchauffement de la planète et le tarissement des ressources fossiles sont d'ores et déjà et pour les années à venir sont les préoccupations mondiales majeures.

En considérant par exemple l'industrie automobile, la recherche à réduire les émissions polluantes conduit les constructeurs à améliorer les moteurs thermiques et à envisager l'utilisation. Mais peu s'en faut. Plus radicalement c'est plutôt dans les énergies renouvelables, et propres, combinées aux technologies innovantes que se trouvent désormais les solutions durables de demain.

Ainsi, dans le secteur automobile, l'avènement de la technologie de la pile à combustible à membrane à échangeuse de protons a provoqué ces dernières années un engouement important pour ce générateur électrochimique d'énergie, en particulier dans le domaine de la traction électrique. Il reste que malgré l'attrait de cette technologie, plusieurs verrous technologiques subsistent qui ralentissent la pénétration de la technologie de la pile à combustible. La durée de vie ainsi que le coût élevé sont parmi les problèmes qui limitent l'utilisation de tels systèmes.

Par exemple les performances globales du système dépendent des caractéristiques thermique et électrique de la couche de diffusion(GDL), le cœur de pile. Pendant le fonctionnement de celle-ci, les dilatations thermiques différentielles sont une des sources génératrices de contrainte.

Pour cela, il est impératif de posséder une parfaite connaissance de tous les facteurs influents et de leurs effets sur les performances de ces piles à combustibles. Ces facteurs se situent à divers stades de la conception de la pile, tels que la nature des matériaux constituant le cœur de ces piles, les conditions opératoires et la qualité de l'assemblage de ces constituants afin de permettre sa mise sur le marché à large échelle.

Le but de cette étude est d'appréhender les phénomènes en présence afin de déterminer les causes de la défaillance de la pile. Plusieurs pistes sont envisagées. La contribution à la connaissance des caractéristiques thermique et électrique du matériau constituant la couche de diffusion GDL constitue l'objectif principal de ce travail. Pour atteindre cet objectif, des études expérimentales ont été effectuées dans le but de déterminer d'une part la variation de ces deux conductivités thermique et électrique et d'autre part le comportement de ces deux caractéristiques lorsque la GDL subit des compressions.

Keywords— conductivité thermique, conductivité électrique, couche de diffusion, énergie propre, GDL, hydrogène, piles à combustibles, PEMFC

I. INTRODUCTION

La maîtrise de la demande énergétique au niveau mondial constitue un enjeu politique et économique majeur pour tout l'ensemble de la planète. A ce jour, la production d'énergie a été principalement assurée par les énergies fossiles comme le pétrole ou le charbon issu de la fossilisation de végétaux accumulés dans le sous-sol au fil des ères géologiques. Ces combustibles fossiles ne sont pas non seulement renouvelables à l'échelle de temps humaine mais ils provoquent aussi de nombreux problèmes environnementaux et climatiques [1].

La pollution, le réchauffement de la planète et l'épuisement des ressources fossiles deviennent des préoccupations mondiales pour les années à venir. La recherche de réduction des émissions polluantes conduit les constructeurs automobiles à améliorer les moteurs thermiques, à envisager l'utilisation de nouveaux carburants et à envisager l'introduction de technologie innovante, c'est pourquoi depuis quelques années, le contexte énergétique mondial tend à se focaliser de plus en plus sur la recherche des nouveaux vecteurs énergétiques [2].

Les piles à combustibles sont très attractives pour des raisons essentiellement liées à leur rendement énergétique élevé et à leur possibilité d'industrialisation [3]. Ce sont des convertisseurs d'énergie performante qui transforme l'énergie chimique de l'hydrogène en énergie électrique d'une part et en chaleur d'autre part. Elles fonctionnent selon le principe inverse de l'électrolyse de l'eau [4].

La décentralisation de la production électrique implique l'utilisation de l'hydrogène comme vecteur énergétique. Les applications visées sont aussi bien des installations stationnaires, portables que de traction des véhicules. La pile de type PEMFC (Membrane Echangeuse de Protons), qui travaille à basse température (< 70°C), se présente aujourd'hui

comme la pile la plus appropriée aux applications liées au transport. Elle contribuera dans le future à rompre la suprématie du pétrole comme source d'énergie pour les transports terrestres [5]. Avec l'hydrogène comme combustible, le véhicule à moteur électrique alimenté par une PEMFC n'engendre pas de pollution atmosphérique et n'émet pas de gaz à effet de serre, sous réserve qu'il soit directement alimenté en hydrogène produit "proprement". Plusieurs constructeurs d'automobiles ont d'ores et déjà présenté un ou plusieurs prototypes de véhicules à pile à combustible.

Cependant cette technologie, au fort potentiel d'évolution, doit relever de nombreux défis tant économiques que techniques, avant d'être commercialisée en grande série. A l'heure actuelle les PEMFCs souffrent encore d'un certain manque de maturité technique et de coûts de fabrication élevés, peu propice à son déploiement dans le secteur de l'industrie automobile.

Pour remédier au problème, des programmes de recherches complets sont développés à travers le monde pour une connaissance détaillée des phénomènes de transferts se produisant dans le cœur de ces piles [6,7].

L'influence des effets thermiques et électriques sur les contraintes contribuent, par exemple, à la détérioration de certains des composants du cœur de la pile, notamment la couche de diffusion de gaz qui est un paramètre clé pour ces piles [8-13]. Son rôle a pour triple missions, de transmettre la chaleur, l'électricité et les fluides jusqu'aux sites de réaction. Son matériau est un milieu poreux et fibreux, sa structure présente en effet une porosité élevée.

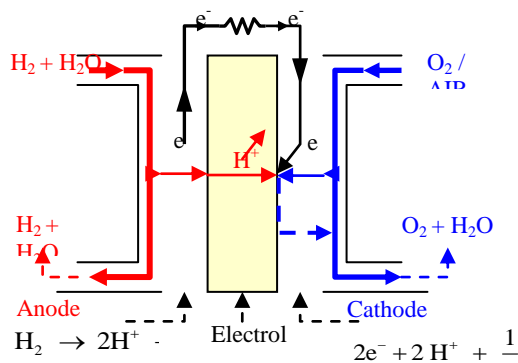


Figure 1: Schéma du fonctionnement d'une pile à membrane (PEMFC)

A ce titre, la contribution à la connaissance des caractéristiques thermiques et électrique du matériau constituant la GDL (Gas diffusion Layer) représenté sur la figure 2 constitue l'objectif principal de ce travail. Pour atteindre cet objectif, la mise au point des bancs d'essais ont été réalisés pour effectuer des études expérimentales afin de déterminer séparément l'évolution de ces deux conductivités thermique et électrique de la GDL lorsqu'elle est soumise à des différentes compressions d'une part, et d'autre part en faisant varier son épaisseur [14].

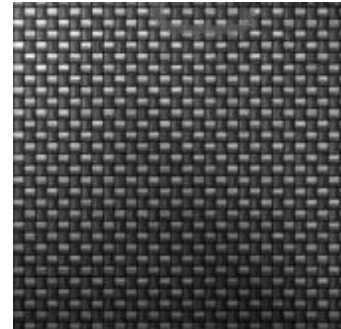


Figure 2 : Tissu de carbone(GDL)

II. EXPERIMENTATION

L'ensemble du système de mesure électrique est décrit en détail dans [14], représenté sur la figure 4. Les différents éléments sont reliés à un micro-ordinateur par l'intermédiaire d'une interface GPIB et une programmation sous LabView® (National Instruments), spécifiquement décrite pour la détermination de la conductivité thermique λ , commande les instruments et enregistre les données expérimentales [14-16]. Tous les appareils sont pilotés par un ordinateur et permettent de suivre l'évolution de la résistance électrique du fil en temps réel.

Un fil en tantale de (pureté 99,9%) d'environ 26 mm de longueur et 25 μm de diamètre a été utilisé comme élément de mesure [14]. Le fil en tantale est soudé à ses deux extrémités à des broches de même matériau de 125 μm de diamètre. L'ensemble (fil avec broches) est fixé sur un cadre en Kapton pour former un capteur (Fig.3).

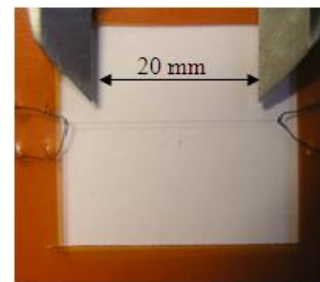


Fig 3: Fil chaud en tantale

Le tissu de carbone représenté sur la figure 2 constitue la couche de diffusion (GDL) dont on cherche ici à déterminer la conductivité thermique

Un dispositif de chargement mécanique a été élaboré [14] afin de mettre sous compression les couches de GDL

L'ensemble du système de mesure électrique est représenté sur la figure 4

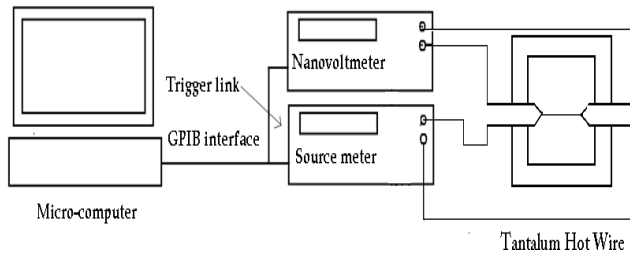


Figure 4: Schéma du système de mesure

A. Conductivité thermique

Les différents éléments sont reliés à un micro-ordinateur par l'intermédiaire d'une interface GPIB et une programmation sous LabView® (National Instruments), spécifiquement décrite pour la détermination de la conductivité thermique λ , commande les instruments et enregistre les données expérimentales [11-13]. Tous les appareils sont pilotés par un ordinateur et permettent de suivre l'évolution de la résistance électrique du fil en temps réel.

B. Conductivité électrique

Le banc d'essai utilisé pour la mesure électrique est composé essentiellement du dispositif contenant ces quatre pointes, d'un générateur de courant constant de grande précision et de très bonne stabilité. Un nanovoltmètre connecté aux mêmes bornes du fil a été ajouté au circuit de mesure afin d'assurer une meilleure précision représenté sur la Figure 5.

Le dispositif de compression mécanique du tissu de carbone GDL utilisé est décrit dans [14]

Pour toutes les expériences menées, et pour chaque pression appliquée, le courant électrique (délivré par le compteur source Keithley 2400) est fixé, il est d'une intensité de 300 mA.

L'application de ce courant électrique donne lieu à la création d'une différence de potentiel. L'automatisation de la procédure expérimentale de l'acquisition des données permet d'enregistrer la réponse en termes de la différence de potentiel V qui permettra ensuite d'évaluer la conductivité électrique [17-19].

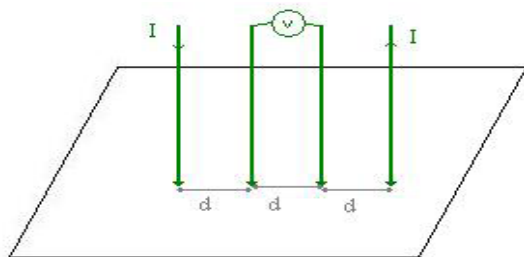


Figure 5 : Description schématique de la méthode des 4 pointes. Les électrodes sont disposées en lignes et espacées d'une distance de 12 mm l'une de l'autre (Fig.5). Les différentes

couches du tissu de carbone GDL sont prises en sandwich entre deux plaques planes en époxy non conductrices qui ont pour rôle la compression des couches de la GDL. Pour faciliter l'accès du système de mesure, les quatre pointes traversent la plaque supérieure de l'époxy puis elles sont implantées sur la surface de la GDL.

Le contact est assuré entre ces pointes et le tissu de carbone GDL grâce à une pression délivrée par une presse mécanique. Un temps de compression d'une durée 2 mn environ a été sélectionné pour chaque test.

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

A- Conductivité thermique

a- Faibles Pressions

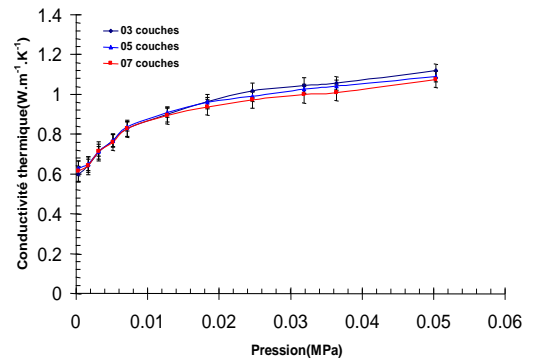


Figure 6: Variation de la conductivité thermique en fonction de la pression pour les différentes couches du tissu de carbone à faibles pressions

b- Fortes Pressions

Afin d'obtenir des pressions élevées, correspondantes à celles obtenues par le serrage des boulons de la pile, une presse mécanique a été utilisée. Les mêmes expériences ont été répétées dans les mêmes conditions que précédemment en faisant varier la pression de zéro jusqu'à 8 méga Pascal (MPa) pour aboutir ainsi aux résultats explicités par la figure 7

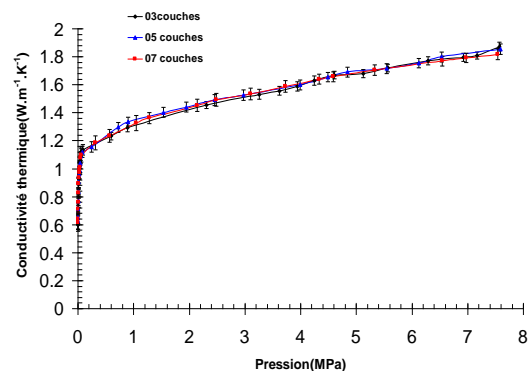


Figure 7: Variation de la conductivité thermique en fonction de la pression pour les différentes couches du tissu de carbone à fortes pressions

A- Conductivité électrique

Le travail consiste en l'étude de l'influence de la pression mécanique sur la conductivité électrique du tissu de carbone GDL placé entre deux plaques en époxy non conductrices.

Des pressions variant de 0 jusqu'à 7 MPa ont été appliquées progressivement par étape à l'aide d'une presse mécanique sur le dispositif contenant la GDL. Dans un premier temps, les essais ont été effectués sur deux couches de la GDL. Les mêmes essais ont été refaits dans les mêmes conditions que précédemment en augmentant cette fois-ci le nombre de couche en passant de deux à quatre couches. L'emploi des différents nombres de couches permet de confirmer l'hypothèse du "milieu infini semi" et l'estimation de l'importance de la résistance de contact dans nos expériences. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 8.

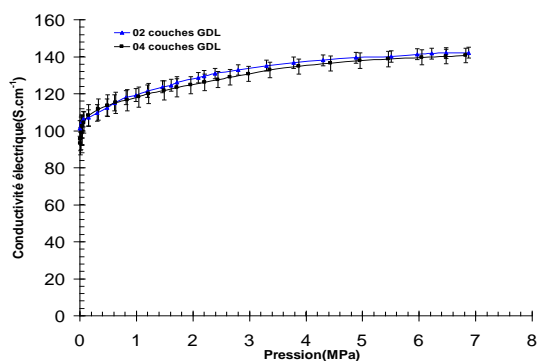


Figure. 8 : comparaison de la variation de la conductivité électrique en fonction de la pression pour les différentes couches du tissu de carbone

IV. INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les deux conductivités thermique et électrique du tissu de carbone GDL sous différents chargements mécaniques ont été testées. Pour chaque compression, plusieurs essais ont été menés, dans les mêmes conditions de fonctionnement pour vérifier la reproductibilité de ces résultats.

Tous les résultats expérimentaux obtenus montrent que l'évolution de ces deux conductivités du tissu de carbone (GDL) est une fonction monotone croissante de la pression appliquée (figures 6 à 8). Par ailleurs, on notera sur ces mêmes courbes que le nombre de couches n'a aucune influence sur l'amplitude de ces deux conductivités et qu'en fait quelque soit le nombre de couches choisi, on obtient pratiquement une courbe unique, comme si les courbes concernées par chacune des épaisseurs de couches collaient entre elles.

Pour des faibles compressions, l'augmentation de ces deux conductivités est remarquable. Ce résultat peut s'expliquer par la diminution du volume des pores du tissu de carbone pendant la compression. Le tissu de la GDL se comprime de plus en plus, le volume des pores diminue, l'air est évacué et le

contact entre les fibres s'améliore, c'est ce qui conduit à une augmentation de la conductivité thermique et électrique.

V. CONCLUSIONS

Les expériences menées montrent l'indépendance des deux conductivités thermique et électrique mesurées du nombre de couches de la GDL et, par conséquent, justifie la robustesse des méthodes développées.

Les relations expérimentales constitutives peuvent être analysées dans deux régions. Dans la première région, pour de faible compression, nous avons une forte tendance d'augmentation des deux conductivités thermiques et électrique en raison du matériau compacté. Dans la deuxième région pour des pressions suffisamment élevées, l'évolution est moins marquée, on commence à observer une certaine saturation dans l'augmentation des deux conductivités thermique et électrique qui correspond à une structure entièrement compactée.

L'emploi de plusieurs couches de GDL permet de confirmer l'hypothèse d'un milieu semi infini et d'estimer l'importance des résistances de contact dans nos expériences.

REFERENCES

- [1] <http://www.energies-renouvelables.org/>
- [2] GIEC. Climate change 2007. <http://www.ipcc.ch>, 2007
- [3] Didierjean S, Lottin O., Lapique. F, Ramousse j. Boillot M., Maillet D., La pile à combustible : un élément de diversification énergétique. Forces et faiblesses de la pile à membrane échangeuse de protons, Bulletin de la société Française de physique 2003, no. 141, pp. 6-9.
- [4] W. Vielstich, A. Lamm, H.A. Gasteiger (eds.), *Handbook of Fuel Cell Fundamentals, Technology and Application* (Wiley, Chichester, UK, 2003)
- [5] Tero Hottinen, Olli Himanen, Suvi Karvonen, Iwao Nitta *Journal of Power Sources* 171, pp 113–121 (2007)
- [6] Chaitanya J. Bapat, Stefan T. Thynell, J. of Power Sources 179 (2008) 240–251
- [7] Julien Ramousse Transferts couplés masse-charge- chaleur dans une cellule de pile à combustible à membrane polymère, 2005 Nancy
- [8] J. Kleemann, F. Finsterwalder, W. Tillmetz ; *Journal of Power Sources* 190 (2009) 92–102
- [9] Daniil Bograchev , Mikael Gueguen , Jean-Claude Grandidier , Serguei Martemianov, *Journal of Power Sources* 180 (2008) 393–401
- [10] Ahmet Kusoglu , Anette M. Karlsson, Michael H. Santare , Simon Cleghorn , William B. Johnson *J. of Power Sources* 161 (2006) 987–996
- [11] Jiabin Ge, Andrew Higier, Hongtan Liu, *J. of Power Sources* 159 (2006) 922–927
- [12] Iwao Nitta, Tero Hottinen, Olli Himanen, Mikko Mikkola, *J. of Power Sources* 171 (2007) 26–36
- [13] ROS. T. Sohn J L: Some issues on performance analysis of fuel cells in thermodynamic power point of view, *J. of Power Sources* 167(2) (2007) 295–301
- [14] M. Hamour, J.P. Garnier, J.C. Grandidier, A. Ouibrahim and S. Martemianov; Thermal-Conductivity Characterization of Gas Diffusion Layer in Proton Exchange Membrane Fuel Cells and Electrolyzers Under Mechanical Loading, *International Journal of Thermophysics*, Vol. 32, N° 5, pp : 1025-1037,
- [15] J.P. Garnier, J.P. Maye, J. Saillard, G. Thévenot, A. Kadjo, S.

Martemianov, Int. J. Thermophys. 29, 468 (2008)

- [16] A. Kadjo, J.P. Garnier, J.P. Maye, S. Martemianov, Int. J. Thermophys. 29, 1267 (2008)
- [17] Valdes, L. Resistivity Measurements on Germanium for Transistors. Proceedings of the IRE, 42(2):420-427, 1954.
- [18] Van der Pauw, L. A method of measuring resistivity and Hall effect on lamellae of arbitrary shape. Philips technical review, 20 :220-224, 1958.
- [19] Van der Pauw, L. A method of measuring specific resistivity and Hall effect of discs of arbitrary shape. Philips Research Reports, 13 :1-9, 1958.