



Université Mohamed Khider de Biskra  
Faculté des Sciences et de la Technologie  
Département de génie électrique

# MÉMOIRE DE MASTER

Sciences et Technologies  
Energies Renouvelables  
Solaire et Photovoltaïque

Réf. : .....

---

Présentés et soutenu par :

**SALLEMINE Heythem / LACEFAR Madani**

## **Modélisation de la Pile à Combustible de type PEMFC**

---

**Jury :**

Mme. DERRADJI BELLOUME Karima	Université de Biskra	Président
Dr. SAADI Aicha	Université de Biskra	Encadreur
Dr. HADRI Hamida Amel	Université de Biskra	Examineur

Année universitaire : 2019 – 2020

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
République Algérienne Démocratique et Populaire  
وزارة التعليم العالي و البحث العلمي  
Ministère de l'enseignement Supérieur et de la recherche scientifique



Université Mohamed Khider Biskra  
**Faculté des Sciences et de la Technologie**

Département de Génie Electrique  
Filière : Energies Renouvelables  
Option : solaire Photovoltaïque

Mémoire de Fin d'Etudes  
En vue de l'obtention du diplôme:

**MASTER**

***Thème***

**Modélisation de pile à combustible de type PEMFC**

Présentée par:

Heythem SALLEMINE

Madani LACEFAR

Avis favorable de l'encadreur:

Dr. SAADI Aicha

Avis favorable du Président du Jury:

Mme. DERRADJI BELLOUME Karima

**Cachet et signature**

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
République Algérienne Démocratique et Populaire  
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي  
Ministère de l'enseignement Supérieur et de la Recherche scientifique



Université Mohamed Khider Biskra

Faculté des Sciences et de la Technologie  
Département de Génie Electrique  
Filière : ENERGIES RENOUVELABLES  
Option : SOLAIRE PHOTOVOLTAÏQUE

*Thème :*

## Modélisation de Pile à Combustible de type PEMFC

Dirigé par : Dr. Aicha SAADI

### RESUMES

الملخص

دراسة و نمذجة خلية الوقود (PaC) هو موضوع الساعة. ومن بين الأنواع المختلفة من خلايا الوقود الحالية، نجد خلية ذات غشاء تبادل البروتونات (PEMFC)، التي ستعتمد في مجال النقل، التطبيقات النقالة وكذا الثابتة. في هذه التطبيقات، يمثل التمكن من إدارتها تحديا جد معقد لأنه يتأثر في آن واحد بعملية انتقال المتفاعلات الهيدروجين والأكسجين والمياه التي ينتجها التفاعل وكذا الحرارة في قلب خلية الوقود من أجل فهم أفضل لبعض الآثار والظواهر في خلية الوقود (PaC)، فإننا نلجأ لاستخدام النمذجة في Matlab/Simulink كلمات مفتاحية: خلية الوقود، النمذجة، الهيدروجين، الأكسجين، ستاتيكية، ديناميكية، الطاقة...

### Résumé

L'étude et la modélisation d'une pile à combustible (PàC) est un thème d'actualité. Parmi les différents types de pile à combustible existants, la pile à membrane échangeuse de protons (PEMFC), qui sera retenue dans le domaine des transports, pour les applications portables et le stationnaire. Pour ces applications, la maîtrise de leur gestion présente un déficit qui est très complexe, car elle est influencée par la gestion simultanée des transferts de réactifs (hydrogène et oxygène), de l'eau (produite par la réaction) et de la chaleur dans le cœur de la pile. Pour mieux comprendre certains effets et phénomènes dans le système PàC, on fait recours à une modélisation sous Matlab/Simulink.

Ce mémoire présente les résultats de la modélisation de l'électrochimie et la production électrique des piles à combustible PEMFC alimentée directement en gaz pur (hydrogène et oxygène), on fait recours à une modélisation sous Matlab/Simulink

**Mots clés :** Pile à combustible, modélisation, hydrogène, oxygène, statique, dynamique, énergie..



*Dédicace*

*Tout d'abord, je rends grâce à Allah pour  
toutes ses  
bénédictiones et la grâce de la réussite.*

*Nous dédions ce modeste travail*

*Aux êtres les plus chères parents ,*

- *A nos chères sœurs et frères*
- *A nos amies*

*Heythem et Madani*

## REMERCIEMENTS



Merci

*Mes remerciements vont premièrement à Dieu tout puissant pour la volonté, la santé, et la patience, qu'il ma données durant toutes ces années d'étude.*

*La réalisation de ce mémoire a été possible grâce au soutien de plusieurs personnes à qui je voudrais témoigner toute ma reconnaissance.*

*Nous voudrons tout d'abord adresser toute ma gratitude au directeur de ce mémoire Dr. Aicha SAADI, pour sa patience, sa disponibilité et surtout ses judicieux conseils, qui ont contribué à alimenter ma réflexion.*

*Je remercie vivement les membres du jury pour avoir accepté d'évaluer ce modeste mémoire :*

*Mme. DERRADJI BELLOUME Karima*

*Dr. HADHRI Hamida Amel*

**Liste des tableaux**

*Tableau I.1: Différents types de piles à combustible. ....***04**

*Tableau II-1: Caractéristiques technique de la PAC simulée .....* **41**

*Tableau III -1: Caractéristiques technique de la PAC simulée pour modèle Amphlet .....* **49**

Liste des Figures

<i>Figure. I.1: L'expérience de Sir William Grove /ClubPac/.....</i>	<b>02</b>
<i>Figure. I.2: Projet Gemini. ....</i>	<b>03</b>
<i>Figure I.3: Description générale des phénomènes électrochimiques au sein d'une pile PEM.....</i>	<b>07</b>
<i>FigureI.4: Schéma de la diffusion de l'oxygène à la cathode.....</i>	<b>08</b>
<i>Figure I.5: Mécanisme réactionnel autour du triple contact coté cathode électrochimique type PEM.....</i>	<b>09</b>
<i>Figure I.6: Eléments de la chaîne du polymère Nafion.....</i>	<b>10</b>
<i>Figure I.7: Phénomènes de transport d'eau au sein d'une cellule.....</i>	<b>11</b>
<i>Figure I.8: Phénomènes thermiques au sein d'une cellule électrochimique type PEM (refroidissement naturel ou par air pulsé) .....</i>	<b>11</b>
<i>Figure I.9: Principe d'une pile PEM.....</i>	<b>13</b>
<i>Figure I.10: Les différents éléments de pile PEM.....</i>	<b>14</b>
<i>Figure I.11: La membrane de pile à combustible.....</i>	<b>14</b>
<i>Figure I.12: Plaque bipolaire. ....</i>	<b>16</b>
<i>Figure I.13: Le cœur de pile à combustible.....</i>	<b>16</b>
<i>Figure I.14: Schéma d'une pile à combustible de type PEM.....</i>	<b>18</b>
<i>Figure I.15: Caractéristique tension-courant d'une pile à combustible PEM.....</i>	<b>20</b>
<i>Figure I.16: Schéma des différentes dégradations de la pile PEM.....</i>	<b>21</b>
<i>Figure II-1 : L'effet de la température sur la tension.....</i>	<b>30</b>
<i>Figure II-2 : L'effet de la température sur la puissance.....</i>	<b>31</b>
<i>Figure II-3 : L'effet de la pression sur la tension.....</i>	<b>32</b>
<i>Figure II-4 : L'effet de la pression sur la puissance.....</i>	<b>32</b>
<i>FigureII. 5 : Influence de la résistance de la membrane sur la chute ohmique et sur la tension totale PAC (valeur de la résistance : <math>2R_m</math>, <math>R_m</math> et <math>0.5 R_m</math> ) .....</i>	<b>34</b>
<i>FigureII. 6 : Influence de paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale PAC (valeur du coefficient A : <math>2A</math> , <math>A</math> et <math>0.5 A</math> ) .....</i>	<b>34</b>
<i>Figure.II. 7 :Influence du courant d'échange et sur la tension totale PAC (valeur du courant d'échange <math>2i_0</math>, <math>0.5 i_0</math> et <math>i_0</math> ) .....</i>	<b>35</b>
<i>Figure II. 8 : Influence du paramètre B sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PAC (valeur du coefficient B : <math>2B</math> , <math>B</math> et <math>0.5B</math> ) .....</i>	<b>35</b>
<i>Figure II- 9:Modèle physique de la pile à combustible.....</i>	<b>36</b>
<i>Figure II-10: Modèle dynamique d'une PAC. ....</i>	<b>40</b>

## Liste des figures

---

<i>Figure II- 11: Organigramme De Modélisation De Matlab Simulink.....</i>	<b>42</b>
<i>Figure III.1 :Schéma bloc de la pile à combustible.....</i>	<b>45</b>
<i>Figure III.2 :Schéma bloc de modelé d Amphlet et Al.....</i>	<b>46</b>
<i>Figure III.3 :Schéma bloc de la tension théorique.....</i>	<b>46</b>
.....	
<i>Figure III.4 :Schéma bloc des pertes d'activations .....</i>	<b>47</b>
<i>Figure III.5 :Schéma bloc des pertes ohmiques .....</i>	<b>48</b>
<i>Figure III.6 :Schéma bloc des pertes de concentrations.....</i>	<b>48</b>
<i>Figure III.7 :Caractéristique de PàC la tension en fonction densité de courant .</i>	<b>50</b>
<i>Figure III.8 :Caractéristique de PàC la puissance en fonction densité de courant .</i>	<b>50</b>
<i>Figure III.9: Courbe de polarisation de PEMFC.....</i>	<b>51</b>
<i>Figure III.10: La courbe de puissance de la PEMFC.....</i>	<b>53</b>
<i>Figure III.11 :La courbe de pertes activation en fonction de la densité de courant.....</i>	<b>54</b>
<i>Figure III.12 :Pertes d'activation en fonction de la température. ....</i>	<b>55</b>
<i>Figure III.13 : Rendement d'une cellule PEM. ....</i>	<b>56</b>

## Abréviations

<b>PAC</b>	Pile A Combustible.
<b>AFC</b>	Pile A Combustible Alcaline.
<b>PEMFC</b>	Pile A Combustible A Membrane Echangeuse De Protons.
<b>PAFC</b>	Pile A Combustible A Acide Phosphorique.
<b>SOFC</b>	Pile A Combustible A Oxydes Solides.
<b>MCFC</b>	Pile A Combustible A Carbonates Fondus.
<b>FC</b>	Pile A Combustible

## symboles

<b>a :</b>	Nombre de cellules de la pile à combustible .....	<b>[-]</b>
<b>B :</b>	Constante d'Activation de tension.....	<b>[A<sup>-1</sup>]</b>
<b>C :</b>	Constante d'Activation de tension.....	<b>[V]</b>
<b>E :</b>	Potentiel thermodynamique.....	<b>[V]</b>
<b>E0 :</b>	Tension à vide.....	<b>[Volt]</b>
<b>F :</b>	Constante de Faraday.....	<b>[C/kmol]</b>
<b>j :</b>	Représente l'élément (H <sub>2</sub> O, H <sub>2</sub> , O <sub>2</sub> ).....	<b>[-]</b>
<b>H :</b>	Hauteur du mat.....	<b>[M]</b>
<b>I :</b>	Courant électrique.....	<b>[A]</b>
<b>K :</b>	Facteur de forme.....	<b>[-]</b>
<b>K<sub>H<sub>2</sub></sub></b>	Constante de valve d'hydrogène.....	<b>[Kmol/s. atm]</b>
<b>K<sub>H<sub>2</sub>O</sub></b>	Constante de valve d'eau.....	<b>[Kmol/s. atm]</b>
<b>K<sub>O<sub>2</sub></sub></b>	Constante de valve d'oxygène.....	<b>[Kmol/s. atm]</b>
<b>Kr :</b>	Constante de modélisation.....	<b>[Kmol/s .A]</b>
<b>ṁ<sub>H<sub>2</sub></sub></b>	Débit de l'hydrogène.....	<b>[Kmol/s]</b>
<b>ṁ<sub>H<sub>2</sub>O</sub></b>	Débit de l'eau.....	<b>[kmol/s]</b>

## Liste des abréviations

$\dot{m}_{O_2}$	Débit de l'oxygène.....	[kmol/s]
<b>M<sub>i</sub></b> :	Masse atomique de l'élément i.....	[gr/mol]
<b>N<sub>0</sub></b> :	Nombre de cellules en série.....	[-]
<b>P</b> :	Pression.....	[Atm]
<b>P<sub>H<sub>2</sub></sub></b>	Pression de l'hydrogène.....	[atm]
<b>P<sub>H<sub>2</sub>O</sub></b>	Pression de l'eau.....	[atm]
$\dot{m}_{O_2}$	Pression de l'oxygène.....	[atm]
<b>R</b> :	Constante des gaz parfaits.....	[Kmol/k]
<b>R<sub>a</sub></b> :	Résistance d'activation.....	[V/A]
<b>R<sub>int</sub></b> :	Résistance interne.....	[Ω]
<b>T</b> :	Température.....	[K]
<b>U</b> :	Taux d'utilisation.....	[-]
<b>U</b> :	Tension d'une cellule de l'électrolyseur.....	[V]
<b>V<sub>act</sub></b> :	La surtension d'activation.....	[V]
<b>V<sub>ohm</sub></b> :	La surtension ohmique.....	[V]
<b>V<sub>conc</sub></b> :	La surtension de concentration.....	[V]
<b>V<sub>FC</sub></b> :	La surtension de pile.....	[V]
<b>V<sub>a</sub></b> :	Volume de l'anode.....	[m <sup>3</sup> ]
<b>V<sub>c</sub></b> :	Volume de la cathode.....	[m <sup>3</sup> ]
<b>V<sub>cell</sub></b> :	Tension d'une cellule de pile à combustible .....	[V]
<b>V<sub>m</sub></b> :	Volume molaire aux conditions standards.....	[L/mol]
<b>V<sub>rev_P</sub></b>	La tension thermodynamique réversible.....	[V]
<b>CI</b> :		
<b>η<sub>act</sub></b> :	Rendement d'activation de la pile à combustible.....	[ -]
<b>η<sub>stack</sub></b> :	Rendement de stack.....	[ -]
<b>η<sub>v</sub></b> :	Rendement de tension .....	[ -]
<b>η<sub>I</sub></b> :	Rendement de courant.....	[ -]
<b>t<sub>H<sub>2</sub></sub></b>	Constante de temps pour l'hydrogène.....	[s]
<b>t<sub>H<sub>2</sub>O</sub></b>	Constante de temps pour l'eau.....	[s]
<b>t<sub>O<sub>2</sub></sub></b>	Constante de temps pour l'oxygène.....	[s]
<b>G</b> :	Energie libre de Gibbs.....	[J/mol]

## Liste des abréviations

---

<b>H :</b>	Energie libre d'enthalpie.....	<b>[J/mol]</b>
<b>S :</b>	Energie libre d'entropie.....	<b>[J/mol]</b>
<b><math>\Delta G^0</math>:</b>	Variation d'enthalpie libre standard .....	<b>[kJ/mol]</b>
<b><math>\Delta H^0</math>:</b>	Variation d'enthalpie standard.....	<b>[ kJ/mol]</b>

# **Table de Matière**

*Table de matière*

<i>Dédicace</i> .....	<b>I</b>
<i>Remercîment</i> .....	<b>II</b>
<i>Liste des tableaux</i> .....	<b>III</b>
<i>Liste des figures</i> .....	<b>VI</b>
<i>Liste des symboles</i> .....	<b>V</b>
<i>Introduction Générale</i> .....	<b>I</b>

**CHAPITRE I : Généralité sur les piles à combustibles**

Introduction.....	
I.1) Historique.....	<b>02</b>
I.2) Principe de fonctionnement.....	<b>03</b>
I.3) Les différents types de piles à combustibles.....	<b>03</b>
I.4) Applications.....	<b>05</b>
I.4.1) Applications portables.....	<b>05</b>
I.4.2) Applications stationnaires.....	<b>05</b>
I.4.3) Les applications transport.....	<b>06</b>
I.5) Avantages et inconvénients des piles à combustible .....	<b>06</b>
I.5.1) Avantages des piles à combustible.....	<b>06</b>
I.5.2) Les inconvénients des piles à combustibles .....	<b>07</b>
I.6) Description générale des phénomènes physicochimiques.....	<b>07</b>
I.6.1) Phénomènes fluidiques.....	<b>08</b>
I.6.2) Diffusion des gaz.....	<b>08</b>
I.6.3) Phénomènes électrochimiques.....	<b>09</b>
I.6.4) Phénomènes ohmiques : circulation de protons.....	<b>09</b>
I.6.5) Transport d'eau.....	<b>10</b>
I.6.6) Phénomènes thermiques.....	<b>11</b>
I.7) La pile à combustible de type PEM .....	<b>12</b>
I.7.1) Principe de fonctionnement de pile a combustible de type PEM: .....	<b>12</b>

## Table de Matière

---

I.7.2) Description de la cellule PEM .....	13
I.7.2.1) électrolytes (membrane) .....	14
I.7.2.2) Les électrodes .....	15
I.7.2.3) Plaques bipolaires .....	15
I.7.2.4) Couches de diffusion(Backing) .....	16
I.7.2.5) Assemblage Membrane – Electrodes .....	17
I.7.3) Description du Stack de type PEM .....	17
I.8) système pile a combustible PEM.....	18
I.8.1) Les auxiliaires .....	18
I.8.2) Alimentation de pile a combustible de type PEM .....	18
I.8.2.1) Circuit d'alimentation en hydrogène .....	19
I.8.2.2) Circuit d'alimentation en air .....	19
I.9) Caractéristiques de polarisation d'une pile a combustible PEMFC.....	20
I.10) Dégradation de la pile PEM .....	20
I.10.1) Les défauts de la pile PEM .....	22
I.10.1.1) Dégradations liées à la gestion de l'eau .....	22
I.10.1.2) Dégradations liées à une mauvaise gestion des débits, des pressions, des températures et de l'humidité relative des gaz .....	22
I.10.1.3) Contamination par les réactifs .....	23
I.10.1.4) Vieillessement naturel .....	23
I.11) Rendement de pile a combustible .....	23
I.11.1) Rendement matière - Quantités de combustibles .....	23
I.11.2) Rendement thermodynamique .....	24
I.11.3) Rendement voltaïque.....	24
I.11.4) Rendement global .....	24

I.12) Conclusion.....	25
<b>CHAPITRE II : Modélisation d'une pile à combustible de type PEM</b>	
Introduction.....	26
II.1) Modèle d'Amphlett et al.....	27
II.1.1) Pertes d'activation.....	28
II.1.2) Pertes ohmiques.....	31
II.1.3) Pertes de concentration.....	29
II.1.4) Influence de la température et de la pression sur la caractéristique de la PàC ..	30
II.2) Modèle statique de Larminie-Dicks.....	33
II.3)Modèle physique de la pile à combustible.....	36
II.4.1) Le débit d'hydrogène et d'oxygène à l'entrée .....	36
<b>II.4.2)</b> La résistance interne .....	37
II.4.3) Les pertes ohmiques .....	37
II.4.4) La surtension d'Activation .....	37
<b>II.4.5)</b> Résistance d'activation $R_a$ .....	37
II.4.6) La constante de modélisation $K_r$ .....	37
II.4.7) La pression de l'hydrogène.....	37
II.4.8) Pression d'oxygène $P_{O_2}$ .....	38
II.4.9) Pression de l'eau .....	38
II.4.10) Potentiel thermodynamique.....	39
II.4.11) Tension d'une cellule de la PAC .....	39
II.4.12) Tension totale de la cellule PAC .....	39
II.4.13) Puissance d'une pile à combustible .....	40
II.5) Modèle dynamique de la PEM.....	40

## Table de Matière

II.5.1) Paramètres du modèle d'une pile à combustible.....	41
II.6) Mise en page sur MATLAB SIMULINK .....	42
II.7) Conclusion.....	43

## Chapitre III Simulation numérique

Introduction.....	45
III.1) Schémas bloc de simulation MATLAB modèle d'Amphlet.....	45
III.1.1) caractéristique de PàC la tension en fonction densité de courant .....	50
III.1.2) caractéristique de PàC la Puissance en fonction densité de courant .....	50
III.2) Le Modèle Physique.....	51
III.2.1) La courbe de polarisation .....	51
III.2.2) La courbe de puissance .....	53
III.2.3) La courbe de Pertes d'activation en fonction de densité de courant.....	54
III.2.4) La courbe de Pertes d'activation en fonction de température .....	55
III.2.5) Rendement d'une cellule PEM.....	56
III.3) Conclusion.....	56

# **INTRODUCTION**

## **GENERAL**

## Introduction général

Il existe depuis près de 40 ans maintenant, une réflexion concernant l'écologie, l'environnement et les changements climatiques. Utiliser les Energies Renouvelables, appliquer la Maîtrise de la Demande en Electricité, et valoriser les systèmes énergétiques via de la cogénération sont des solutions pour parer au réchauffement climatique. L'utilisation de ces solutions est en constante augmentation depuis ces dernières années. [1]

La production électrique, à partir des sources renouvelables d'énergies, a l'avantage de ne pas émettre des gaz à effet de serre. Malheureusement, ces sources sont, pour la plupart, intermittentes. Pour parer à cet inconvénient, et afin de maîtriser la régulation des flux électriques sur un réseau, ces sources doivent être couplées avec des systèmes de stockages. Un des moyens très prometteur, puisque non polluant, est l'hydrogène. On appelle généralement ce type de couplage [1]. L'hydrogène est l'élément le plus abondant de notre univers, c'est un carburant non polluant et non toxique dont la combustion ne rejette que de l'eau. Il est léger et énergétique, sa densité d'énergie est élevée comparée à celle de l'essence (45 MJ/kg). Sa densité d'énergie volumique est en revanche plus faible, en effet un litre d'essence équivaut, sur le plan énergétique, à 4,6 litres d'hydrogène comprimé à 700 bars [1]

La pile à combustible, élément électrochimique permettant de convertir l'énergie de l'hydrogène en électricité, est le moyen par excellence pour utiliser ce vecteur énergétique afin d'alimenter des charges électriques, notamment dans le cadre du transport. Les piles à combustible sont encore à ce jour des sources à fort courant et à faible niveau de tension. Leur utilisation dans des chaînes de traction de véhicule passe souvent par une élévation de la tension en utilisant des convertisseurs statiques adaptés.

Le présent travail porte sur l'étude et Simulation d'une Pile à Combustible de type PEM dont l'objectif de la modélisation d'une pile à combustible de type PEM (Proton Exchange Membrane), il est structuré de la façon suivante :

Dans le premier chapitre, nous présentons un état de l'art sur les piles à combustibles, les différents types existants, ainsi leur classification.

Le deuxième chapitre est consacré à la modélisation dynamique d'une pile à combustible de type PEM.

Enfin le troisième chapitre est réservé à la simulation d'une pile de type PEM qui prend en compte le travail sur le rendement de la pile.

## Chapitre I

### **GENERALITES SUR LES PILES A COMBUSTIBLE**

## Introduction

Une pile à combustible (PAC) est un dispositif électrochimique qui permet de convertir directement l'énergie chimique interne d'un combustible en énergie électrique sans aucun processus thermique ou mécanique.

### I.1) Historique

La découverte du principe de la pile à combustible remonte à 1839. Toutefois elle ne resta pendant de nombreuses années qu'une simple curiosité scientifique, son utilisation n'étant alors pas une nécessité

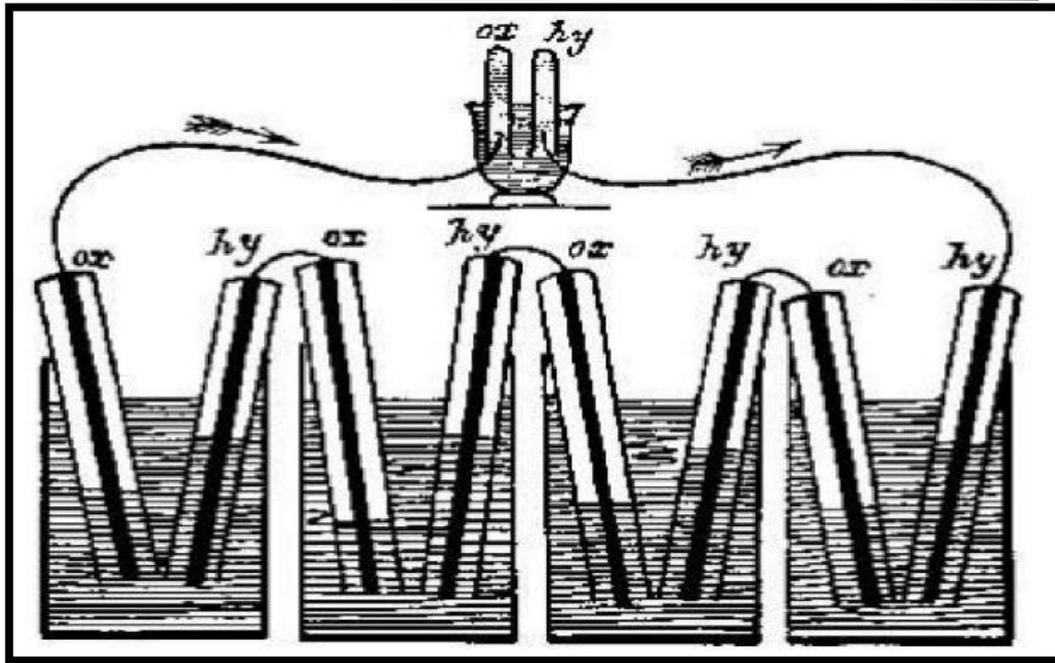
Cette découverte s'est effectuée en plusieurs étapes. En effet, à la période des précurseurs succéda un relatif abandon de près d'un siècle avant une « redécouverte » vers la fin du 20e siècle de cette technique, relancée par les préoccupations environnementales liées à l'aggravation de l'effet de serre.

Le premier pas vers la pile à combustible a été réalisé en 1806 par le chimiste et physicien anglais Sir Humphry Davy qui en réalisant l'électrolyse de l'eau pure obtient distinctement de l'hydrogène et de l'oxygène dont il constate qu'ils sont les seuls produits. L'électrolyse de l'eau consistant, à l'aide d'un courant électrique (décomposer l'eau en hydrogène et oxygène gazeux), certains scientifiques se sont alors intéressés à effectuer le processus inverse afin de générer un courant électrique à partir de l'hydrogène et de l'oxygène.

Néanmoins, la découverte du principe de la pile à combustible n'intervient qu'en 1839 quand le scientifique suisse Christian Friedrich Schönbein observe en réalisant une électrolyse que lorsqu'il coupe l'alimentation, les produits donnent lieu pendant quelques secondes à un courant électrique de sens inverse à celui appliqué pour réaliser l'expérience.

En 1839, lors d'une conférence scientifique à Birmingham, Schönbein rencontre l'avocat et chimiste anglais Sir William Robert Grove qui travaillait à l'époque sur les batteries électriques. Par la suite, les deux hommes entretiennent une correspondance et mettent en commun leurs découvertes.

Ceci débouche sur la célèbre expérience de Grove avec une pile à combustible: il s'agissait d'une cellule hydrogène-oxygène avec des électrodes de platine poreux et de l'acide sulfurique comme électrolyte. Nous sommes en 1845, Grove génère un courant sur le principe inverse de l'électrolyse de l'eau, c'est la première pile à combustible.

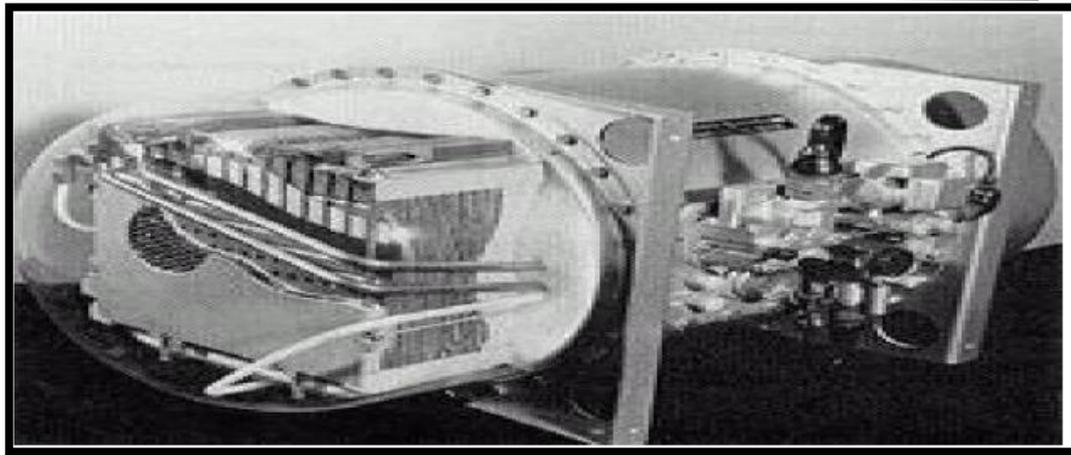


*Figure. I.1: L'expérience de Sir William Grove /ClubPac/. [1]*

Par la suite, la pile à combustible resta plus ou moins en latence durant près d'un siècle et après quelques légères améliorations par différents scientifiques du début du 20ème siècle, c'est Francis T. Bacon qui en 1935 enclenche le progrès le plus important en réalisant un prototype de pile à combustible remplaçant l'électrolyte acide par un électrolyte alcalin. L'avantage de ce dernier est d'être moins corrosif pour les électrodes. Cette pile à combustible aboutira en 1953 sur la création d'un premier générateur électrique de 1kW.

Le principe physique est établi, des dizaines de laboratoires et d'industriels vont se lancer dans les piles à combustible.

Néanmoins les coûts restant très élevés, ils sont un obstacle important à son utilisation, hormis pour la NASA qui peut se permettre de tels investissements. Ainsi elle l'utilise, avec succès, comme générateur électrique pour les missions Gemini et Apollo en 1963 et 1968.



*Figure. I.2: Projet Gemini. [1]*

Dans les années 1980 alors que les Etats-Unis et le Japon vont poursuivre de manière très active leurs recherches, l'Europe (à l'exception de l'Allemagne) va se désintéresser de ces travaux.

Ainsi, depuis sa découverte la pile à combustible a connu de nombreuses améliorations (perfectionnement des électrodes, optimisation de la température de fonctionnement ...), mais le principe reste le même [1].

### **I.2) Principe de fonctionnement**

On peut dire que le fonctionnement de toutes les piles à combustible, quel que soit leur technologie (alcaline, carbonate fondu, polymère, céramique ,etc.), repose sur le même principe, à savoir qu'elles sont alimentées en Hydrogène et en Oxygène qui en se combinant dans le cœur de la pile donne lieu à des dégagements de chaleur, d'eau et d'électricité [2].

### **I.3) Les différents types de piles à combustibles**

On distingue plusieurs types de piles à combustible et on les classifie selon la nature de l'électrolyte utilisé. Celui-ci détermine en même temps la température de fonctionnement.

- AFC: Pile alcaline (Alkaline Fuel Cell)
- MCFC: Pile à carbonate de fondu (Molten Carbonate Fuel Cell)
- SOFC: Pile à oxyde solide (Solid Oxide Fuel Cell)
- PAFC: Pile à acide phosphorique (Phosphoric Acid Fuel Cell)
- PEMFC: Pile à membrane polymère échangeuse de protons (Proton Exchange Membrane Fuel Cell)
- DMFC: Pile alimentée directement par méthanol (Direct Methanol Fuel Cell) [3]

	AFC	PAFC	PEMFC	DMFC	MCFC	SOFC
	Basse température				Haute température	
Température	50 à 250°C	150 à 220°C	70 à 100°C → 200°C	70-90°C	600 à 800°C	700 à 1050°C
Electrolyte	Potasse(KOH) liquide	Acide phosphorique liquide	Membrane en Polymère solide	Membrane en polymère solide	Sel de Carbonate fondu liquide	Céramique Solide
Combustibles Possibles	Hydrogène	Hydrogène Gaz naturel (reformage)	Hydrogène	Méthanol	Hydrogène, Gaz naturel, Méthanol	Hydrogène, Gaz naturel, Méthanol,
Gamme de Puissance	1W à 100KW	200 KW à 100 MW	1W à 10MW	1W à Plusieurs KW	500 KW à 10 MW	1 KW à 100 MW
Rendement Electrique	55-60%	35-45% +75% en cogénération	30-45%	20 -30 %	50-60%	50-55% 70% en cogénération
Applications	Spatial Défense, Equipements portables	Stationnaire, Cogénération transport	Spatial transport, Stationnaire, Equipement portable	Transport Equipements portable	Stationnaire Transport, Cogénération,	Stationnaire cogénération
Etat du marché	Commercialisée	commercialisée	Commercialisée R&D	Commercialisée R&D	R&D	R&D extrême-tale

*Tableau. I.1: Différents types de piles à combustible. [4]*

### **I.4) Applications**

Les marchés potentiels des piles à combustible apparaissent aujourd'hui multiples, ils sont généralement classés en trois grandes familles d'application: portables, stationnaires et transport.

#### **I.4.1) Applications portables**

Pour des applications portables, les piles à combustible sont en concurrence avec les batteries. On espère gagner en temps d'autonomie et pouvoir recharger plus vite des réserves d'énergie épuisées. Les piles utilisées dans ce domaine doivent être extrêmement robustes et peu sensibles aux conditions extérieures, seulement deux types de piles sont susceptibles d'avoir des applications portables, les PEMFC et DMFC, qui sont caractérisées par leur faible température de fonctionnement variable entre 60 et 80°C, ce qui diminue les problèmes de gestion thermique et fonctionnent à température ambiante. [5]

#### **I.4.2) Applications stationnaires**

L'avantage des piles à combustible dans ce domaine est la production simultanée de l'électricité et de la chaleur, les types SOFC et MCFC sont mieux adaptées à la cogénération d'électricité et de chaleur. La pile à combustible commence à intéresser de nombreux industriels de ce secteur, en particulier en France, Japon, Etats-Unis, etc.

L'activité est centrée sur deux grands domaines d'applications:

- la production collective (200 kW à quelques MW)
- la production domestique ou individuelle (2 à 7 kW) [5] .

#### **I.4.3) Les applications transport**

Le transport est le domaine d'application à l'origine du développement de la pile à combustible à partir du début des années 90. Compte tenu de la contrainte de coût, particulièrement forte dans ce secteur, et de la concurrence de la technologie traditionnelle (moteur thermique), il faut distinguer deux sous-familles assez différentes dans leurs besoins, suivant qu'il s'agit d'équiper un véhicule léger ou un véhicule lourd. Il est demandé au véhicule léger quelque 3 000 h de fonctionnement pour une dizaine d'années de durée de vie alors qu'un véhicule lourd (transport de passagers ou de marchandises) exige une durée de fonctionnement 100 fois plus longue. Il est évident que la technologie et la durée d'amortissement (donc les coûts admissibles) ne seront pas du tous les mêmes.

### **I.5) Avantages et inconvénients des piles à combustible :**

Les avantages et inconvénients des piles à combustible dépendent bien entendu du type de pile considéré et donc de l'application envisagée.

#### **I.5.1) Avantages des piles à combustible**

Les avantages les plus importants sont les suivants :

Très bon rendement énergétique (supérieur à 50 %) : en comparaison avec moteurs à combustion interne (25-30%). l'énergie non convertie en énergie électrique est émise sous forme de chaleur et est évacuée sous forme d'eau chaude ou de vapeur. Ceci est un point fort dans le cas des applications domestiques, car la pile à combustible est capable de fournir de l'électricité et également de l'eau chaude qui pourra être utilisée pour le chauffage domestique ce qui va augmenter le rendement de la pile à combustible jusqu'à 80-90%.

- Protection de l'environnement : 99 % en moins de monoxyde de carbone en comparaison avec un véhicule à essence. [6]
- Efficacité : les piles à combustible sont généralement plus efficaces que les moteurs à combustion à piston ou turbine fondée. Un autre indice pour cela est que les petits systèmes peuvent être tout aussi efficaces que les grands.
- Modulabilité : Les piles à combustible ont la caractéristique importante d'être très modulables dans le sens où elles peuvent être facilement de tailles différentes. La taille d'une pile à combustible peut facilement être augmentée ou réduite et le rendement électrique est relativement indépendant de la taille de la pile. [7]
- Silence : Les piles à combustible sont très calmes, même ceux qui ont d'importantes transformations au carburant supplémentaire équipement. Ceci est très important tant dans les applications portables que dans les productions combinées locales d'énergie et de chaleur.

#### **I.5.2) Les inconvénients des piles à combustibles :**

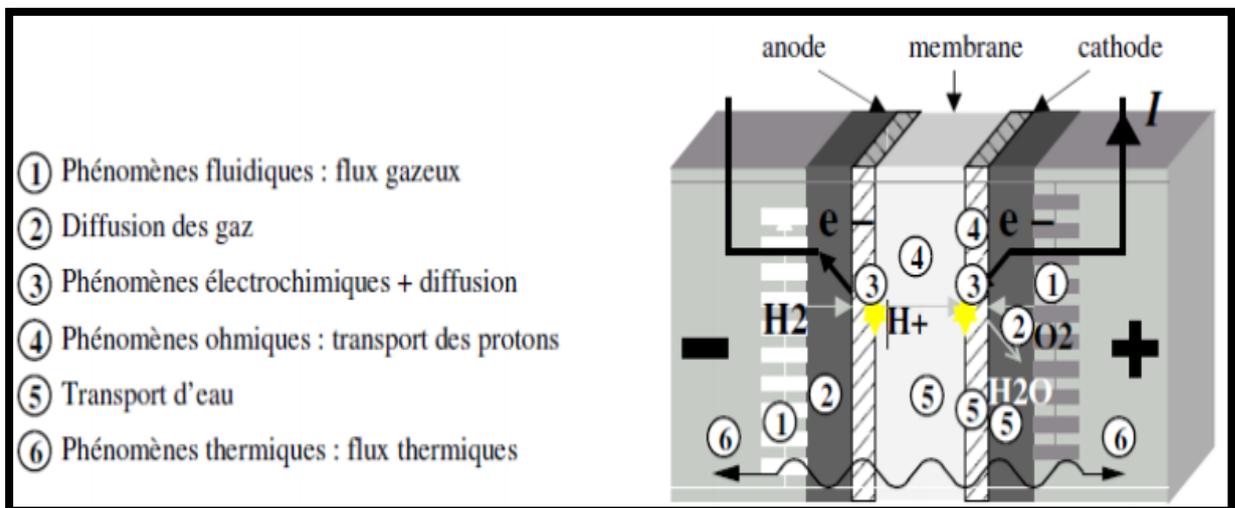
Les inconvénients associés aux piles à combustible sont liés à leur manque de développement : [8] [9]

- Coût trop élevé de production et de maintenance: Le coût qui est très élevé à cause de l'utilisation des métaux nobles comme le platine au niveau des électrodes et à cause du prix de fabrication de la membrane et des plaques bipolaires.

- Stationnaire : au moins 40 000 heures
- Automobile : quelques milliers d'heures.
- Le poids et le volume La durée de vie : La plupart des piles sont encore des prototypes, on a donc peu de renseignements sur la durée de vie des piles. Les contraintes diffèrent selon l'application :
- Le manque d'infrastructures au niveau de l'approvisionnement en carburant (hydrogène, méthane). Ceci nécessite la mise en place de systèmes de production, de transport et de distribution. Cependant, la mise en place de tels systèmes ne peut se faire avant la commercialisation de la PAC.

### I.6) Description générale des phénomènes physicochimiques

Au sein d'une pile PEM le principe de fonctionnement et les principaux éléments technologiques d'une pile à combustible ont été décrits dans la partie précédente. Malheureusement la réaction chimique idéale précédemment présentée va s'accompagner des pertes supplémentaires que nous nous proposons de décrire dans les paragraphes suivants. La Fig 1.3. présente un schéma d'une cellule électrochimique qui permet de localiser les différents phénomènes physico-chimiques au sein d'une pile à combustible.



*Figure I.3: Description générale des phénomènes électrochimiques au sein d'une pile PEM*

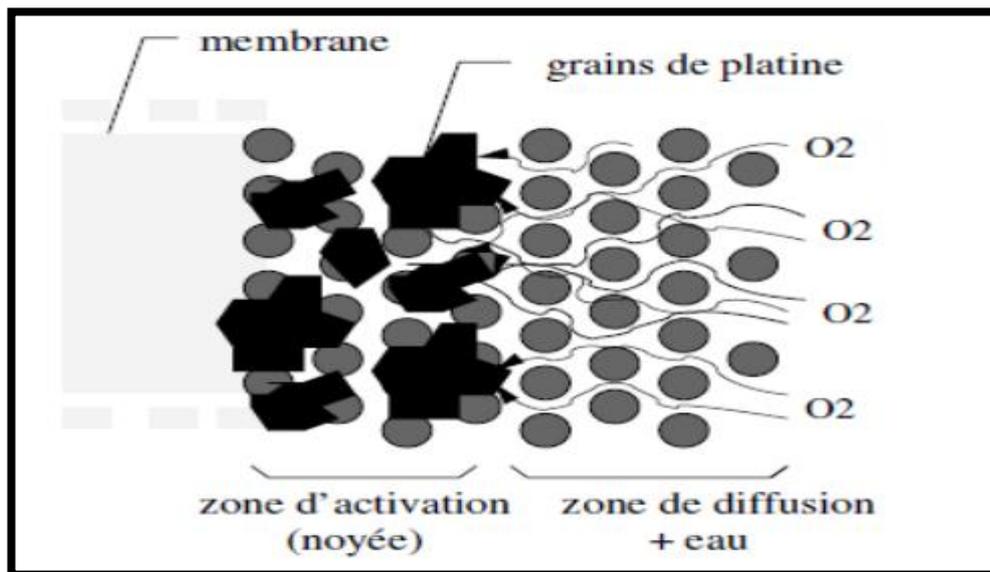
Nous décrivons dans les paragraphes suivants les phénomènes dans le sens de progression des gaz.

**I.6.1) Phénomènes fluidiques**

Les gaz circulent dans les canaux, qui sont généralement graves dans les plaques bipolaires, pour atteindre le cœur de la cellule électrochimique. La conception des canaux est particulièrement importante pour assurer une répartition homogène des gaz sur toute la surface de l'électrode en minimisant les pertes de charge. Les gaz sont en général humidifiés avant d'être injectés dans les canaux, mais peuvent être également humidifiés de façon interne grâce à la présence de l'eau. Ainsi, la pression partielle du gaz est généralement inférieure à la pression totale des gaz qui est régulée.

**I.6.2) Diffusion des gaz**

Les gaz sortant des canaux diffusent à travers une première partie de l'électrode, appelée « couche » ou « zone de diffusion ». Le matériau de l'électrode est un milieu poreux comme le représente la Fig. 1.4. Les pores de ce matériau sont partiellement remplis d'eau et opposent de fait une résistance à la diffusion des gaz. En effet, même si cette couche de l'électrode est hydrophobe, la présence d'eau l'état liquide est très probable en pratique, particulièrement coté cathode où l'eau est produite. Notons que la présence de cette eau peut être vue comme un noyage de la couche de diffusion de l'électrode ; elle réduit l'espace disponible pour une diffusion rapide des gaz, et augmente ainsi la résistance au transport des gaz. Ces phénomènes de diffusion ont pour conséquence de diminuer et limiter la concentration des gaz au niveau des sites réactifs de l'électrode.



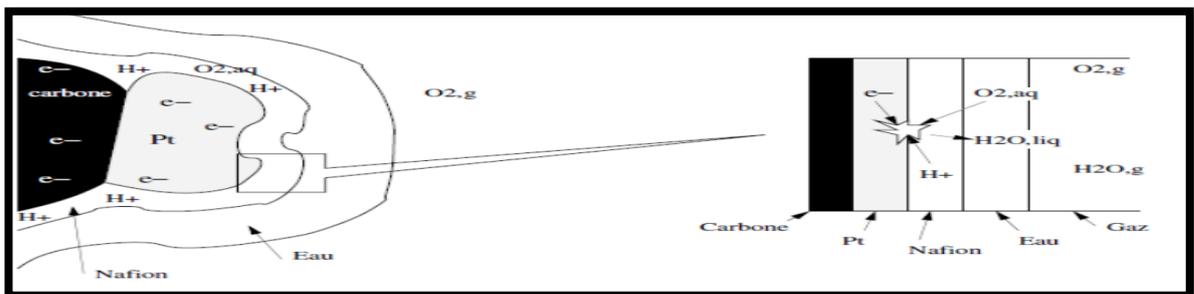
*Figure I.4: Schéma de la diffusion de l'oxygène à la cathode*

**I.6.3) Phénomènes électrochimiques**

Les gaz ayant diffusé à travers la couche de diffusion atteignent alors la « couche » ou « zone active », ou encore « zone de catalyse », ou s'applique le mécanisme réactionnel des deux demi-réactions d'oxydoréduction. C'est ici que se produit la transformation de l'énergie chimique en énergie électrique. Des pertes dues à la cinétique chimique des réactions se manifestent malheureusement. La condition nécessaire à ce mécanisme réactionnel est la mise en présence au même point du gaz réactif, du proton, des électrons et du catalyseur (cas de la cathode). Ce lieu est appelé le lieu du « triple contact ». Cette condition est satisfaite si le catalyseur est recouvert d'électrolyte et si le gaz peut diffuser à travers ce dernier pour atteindre lui-même le catalyseur. La Fig. 1.14 représente une description simplifiée du mécanisme. Notons que cette partie de l'électrode, « la couche active », présente peu de caractère hydrophobe, et est généralement considérée comme noyée [10], ce qui offre une résistance à la progression du gaz comme dans la couche de diffusion.

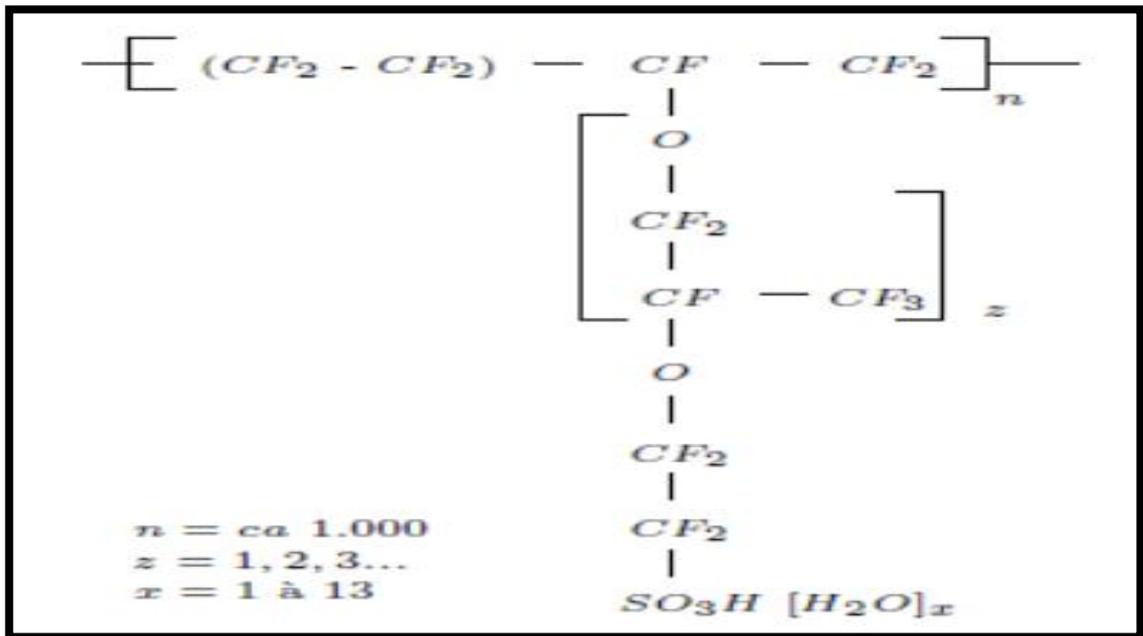
**I.6.4) Phénomènes ohmiques : circulation de protons**

Ces phénomènes sont liés à la circulation des protons de l'anode vers la cathode qui s'effectue par migration dans l'eau contenue dans l'électrolyte sous l'action du champ électrique anode-cathode. Les pertes sont liées à la conductivité protonique de l'électrolyte. Dans notre cas nous ne considérons que les électrolytes constitués d'une membrane en Nafion. La conductivité du Nafion dépend essentiellement de deux paramètres : la température et son taux d'hydratation (usuellement noté  $\lambda m$ ). Le Nafion a une base de Téflon, qui est un polymère fait de longues connexions carbone-fluor comme visible sur la Fig. 1.15 . Le Téflon est alors associé à des chaînes se terminant par des ions sulfonates  $SO_3^-$  qui rendent un caractère hydrophile à la structure. Les molécules d'eau peuvent se rassembler autour des terminaisons sulfonates, et créer ainsi des sites où les protons peuvent « sauter » d'une



*Figure I.5: Mécanisme réactionnel autour du triple contact coté cathode*

chaîne à une autre. Le taux d'hydratation de la membrane est représentatif du nombre de molécules d'eau présentes sur chaque site constitué par une terminaison sulfonate. Les références [11] et [12] fournissent plus de détails sur la structure du Nafion.



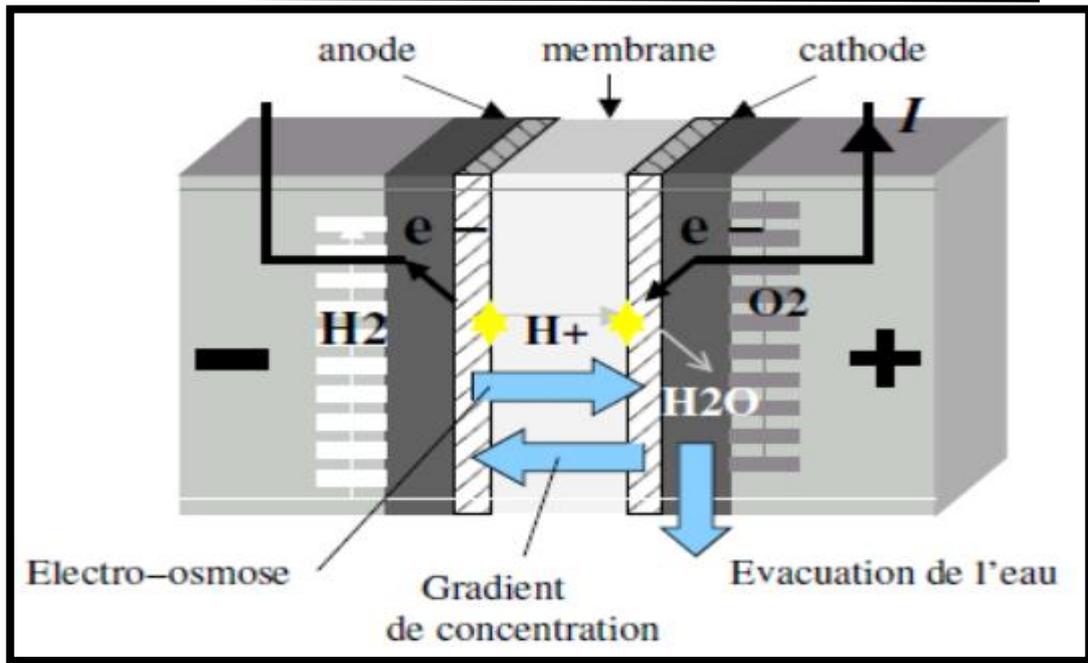
*Figure I.6: Eléments de la chaîne du polymère Nafion*

### I.6.5) Transport d'eau

L'eau liquide est produite par la réduction de l'oxygène (côté cathode) et migre de part et d'autre de la zone de catalyse : à travers la zone de diffusion cathodique et à travers la membrane. La Fig. 1.7 présente un schéma des principaux phénomènes de transport d'eau. Deux phénomènes antagonistes coexistent au niveau d'une membrane en Nafion, impactant sur l'hydratation :

- L'électro-osmose, phénomène qui se définit par un entrainement des molécules d'eau qui se trouvent autour des sites sulfonates, dans le sillage des protons migrant sous l'effet du champ électrique. Ce phénomène entraine les molécules d'eau de l'anode à la cathode, et a, en particulier, tendance à dessécher la membrane côté anode.

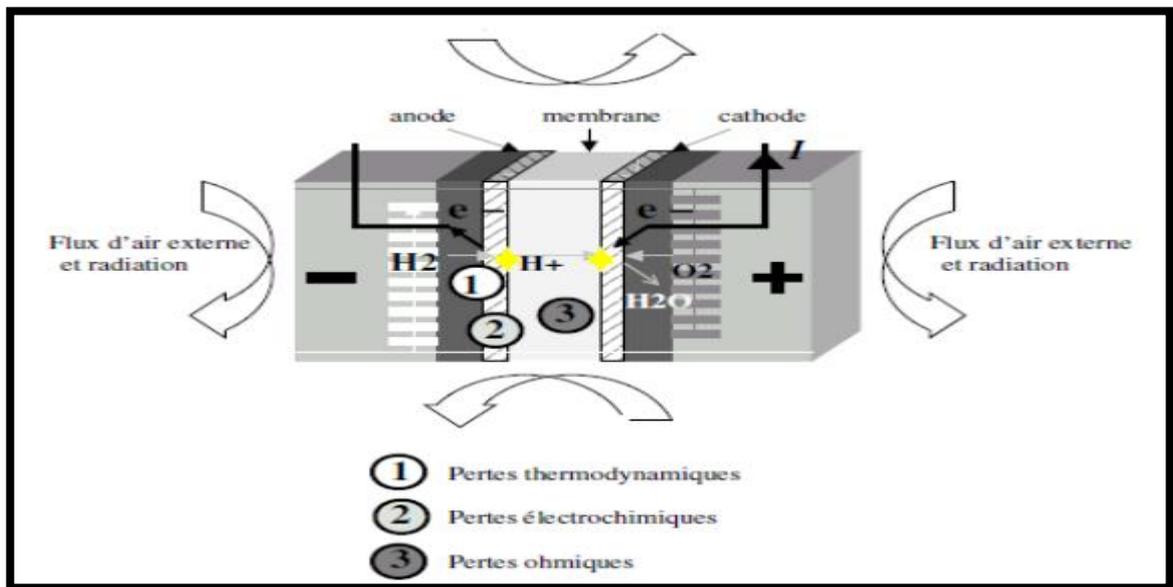
- Le transport dû au gradient de concentration de molécules d'eau qui est plus important côté cathode lieu de la production d'eau. Ce phénomène entraîne les molécules de la cathode vers l'anode. La dominance de l'un ou de l'autre phénomène dépend du niveau de courant. L. Gerbeaux a remarqué qu'à partir d'un certain niveau de courant, l'électro-osmose était mal compensée par la diffusion de l'eau. La référence présente un modèle unidimensionnel du transport de matière dans la membrane. [10] [12]



*Figure I.7: Phénomènes de transport d'eau au sein d'une cellule électrochimique type PEM*

**I.6.6) Phénomènes thermiques**

Outre la chaleur de la réaction (réaction exothermique entre H<sub>2</sub> et O<sub>2</sub>), les différents phénomènes décrits dans les paragraphes précédents participent à l'échauffement interne de la pile à combustible. La Fig.1.8 présente les différentes pertes qui produisent de la chaleur au sein d'une cellule électrochimique.



*Figure I.8: Phénomènes thermiques au sein d'une cellule électrochimique type PEM*

Deux moyens classiques de refroidissement sont actuellement envisagés :

- Par voie naturelle, la chaleur est évacuée par radiation et convection au niveau des surfaces externes et par la circulation des gaz en excès à la cathode. La convection peut être améliorée par l'adjonction d'un refroidissement par air pulsé (ventilateurs) pour des piles à combustible de faible puissance.
- Circuit de refroidissement interne et dédié par air, eau ou fluide caloporteur.

### I.7) La pile à combustible de type PEM

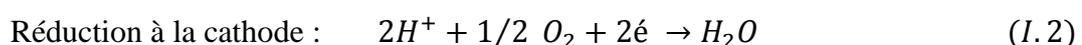
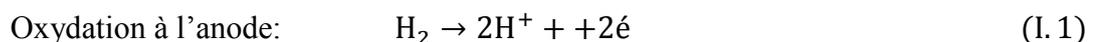
Parmi toutes les familles existantes, la pile à combustible de type PEM suscite de nombreux travaux de recherche et développement à travers le monde. La technologie évolue vite, d'autant plus qu'elle est poussée par la volonté des constructeurs des piles de proposer le plus rapidement possible des produits économiquement viables et fiables. Nous ne nous intéresserons qu'à la pile à combustible de type PEM, parce que cette technologie semble effectivement être la plus proche de la commercialisation dans le domaine du transport. En comparaison avec d'autres types des piles à combustibles, la pile de PEM a plusieurs caractéristiques attractives comme:

- Densité de puissance plus élevée ;
- Fort rendement de transformation d'énergie chimique en énergie électrique ;
- Basses températures, rapide et facile à démarrer ;
- Polymère solide ce qui réduit les soucis liés à la construction, au transport et à la fiabilité;
- Plus compacte et légère : une meilleure densité de puissance volumique ;
- Modulaire donc facile à installer. [13]

#### **Principe de fonctionnement de pile a combustible de type PEM:**

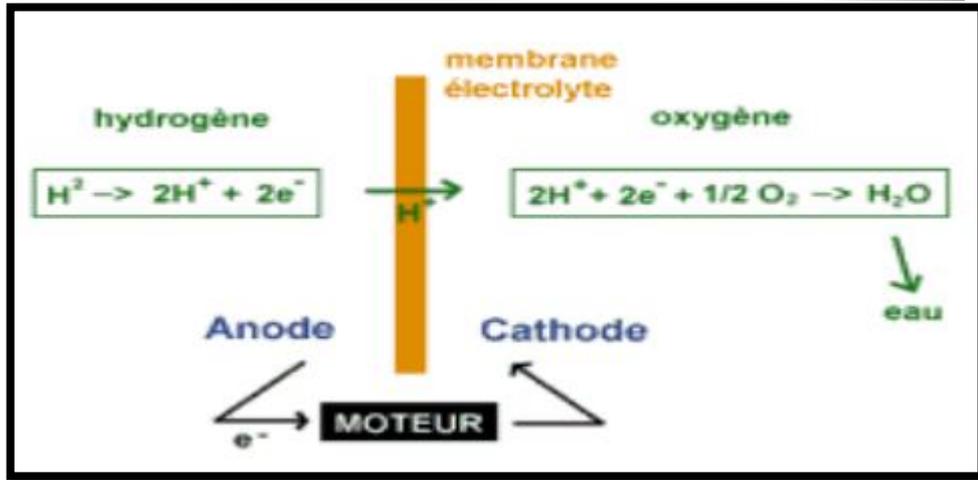
Une pile à combustible fonctionne sur le principe inverse de l'électrolyse de l'eau. Des réactifs chimiques permettent la production d'énergie électrique.

La pile à combustible d'électrolyte à membrane polymère convertit l'hydrogène et oxygène en énergie électrique. Cette réaction d'oxydoréduction correspond à l'électrolyse de l'eau inversée :



Réaction globale :





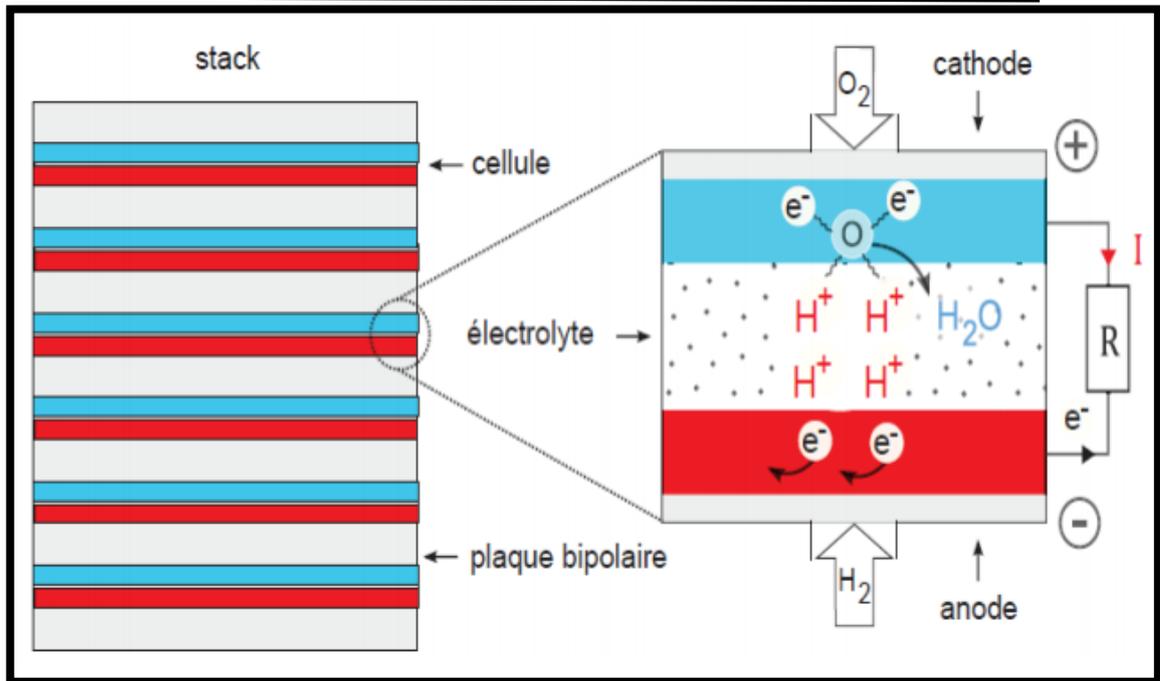
*Figure I.9: Principe d'une pile PEM*

L'électricité est produite par les deux électrons libérés par la molécule d'hydrogène.

Les protons d'hydrogène traversent la membrane séparant l'anode de la cathode et se recombinaient à la cathode avec les électrons et les atomes d'oxygène. Idéalement, les seuls produits secondaires de la réaction sont de l'eau et de la chaleur. Le schéma de principe d'une cellule élémentaire de pile à combustible est présenté en figure I-5. La membrane est le cœur de la cellule élémentaire : il s'agit d'un électrolyte en polymère qui est perméable aux protons d'hydrogène et imperméable aux gaz. Pour garantir la perméabilité aux protons, la membrane doit être en permanence humidifiée. [14] [15]

### **I.7.2) Description de la cellule PEM :**

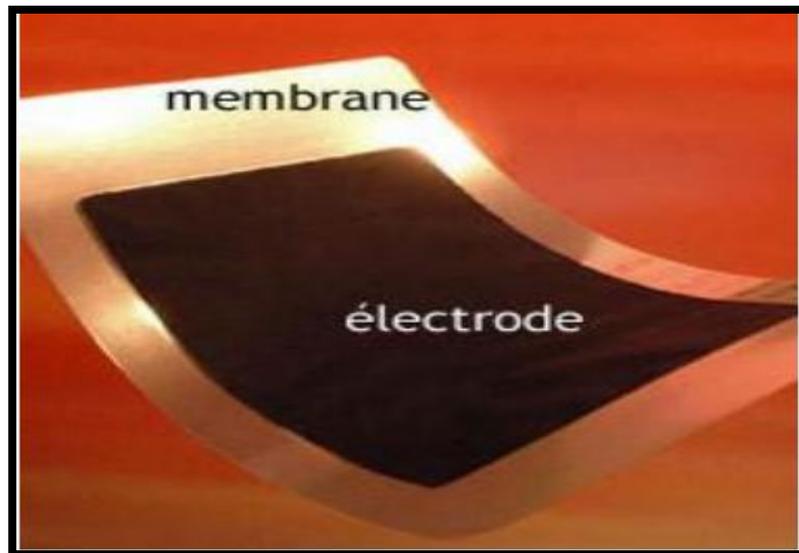
La cellule de base d'une pile à combustible est constituée d'un empilement de deux électrodes poreuses séparées par un électrolyte solide. De chaque côté de l'électrode, on trouve deux couches de diffusion et deux plaques bipolaires. [16]



*Figure I.10: Les Différents éléments de pile PEM.*

**I.7.2.1) électrolytes (membrane):**

L'électrolyte, ou membrane, constitue un des éléments principaux de la pile PEMFC Figure 1.11. Son rôle est multiple et les performances de la pile dépendent fortement de ses caractéristiques mécaniques, électriques et chimiques. Elle assure notamment la séparation des deux compartiments anodique et cathodique. [17]



*Figure I.11: La Membrane de pile à combustible*

### I.7.2.2) Les électrodes :

Les électrodes doivent pouvoir assurer le transfert des protons depuis les sites catalytiques d'oxydation de l'hydrogène vers les sites de réduction de l'oxygène via la membrane.

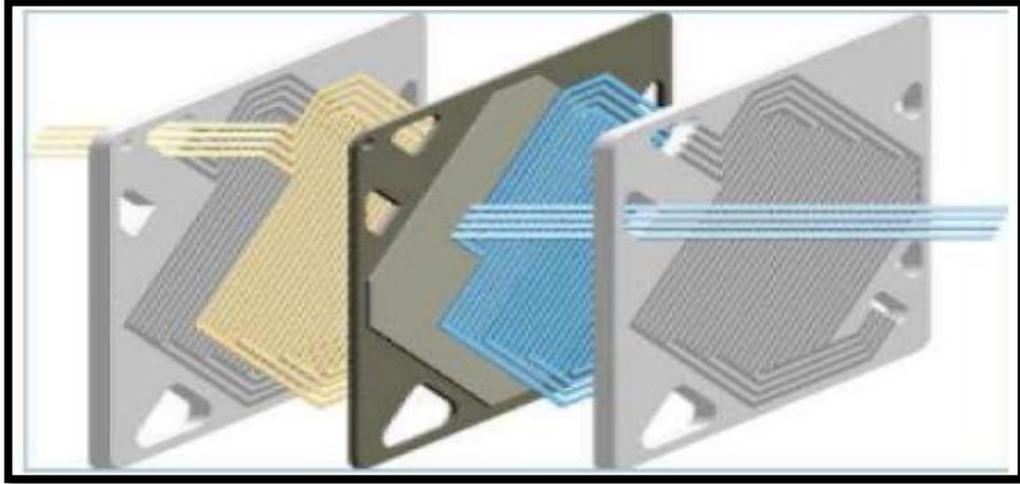
De même, les électrons produits par l'anode doivent pouvoir être évacués puis redistribués à la cathode par le circuit extérieur. Ainsi, les électrodes doivent assurer une bonne conductivité ionique et électronique. Pour cela, elles sont constituées d'un mélange intime de carbone (Conducteur électronique), d'électrolyte (conducteur protonique) et de platine (catalyseur). [18]

- **L'anode :** On réalise l'oxydation de l'hydrogène, selon la réaction précédente (pour une pile acide)
- **La cathode :** On réalise la réduction de l'oxygène, selon la réaction précédente
- **Le catalyseur:** pour que les deux demi-réactions soient possibles, il faut un catalyseur (c'est-à-dire un composé capable d'augmenter la vitesse de réaction, sans être consommé par lui-même). Afin que le catalyseur puisse travailler efficacement, la création de zones actives doit être assurée.

Ces zones mettent en présence à la fois le gaz réactif, les électrons, les protons et le catalyseur, cela se réalise au niveau de l'interface électrode-électrolyte [14].

### I.7.2.3) Plaques bipolaires :

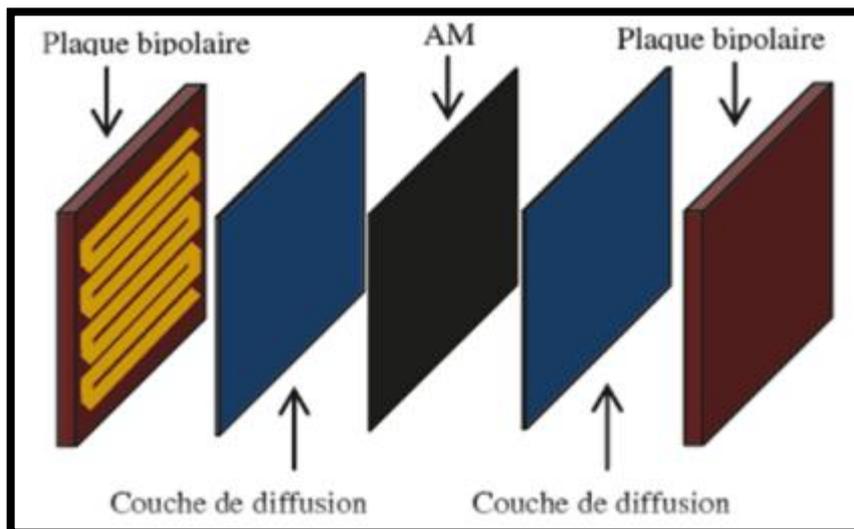
Ces plaques sont dites bipolaires car elles assurent simultanément l'alimentation en gaz ( $H_2$  et  $O_2$ ) des deux cellules les encadrant dans le cas d'empilement de cellules Figure I.12. Ainsi, une plaque apporte l'oxygène du côté cathodique et l'hydrogène du côté anodique de la cellule suivante et l'évacuation de l'eau produite par la réaction. Ces plaques sont composées de graphite à haute densité. Elles, sont disponibles commercialement mais à des prix très élevés. [17]. [19]



*Figure I.12: Plaque bipolaire.*

**I.7.2.4) Couches de diffusion(Backing) :**

Entourant les électrodes, les couches de diffusion, d'une épaisseur comprise entre 300  $\mu\text{m}$  et un millimètre ont un triple rôle. Elles doivent tout d'abord permettre la distribution et la diffusion des réactifs depuis les plaques bipolaires jusqu'aux électrodes, ainsi que permettre le transfert des électrons de l'anode ou de la cathode vers les plaques bipolaires. Elles assurent enfin un rôle essentiel dans la gestion de l'eau en permettant à la fois qu'elle soit évacuée et qu'elle humidifie la membrane. Elles doivent donc être à la fois conductrices de courant et de structure poreuse. La porosité peut varier entre 40 et 80% selon leur nature et leur application. La nature poreuse de ces supports permet aux réactifs de diffuser, ce qui leur permet d'entrer plus efficacement en contact avec la surface entière de l'électrode puis de la membrane.[20].



*Figure I.13: Le Cœur de pile à combustible*

### I.7.2.5) Assemblage Membrane – Electrodes :

Les électrodes sont à base d'un matériau carboné sur lequel sont déposés des grains de platine jouant le rôle de catalyseur. Leur épaisseur est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Le processus de réalisation conduit à les déposer sur la membrane où elles s'imbriquent fortement. Une fois ce processus réalisé, l'ensemble constitue ce que l'on appelle l'Assemblage Membrane–Electrodes (en Anglais MEA, *Membrane Electrode Assembly*).

Les travaux actuels portent sur :

- la réduction de la quantité de platine qui est un matériau onéreux.
- la réduction de l'épaisseur de la membrane qui en s'opposant à la circulation des ions intervient pour une part non négligeable dans la résistance interne du système.
- la recherche de matériaux de membrane pouvant fonctionner à des températures supérieures aux 40 – 90 degrés actuels.[21]

### I.7.3) Description du Stack de type PEM :

Un stack de pile à combustible de type PEM produit pratiquement autant d'énergie thermique que d'énergie électrique. Cette énergie thermique peut être employée de différentes manières.

Beaucoup de cellules sont reliées électriquement en série pour former le stack. Chaque cellule se compose d'un assemblage membrane-électrode qui constitue l'anode, la cathode et l'électrolyte serré entre deux plaques en graphite Figure 1.14. Les plaques dirigent le carbu

rant et l'air des deux côtés opposés de l'assemblage.

Un système de refroidissement est utilisé pour régler la température de fonctionnement de la pile à combustible. [15]

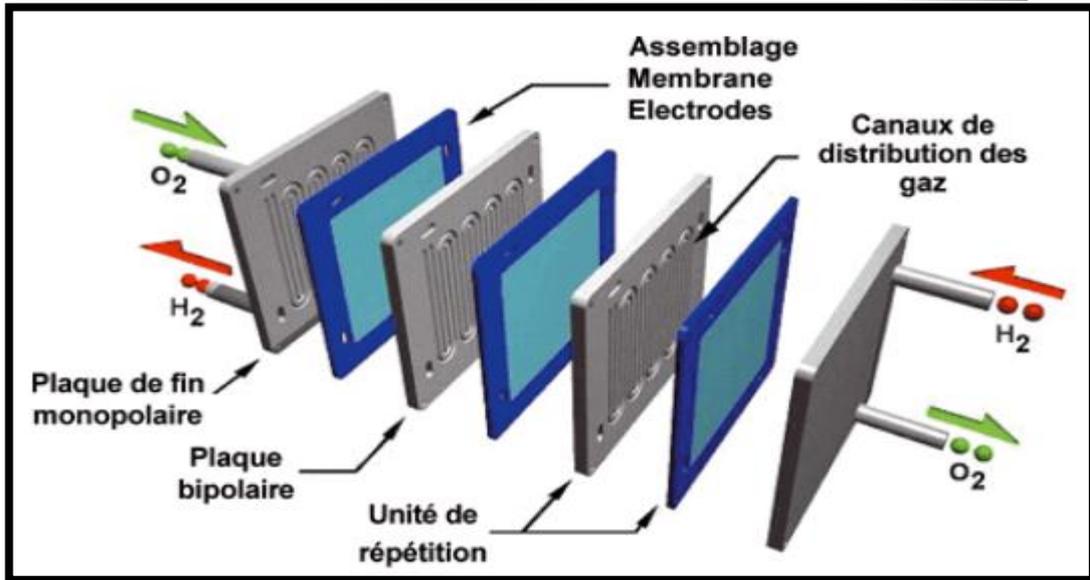


Figure I.14: Schéma d'une pile à combustible de type PEM

### I.8) système pile à combustible PEM

Un stack de pile à combustible nécessite pour son fonctionnement l'ajout de plusieurs appareils auxiliaires destinés à l'alimentation et au conditionnement des gaz, à la gestion de l'humidification de la membrane et au contrôle de la température de fonctionnement du système.

#### I.8.1) Les auxiliaires :

Les systèmes auxiliaires (refroidissement, contrôle et régulation des flux de gaz et de la pression) assurent le bon fonctionnement de la pile à combustible. En effet, les variations de pression, d'humidité des gaz entrants, ou simplement de leur débit ont une influence majeure sur les performances de la pile.

Un système de recirculation de l'hydrogène non consommé du côté anodique peut être intéressant, pour des raisons de coût et de stockage de l'hydrogène (un des problèmes de la pile à combustible). Des humidificateurs sont souvent nécessaires pour humidifier les gaz en entrée, et diminuer en conséquence la résistance ohmique de la membrane.

[21],[8]

#### I.8.2) Alimentation de pile a combustible de type PEM :

##### I.8.2.1) Circuit d'alimentation en hydrogène :

Pour une pile fonctionnant à l'hydrogène direct, un circuit simple assure l'approvisionnement en hydrogène. L'hydrogène est généralement stocké sous forme

gazeuse dans des réservoirs à haute pression (300 à 700 bars).

Une régulation mécanique de pression par détendeur est utilisée dans ce cas pour amener l'hydrogène à une pression convenable (1 à 3 bars). L'hydrogène non consommé peut être ensuite recyclé moyennant l'utilisation d'une pompe de recirculation ou d'un dispositif passif (Venturi) afin d'éviter un gaspillage du combustible. L'anode peut également fonctionner en régime fermé et dans ce cas une purge occasionnelle contrôlée par une valve doit être effectuée pour éviter l'accumulation de l'azote diffusé à travers la membrane électrolytique. Dans ce cas le résidu d'hydrogène peut être consommé dans un petit brûleur catalytique.

Eventuellement, l'hydrogène entrant dans le réacteur peut être humidifié avec de l'eau ionisée au moyen d'un système d'humidification à la membrane.[21],[22]

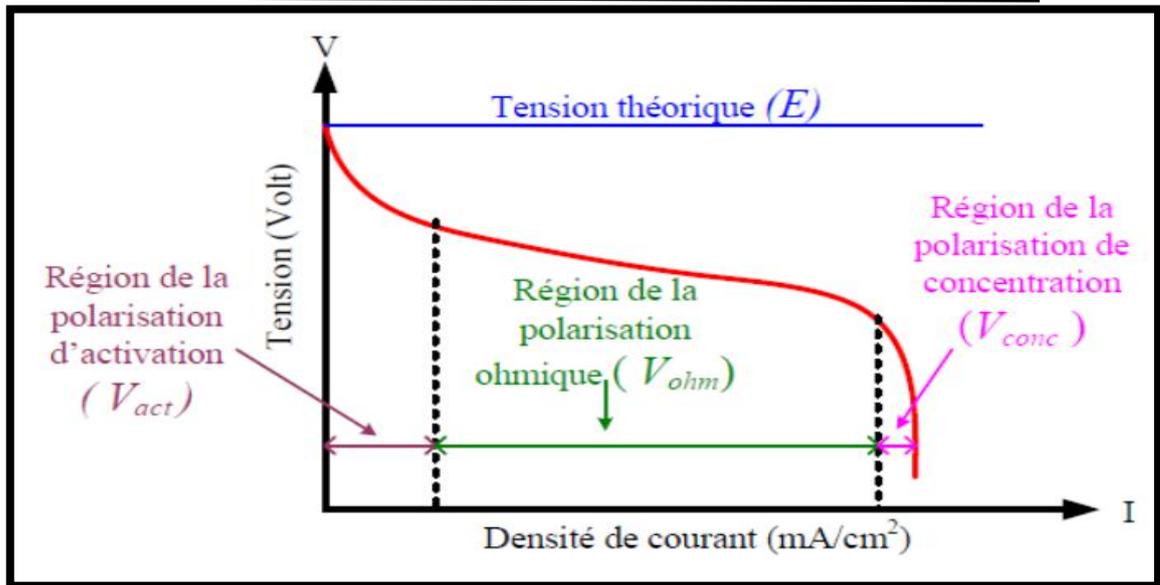
### **I.8.2.2) Circuit d'alimentation en air :**

L'oxygène alimentant la pile à combustible est généralement prélevé dans l'air ambiant afin d'éviter le stockage de l'oxygène. Cependant, l'air ne contient que 21% d'oxygène. Afin d'augmenter la concentration d'oxygène, il est parfois nécessaire (pour les puissances élevées) de comprimer l'air. Dans certains cas, l'énergie disponible dans les gaz de sortie (air appauvri en oxygène) de la pile peut être récupérée par une turbine. Pour les petites puissances, une soufflante peut suffire.

L'utilisation d'un compresseur n'est pas sans conséquences sur le rendement global du système. Celui-ci est alimenté par la pile à combustible et lui prélève une puissance non négligeable qui peut représenter jusqu'à 25% de la puissance électrique délivrée par la pile. Le compresseur est donc un auxiliaire très important dans la pile et de nombreux verrous technologiques sont à lever dans ce domaine : il doit permettre l'alimentation en air, l'évacuation de l'eau produite sans assécher la membrane de la pile et assurer une bonne dynamique du système (c.-à-d., répondre en temps réel aux sollicitations du système).[22]

### **I.9)Caractéristiques de polarisation d'une pile a combustible PEMFC**

On peut distinguer sur la courbe caractéristique de la pile PEMFC, trois domaines différents, qu'on appelle également courbe de polarisation :



**Figure I.15:** Caractéristique tension-courant d'une pile à combustible PEM

- Polarisation d'activation due au transfert de charges à l'interface électrode/électrolyte, dues la lenteur de la réaction chimique a la surface de l'électrode.
- Polarisation de résistance qui est la résultante de la résistance électrique des différents éléments de la pile et surtout de l'électrolyte ;
- Polarisation de diffusion qui dépend de la concentration de l'électrolyte autour des électrodes. [23]

### I.10) Dégradation de la pile PEM

Il y a différentes manières de classer les défauts qui peuvent survenir au niveau du Stack. Comme la pile fait intervenir plusieurs phénomènes multi-physiques, on peut se baser sur la nature physique des phénomènes à l'origine de défauts : origines mécanique, thermique, ou électrochimique .

Ce schéma Figure 1.16 montre les différentes dégradations de la pile PEM:

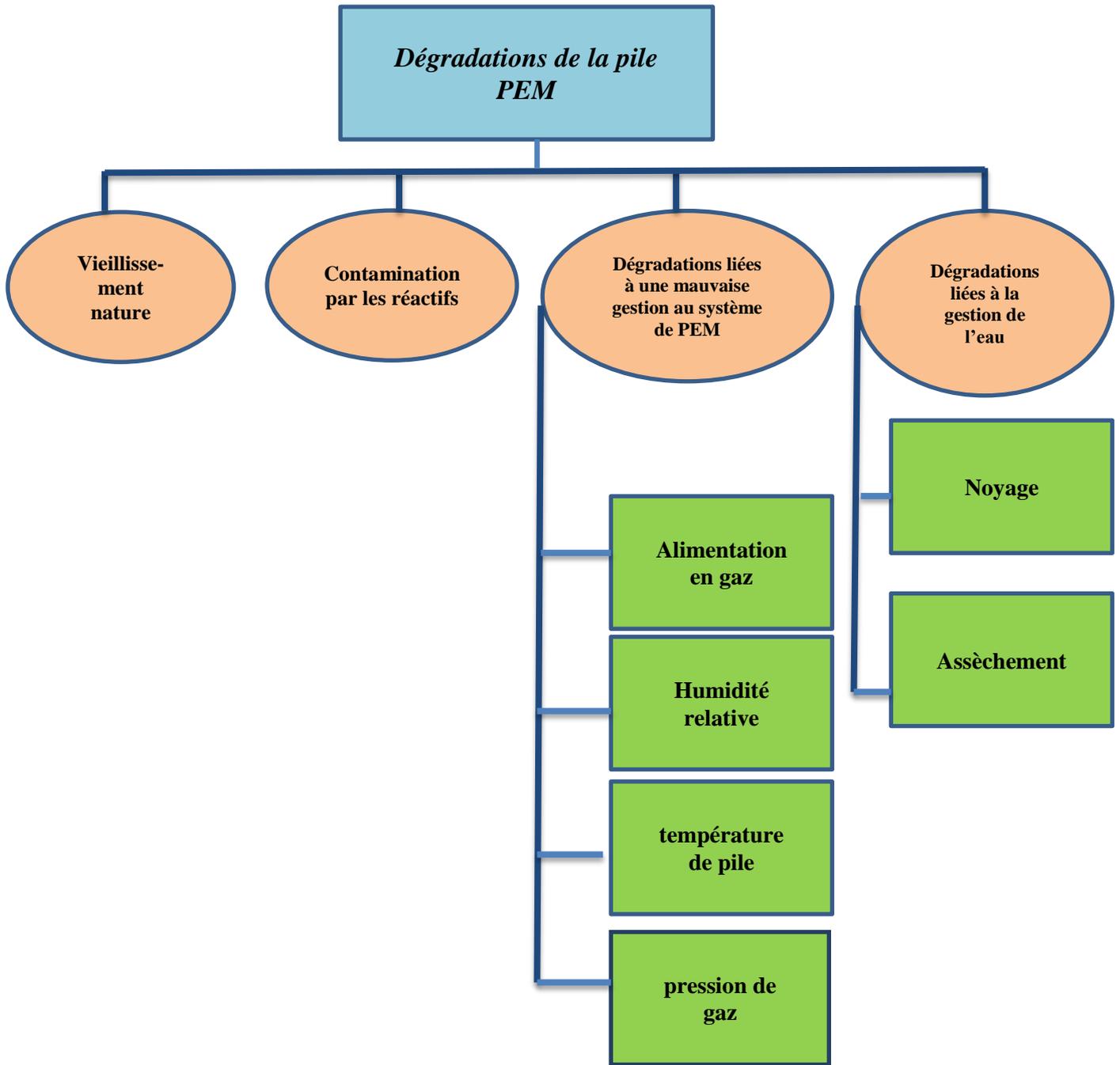


Figure I.16: Schéma des différentes dégradations de la pile PEM

### **I.10.1) Les défauts de la pile PEM**

#### **I.10.1.1) Dégradations liées à la gestion de l'eau :**

Certaines conditions opératoires appliquées à la pile à combustible peuvent donner lieu à deux types de défauts antagonistes : les noyages et les assèchements.

##### **• Noyage :**

Un noyage peut provoquer une accumulation d'eau liquide au sein d'une PEMFC. Différents moyens de corrections sont possibles :

- ✓ augmentation des débits des gaz.
- ✓ diminution du courant demandé à la pile quand l'application le permet,
- ✓ diminution de l'hygrométrie des gaz en entrée de pile.

##### **• Assèchement :**

Un assèchement se produit lorsque l'hydratation des membranes devient insuffisante pour assurer une bonne conductivité ionique. Afin de réhydrater la membrane, les actions possibles sont :

- ✓ diminution des débits des gaz,
- ✓ augmentation du courant demandé à la pile si l'application le permet.

#### **I.10.1.2) Dégradations liées à une mauvaise gestion des débits, des pressions, des températures et de l'humidité relative des gaz :**

Les défauts qui apparaissent au niveau du stack ont souvent un lien direct avec la gestion des systèmes placés autour de la pile et qui ont pour rôle de fournir des conditions opératoires nécessaires au bon fonctionnement de la pile.

##### **• Alimentation en gaz :**

Les débits des gaz réactifs doivent être réajustés pour fournir la quantité de réactifs anode /cathode nécessaires pour débiter le courant demandé par la charge. Dans le cas où ces quantités ne sont pas suffisantes, la pile se retrouve dans un état d'appauvrissement en réactifs qu'on appelle aussi sous stœchiométrie.

##### **• Pression des gaz :**

Les membranes sont des dispositifs fragiles (épaisseur de l'ordre 25 – 100 um), un fort gradient de pression entre l'anode et la cathode peut endommager la membrane.

- **Température de la pile:**

La température est une condition opératoire déterminante pour les performances de la pile. La température constitue un paramètre très critique à surveiller : une température trop élevée peut provoquer un assèchement et /ou dégradation de la membrane, tandis qu'une température basse favorise la formation d'eau liquide à l'intérieur de la pile.

- **Humidité relative :**

Une baisse de la valeur de l'humidité relative des réactifs en amont de la pile multiplie la valeur de la résistance de la membrane par un facteur de plusieurs centaines, occasionnant ainsi une forte diminution des performances de la pile.[24]

### **I.10.1.3) Contamination par les réactifs :**

Les membranes et les couches actives peuvent être affectées par des contaminants tels que le monoxyde et le dioxyde de carbone, le soufre, et le NH<sub>3</sub>. Cela conduit à la diminution des surfaces actives dans les assemblages membrane – électrodes.

### **I.10.1.4) Vieillessement naturel :**

Une pile à combustible fonctionnant avec des conditions opératoires nominales et stables sera affectée par un processus de vieillissement naturel des composants qui la constituent à savoir les membranes, les électrodes, les couches de diffusion, les plaques bipolaires et les joints d'étanchéité .Cela aura pour effet une diminution des performances de la pile : diminution des propriétés liées aux transports des réactifs, diminution des propriétés électriques des matériaux, diminution de l'activité catalytique ainsi que l'apparition des phénomènes d'inétanchéité entre les différents compartiments du Stack [25],[26].

## **I.11) Rendement de pile a combustible**

L'un des principaux avantages d'une pile à combustible est son rendement énergétique global. Celui-ci est théoriquement très supérieur à celui d'un moteur thermique classique.[8],[27]

### **I.11.1) Rendement matière - Quantités de combustibles :**

Pour les deux configurations décrites ci-dessus, on définit un rendement matière  $\eta_{mat}$  égale au rapport entre la quantité d'hydrogène consommée par la pile et la quantité produite par le reformeur suivant :

$$\eta_{mat} = M_{H_2}^{PILE} / m_{H_2}^R = (M_{H_2}^R - M_{H_2}^{ex}) / M_{H_2}^R \quad (I.4)$$

Ce rendement concerne l'utilisation des réactifs au niveau des électrodes. En effet, dans une pile, chaque ensemble "membrane-électrodes" doit être alimenté de manière identique, ce qui suppose un même débit et des pressions partielles identiques. Ces ensembles étant en série, tout défaut pour l'un d'eux se répercute sur tous les autres. On définit un coefficient d'utilisation des gaz que l'on estime typiquement à 95% :

$$\eta_{matiere} = 95 \% \quad (I.5)$$

### I.11.2) Rendement thermodynamique :

On peut définir un rendement thermodynamique théorique maximal (dans les conditions standards) : il s'agit de comparer l'énergie électrique créée avec l'énergie calorifique de la réaction électrochimique:

$$\eta_{thermo} = \frac{\Delta G^\circ(T)}{\Delta H^\circ(T)} \quad (I.6)$$

Pour la réaction de formation de l'eau, lorsque celle-ci est produite à l'état liquide à 25°C et sous une pression de 1bar, ces grandeurs valent :

- variation d'enthalpie libre standard :  $\Delta G^\circ = -237 \text{ kJ/mol}$

- variation d'enthalpie standard :  $\Delta H^\circ = -265.8 \text{ kJ/mol}$ .

Le rendement thermodynamique vaut alors :

$$\eta_{thermo} = 83\% \quad (I.7)$$

### I.11.3) Rendement voltaïque

Ce rendement se calculé par le rapport entre la tension de sortie de la pile et la tension

$E_0$  à la température concernée :

$$\eta_{voltaique} = \frac{v_{pile}}{E_0} \quad (I.8)$$

$E_0 = 1,23V$

### I.11.4) Rendement global :

Il s'agit de prendre en compte tous les rendements précédents:

$$\eta_{global} = \eta_{thermo} \times \eta_{matiere} \times \eta_{voltaique} \quad (I.9)$$

En pratique, la tension d'utilisation d'une cellule de PEM se situe autour de 0,7V. Nous pouvons alors calculer un rendement global approximatif :

$$\eta_{global} = 0,43 \quad (I.10)$$

**I.12) Conclusion**

Au début de ce premier chapitre on s'est intéressé aux piles à combustible et principalement aux piles PEM. On a abordés l'historique du développement des piles à combustible, leur principe de fonctionnement.

Dans ce contexte nous nous sommes intéressés dans ce travail qu'aux piles à membranes polymères échangeuses de protons PEM (*Proton Exchange Membrane*) aux causes de leurs avantages. Ensuite, la description du principe de fonctionnement d'une de type PEM et la structure complète de leur cellule .Enfin, on définit le rendement de la pile a combustible PEM.

**Chapitre II**  
**Modélisation d'une pile à combustible**  
**de type PEM**

### Introduction

Pour subvenir aux besoins en énergie qui occupe une position stratégique dans toutes les activités humaines, et tenir compte de l'augmentation de la demande énergétique, le développement des nouvelles sources d'énergie qui pourraient être une solution énergétique du futur est devenu une nécessité.

Les systèmes qui interviennent dans la production et la transformation de l'hydrogène qui est un vecteur énergétique de futur, on trouve les piles à combustible, leur modélisation prend une part très importante dans leur développement, car cela facilite la compréhension des phénomènes mis en jeu en leur sein. Il existe ainsi un grand nombre de modèles de piles à combustible, qui ont généralement chacun leurs propres spécificités et utilités, suivant les phénomènes étudiés. Les modèles mathématiques offrent un outil notable et indispensable pour approuver la conception et la performance des piles à combustible.

#### II.1) Modèle d'Amphlett et al

Le modèle doit permettre de tester différentes configurations ou choix des paramètres. Le modèle de stack de PàC retenu est celui présenté par (J.C.Amphlett et al.), ce modèle électrochimique semi-empirique simple et complet, peut être utilisé pour décrire le comportement dynamique d'un stack de PàC. Il permet de prendre en compte différents paramètres dont leurs définitions sont essentielles pour un bon résultat, la régulation des performances du stack en fonction de l'intensité de courant, et par conséquent décrire un comportement proche de la réalité. Le modèle présenté par Amphlett et al, qui est largement cité dans la littérature, est basé sur les équations de Nernst et de Tafel. [28]

les paramètres physiques du système pris en compte sont :

- les pressions effectives de l'oxygène et de l'hydrogène ;
- la température au bord ;
- la concentration de l'oxygène ;
- la concentration de l'hydrogène.

En utilisant les valeurs thermodynamiques du changement d'entropie à l'état standard, la tension est donnée en [29]; avec la température  $T$  exprimée en Kelvin, et, les pressions partielles  $P_{H_2}$  et  $P_{O_2}$ . La tension réelle aux bornes d'une cellule est inférieure à la tension en boucle ouverte à cause des différents types de pertes. Le potentiel thermodynamique est déni par une équation de Nernst sous forme développée comme :

$$E_{nerst} = 1.229 - 0.85 \times 10^{-3} (T - 298.15) + 4.3085 \times [\ln(PH_2) + 1/2 \ln(PO_2)] \quad (II.1)$$

Où :

T désigne la température de la cellule et est égale à 328K.

$PH_2$  et  $PO_2$  sont les pressions d'hydrogène et d'oxygène partielles(atm).

La tension en boucle ouverte de la PàC est calculée à partir du bilan énergétique entre l'énergie chimique des gaz réactifs et l'énergie électrique.

En mode de fonctionnement, trois types de pertes principales influencent la tension de sortie de la pile. La tension d'une cellule élémentaire de la PàC est alors, le potentiel réel de la PàC est diminué de son potentiel d'équilibre thermodynamique  $E_{nerst}$  à cause des pertes irréversibles. Quand le courant passe, une déviation du potentiel thermodynamique est due à des travaux d'électricité effectués par la cellule., l'expression de la tension d'une cellule unique est :

$$V = E_{nerst} - \eta_{act} - \eta_{ohmc} - \eta_{conc} \quad (II.2)$$

$E_{nerst}$  : est la tension théorique en boucle ouverte

$\eta_{act}$  : représente les pertes d'activation,

$\eta_{ohmc}$  : les pertes ohmiques,

$\eta_{conc}$  : les pertes de concentration.

La PàC comporte plusieurs cellules élémentaires placées en série, alors la tension aux bornes de la pile est la somme des tensions de ces cellules individuelles. En supposant que les cellules sont identiques, la tension de la pile peut être calculée en multipliant la tension d'une cellule par le nombre total  $N$  de cellule composant la pile :

$$V_{st} = N.V \quad (II.3)$$

### II.1.1) Pertes d'activation

Les pertes d'activation sont dues à la vitesse des réactions chimiques au niveau de la surface de réaction. Une partie de l'énergie est utilisée pour activer et accélérer les réactions chimiques, ce qui est à la base de cette chute de tension qui est fortement non linéaire. En d'autres termes, la polarisation d'activation est présente quand le taux d'une réaction électrochimique à la surface de l'électrode est contrôlé par le ralentissement de la cinétique pour cette électrode. Il existe aussi une autre raison de chute de tension qui est due aux courants de fuite.

L'expression simple proposée par J.C. Amphlett et al. pour toute la surtension d'activation est exprimée dans l'équation (II. 4) .

$$\eta_{act} = \xi_1 + \xi_2 T + \xi_3 T \ln((CO * 2)) + \xi_4 T \ln(I) \quad (II. 4)$$

I est le courant de fonctionnement de la pile (A)

$\xi_1$   $\xi_2$   $\xi_3$  et  $\xi_4$  des coefficients paramétriques appropriés à chaque modèle physique de PàC, qui identifie les paramètres exactes utilisée pour notre système, qui sont donnés ci-dessous:

$$\xi_1 = - 0.948$$

$$\xi_2 = k_{Cell} + 0.197 \times 10^{-3} \ln(Afc) + 4.3 \times 10^{-5} \ln(CH) \quad (II. 5)$$

$$\xi_3 = 6.3 \times 10^{-5}$$

$$\xi_4 = 0.72 \times 10^{-4}$$

$C_{O_2}^*$  représente les concentrations de l'oxygène ( $mol/cm^3$ ) dissout dans un film d'eau à l'interface de la membrane gaz/liquide sur la surface catalytique de la cathode, elle est exprimée en fonction de sa pression par la loi de Henry [30] :

$$C_{O_2}^* = \frac{P_{O_2}^*}{5.08 \times 10^6 e^{-(498/T)}} \quad (II. 6)$$

A des basses densités de courant, la forme de la courbe est principalement déterminée par la polarisation d'activation de la cathode. La cathode est généralement l'électrode qui limite la performance d'exécution de la PEMFC, car la densité de courant d'échange de la réaction de réduction de l'oxygène est basse, elle est approximativement de l'ordre 5 à 6 fois inférieure à celle de la réaction au niveau de l'anode [31].

$$P_{O_2}^* = P_{cath} \cdot [1 - x_{H_2O}^{sat}] \quad (II. 7)$$

$P_{cath}$  est la pression de l'oxygène à la cathode,  $x_{H_2O}^{sat}$  est la fraction molaire de saturation de l'eau dans le gaz humidité et supposée  $\approx 50\%$  , on obtient alors :

$$P_{O_2}^* = \frac{1}{2} \cdot P_{cath} \quad (II. 8)$$

A l'anode, on utilise de l'hydrogène pur, qui ne contient pas du monoxyde de carbone.

$$P_{H_2}^* = P_{anode} \cdot \left[1 - \frac{1}{2} \cdot x_{H_2O}^{sat}\right] \quad (II. 9)$$

$P_{anode}$  est la pression de l'hydrogène à l'anode, et ( $x_{H_2O}^{sat} = 0.5$ ), l'équation devient :

$$P_{H_2}^* = \frac{3}{4} \cdot P_{anode} \quad (II. 10)$$

### II.1.2) Pertes ohmiques

Les pertes ohmiques sont dues à la résistance que rencontre le flux d'ions en traversant l'électrolyte et à la résistance que rencontrent les électrons dans les électrodes.

Cependant, les pertes apparaissant au niveau de l'électrolyte sont les plus importantes et peuvent être réduites en diminuant l'épaisseur de l'électrolyte et en améliorant sa conductivité ionique. L'électrolyte et les électrodes obéissant à la loi d'Ohm, il s'agit, dans la membrane électrolyte polymère, d'une conduction ionique. Or, les ions ayant une mobilité bien plus faible que les électrons, la résistance de la membrane est bien plus grande. On peut exprimer les pertes ohmiques par l'équation suivante :

$$V_{ohm} = I. (R_m + R_c) \quad (II.11)$$

$R_c$  est la résistance équivalente de contact à la conduction des électrons ,

$R_m$  est la résistance équivalente de la membrane à la conduction des protons, elle est calculée à partir de la relation suivante :

$$R_m = \frac{r_M.l}{A_{fc}} \quad (II.12)$$

Où  $l$  est l'épaisseur de la membrane ( $\mu m$ ) ,

$r_M$  est la résistance spécifique de la membrane ( ohm.cm) [19], obtenue par la relation suivante :

$$r_M = \frac{181.6 + \left[ 1 + 0.03 \left( \frac{I}{A_{fc}} \right) + 0.062 \left( \frac{T}{303} \right)^2 \left( \frac{I}{A_{fc}} \right)^{2.5} \right]}{\left[ \lambda_{H_2O/SO_3^-} - 0.634 - 3. \frac{I}{A_{fc}} \right] \cdot \exp \left[ 4.18 \left( \frac{T - 303}{T} \right) \right]} \quad (II.13)$$

Le terme  $[181.6/\lambda_{H_2O/SO_3^-} - 0.634]$  représente la résistance spécifique de la membrane (ohm.cm) à  $I = 0$  et à une température de  $30^\circ C$  ( $T = 303K$ ).

Le terme exponentiel au dénominateur est le facteur de correction de la température si cette dernière n'est pas à  $30^\circ C$ .

$y = \lambda_{H_2O/SO_3^-}$  est la teneur en eau dans la membrane, admettant une valeur minimale et maximale respectivement de 0 et de 22.

$A_{fc}$  est la surface active de la pile ( $cm^2$ ) [32] [33].

### II.1.3) Pertes de concentration

Lorsque, à une électrode, il y a une perte de potentiel dû à l'incapacité du système à maintenir la concentration initiale des réactants, on a alors la formation d'un gradient de concentration. De nombreux facteurs peuvent contribuer à la polarisation de concentration : la faible diffusion du gaz à travers les électrodes poreuses, la dissolution des réactants ou des produits dans l'électrolyte, la diffusion des réactifs ou des produits du site de la réaction vers l'électrolyte ou l'inverse. Ces pertes sont données par la relation suivante :

$$V_{con} = -B \left( 1 - \frac{J}{J_{max}} \right) \quad (II.14)$$

B est une constante empirique qui dépend du type de pile et de son état de fonctionnement, [34].

J est la densité de courant du fonctionnement permanente ( $A/cm^2$ ),  
 $J_{max}$  est la densité de courant maximale.

#### II.1.4) Influence de la température et de la pression sur la caractéristique de la PàC

L'augmentation de la température influe positivement sur la tension de la pile, autrement dit si l'on augmente la température aux environs de 90°C, la tension d'une cellule augmente jusqu'à une valeur de 1 volt par cellule environ Fig. II-1, ce qui entraîne l'augmentation de la puissance fournie par la pile Fig. II-2, néanmoins limitée par la charge. La température accélère d'une part, les réactions chimiques à l'intérieur de la pile et d'autre part, diminue les pertes d'activation et les pertes ohmiques, par conséquent les pertes de concentration sont constantes [28]. Il faut signaler que pour les pertes ohmiques qui suivent une forme linéaire, la température agit directement sur la résistance spécifique de la membrane. Par contre, pour les pertes d'activation, en plus de la diminution de ces pertes, la température amortit sa non linéarité pour des valeurs élevées de densité de courant. La température de la pile doit rester limitée (< 100°C) pour qu'on puisse garder l'efficacité de la membrane et le fonctionnement normale des composants du cœur de la pile, donc on ne peut pas dépasser une certaine limite ( $T_{max} = 100^\circ C$ ) qui est nécessaire à l'obtention d'une conductivité ionique suffisante de l'électrolyte et maintenir l'eau à l'état liquide dans la membrane.

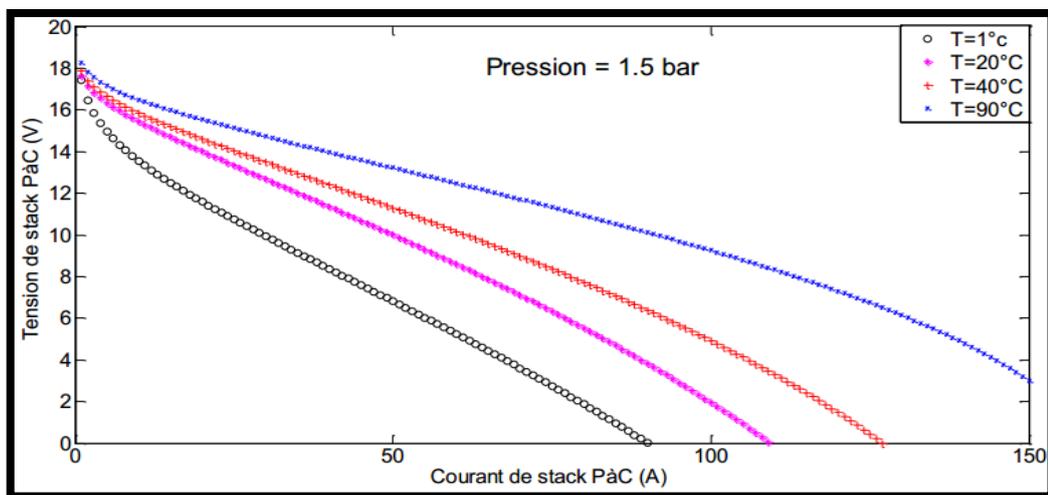
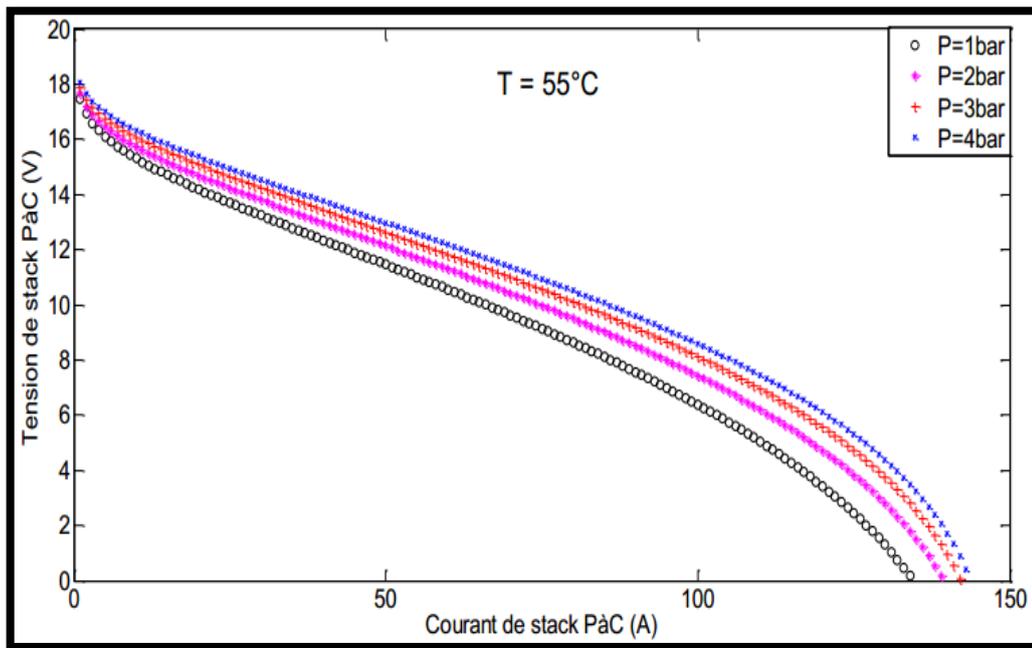


Figure II-1 : L'effet de la température sur la tension [26].



**Figure II-2** : L'effet de la température sur la puissance

Pour voir l'effet de la pression sur la PEMFC, on fixe la température à 55°C et on varie les pressions d'oxygène et d'hydrogène. L'augmentation des pressions provoque l'augmentation de la tension Fig. II-3 et la puissance Fig. II-4 aux bornes de la pile. Les pertes ohmiques et de concentration restent invariables et linéaires, ce qui veut dire que la variation de la pression ne fait aucun effet sur eux. Par contre, les pertes d'activation augmentent proportionnellement en fonction de cette pression mais d'une manière moins sévère que celle obtenue avec la variation de température.

Le modèle Amphlett donne une grande précision dans la conception des PEMFC quelle que soit la valeur du courant. Il présente la caractéristique en deux zones principales : la première est la perte d'activation à partir de la tension en circuit ouvert, et la seconde est la perte ohmique. Cette dernière change en fonction de la variation de courant en utilisant l'état d'équilibre électrochimique généralisé du modèle (GSSEM) (Mann et al). Parmi les aspects négatifs de ce modèle, il impose la prise en compte de nombreuses données physiques et géométriques provenant du PAC [28].

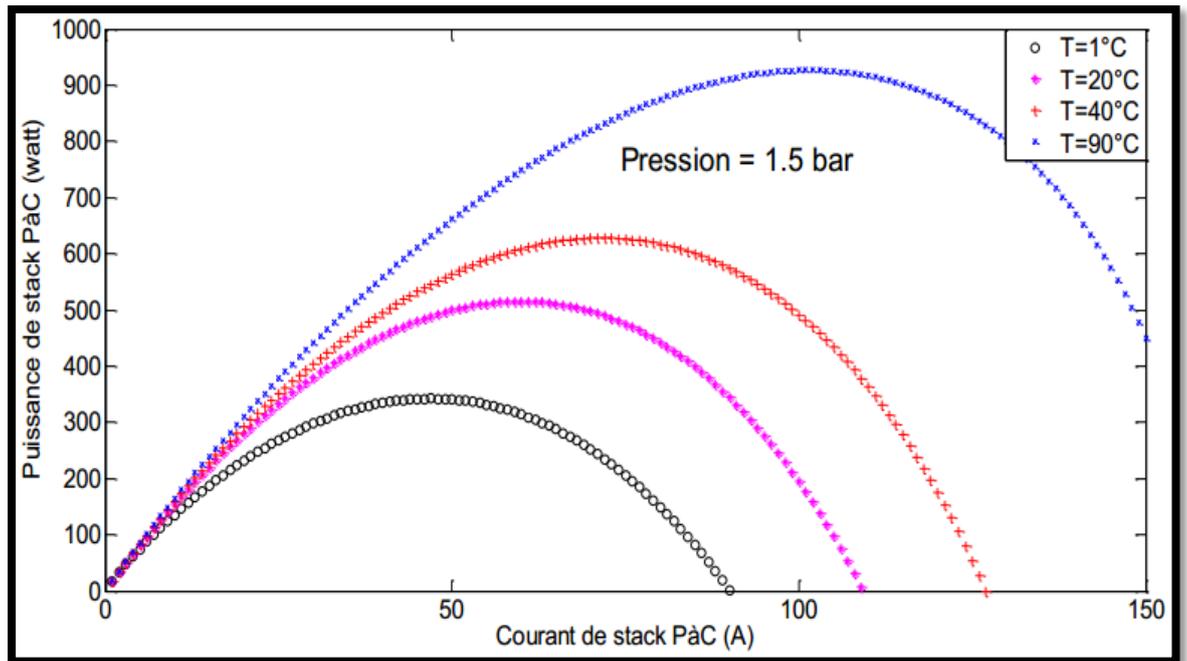


Figure II-3 : L'effet de la pression sur la tension

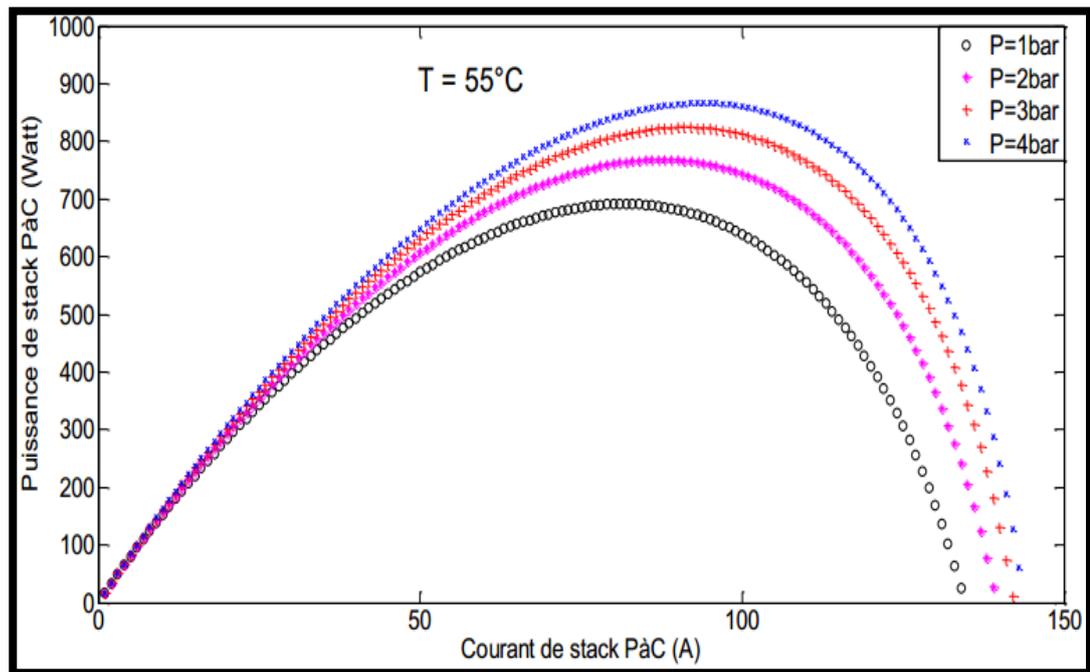


Figure II-4 : L'effet de la pression sur la puissance

### II.2) Modèle statique de Larminie-Dicks

Certain auteurs utilisent des équations empiriques pour décrire la caractéristique courant tension de la pile en régime permanent. Ce type de modèle ne permet de représenter que l'allure de la tension en fonction du courant débité en régime stationnaire, mais il tient compte du courant limite pour lequel la tension PAC s'effondre. Les paramètres, dans ce cas, sont déterminés en fonction des résultats expérimentaux. Larminie et Dicks utilisent des équations empiriques pour décrire la caractéristique tension-courant de PAC. Dans ce cas, les paramètres sont déterminés par identification des résultats expérimentaux [35]. L'expression de la tension est la suivante :

$$V = E_0 - A \log \left( \frac{I + i_n}{i_0} \right) - R_m (I + I_n) - B \log \left( 1 - \frac{I + i_n}{i_{lim}} \right) \quad (II. 15)$$

$E_0$ : la tension réversible sans perte de la pile à combustible,

$A$  : la pente de la droite de Tafel,

$I$  : Le courant délivré par la pile,

$i_0$  : le courant de l'échange,

$i_n$ : le courant interne,

$i_{lim}$ : le courant limite,

$R_m$  : résistance de membrane et de contact ,

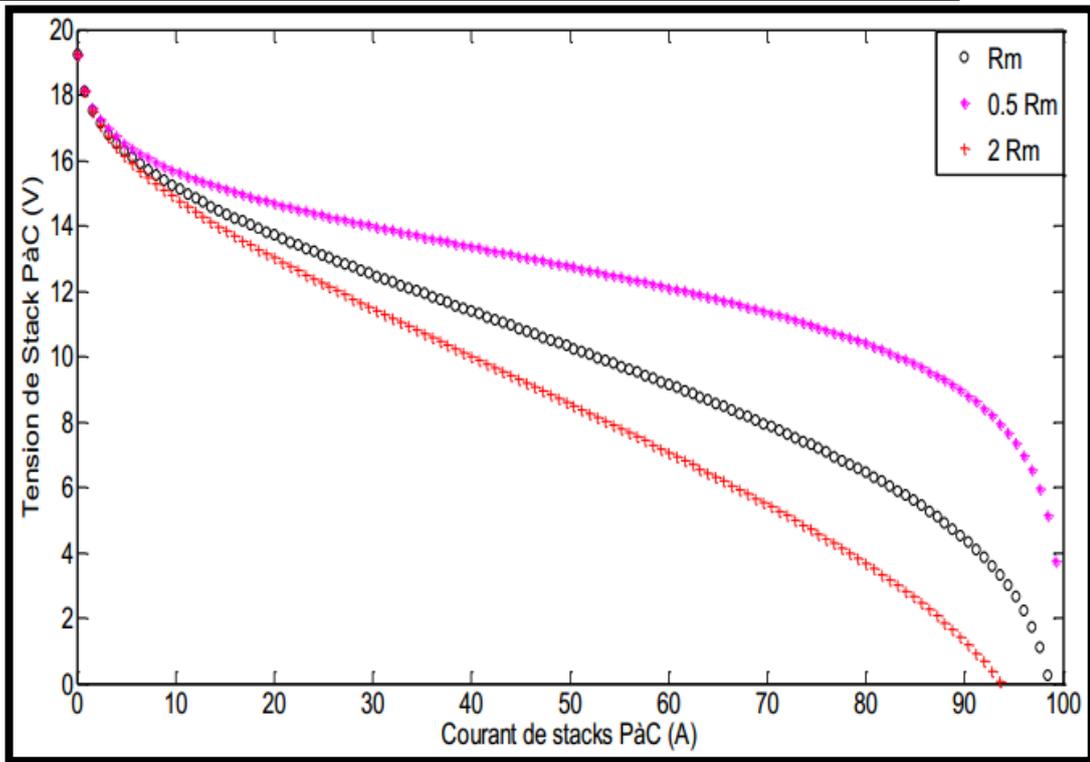
$B$  : La constante de transfert de masse,

Il est intéressant de montrer l'influence de ces paramètres sur la chute de tension lorsque ceux-ci sont divisés ou multipliés par 2.

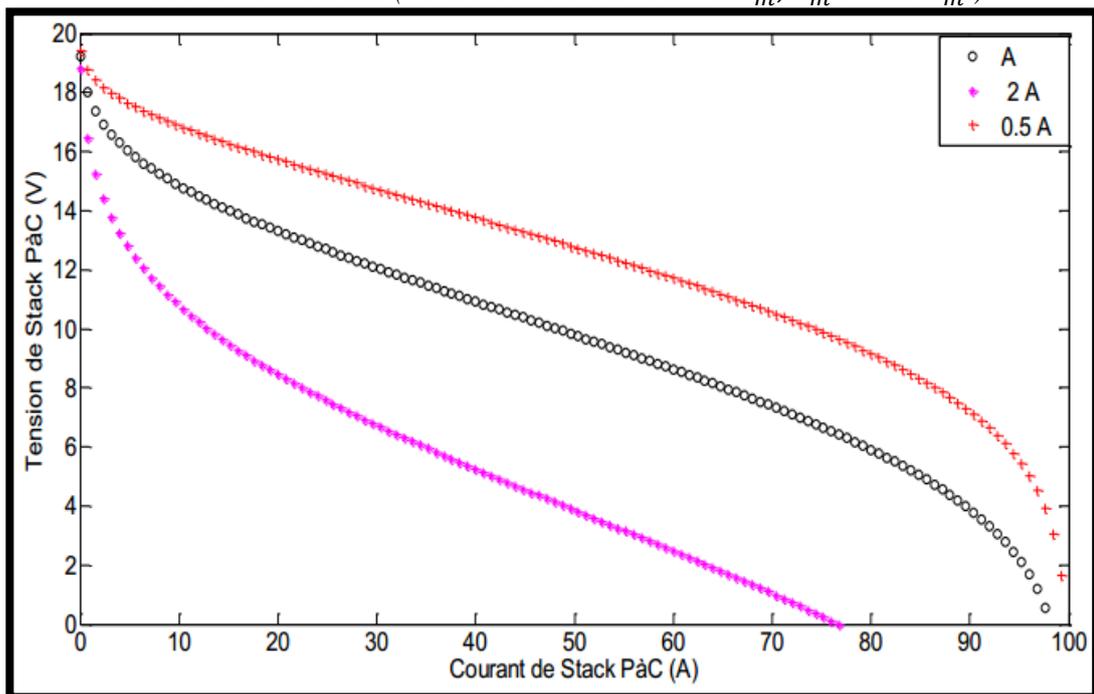
L'influence d'une variation de la résistance de la membrane est montrée sur la Fig.II. 5. La valeur de la résistance modifie la pente de la caractéristique statique dans sa zone linéaire.

la Fig.II. 6. fait apparaître l'influence du terme  $A$  sur la chute de tension d'activation et la tension de la pile. Ce terme est un facteur multiplicateur des pertes d'activation quand il est divisé. Le courant d'échange  $i_0$  est présenté sur la Fig.II. 7, son influence sur la chute de tension est moins importante pour une multiplication ou une division par 2. La chute de tension d'activation augmente quand  $i_0$  diminue.

La Fig.II. 8 expose l'influence du terme  $B$  sur les pertes de concentration. Ce dernier est un facteur multiplicateur de la chute de tension de diffusion. Cette chute de tension intervient peu pour les faibles valeurs de courant, par contre elle intervient fortement pour les valeurs du courant qui s'approchent de la valeur du courant limite.



*FigureII.5 : Influence de la résistance de la membrane sur la chute ohmique et sur la tension totale PAC (valeur de la résistance :  $2R_m$ ,  $R_m$  et  $0.5 R_m$  )*



*FigureII.6 : Influence de paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale PAC (valeur du coefficient A :  $2A$ ,  $A$  et  $0.5 A$  )*

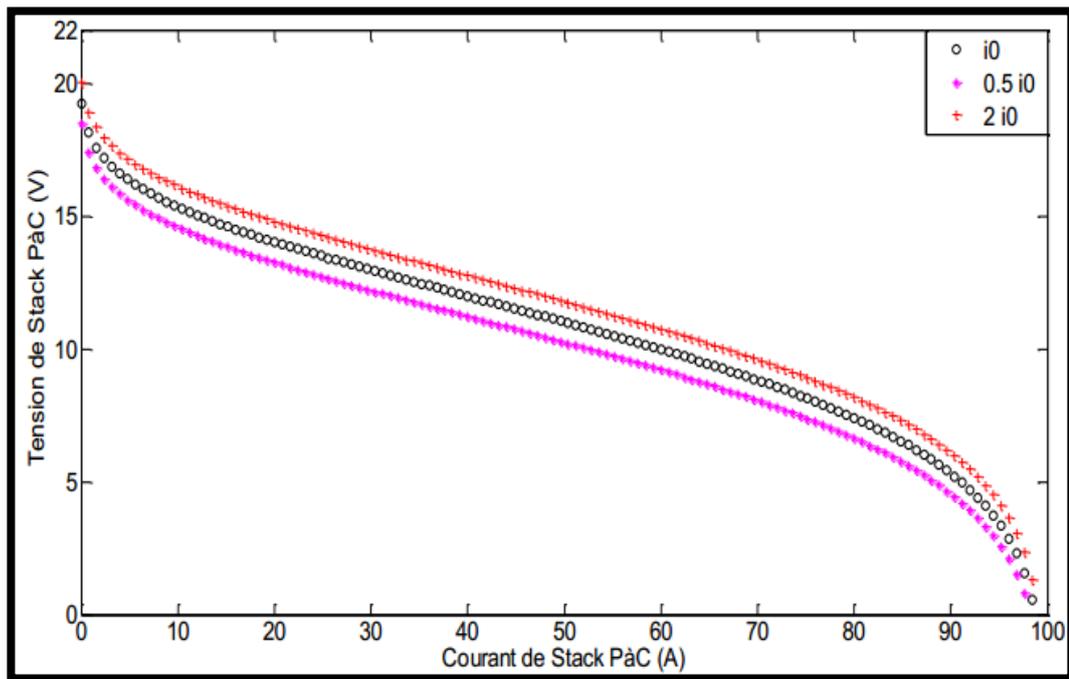


Figure.II.7 :Influence du courant d'échange et sur la tension totale PAC (valeur du courant d'échange  $2i_0, 0.5 i_0$  et  $i_0$  )

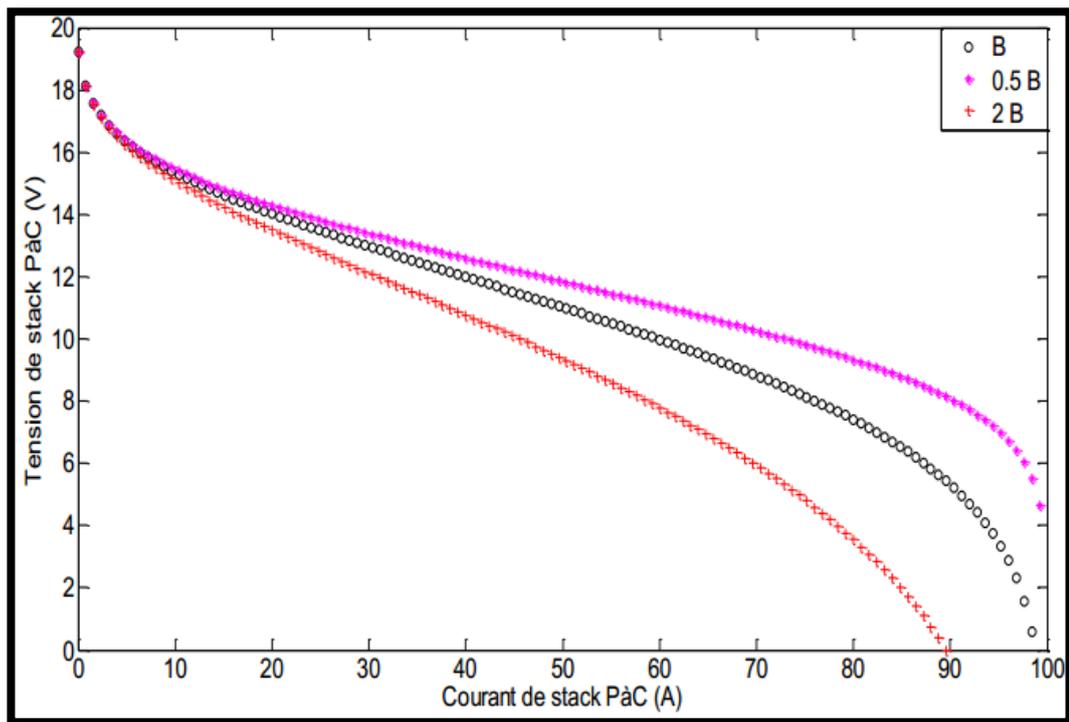


Figure II.8 : Influence du paramètre  $B$  sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PAC (valeur du coefficient  $B : 2B, B$  et  $0.5B$  )

Théoriquement, A et B sont données par :

$$A = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \quad (II.16)$$

$$B = \frac{R.T}{2.F} \quad (II.17)$$

Avec :

$R$  Est la constante universelle des gaz,

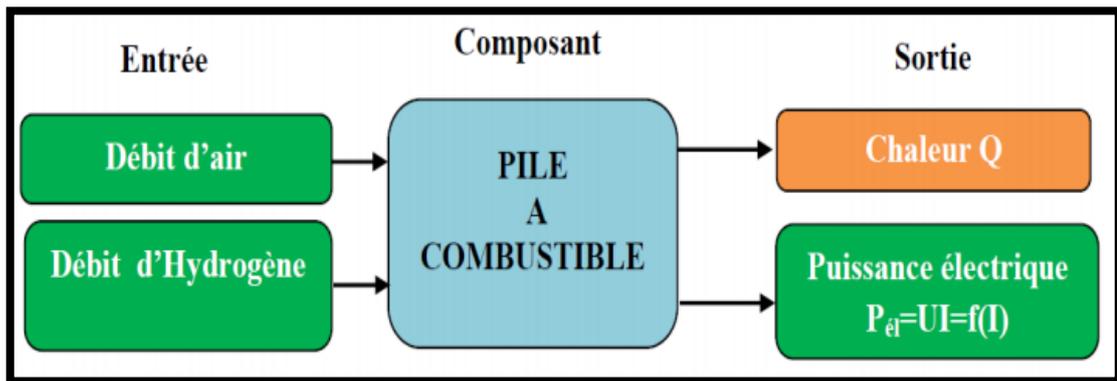
$T$  : La température(K ° ),

$F$  : Le nombre de Faraday,

$\alpha$  : Est appelé le coefficient de transfert de charge. Sa valeur dépend de la réaction mise en jeu et du matériau d'électrode, mais il doit être dans la gamme de 0 à 1. Pour l'électrode à hydrogène, la valeur est d'environ 0,5. Pour l'électrode à oxygène, il est compris entre 0,1 et 0,5 [35].

### II.3) Modèle physique de la pile à combustible

La figure (II.9), représente un modèle physique d'une pile à combustible (PAC).



*Figure II- 9:Modèle physique de la pile à combustible*

La PAC correspond à une source d'énergie, en fonction du besoin de la charge un point de fonctionnement (Tension / Courant) va s'établir. La quantité d'hydrogène consommée est proportionnelle à la quantité d'électricité absorbée par la charge [45].

### II.4) Modélisation

Il existe un grand nombre de modèles de piles a combustible ,qui ont généralement chacun leurs spécifites et utilités, suivant les phénomènes étudiés.

#### II.4.1) Le débit d'hydrogène et d'oxygène à l'entrée

Les débits d'entrée de l'hydrogène  $H_2$ , de l'oxygène  $O_2$  (2) et l'eau  $H_2O$ , sont donnés par l'équation suivante [45] :

$$\dot{m}_{j,in} = \frac{N_0.I}{2.F.U} \quad (II.18)$$

$I$ : Courant électrique (A).

$j$ : Représente l'élément ( $H_2O$ ,  $H_2$ ,  $O_2$ ).

$U$ : taux d'utilisation.

$F$ : constante de faraday.

$N_0$ : nombre de cellules en série.

### II.4.2) La résistance interne :

Elle est donnée comme suit,

$$R_{int} = 0.01605 - 3.5 * 10^{-5} \cdot T + 8 * 10^{-5} \cdot I \quad (II.19)$$

### II.4.3) Les pertes ohmiques :

Les pertes ohmiques sont dues à la résistance qui oppose les électrodes et les plaques bipolaires à la circulation des électrons et l'électrolyte au passage des protons [37]. Elles sont données par l'équation suivante :

$$\eta_{ohmic} = R_{int} \cdot I \quad (II.20)$$

### II.4.4) La surtension d'Activation :

Les pertes d'activation sont dues au démarrage des réactions chimiques à l'anode et à la cathode. Une partie de l'énergie disponible est utilisée pour briser et reformer les liaisons chimiques aux électrodes. [38]

$$\eta_{act} = B * \log(C * I) \quad (II.21)$$

$B$ : constante d'activation de tension ( $A^{-1}$ )

$C$ : facteur d'échelle. m/s

$I$ : Courant électrique (A).

### II.4.5) Résistance d'activation $R_a$ :

$$R_a = -\frac{\eta_{act}}{I} \quad (II.22)$$

### II.4.6) La constante de modélisation $K_r$ :

C'est une constante supposée utilisée durant les calculs pour simplifier l'écriture des équations, elle est donnée par [36] :

$$K_r = \frac{N_0}{4 \cdot F} \quad (II.23)$$

**II.4.7) La pression de l'hydrogène:**

La quantité d'hydrogène et de l'oxygène consommée dans la pile à combustible dépend des débits d'entrée et de sortie, de courant, et volume des électrodes, si les débits d'entrée et de sortie sont connus, la pression à l'anode peut être déterminée par La loi des gaz parfait [39] :

$$PV = nRT \quad (II.24)$$

Donc on obtient :

$$\frac{V_a}{RT} \frac{dP_{H_2}}{dt} = \dot{m}_{H_2,in} - \dot{m}_{H_2,out} - 2 \cdot K_r \cdot I \quad (II.25)$$

$$\frac{dP_{H_2}}{dt} = \frac{RT}{V_{an}} (\dot{m}_{H_2,in} - \dot{m}_{H_2,out}) - 2 \cdot K_r \cdot I \quad (II.26)$$

$$\dot{m}_{H_2,out} = K_{H_2} \cdot P_{H_2} \quad (II.27)$$

On remplace (II.8) dans (II.7) on obtient [38]:

$$\frac{dP_{H_2}}{dt} = \frac{RT}{V_{an}} (\dot{m}_{H_2,in} - 2 \cdot K_r \cdot I) - \frac{RT}{V_{an}} \cdot P_{H_2} \quad (II.28)$$

$$P_{H_2} = \frac{1}{K_{H_2}} (\dot{m}_{H_2,in} - 2 \cdot K_r \cdot I) - \frac{dP_{H_2}}{dt} \cdot \frac{V_{an}}{RTK_{H_2}} \quad (II.29)$$

$$t_{H_2} = \frac{V_{an}}{RTK_{H_2}} \quad (II.30)$$

Après simplifications, on aura :

$$t_{H_2} \frac{dP_{H_2}}{dt} + P_{H_2} = \frac{1}{K_{H_2}} (\dot{m}_{H_2,in} - 2 \cdot K_r \cdot I) \quad (II.31)$$

En appliquant la transformation de LAPLACE on aura :

$$P_{H_2} = \frac{\frac{1}{K_{H_2}}}{t_{H_2} \cdot s + 1} (\dot{m}_{H_2,in} - 2 \cdot K_r \cdot I) \quad (II.32)$$

**II.4.8) Pression d'oxygène  $P_{O_2}$  :**

On procède de la même manière que précédemment pour calculer la pression de l'oxygène, cette pression est donnée par :

$$\frac{dP_{O_2}}{dt} = \frac{RT}{V_c} (\dot{m}_{O_2,in} - \dot{m}_{O_2,out} - K_r \cdot I) \quad (II.33)$$

Ce qui donne :

$$P_{O_2} = \frac{\frac{1}{K_{O_2}}}{t_{O_2} \cdot s + 1} (\dot{m}_{O_2,in} - K_r \cdot I) \quad (II.34)$$

**II.4.9) Pression de l'eau :**

Le calcul de la pression de l'eau se fait de la même manière que l'oxygène et l'hydrogène, la pression de l'eau est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{V_a}{RT} \frac{dP_{H_2O}}{dt} = \dot{m}_{H_2O,in} - \dot{m}_{H_2O,out} - 2 \cdot K_r \cdot I \quad (II.35)$$

Après développement et simplification, on trouve :

$$P_{H_2O} = \frac{1}{t_{H_2O} \cdot S + 1} (2 \cdot K_r \cdot I) \quad (II.36)$$

$I$  : courant électrique (A).

$K_r$  : la constante de modélisation.

#### II.4.10) Potentiel thermodynamique:

La tension réversible dépend en pratique des pressions et de la température de fonctionnement. Il s'agit de la loi de Nernst[39] :

$$E = E_0 + \frac{R.T}{2.F} * \log\left(\frac{P_{H_2} \cdot P_{O_2}^{\frac{1}{2}}}{P_{H_2O}}\right) \quad (II.37)$$

$E_0$ : est la tension (le « potentiel ») standard, calculé à partir de l'enthalpie libre standard définie pour 25°C et à 1 bar et sont respectivement les pressions relatives (bars) des gaz oxygène et hydrogène  $P_{H_2}, P_{O_2}$

$F$  : est la constante de Faraday (96485 C/mol).

$R$  : constante des gaz parfaits. (8,314J/K/mol).

$P$  : Pression en atmosphérique.

$T$  : température de fonctionnement du composant (K)

#### II.4.11) Tension d'une cellule de la PAC :

La tension de sortie de la cellule est déterminée par la combinaison de l'effet thermodynamique, transport de masse, la cinétique et la résistance ohmique [40, 41], elle est donnée comme suit :

$$V = E - \eta_{act} - \eta_{ohmic} \quad (II.38)$$

$V$  : Tension d'une cellule, Volt

$\eta_{act}$  : Polarisation d'activation de l'anode et de la cathode, Volt

$\eta_{ohmic}$  : Polarisation ohmique de l'anode et de la cathode, Volt

#### II.4.12) Tension totale de la cellule PAC :

La pile à combustible est composée de plusieurs cellules placées en série formant un assemblage [42, 43]

$$V_{stack} = N_0 * V_{cell} \quad (II.39)$$

$N_0$  : nombre de cellules en série dans l'assemblage

$V_{cell}$ : Tension d'une cellule.

**II.4.13) Puissance d'une pile à combustible :**

La puissance de la pile à combustible est le produit de la tension et le courant de cette dernière, elle est donnée par l'équation [43] suivante:

$$P = V_{stack} * I \tag{II.40}$$

$V_{stack}$ : Tension de l'assemblage,

$I$  : Courant de pile(A).

**II.5) Modèle dynamique de la PEM**

La pile à combustible objet de notre étude fonctionne à des températures variables, son schéma est représenté par un bloc Simulink en figure (II.10).

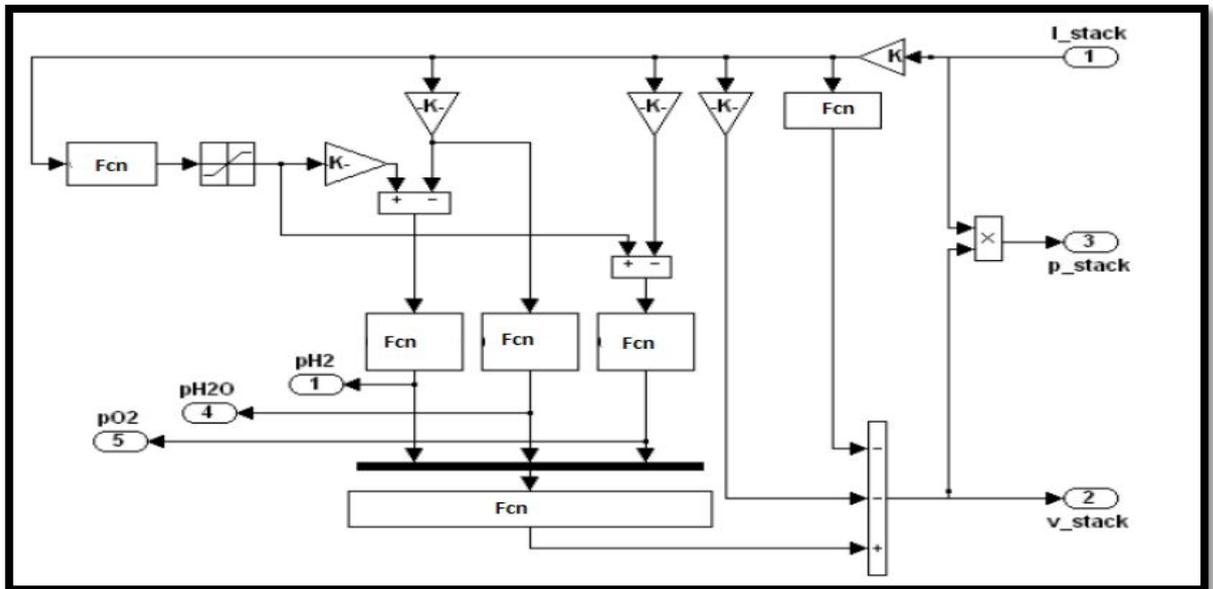


Figure II-10: Modèle dynamique d'une PAC.

**II.1.7) Paramètres du modèle d'une pile à combustible**

Les données et les caractéristiques d'une pile à combustible considérées dans notre simulation sont illustrées en tableau I :

<b>Paramètres du modèle PAC</b>	
<b>Constante de Faraday</b>	<b>F = 964872 C.</b>
<b>Constante des Gaz parfaits.</b>	<b>R=8.314 (J/mol k).</b>
<b>Température.</b>	<b>Tc=80 °C.</b>
<b>Pression de l'hydrogène.</b>	<b>P_H2 = 3 (Atm).</b>
<b>Pression de l'Air</b>	<b>P_air = 3 (Atm).</b>
<b>Surface de Cellule</b>	<b>A_cell=100.</b>
<b>Nombre de cellules</b>	<b>N_cells=1.</b>
<b>Résistance interne</b>	<b>r = 0.19 (Ohm-cm<sup>2</sup>)</b>
<b>Coefficient de transfert</b>	<b>Alpha = 0.5;</b>
<b>Facteur d'Amplification</b>	<b>Alpha1 = 0.085</b>
<b>Facteur d'échange densité de courant</b>	<b>io = 10<sup>-6</sup>,912 (A/cm<sup>2</sup>)</b>
<b>Densité de courant limite</b>	<b>il = 1.4 (A/cm<sup>2</sup>)</b>
<b>Fonction de Gibbs état liquide</b>	<b>Gf_liq = -228170 (J/mol).</b>
<b>Constante transport de masse</b>	<b>k = 1.1.</b>

*Tableau II-1: Caractéristiques technique de la PAC simulée*

## II.6) Mise en page sur MATLAB SIMULINK :

Les modèles mathématiques offrent un outil notable et indispensable pour approuver la conception et la performance des piles à combustible. L'organigramme de **Figure II- 11** montre les étapes que nous allons suivre pour la modélisation d'une pile à combustible (PAC) de type PEM.

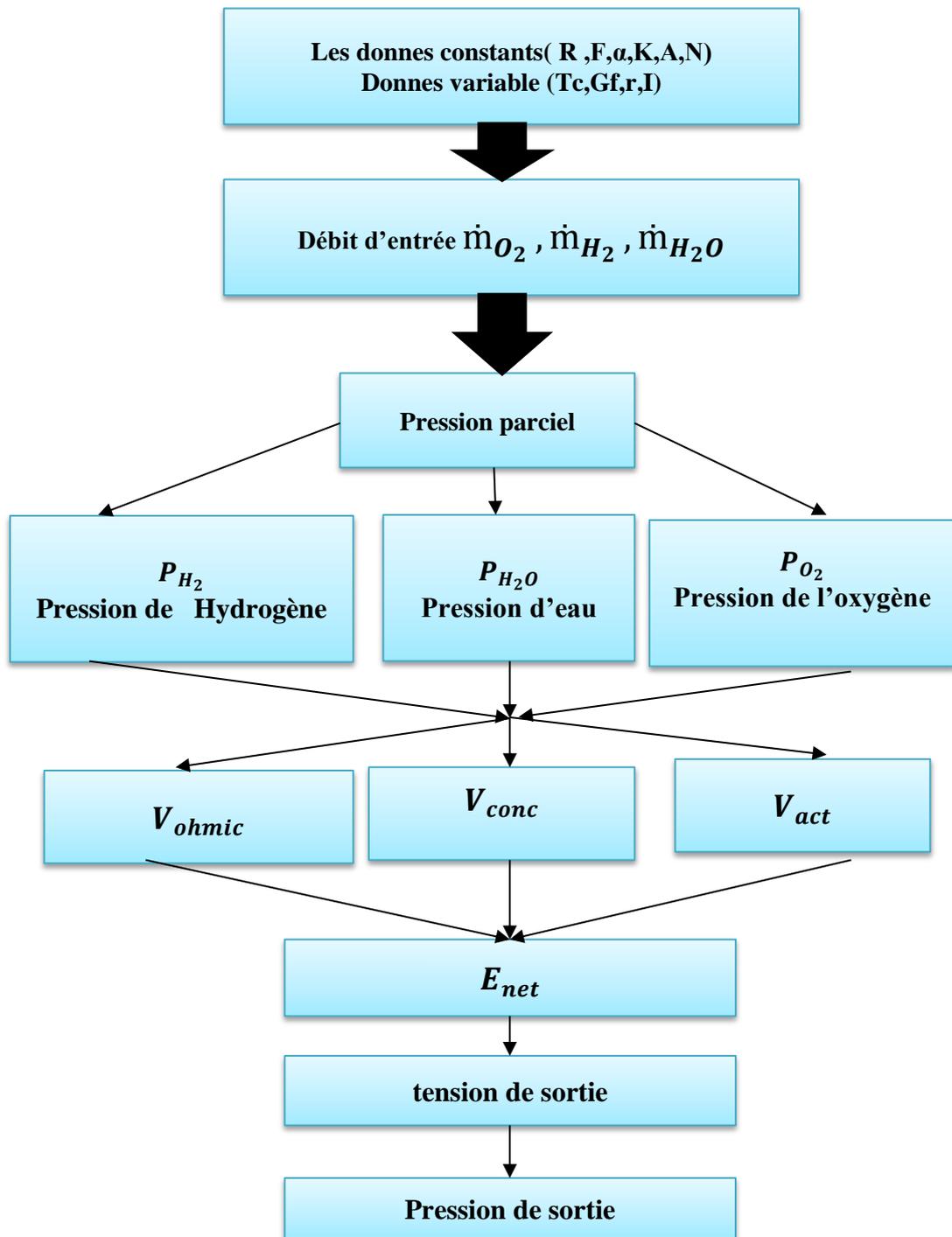


Figure II- 11: Organigramme De Modélisation De Matlab Simulink

Cet organigramme est un outil pour représenter des systèmes complexes pour découvrir le rôle de chacun des éléments et le fonctionnement d'un ensemble. Il renseigne le programme Matlab des courbes de polarisation qui résume les relations existantes entre le débit de l'hydrogène et la puissance de sortie de la pile en fonction des différents paramètres.

### **II.7) Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons établi un modèle dynamique d'une pile à combustible de type PEM, en passant en revue les différentes équations mathématiques permettant une bonne compréhension des phénomènes qui se déroulent dans la pile à combustible.

chapitre III  
Simulation numérique

**Introduction :**

Nous présentons dans ce chapitre, une simulation du modèle sélectionnée de la pile combustible. Pour réaliser la simulation, les composants principaux ont été étudiés pour connaître leurs caractéristiques.

**III.1) Schémas bloc de simulation MATLAB modèle d'Amphlett**

Il existe un grand nombre de modèles quasi statiques pour décrire la réaction chimique présente dans une cellule de pile à combustible. Dans le cadre de cette étude, le modèle d'évolution de la tension choisi est issu des travaux présentés par Amphlett . Les potentiels d'équilibre thermodynamique sont définis en utilisant l'équation de Nernst. Les surtensions d'activation sont calculées par les équations de Tafel. La résistance interne est déterminée par les équations de Nernst-Planck. En utilisant la loi d'Ohm .

**III.1.1) Modèle de simulation de la pile à combustible**

Le schéma bloc suivante montre le modèle d'une pile à combustible dépend a modèle Amphlett , l'équation  $V_p$  clarifier le modèle (sous MATLAB SIMULINK)

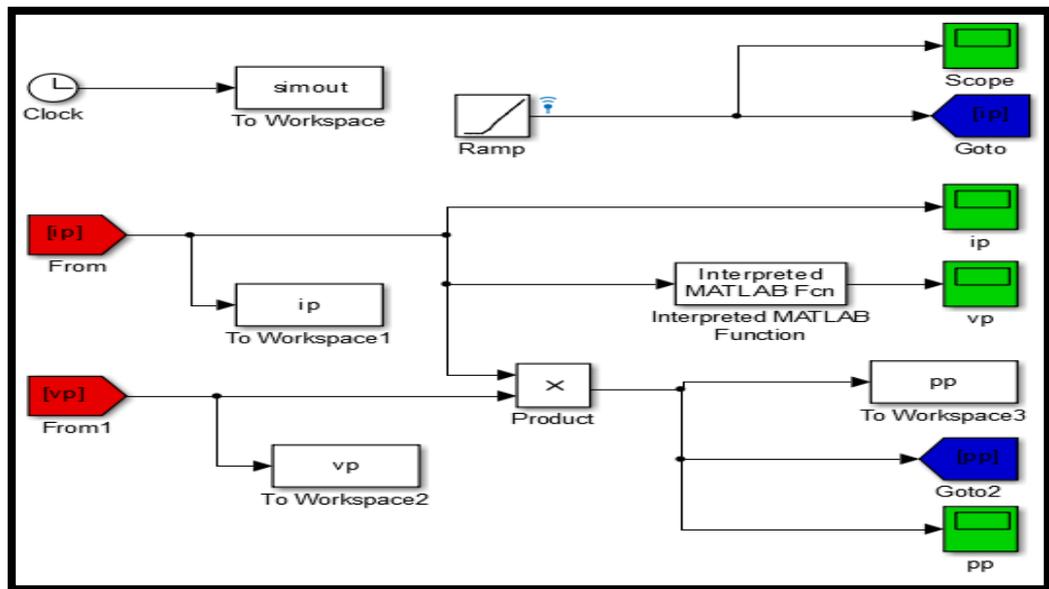


Figure III.1 : Schéma bloc de la pile à combustible (SIMULINK MATLAB)

**III.1.2) Modèle de Amphlett et al**

nous pouvons exprimer la tension de cellule par :

$$V = E_{nerst} - \eta_{act} - \eta_{ohmc} - \eta_{conc} \tag{III.1}$$

en fonction de l'équation (II.1) dans la deuxième chapitre et après l'application sur SIMULINK, nous obtenons le schéma suivante :

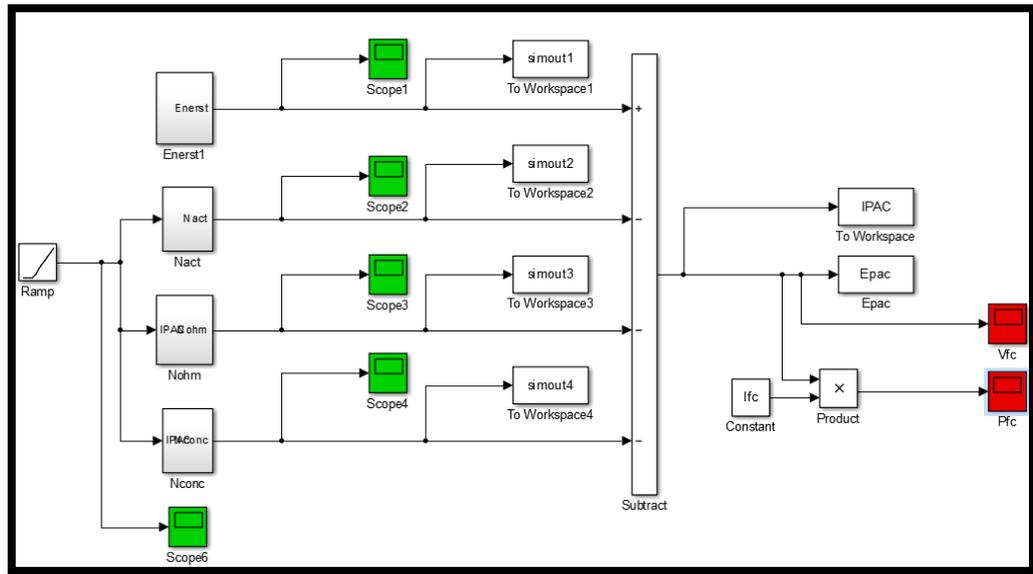


Figure III.2 : Schéma bloc de Amphlet et al (SIMULINK MATLAB)

### III.1.3) Modèle de simulation de la tension $E_{nerst}$

Le document correspondant (Figure III.3), est le schéma bloc pour la modélisation de  $E_{nerst}$ , ce qui dépend l'équation (II.2) dans le chapitre 2

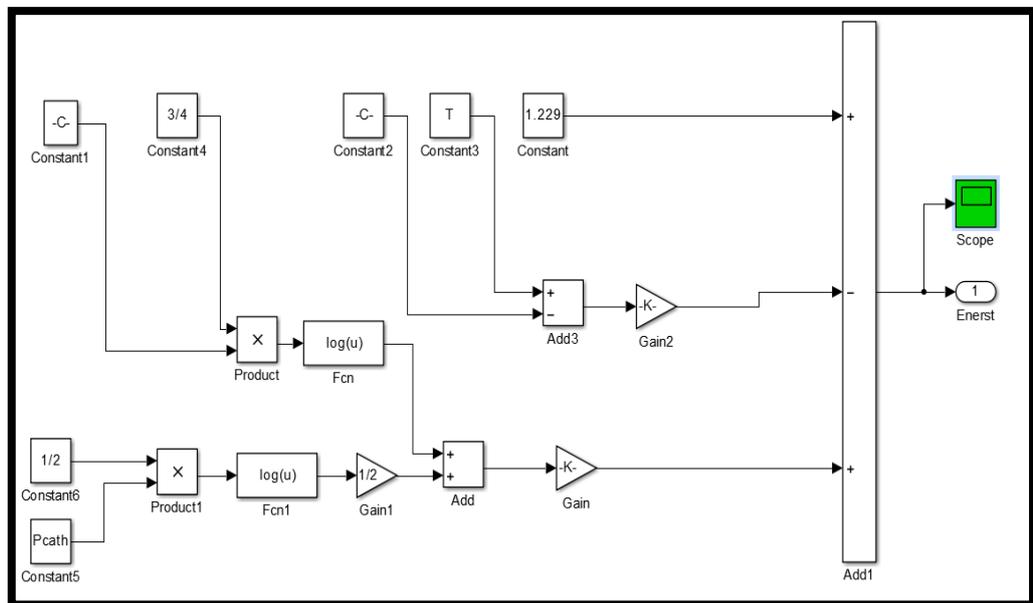


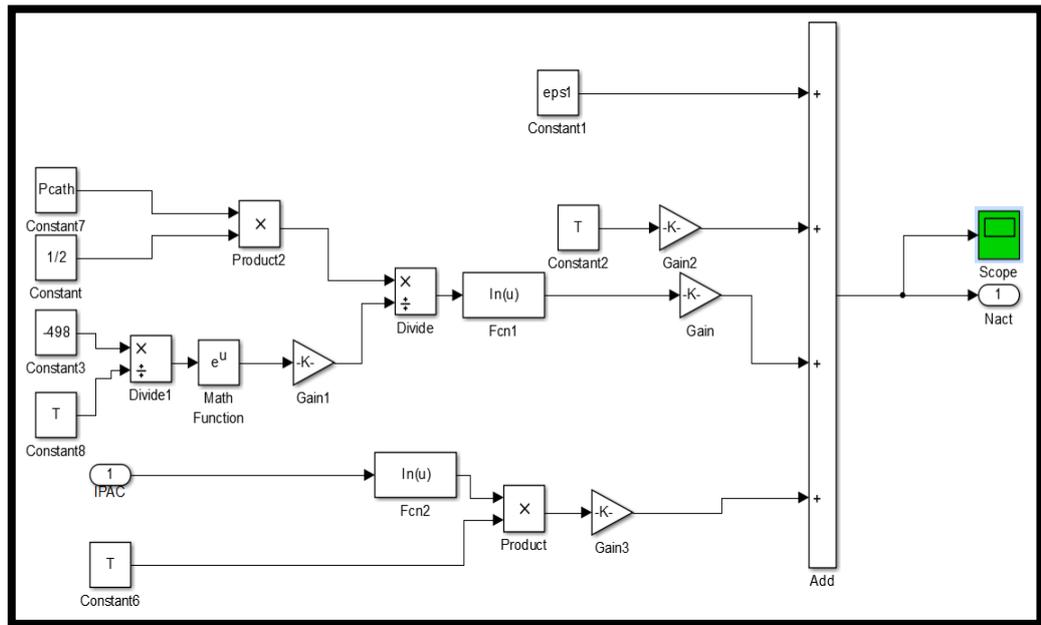
Figure III.3 : Schéma bloc de la tension théorique (SIMULINK MATLAB)

Tension de Nernst  $E_{nerst}$  dite tension réversible : est le potentiel d'équilibre thermodynamique définit en utilisant l'équation de Nernst,

Il faut noter que la température de la membrane et les pressions partielles du gaz varient en fonction du courant: avec l'augmentation du courant les pressions d'hydrogène et de l'oxygène diminuent, bien que la température augmente.

**III.1.4) Modèle de simulation des pertes d'activation  $P_{act}$**

La polarisation d'activation est donnée par la relation de Tafel, montrer dans l'équation (II. 4) de deuxième chapitre .



*Figure III.4 :Schéma bloc des pertes d'activation (SIMULINK MATLAB)*

**III.1.5) Modèle de simulation des pertes ohmique  $P_{ohm}$**

Pour les pertes ohmique et en fonction de la résistance interne  $R_m$  montrer dans l'équation (II. 12), et les équations modélisés (II. 11)(II. 12), on obtient les schémas correspondant qui montent la propriété linéaire (pertes ohmique).

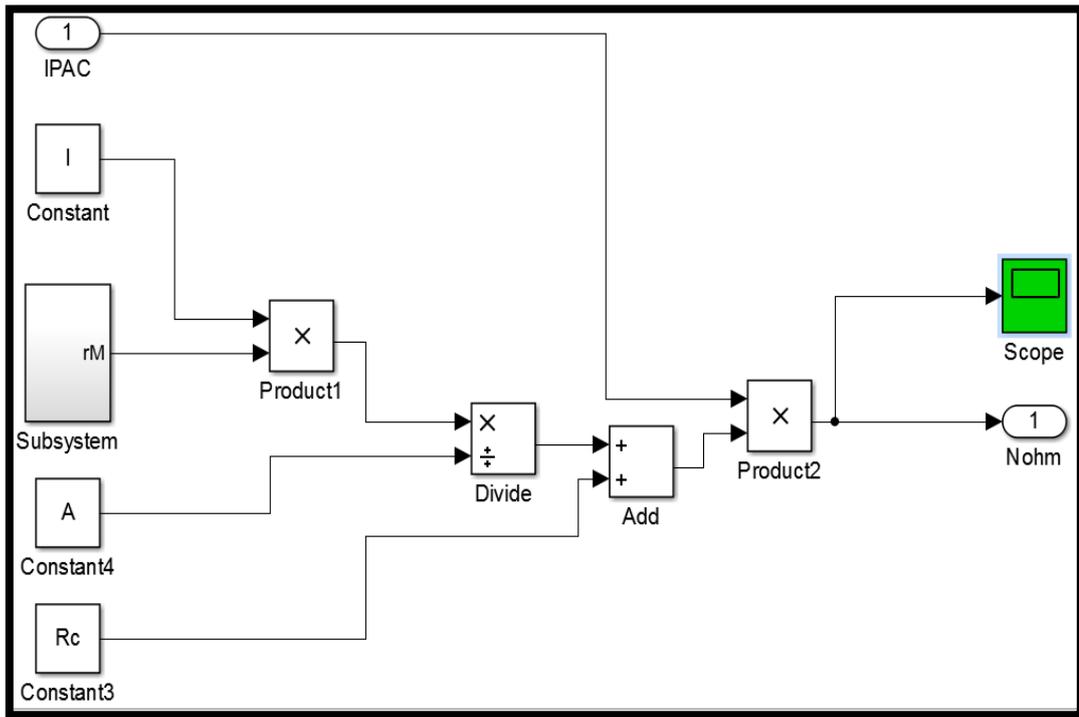


Figure III.5 :Schéma bloc des pertes ohmique (SIMULINK MATLAB)

III.1.6) Modèle de simulation des perte de concentration  $P_{conc}$

On ce qui concerne les pertes de concentration dans le modèle Amphlet a été invoqué pour l'équation (II.14), modélisés dans la deuxième chapitre nous avons traduit cette équation au niveau (SIMULINK) et an a obtenus le schéma suivante :

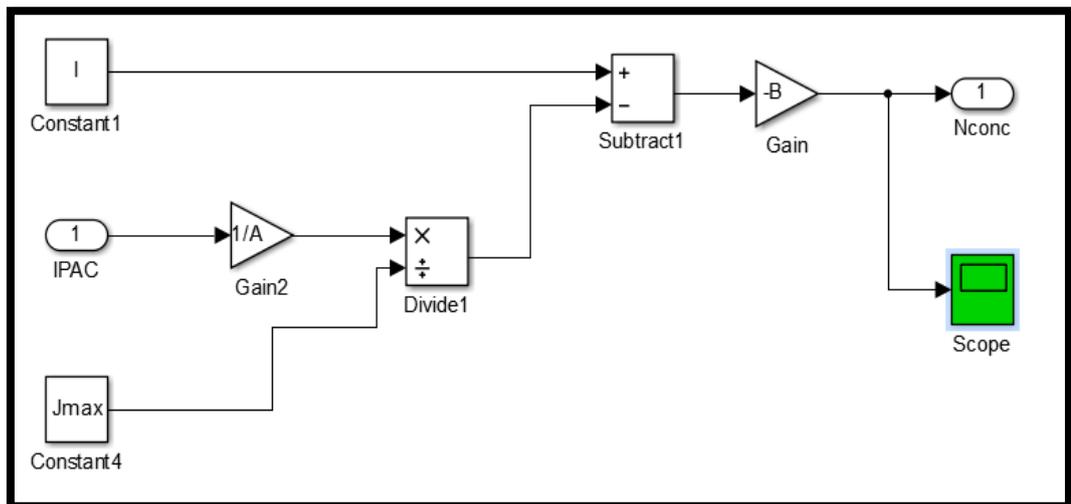


Figure III.6 :Schéma bloc des pertes de concentration (SIMULINK MATLAB)

**III.1.7) Paramètres du modèle d'une pile à combustible pour le modèle Amphlet :**

<b>Paramètres du modèle PAC</b>	
<b>Paramètre de Ajustable Sigma</b>	<b>Sigma = 23.</b>
<b>Constante des Gaz parfaits.</b>	<b>R=8.314 (J/mol k).</b>
<b>Température.</b>	<b>Tc=80 °C.</b>
<b>Pression de l'hydrogène.</b>	<b>P_H2 = 3 (Atm).</b>
<b>Pression de l'Air</b>	<b>P_air = 3 (Atm).</b>
<b>Surface de Cellule</b>	<b>A_cell=100.</b>
<b>Nombre de cellules</b>	<b>N_cells=1.</b>
<b>coefficient de cellule</b>	<b>B=0.016 .</b>

*Tableau III -1: Caractéristiques technique de la PAC simulée pour modèle Amphlet*

Les figures III.7 et figure III -8 donnent la tension et la puissance d'une cellule PEM en fonction de la densité de courant. Dans la région de la tension d'activation et à des densités de courant non nulles, il y a ce qu'on appelle une "surtension d'activation" où une certaine énergie d'activation doit être dépassée pour assurer la dissociation de l'oxygène et conduire les molécules d'hydrogène à diffuser rapidement à travers les pores, dans le catalyseur métallique. Dans la région de concentration ohmique et selon la loi d'Ohm, la quantité de perte de tension varie linéairement jusqu'à ce que la densité de courant se rapproche de la densité de courant limite (la concentration des réactifs à la surface du catalyseur atteint zéro). Dans ce cas, les pertes de concentrations deviennent dominantes (les réactifs sont consommés plus rapidement qu'ils sont fournis) .

On voit aussi, à partir de ces courbes, qu'à des faibles densités de courant, la tension est maximum et la puissance est minimum, mais à des fortes densités de courant la tension est minimum et la puissance est maximum .

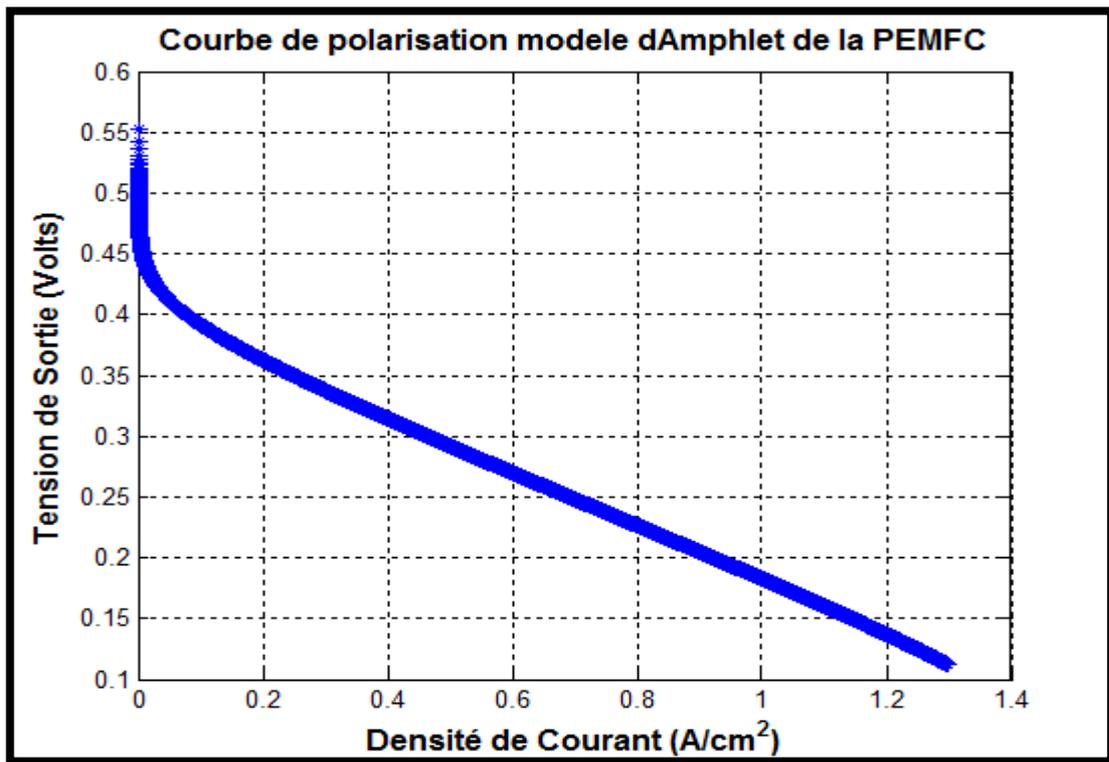


Figure III.7 :Caractéristique de PàC la tension en fonction densité de courant .

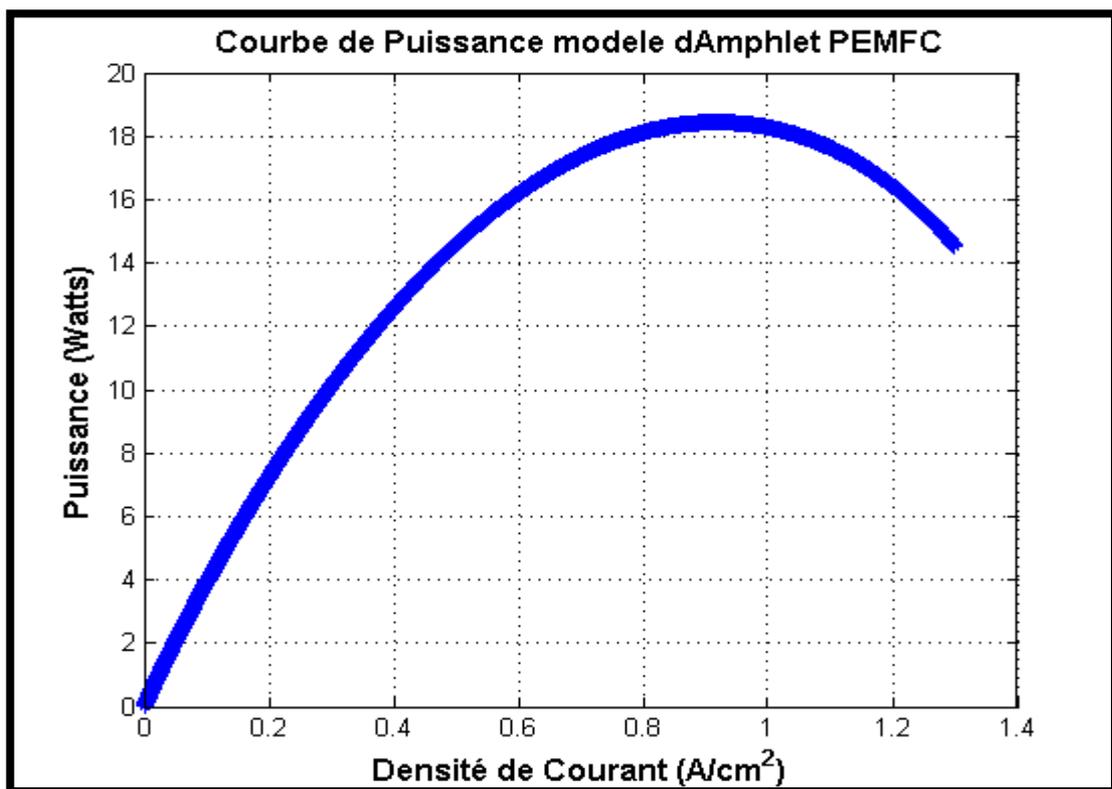


Figure III.8 :Caractéristique de PàC puissance en fonction de la densité de courant .

## IV.2) Le Modèle Physique

## III.2.1) La courbe de polarisation :

Le potentiel réel d'une pile à combustible décroît par rapport au potentiel de Nernst, à cause des pertes de potentiel dues aux phénomènes de polarisation ou surtension qui sont de trois types : la polarisation d'activation, la polarisation ohmique et la polarisation de concentration.

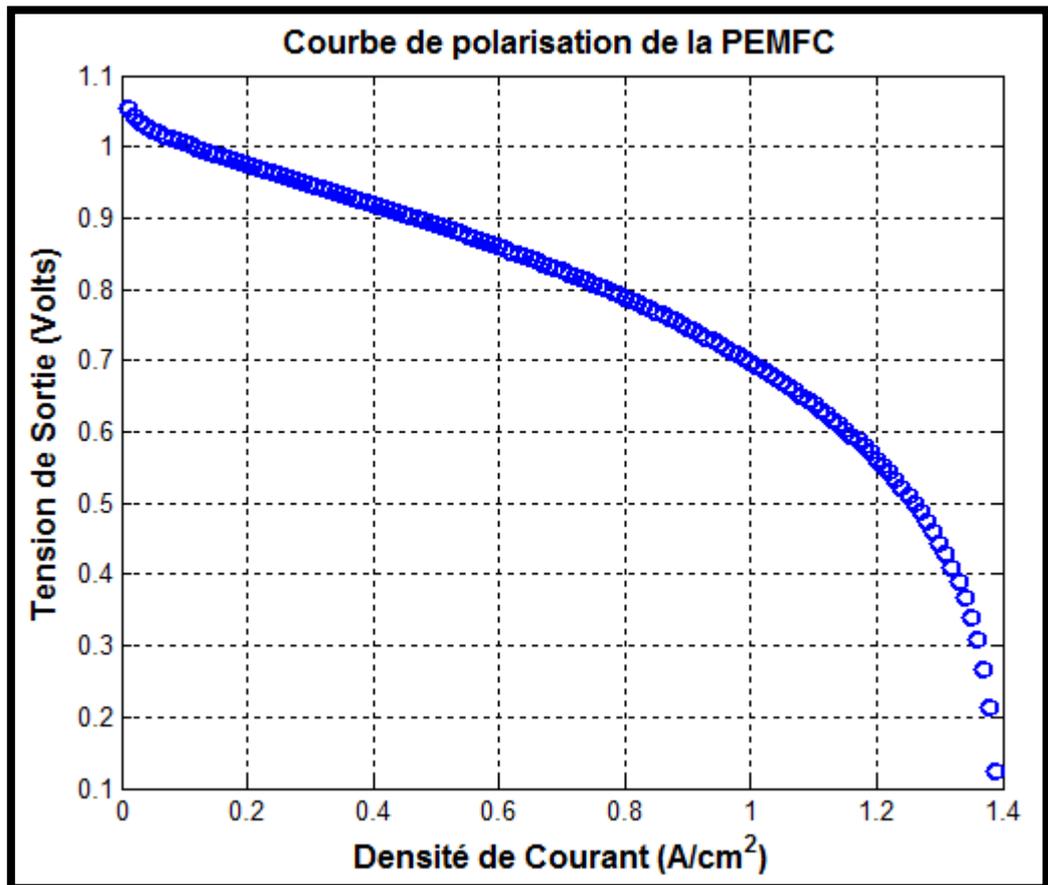


Figure III.9: Courbe de polarisation de PEMFC.

Figure III.9 représente la variation de la tension de sortie en fonction de la densité de courant (courbe de polarisation).

On remarque d'après cette courbe que les caractéristiques de la pile sont non linéaires ; à chaque fois que le courant augmente la tension diminue.

On distingue trois zones de fonctionnement sur la courbe de polarisation :

**0 à 0.4 ( $A/cm^2$ ):**

La première chute de potentiel aux faibles densités de courant est due aux cinétiques de transfert de charges à l'interface électrochimique car une part d'énergie est nécessaire à l'amorçage des réactions d'oxydoréductions aux électrodes.

### **0.4 à 1(A/cm<sup>2</sup>):**

La partie linéaire traduit un comportement résistif aux densités de courant moyennes. Les principales sources de cette résistance sont attribuées au transport des protons dans la membrane, ainsi les autres éléments de l'assemblage de la cellule, diffuseurs et plaques bipolaires présentent des conductivités électroniques élevées, car ils sont généralement élaborés à partir de carbone et les chutes de potentiel sont relativement faibles.

Le transfert des protons dans la membrane dépend de la conductivité protonique.

### **1 à 1.4 (A/cm<sup>2</sup>):**

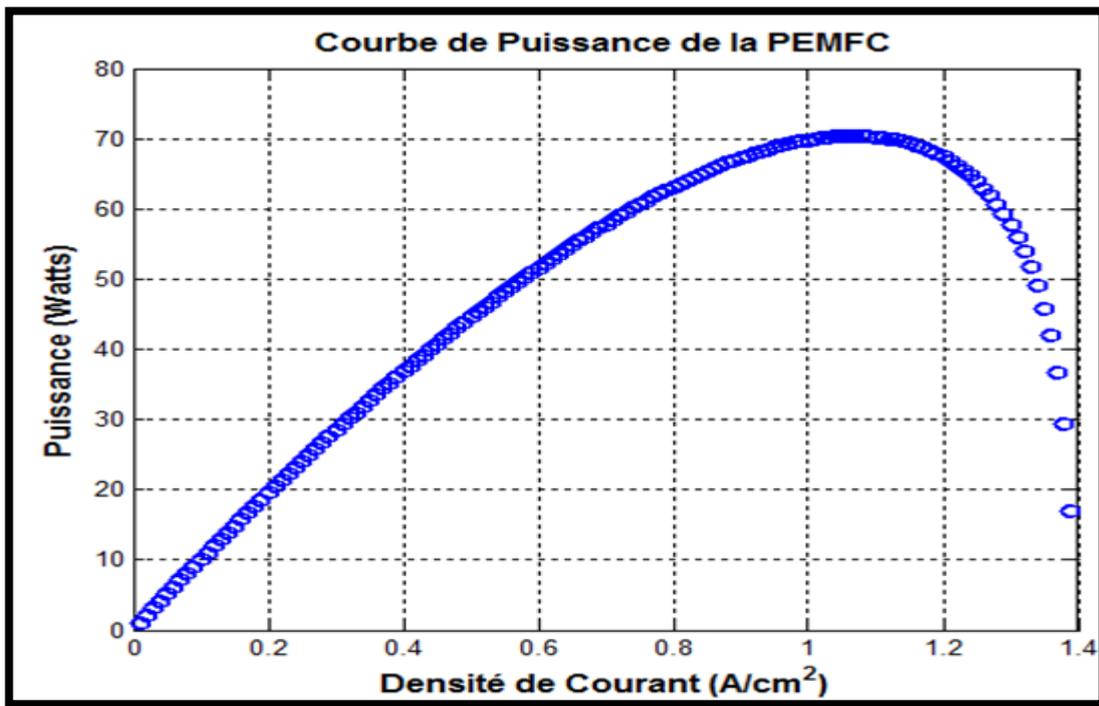
Aux fortes densités de courant, on peut observer une chute rapide du potentiel se traduisant par un courant limite. Les phénomènes responsables de cette chute de potentiel sont en général liés aux problèmes de diffusion des gaz jusqu'aux sites catalytiques. Il peut s'agir d'une alimentation insuffisante en gaz aux fortes densités de courant ou d'une gêne créée par la condensation de l'eau aux électrodes.

Cette courbe de polarisation permet de constater que la diminution des surtensions à la cathode et de la résistance de la membrane sont des points fondamentaux en vue d'une amélioration des performances.

### **III.2.2) La courbe de puissance :**

Pour qu'une réaction électrochimique puisse se produire, les réactifs doivent dépasser une barrière d'activation. La polarisation d'activation correspond aux pertes liées à l'activation catalytique.

Elle est en fonction de la nature et de la surface du catalyseur. On remarque que la puissance d'une pile à combustible augmente progressivement pour passer par un maximum à un certain temps puis elle diminue de nouveau.



*Figure III.10: La courbe de puissance de la PEMFC.*

Il est indispensable de tracer la courbe de la densité de puissance en fonction de densité de courant pour connaître les capacités de pile et ses conditions de fonctionnement optimal.

La courbe obtenue est parabolique Figure III.10, elle croît d'une manière linéaire, puis atteint un maximum et diminue rapidement, nous pouvons expliquer ce comportement par les relations:

$$P = U \cdot I \quad (III.1)$$

Dans le tronçon le plus long où les polarisations ohmiques prédominent; nous avons :

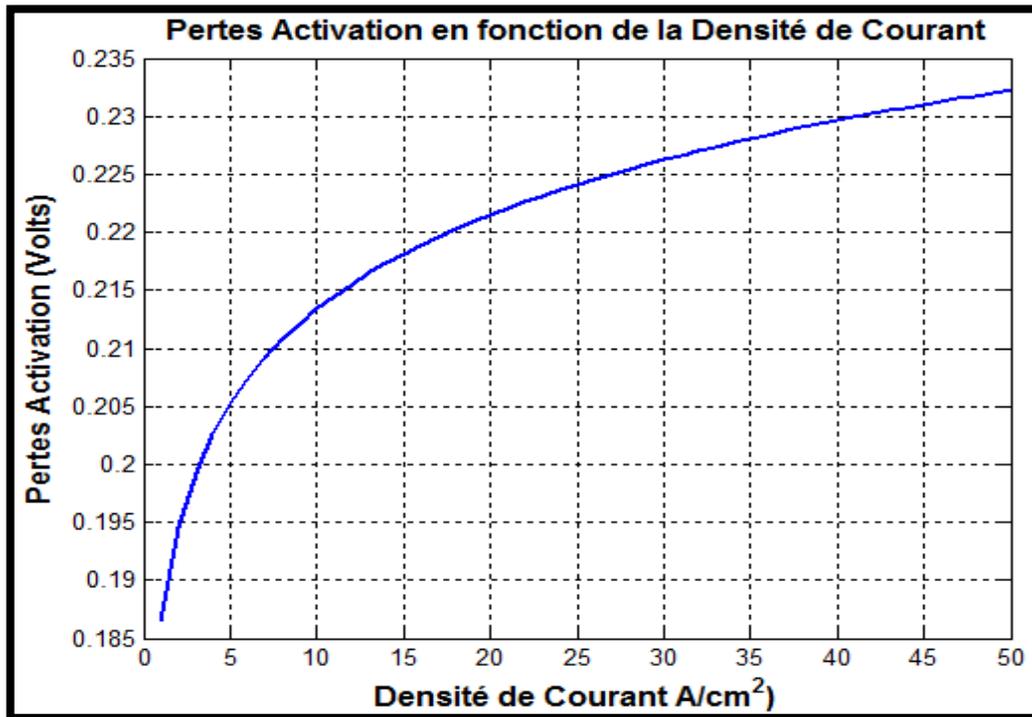
$$U = R \cdot i \quad (III.2)$$

$$P = R \cdot i^2 \quad (III.3)$$

C'est l'équation d'une parabole.

### III.2.3) La courbe de Pertes d'activation en fonction de densité de courant:

La figure III.11 montre que les pertes d'activation sont en variation exponentielle avec l'augmentation de la densité de courant

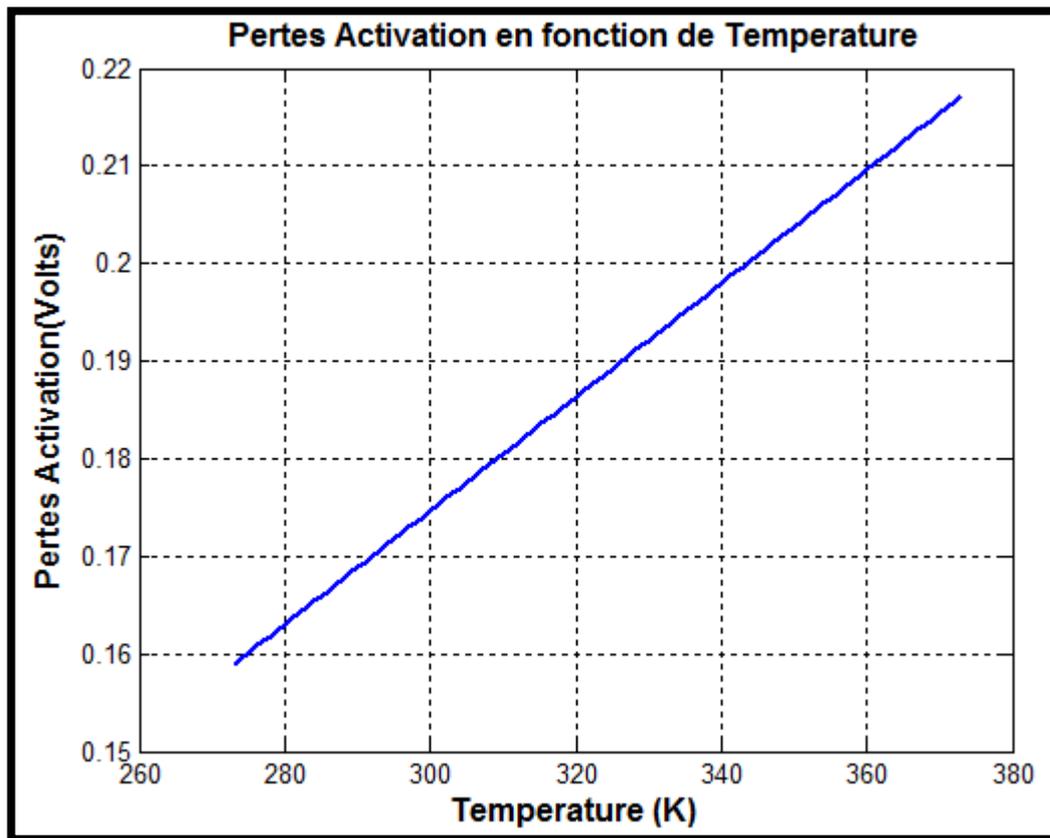


*Figure III.11 : La courbe de pertes activation en fonction de la densité de courant*

Dans la figure III.11, on représente l'effet de la variation de densité de courant sur les pertes d'activation, dans la cellule PEMFC à anode supportée. On remarque que les pertes varient proportionnellement avec la densité de courant.

#### **III.2.4) La courbe de Pertes d'activation en fonction de température :**

La figure III.12 montre que les pertes d'activation sont en variation linéaire avec l'augmentation de la température, ce qui signifie que l'augmentation de la température influe sur le taux de pertes d'activation.



*Figure III.12 : Pertes d'activation en fonction de la température.*

Les pertes d'activation sont d'autres sources d'énergie thermique qui provoquent une élévation de température et prennent naissance dans les électrodes.

La température de fonctionnement provoque une augmentation des pertes d'activation et accélère la cinétique des réactions. Il faut noter que l'augmentation de la température doit être limitée car elle entraîne la déshydratation de la membrane.

### **III.2.5) Rendement d'une cellule PEM**

La figure présente le rendement d'une cellule qui fonctionne à température et pression constante. D'après la figure III.13, le rendement pratique d'une pile dépend directement de la densité du courant qui traverse la pile. En général comprise entre 30% et 45%.

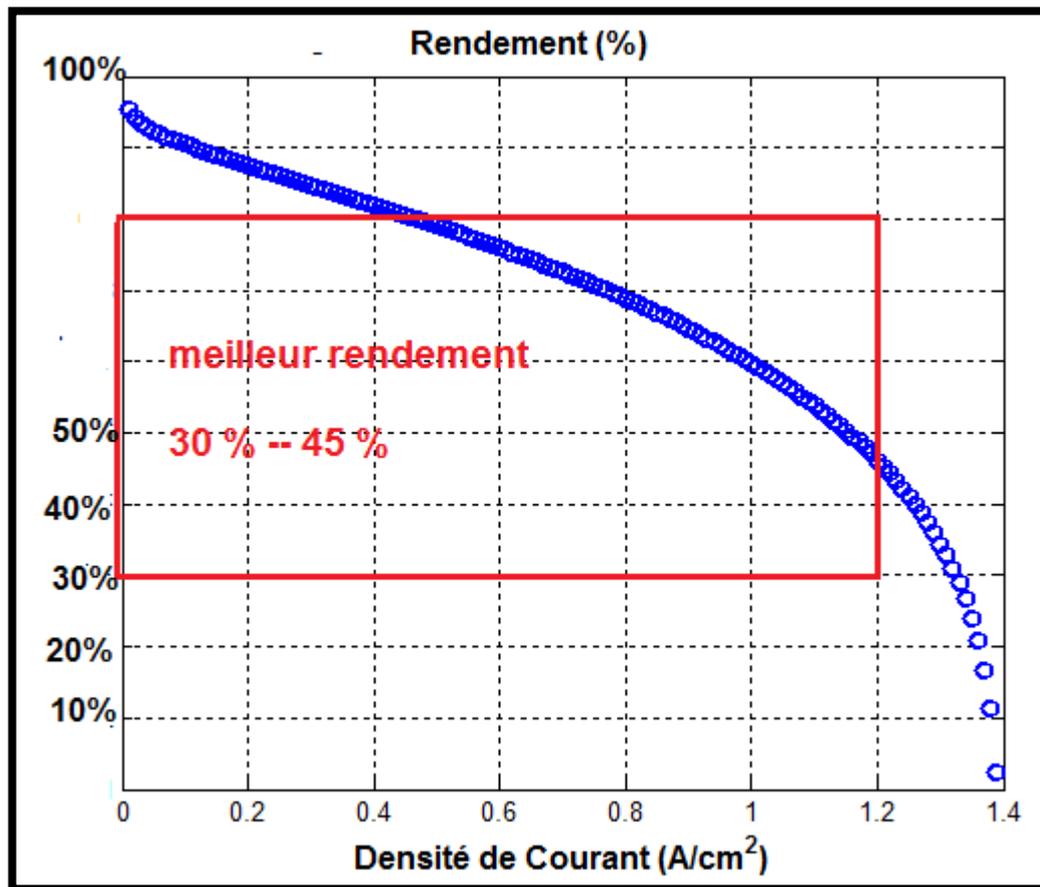


Figure III.13 : Rendement d'une cellule PEM.

### III.3) Conclusion :

Dans ce chapitre nous avons présenté la simulation de la pile à combustible et les caractéristiques tension-densité de courant et puissance-densité de courant d'une cellule PEM, par dépendance de deux modèles. Le modèle d'Amphlett peut être considéré comme le modèle le plus complexe, mais préférable car plus précis, et le modèle physique ce qui à son tour nous donne une propriété de les pertes d'activation en deux fonctions de température et de la densité de courant.

# Conclusion général

Les travaux présentés dans ce mémoire consiste à la étude et à la modélisation d'une pile à combustible de type PEMFC.

Dans la première partie on s'est intéressé aux piles à combustible et principalement aux piles PEM. On a abordés l'historique du développement des piles à combustible, Dans ce contexte nous nous sommes intéressés dans ce travail qu'aux piles à membranes polymères échangeuses de protons PEM (*Proton Exchange Membrane*) aux causes de leurs avantages ,ensuite, la description du principe de fonctionnement d'une de type PEM et la structure complète de leur cellule.

Dans la deuxième partie on a étudié trois type plus connus pour la modélisation à savoir le modèle d'Amphlett, le modèle de Larminie-Dicks et le modèle physique . Le modèle d'Amphlett peut être considéré comme le plus complexe mais est le plus précis, de l'autre côté le modèle de Larminie-Dicks est le plus simple donc il convient fortement pour les applications dans des modèles industrielles.

Nous avons établi un modèle physique d'une pile à combustible de type PEM, en passant en revue les différentes équations mathématiques permettant une bonne compréhension des phénomènes qui se déroulent dans la pile à combustible. Nous avons ensuite présenté l'exemple de simulation de caractéristiques de la pile à combustible en fonction de (SIMULINK) MATLAB.

La simulation sous l'environnement Matlab a permis d'obtenir un rendement compris entre 30% et 45%. Le modèle sera utilisé pour des applications hybrides ultérieures ,par conséquent ce rendement est affecté par les pertes a l'intérieur de la pile à combustible .

Les perspectives qu'on peut envisager comme suites à notre travail nous proposons :

- L'étude approfondie de la dégradation de la pile à combustible en plus de se concentrer sur les défauts de la pile PEM .
- Les méthodes de diagnostic des pile à combustible .

## Reference

- [1] **K. Kordesch et G. Simader(1996)**, « Fuels Cells and Their Applications », ed VCH
- [2] **E. AGLZIM (2009)** : *Caractérisation Par Spectroscopie d'impédance De l'impédance Complexe d'une Pile A Combustible En Charge – Evaluation De l'influence De l'humidité –*, thèse de doctorat, Université Henri Poincaré – Nancy1.
- [3] **W.MABROUK(2012)** : *Synthèse et caractérisation de nouvelles membranes protoniques. Applications en pile à combustible à membrane échangeuse de protons*, thèse de doctorat, Faculté des Sciences de Tunis.
- [4] **P.THONHONG 2005** « conception d'une source hybride utilisant une pile a combustible et des supercondensateurs », these de doctorat, l'institut national polytechnique de lorraine,.
- [5] **N.MEDDOUR (2010)** : *simulation numérique du transfert thermique incluant le mode de rayonnement dans une pile à combustible à oxyde solide*, thèse de magistère, Université Kasdi Merbah Ouargla.
- [6] **DANA-MARIA PACLISAN(2013)** : *optimisation par la modélisation de l'expérimentation vibratoire des systèmes pile a combustible pour le transport terrestre*, thèse de doctorat, Université de technologie de Belfort-Montbéliard.
- [7] **H.MAHCENE(2012)** : *Etude des causes d'augmentation de la température dans une pile à oxyde solide (SOFC): Etude bidimensionnelle du champ de température*, thèse de doctorat, Université Kasdi Merbah Ouargla.
- [8] **A.HADDAD(2009)** : *Modélisation dynamique non linéaire de la pile à combustible du type PEM : Application à la régulation de l'humidité dans la membrane électrolytique*, thèse de doctorat, Université De Technologie De Belfort-Montbéliard.
- [9] **EL-HASSANE AGLZIM (2009)** : *Caractérisation Par Spectroscopie d'impédance De l'impédance Complexe d'une Pile A Combustible En Charge – Evaluation De l'influence De l'humidité –*, thèse de doctorat, Université Henri Poincaré – Nancy1.

- 
- [10] **L. Gerbaux 1996**, « Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène/air et validation expérimentale », Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble,.
- [11] **R. Mosdale 1992**, « Etude et développement d'une pile à combustible hydrogène/oxygène en technologie électrolyte polymère solide ». Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble,.
- [12] **B. M. Eaton, 2001**« One dimensionnal transient model of heat, mass and charge transfer in a proton exchange membrane », Master thesis, Virginia Polytechnic and State University,.
- [13] **P.THOUNTHONG(2005)** : *conception d'une source hybride utilisant une pile a combustible et des supercondensateurs*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- [14] **M. BELATEL \***, **F.Z. AISSOUS** et **F. FERHAT(2012)** : *Contribution à l'étude d'une pile à combustible de type PEMFC utilisée pour la production d'énergie électrique verte*, Revue des Energies Renouvelables Vol. 15 N°1 (2012) 13 – 28.
- [15] **Y.CHATILLON(2013)**: *Méthodes électrochimiques pour la caractérisation des piles à combustible de type PEM en empilement*, thèse de doctorat, Université De Lorraine.
- [16] **J.RAMOUSSE (2005)** : *Transferts couples masse-charge-chaaleur dans une cellule de pile a combustible a membrane polymère*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- [17] **J. LACHAIZE(2004)**: *Etude des stratégies et des structures de commande pour le pilotage des systèmes énergétiques à Pile à Combustible (PAC) destinés à la traction*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique De Toulouse.
- [18]. **M.HAMOUR(2012)** : *Contribution A L'étude Des Contraintes Thermodynamique Dans Les Piles A Combustible*, thèse de doctorat, Université mouloud Mammeri-Tizi-Ouzou.
- [19]. **D.NGUYEN(2010)** : *Modélisation Dynamique Du « Cœur » De Pile A Combustible De Type PEM*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de lorraine.
- [20]. **F.AMROUCHE(2004)** : *Caractérisation Expérimentale D'un Assemblage Stacks De Piles A Combustibles A* , thèse d'ingénieur d'état, Université des sciences et de la technologie Houari

Boume

- [21] **I.SADLI (2006)** : *Modélisation Par Impédance D'une Pile A Combustible PEM Pour Utilisation En Electronique De Puissance*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de lorraine.
- [22] **T.AZIB(2010)**: *Contribution à l'Etude d'Electro-générateurs à Pile à Combustible*, thèse de doctorat, Université Paris-Sud Xi.
- [23]. **M.ZANDI (2010)** : *contribution au pilotage des sources hybrides d'énergie électrique*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de lorraine.
- [24]. **T.HAMAZ(2014)** : *Outils de caractérisation et de diagnostic D'une pile à combustible de type PEM par mesure du champ électromagnétique externe*, thèse de doctorat, Université de Grenoble.
- [25]. **C.DALET(2009)** : *Gestion de l'eau dans un système Pile à Combustible pour traction automobile : transferts couplés dans un humidificateur membranaire*, thèse de doctorat, Université Henri Poincaré.
- [26]. **AZZI Halim** : *Etude et modélisation d'une pile à combustible* , thèse de master Université A.MIRA-BEJAIA
- [27]. **S.RABIH(2008)** : *Contribution à la modélisation de systèmes réversibles de types électrolyseur et pile à hydrogène en vue de leur couplage aux générateurs photovoltaïques*, thèse de doctorat, Université De Toulouse.
- [28] **A. SAADI 2014**, « Modélisation et commande du circuit d'air d'une pile à combustible PEMFC », thèse de doctorat, université de Biskra, décembre.
- [29] **J. Amphlett, R. Baumert, R. Mann, B. Peppley, and P. Roberge**. « Performance modeling of the Ballard-Mark-IV solid polymer electrolyte fuel cell, I. Mechanistic model development ». Electrochemical Society, Vol. 142, No. 1, pp. 1\_8, 1995.
- [30] **J. Amphlett, R. Baumert, R. Mann, B. Peppley, P. Roberge, and A. Rodrigues**. Parametric modelling of the performance of a 5-kW protonexchange membrane fuel cell stack. Journal of Power Sources, Vol. 49, No. 1-3, pp. 349356, 1994. Proceedings of the Third Grove Fuel Cell ;Symposium The Science,
- [31] **R. F. Mann, J. C. Amphlett, M. A. I. Hooper, H. M. Jensen, B. A. Peppley, and P. R. Roberge**. Development and application of a

- generalised steady state electrochemical model for a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, Vol. 86, No. 1-2, pp. 173180,
- [32] **A. LACHICHI 2005**. Modélisation et stabilité d'un régulateur hybride de courant - Application aux convertisseurs pour pile à combustible. Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte,
- [33] **G. X. Tatsuhiro Okada and M. Meeg 1998**. Simulation for water management in membranes for polymer electrolyte fuel cells. *Electrochimica Acta*, Vol. 43, No. 14-15, pp. 2142155,
- [34] **J. Amphlett, R. Mann, B. Peppley, P. Roberge, and A. Rodrigues 1996**. A model predicting transient responses of proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, Vol. 61, No. 1-2, pp. 183188,
- [35] **J. Larminie and A. Dicks 2003**. *Fuel Cell Systems Explained*. John Wiley Sons,,.
- [36] **F.MEZIANE (2011)** : *Etude et dimensionnement d'un système éolien –électrolyseur – pile à combustible pour l'alimentation électrique*, thèse de magistère, Université M'Hamed BOUGARA, Boumerdes.
- [37] **M.T. Iqbal,(2003)**: “*Modeling and control of a wind fuel cell hybrid energy system*, *Renewable Energy*, vol. 28, n° 2, pp. 223-237.
- [38]. **J. H. Lee, T. R. Lalk et A. J. Appleby (1998)**: “*Modeling electrochemical performance in large scale proton exchange membrane fuel cell stacks,*” *Journal of Power Sources*, vol. 70, n° 2, pp. 258-268.
- [39] **Gemmen RS (2001)**:*Analysis for the effect of inverter ripple current on fuel cell operating conditions*. ASME International Mechanical Engineering Congress and Expositions, New York.
- [40]: **M.Uzunoglu, M.S. Alam(2007)**, « *Dynamic modeling, design and simulation of a PEM fuel cell/ultra-capacitor hybrid system for vehicular applications.*”. *Journal Energy conversion and Management*.
- [41] **Amphlett JC, Baumert RM, Mann RF, Peppley BA, Roberge PR, HarriesTJ(1995)**: *Performance modeling of the Ballard mark-IV solid polymer electrolyte fuel cell*. *Journal of the Electrochemical Society*

- [42] **M.W Fowler, R.F. Mann, J.C Amphlett, B.A. Peppley and P.R. Roberge (2002):** *‘Incorporation of Voltage Degradation into a Generalised Steady State Electrochemical Model for a PEM*
- [43] **:J.M. Corrêa, F.A. Farret and L.N. Canna, (2001):** *‘An Analysis of the Dynamic Performance of Proton Exchange Membrane Fuel Cells Using an Electromechanical Model’*, in Proc. IEEE IECON'01, pp. 141 – 146.
- [44] **DANA-MARIA PACLISAN(2013) :** *optimisation par la modélisation de l’expérimentation vibratoire des systèmes pile a combustible pour le transport terrestre*, thèse de doctorat, Université de technologie de Belfort-Montbéliard.
- [45] **ARAB Lydia - CHEBBI Zahra 2016** étude et simulation d’une pile a combustible de type PEM , thèse de master, Université Bouira,.

### الملخص

دراسة و نمذجة خلية الوقود (PaC) هو موضوع الساعة. ومن بين الأنواع المختلفة من خلايا الوقود الحالية، نجد خلية ذات غشاء تبادل البروتونات (PEMFC) ، التي ستعتمد في مجال النقل، التطبيقات النقالة وكذا الثابتة. في هذه التطبيقات، يمثل التمكن من إدارتها تحدياً جدياً لأنه يتأثر في آن واحد بعملية انتقال المتفاعلات الهيدروجين والأكسجين والمياه التي ينتجها التفاعل وكذا الحرارة في قلب خلية الوقود من أجل فهم أفضل لبعض الآثار والظواهر في خلية الوقود (PaC)، فإننا نلجأ لاستخدام النمذجة في

Matlab/Simulink

كلمات المفتاحية: خلية الوقود، النمذجة ، الهيدروجين، الأكسجين، ستاتيكية، ديناميكية، الطاقة

### Résumé

L'étude et la modélisation d'une pile à combustible (PaC) est un thème d'actualité. Parmi les différents types de pile à combustible existants, la pile à membrane échangeuse de protons (PEMFC), qui sera retenue dans le domaine des transports, pour les applications portables et le stationnaire. Pour ces applications, la maîtrise de leur gestion présente un défi qui est très complexe, car elle est influencée par la gestion simultanée des transferts de réactifs (hydrogène et oxygène), de l'eau (produite par la réaction) et de la chaleur dans le cœur de la pile. Pour mieux comprendre certains effets et phénomènes dans le système PaC, on fait recours à une modélisation sous Matlab/Simulink.

Ce mémoire présente les résultats de la modélisation de l'électrochimie et la production électrique des piles à combustible PEMFC alimentée directement en gaz pur (hydrogène et oxygène) , on fait recours à une modélisation sous Matlab/Simulink

**Mots clés :** Pile à combustible, modélisation, hydrogène, oxygène, statique, dynamique, énergie..