

Cartographie de température d'un stack de 3 cellules d'une PEMFC par micro-thermocouples.

S. HAJJEJ*, P. BAUCOUR, M.C PERA, F. LANZETTA, J.M KAUFFMANN, P. NIKA

FEMTO-ST/ENISYS/FCLAB, UMR CNRS 6174

Université de Franche-Comte

TECHN-HOM, 90010 Belfort Cedex

*(auteur correspondant samir.hajjej@univ-fcomte.fr)

Résumé - Dans ce papier on décrit une technique intrusive de détermination de la distribution de température dans un stack de 3 cellules d'une pile à combustible de type PEMFC. Une série de 16 micro-thermocouples - isolés électriquement - est implantée au niveau de la plaque bipolaire anodique de la cellule centrale. Une cartographie de température de la cellule a été déterminée pour différents niveaux de courant. Les résultats expérimentaux montrent que les zones les plus chaudes de la piles se situent au centre de la surface active.

1. Introduction

Ces dernières années, les piles à combustibles connaissent un regain d'attention car elles permettent - théoriquement - un rendement important et le respect de l'environnement. Les piles à combustible à membrane électrolyte polymère PEMFC (connues aussi sous le nom piles à combustible à membrane échangeuse de protons) sont considérées comme l'alternative la plus prometteuse dans le domaine du transport à cause de leur rendement élevé, d'une absence d'émissions polluantes, d'une température de fonctionnement basse et d'un niveau de bruit acceptable. Au cours de la dernière décennie, les PEMFC ont connu des améliorations technologiques significatives au niveau des AME (Assemblage Membrane Electrode) en particulier sur la diminution du chargement en platine du catalyseur [1].

La compréhension de la production et du transport de chaleur dans les PEMFC sont essentielles pour le développement, le design et le contrôle des piles à combustibles. Des pertes irréversibles se produisent localement au niveau des électrodes et des différents éléments conducteurs. Selon la conductivité thermique de chaque élément de la pile, des points chauds peuvent apparaître localement [2].

Dans un souci de performances et de durabilité des piles PEMFC, la gestion thermique et celle de l'eau sont primordiales car elles ont un impact sur l'activité du catalyseur, la déshydratation de la membrane, le transfert de matière et la production de chaleur de la pile. Ainsi, la condensation de la vapeur d'eau va dégager de la chaleur provoquant localement des points chauds indésirables. Ces derniers dégradent énormément la performance des membranes en réduisant son degré d'hydratation et donc sa durée de vie [3].

Quelques études ont été menées sur des monocellules pour la mesure de la température à différents emplacements au sein de PEMFC. Ainsi, He *et al.* ont utilisé un capteur thermique en couche mince pour mesurer la température dans une PEMFC en fonctionnement [4]. Vie et Kjelstrup ont placé 4 thermocouples pour relever la température entre membrane et GDL et dans les canaux d'écoulement de gaz [5] (*Cf.* Fig. 2). Une autre technique a été utilisée par Mench *et al.* pour mesurer directement la température dans une AME (50 cm²) à l'aide de 10 micro-thermocouples insérés [6]. Wang *et al.* ont utilisé l'imagerie infrarouge pour déterminer la distribution de température à la surface de la cathode d'une PEMFC de 5 cm² [7].

Ainsi, l'utilisation de thermocouples reste la technique la plus robuste et la plus simple à mettre en œuvre pour obtenir une cartographie thermique au plus près des zones réactives.

Dans ce qui va suivre la détermination de la distribution de température à l'interface entre la plaque bipolaire anodique et l'AME d'une PEMFC a été faite en introduisant une série de micro-thermocouples.

2. Matériel et méthodes

2.1. Banc de test

Tous les essais ont été effectués sur le banc de test du laboratoire FC LAB sur un stack de 3 cellules d'UBZM (Ulmer BrennstoffzellenManufaktur) avec une aire active de 100 cm². Les 16 micro-thermocouples de type K avec un diamètre de fil 75 µm gainé en PTFE sont insérés dans la cellule centrale afin d'éviter les effets de bord.

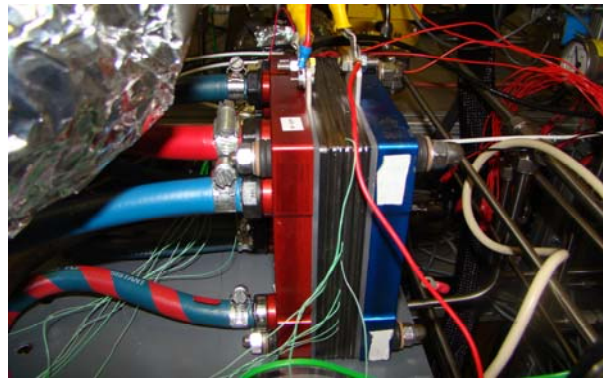


Figure 1 : Photographie du stack de 3 cellules utilisé. On notera la présence des micro-thermocouples dans la cellule centrale.

Le banc de test est contrôlé par une application Labview régulant les différents paramètres de fonctionnement que sont la pression, la température, les débits des réactifs, le système d'humidification et la charge électrique. Le système d'acquisition des températures internes est indépendant de celui utilisé au niveau du banc.

On considère que la température de sortie d'eau est la température représentative du stack. Le stack est refroidi par un circuit interne d'eau déminéralisée. (Pour plus de détails sur la description du banc voir [8]).

Paramètres	Valeur	Unité
Nombre de cellules	3	
Température de fonctionnement	55	°C
Point de rosée	45	°C
Aire active	100	cm ²
Débit d'eau de refroidissement	2	L.mn ⁻¹
Coefficient de sur-stœchiométrie anodique ¹	2	
Coefficient de sur-stœchiométrie cathodique ¹	4	
Temps de stabilisation ²	10	mn
Palier de densité courant	0,05	A.cm ⁻²

Tableau 1 : Conditions expérimentales utilisées. ¹ On indique ainsi le ratio entre le débit stœchiométrique stricte des gaz et le débit utilisé lors des expériences. ² Il s'agit du temps de stabilisation entre 2 paliers de densité de courant.

2.2. Préparation et localisation des micro-thermocouples

Les thermocouples doivent fonctionner dans l'environnement des PEMFC : milieu humide, acide, électrochimique avec un substrat polymère non stable. La jonction et les fils thermocouples doivent donc être isolés électriquement et chimiquement. Dans le cas contraire, il y a un risque d'oxydation et de détérioration du circuit de mesure. Un contact électrique avec le système de mesure peut forcer le passage de courant à travers les fils ce qui affecte la tension mesurée par les thermocouples.

Plusieurs produits de protection ont été testés sur la jonction pour assurer l'isolation électrique. Une combinaison de deux couches protectrices a bien vérifié nos recommandations en terme d'isolation électrique en milieu humide : (1) une première couche de céramique à base d'alumine (Resbond 908 ©) puis (2) un vernis silicone (Duraseal 1529 ©).

Pour l'étalonnage des thermocouples nous avons utilisé un système dédié à la calibration certifié de la société AOIP. Le système complet est composé d'un thermomètre à haute précision PHP 601 de type résistance de platine (précision $0,005^{\circ}\text{C}$ avec une résolution de $0,0001^{\circ}\text{C}$), un four GEMINI 550LRI, un module d'acquisition de 10 voies PC10 ainsi que le logiciel de calibration METROVIEW.

A priori les micro-thermocouples peuvent être placés à la cathode ou à l'anode. Dans notre cas, les mesures se font du côté anodique. En effet, il y a formation d'eau liquide à la cathode et cela fausserait les mesures. Par contre, une mesure à l'anode pose un réel problème d'étanchéité compte tenu de la taille de la molécule d'hydrogène. Une fois les capteurs installés, on s'assure d'un débit de fuite inférieur à $1 \text{ mbar}\cdot\text{min}^{-1}$ à l'aide d'un détecteur de fuite (SI968). L'emplacement des 16 micro-thermocouples (Fig. 2) a été choisi afin (1) d'éviter l'obstruction des canaux d'alimentation en gaz et (2) d'être au mieux répartis sur la surface active. La fixation des fils de thermocouples se fait par collage le long des voiles des canaux (*i.e.* la partie haute du canal *C.f.* Fig. 2). Les jonctions sont en contact direct d'une part avec la plaque bipolaire en graphite et d'autre part avec la couche de diffusion (ou Gaz Diffusion Layer GDL en anglais).

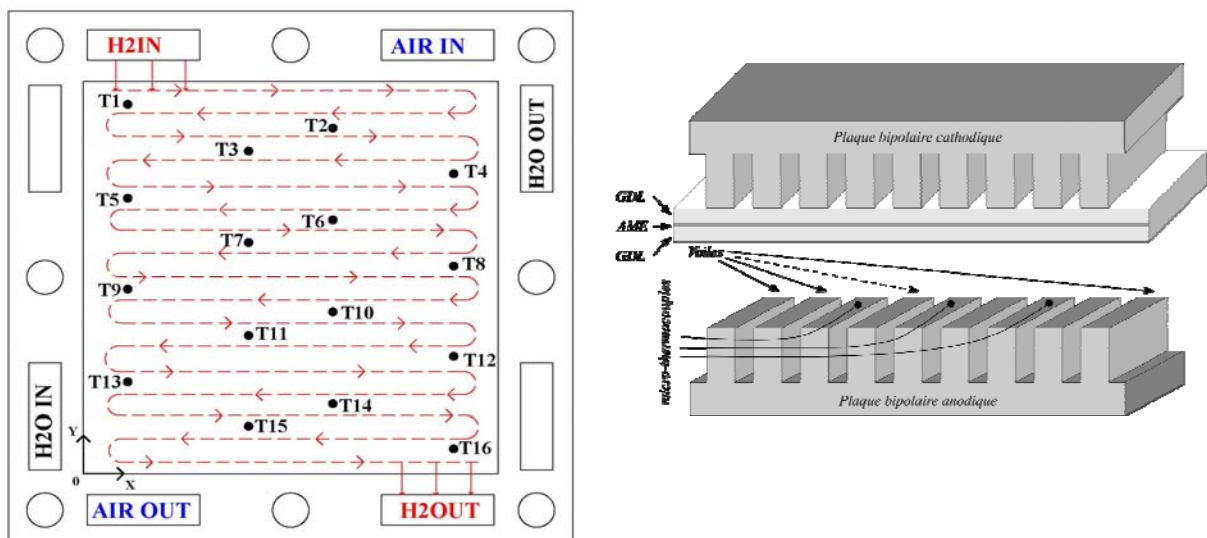


Figure 2: Localisations longitudinale et transversale des 16 micro-thermocouples. Le design exact ne peut être communiqué mais la configuration correspond à une alimentation de type serpentin comme symbolisé ci-dessus.

3. Résultats

Les courbes de polarisation des 3 cellules sont présentées sur la figure 3 et ont été réalisées à courant descendant selon les paliers définis ci-dessus. On remarque que la présence des fils de thermocouples dans la cellule centrale affecte légèrement la tension de cellule quand la densité de courant dépasse $0,5 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$. Cette différence peut s'expliquer par le léger débit de fuite que l'on s'autorise au niveau de la cellule centrale. Malgré tout cela reste globalement acceptable sur la plage de densité de courant considérée.

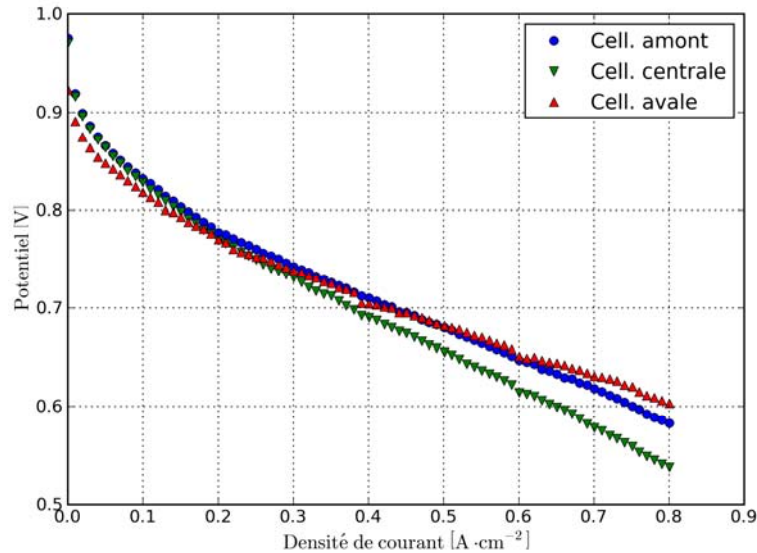


Figure 3 : Courbes de polarisation pour les 3 cellules.

On constate des perturbations au niveau de l'évolution des températures qui s'expliquent par la régulation thermique et hydrique du stack (Fig. 4). Les températures mesurées au sein du stack sont corrélées à la température du bouilleur (système d'humidification des gaz) et à la température d'eau de refroidissement. (Fig. 4).

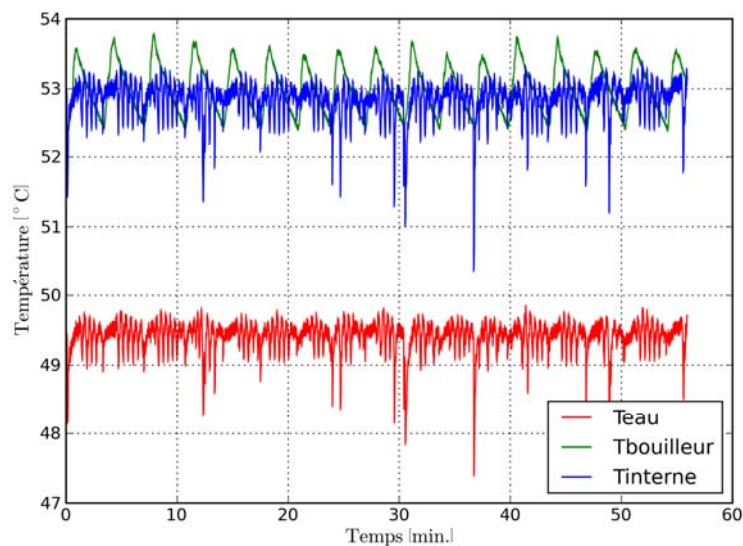


Figure 4: Effet du bouilleur et de la régulation thermique sur les températures internes mesurées.

Le système d'humidification a fait l'objet d'une étude détaillée [9] et la stabilisation de la température du bouilleur est d'environ 600 secondes. Afin de minimiser l'interférence entre le l'humidificateur et l'acquisition des températures, des paliers de 10 min. sont imposés à chaque niveau de densité de courant.

Dans nos essais un suivi des températures internes a été effectué pour chaque niveau de densité de courant. La figure 5 montre les résultats obtenus pour les 16 micro-thermocouples en variant la densité de courant entre 0 et $0,8 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$.

L'influence de la densité de courant sur la température des thermocouples est clairement identifiable avec un pincement très marqué à basse densité de courant - à partir de $0,3 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$. Les températures (*i.e.* T6 à T9) sont légèrement plus élevées que les autres. En effet, il s'agit de la zone centrale de la surface active, loin des entrées gaz c.a.d. riche en réactifs et peu soumis aux effets de bord (phénomènes de convection autour du stack)

A contrario, pour T15 et T16 les températures dénotent un appauvrissement en réactifs et une densité de courant plus faible (le terme source dans le bilan thermique). La circulation d'eau de refroidissement et la convection externe font donc chuter *comparativement* ces températures.

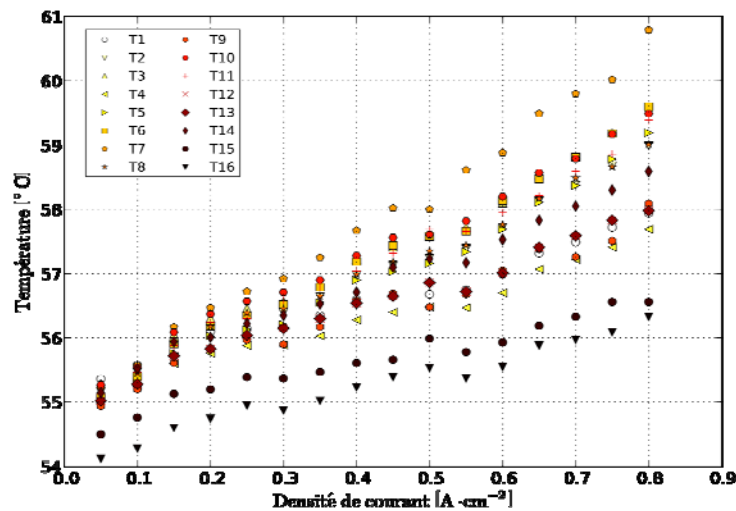


Figure 5: Effet de la densité de courant sur les températures internes. Il s'agit de mesures moyennes prises après la période de stabilisation. Le niveau de couleur correspond au cheminement indiqué sur la figure 2.

Afin d'estimer une cartographie des températures sur l'ensemble de la surface active à partir de données discrètes, une régression linéaire multiple est utilisée pour relier température et position spatiale (*i.e.* $T=P(x,y)$) avec P un polynôme d'ordre 2). Sur la figure 6 on représente la distribution de température pour 2 valeurs de densité de courant.

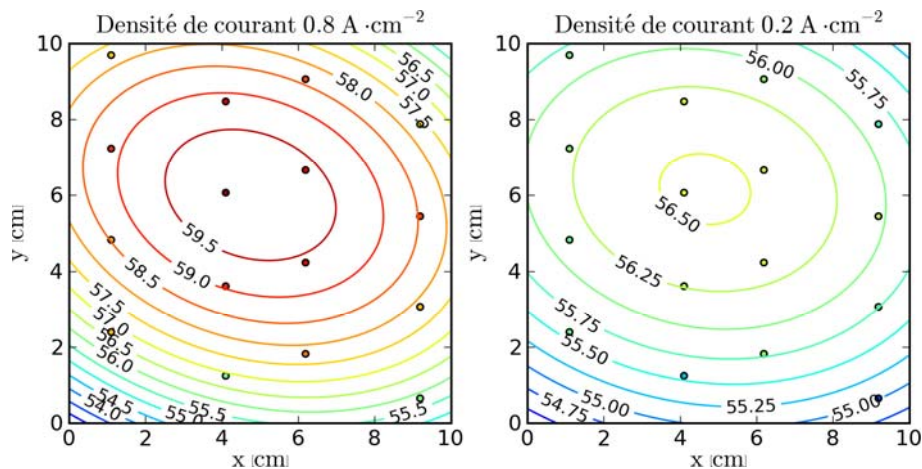


Figure 6 : Cartographie des températures pour $0,8 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ ($\Delta T = 0,5^\circ\text{C}$ entre les courbes), et $0,2 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ de densité de courant ($\Delta T = 0,25^\circ\text{C}$ entre les courbes).

4. Conclusion

La détermination expérimentale de températures internes par une méthode intrusive sur un stack de 3 cellules a été détaillée dans cette étude. La mesure de température a été réalisée par une série de 16 micro-thermocouples de type K (75 μm de diamètre) placés sur la plaque bipolaire anodique de la cellule centrale.

La mise au point du protocole de préparation, fixation des micro-thermocouples au sein d'un stack est un résultat majeur. En effet, les études citées ci-dessus concernent essentiellement des monocellules. Le changement d'échelle entre stack et monocellule modifie profondément le comportement thermique du système. Par exemple, une monocellule doit être réchauffée : la production de chaleur locale étant trop faible pour maintenir la température autour de 55°C alors qu'un stack est refroidi.

Au travers des perturbations observées (Fig. 4), on constate l'importance cruciale de la gestion thermique et hydrique d'un stack. De plus, ces essais ont montré un faible impact des capteurs sur les tensions de cellules et ont permis d'établir expérimentalement que la zone centrale est celle où des points chauds peuvent apparaître. Ce résultat ayant déjà été mis en évidence numériquement.

Les mesures internes de température nous renseignent *indirectement* sur la densité de courant locale au sein d'un stack. En effet, la dispersion observée entre zone centrale et zone périphérique tend à augmenter avec la densité de courant. Une compréhension fine des phénomènes locaux au sein d'un stack PEMFC n'est envisageable que si cette technique est utilisée conjointement avec une mesure des densités locales de courant.

Références

- [1] C. Y. Wang. Fundamental Models for Fuel Cell Engineering. *Chem. Rev.* 2004, 104, 4727-4766
- [2] Preben J.S. Vie. Characterisation and optimisation of the Polymer Electrolyte Fuel Cell. Thesis of Norwegian University of Science and technology (NTNU) Norway 2002
- [3] U. Pasaogullari. Two-phase transport and prediction of flooding in polymer electrolyte fuel cells. Thesis of the Pennsylvania State University, department of Mechanical and Nuclear Engineering, 2005
- [4] S. He, M. M. Mench, S. Tadigadap. Thin film temperature sensor for real-time measurement of electrolyte temperature in a polymer electrolyte fuel cell. *Sensors and Actuators A* 125 (2006) 170–177
- [5] P.J.S. Vie, S. Kjelstrup. Thermal conductivities from temperature profiles in the polymer electrolyte fuel cell. *Electrochim. Acta* 49 (2004) 1069–1077.
- [6] M.M. Mench, D.J. Burford, T.W. Davis, In situ temperature distribution measurement in an operating polymer electrolyte fuel cell, in: *Proceedings of 2003 ASME International Mechanical Engineering Congress*, Heat Transfer Division, Washington, DC, USA, 15–21 November, 2003, pp. 415–428.
- [7] M.H. Wang, H. Guo, C.F. Ma, F. Ye, J. Yu, X. Liu, Y. Wang, C.Y. Wang, Temperature measurement technologies and their applications in the research of fuel cells, in: *Proceedings of the First International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology*, Fuel Cell Science, Engineering and Technology, Rochester, NY, USA, 21–23 April, 2003, pp. 95–100.
- [8] D. Hissel, M.C. Pera, D. Candusso, F. Harel, S. Begot, Characterization of polymer electrolyte fuel cells for embedded generators-Test bench design and methodology, *Advances in Fuel Cells*, 2005, Editor Xiang-Wu Zhang
- [9] R. Glises, D. Hissel, F. Harel, M.C. Péra, New design of a PEM fuel cell air automatic climate control unit, *Journal of Power Sources* 150 (2005) 78–85