Impacts et influences des paramètres mécaniques d'une pile à combustible PEMFC sur la répartition des pressions de contact

Ghinwa Ouaidat^{a,b} Abel Cherouat^a Raed Kouta^b Dominique Chamoret^c

- a. Université de Technologie de Troyes GAMMA3, 12 rue Marie Curie, 10004 Troyes, France
- b. Université de Technologie de Troyes LM2S, 12 rue Marie Curie, 10004 Troyes, France
- c. ICB UMR 6303, CNRS, UBFC, UTBM, Belfort, France

<u>Ghinwa.ouaidat@utt.fr</u>, <u>abel.cherouat@utt.fr</u>, <u>raed.kouta@utbm.fr</u>, <u>dominique.chamoret@utbm.fr</u>

Abstract:

The fuel cell is a complex system an energy converter in which converts the chemical energy contained in hydrogen into electrical energy and heat. It is composed of several components: end plate, bipolar plates, gas diffusion layers (GDL) and membrane electrode assemblies (MEA). A fuel cell looks like a complex multi-physical system (mechanical, electrochemical, thermal and fluidic) where the performance could be influenced by a large number of uncertain mechanical parameters (temperature, clamping force), design parameters (dimensions of each component) and material parameters (properties of each component). All these parameters, especially the clamping force, can impact the assembly phase of the components and particularly the contact pressure at the interface of each component. A significant clamping force can generate high mechanical strain and stress in the membrane and the GDL and affect the distribution of contact pressure, the pore shape under the channels, the contact resistance and the fuel cell performance. On the other hand, a low clamping force could also cause a gas leakage between components therefore the contact resistance and the performance of the fuel cell. In this paper, 2D parametric finite element model is proposed to study the fuel cell performance. The repartition of contact pressure under isothermal mechanical loading in order to optimize the behavior of the fuel cell is discuss numerically. The influence of different design and operational parameters: size of pores in the GDL, thickness of the GDL and the bending radius of the bipolar plate was carried through an experimental plan.

Mots clefs : Pile à combustible PEMFC, FEA, Porosité, Performance électrique, Plan d'expériences.

1. Introduction

Les plus grands efforts de développement se sont concentrés ces dix dernières années sur les piles à combustibles de type Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) utilisées dans le domaine de l'automobile pour augmenter les performances et diminuer les coûts [1]. La pile à combustible est un convertisseur d'énergie permettant de transformer l'énergie chimique contenue dans l'hydrogène en énergie électrique et thermique (Figure 1).



Figure 1 : Principe de fonctionnement de la pile PEMFC

La PEMFC est constituée d'un empilement de cellules électrochimiques en série. Chaque cellule est constituée d'un assemblage de plaques bipolaires (Pb), de couches de diffusion des gaz (GDL) et d'une membrane permettant de satisfaire de nombreuses exigences mécaniques, électriques, thermiques et chimiques. Les plaques bipolaires permettent d'assurer la distribution, le refroidissement des gaz et les contacts électriques avec les cellules adjacentes et la tenue mécanique. La membrane, MEA (électrolyte) est un conducteur d'ions et isolant électrique. La GDL est le composant le plus sensible. Il permet de transporter, de manière homogène, les gaz réactifs fournis par le canal d'écoulement vers les couches catalytiques ; de conduire les électrons à faible résistance et d'évacuer l'eau produite de la membrane par réaction chimique.

D'un point de vue mécanique, la performance de la pile est liée à l'état de contraintes/déformations en cœur de pile et dépend :

- Du comportement de chacun des composants.
- De la nature mécanique des différents comportements.
- Des modalités opératoires d'assemblage (force/couple de serrage, type de joint, ...).
- Des paramètres géométriques des composants (dimensions des plaques, formes des canaux, porosité).

Le tableau 1 montre les conséquences de la variation des paramètres mécaniques et physiques sur la performance de la pile.

Variation des paramètres mécaniques et physiques	Conséquences	Explications				
Epaisseur de la membrane (MEA) Déséquilibre dans le flux des ions		Une diminution de l'épaisseur de la membrane réduit sa				
$(0.051 \le e_m \le 0.183 \text{ mm})$ H+ à travers la membrane		résistance et diminue les pertes ohmiques				
Epaisseur de la couche de diffusion		Une diminution de l'épaisseur de la GDL augmente le transport de masse à travers elle et réduit ainsi les pertes de transport de				
des gaz (GDL)	Transport de masse de la GDL					
(0.11≤ e _{GDL} ≤0.377 mm)		masse				
Porosité de la couche de diffusion des gaz $(10\% \le \rho \le 90\%)$	Transport de masse de la GDL	Une augmentation de la porosité de la GDL améliore le transport de masse et diminue ses pertes. Une faible porosité conduit à une circulation insuffisante des gaz réactifs : l'eau produite par la réaction électrochimique ne s'évacue plus, ce qui conduit à un phénomène d'inondation dans la plaque GDL.				
Force de serrage $(0 \le P \le 10 \text{ MPa})$ Déformation de la GDL et sur la résistance de contact entre la GDL et la plaque bipolaire.		Une forte compression diminue la perméabilité des gaz, améliore la conductivité et diminue les résistances de contact entre la GDL et la plaque bipolaire. Ceci fait diminuer les pertes totales.				
Largeur du canal de la plaque bipolaire $(0.5 \le L_C \le 4 \text{ mm})$ Circulation des gaz réactifs.		Un petit canal conduit à une alimentation insuffisante des gaz réactifs				
Largeur de dent de la plaque bipolaire $(0.5 \le L_D \le 4 \text{ mm})$	Surface de contact entre les plaques GDL et plaque bipolaire	Une dent de petite largeur conduit à une résistance de contact élevée à l'interface				
Rayon de courburede la plaquebipolaire $(0.1 \le R_b \le 0.9 \text{ mm})$	Contact entre la plaque bipolaire et la GDL	Si le rayon de courbure de la plaque bipolaire augmente, la longueur de contact entre le BPP et le GDL diminue, ce qui entraîne une augmentation de la résistance de contact.				

Table 1 : Effets des paramètres mécaniques et physiques sur la performance de la pile [2], [3], [4] et [5].

Plusieurs études numériques récentes montrent un rôle important de ces paramètres sur la performance de la pile et qu'il existe une pression de serrage optimale pour laquelle une étanchéité et une meilleure performance de la pile sont obtenues. Akiki, T. [5] a étudié l'influence des différentes géométries de la plaque bipolaire. Elle a montré qu'à une pression très élevée, la plaque bipolaire en graphite de section trapézoïdale avec un rayon de courbure de 0.2mm conduit à une bonne performance de la pile. Movahedi, M. et al. [6] ont étudié l'effet de la compression sur la géométrie de la cellule de la pile, en particulier la GDL et ses caractéristiques : épaisseur, porosité et perméabilité. Muthukumar, M. et al. [7] ont étudié l'influence de la largeur du canal d'écoulement sur la performance de la pile. Bouziane, K. et al. [8] ont étudié l'influence de la compression mécanique d'une couche de diffusion de GDL sur la résistance électrique de contact dans la pile. Ils ont montré que les GDL de type SGL ont la plus grande résistance de contact. Viennent ensuite l'échantillon de Freudenberg, puis les GDL de type TORAY. Lai, X. et al. [9] ont étudié l'influence de la variation de rayon de courbure de la plaque bipolaire de 0.1 à 0.9 mm sur la répartition de pression de contact entre GDL/Pb. Vlahinos, A. et al. [10] ont étudié l'effet des variations de matériaux, comme le module d'élasticité des plaques bipolaires, l'épaisseur de la plaque bipolaire, l'épaisseur de la membrane et la charge du boulon, sur la distribution de pression de la MEA. Alizadeh, E. et al. [11] ont étudié l'influence des plusieurs paramètres comme l'épaisseur et le matériau de la plaque d'extrémité, le nombre et la position des cellules sur la distribution de pression sur la MEA. Ils ont montré qu'avec un grand nombre de cellules (15 cellules), la distribution de pression sur la MEA est plus uniforme. Habibnia, M. et al. [12] ont étudié l'influence de divers paramètres, comme la pression de serrage et l'épaisseur de la plaque d'extrémité sur la distribution de pression de la GDL et la déformation de la plaque d'extrémité. Carral, C. et al. [13], Bates, A. et al. [14] et Zhou, P. et al. [15] ont montré qu'une meilleure homogénéité de pression de contact est observée pour un nombre de cellules très grand. Zhang, Z. et al. [16] ont montré que l'augmentation de l'épaisseur de GDL améliore la performance de la pile.

Comme la performance de la pile dépendent d'un grand nombre de paramètres, cerner au mieux le comportement des pressions de contact en cœur de pile par un plan d'expériences afin d'étudier la variation des paramètres et d'optimiser le système PAC et améliorer sa performance est l'objectif de ce travail. Dans ce contexte, une modélisation par éléments finis d'un système PAC, associée à un plan d'expériences s'est imposée pour appréhender au mieux ces phénomènes complexes difficilement mesurables directement et comprendre l'influence des différents paramètres mécaniques sur les performances de la pile. Nous sommes spécialement intéressés à l'influence de certains paramètres sur la pression de contact. Pour réaliser ce plan d'expérience dans de bonnes conditions et dans des temps de calculs raisonnables, nous l'avons associé à un modèle mécanique éléments finis 2D.

2. Simulation éléments finis d'une pile et pression de contactHypothèses de la simulation

Pour réduire le temps de calcul et du fait de la symétrie la structure, seulement le quart d'une cellule est modélisé en 2D sous les hypothèses des déformations planes. Notre modèle est constitué d'un empilement d'une MEA, d'une plaque bipolaire, d'une GDL (supposée poreuse) pour terminer par une plaque d'extrémité (voir Figure 2). Pour modéliser l'effort de serrage sur la plaque un déplacement $U_y=0.1$ mm est appliqué sur le haut de la plaque. Un contact avec frottement de coefficient $\mu=0.3$ est défini entre les différents composants (Loi de Coulomb). Dans cette étude le comportement mécanique de tous les composants est supposé isotrope linéaire. Toutes les données relatives à ce modèle sont résumées dans le Tableau 2.



Figure 2 : Modèle 2D de la pile et conditions aux limites

	Largeur (mm)	Epaisseur (mm)	Profondeur des canaux (mm)	Rayon de courbure (mm)	Largeurs de dents (mm)	Largeur des canaux (mm)	Diamètres des pores (mm)	Module d'Young (MPa)	Coefficient de Poisson
Plaque d'extrémité	43	5	-	-	-	-	-	70000	0.35
Bipolaire BP	36	1.5	1	0.1	4	4	-	5100	0.25
GDL	36	0.4	-	-	-	-	5 e-3	6.13	0.09
MEA	36	0.09	-	-	-	-	-	64	0.09

Tableau 2 : Dimensions géométriques et caractéristiques des composants de la pile [5], [7] [11] et [16].

• Résultats et discussions

Sous une compression constante de $U_y=0.1$ mm sur la plaque d'extrémité, les résultats montrent la géométrie déformée de la GDL sous la dent n°3. Un zoom est réalisé sous cette dent de la plaque bipolaire (Figure 4) et montre la distribution des contraintes de Von-Mises entre composants. Une contrainte maximale de l'ordre de 3.4MPa se situe au niveau des pores des canaux de circulation de l'hydrogène. La figure 5 montre la variation de la pression de contact entre GDL/MEA en fonction de la position de GDL. Une pression de contact nulle est observée sous les canaux correspondant au décollement entre la GDL et la MEA.

Comme la répartition de la pression de contact est symétrique, et afin de visualiser comment est repartie cette pression sous la dent, la figure 6 montre la variation de la pression de contact entre GDL/MEA (axe des ordonnées) en fonction de la position de la GDL (axe des abscisses) sous la dent n°3 de la plaque bipolaire. Une pression de contact nulle est observée sous les canaux correspondant au décollement entre la GDL et la MEA (zone bleue de la GDL). Cette pression augmente sous la dent de la Pb pour atteindre une repartie quasi-uniformément en dents de scie située entre 0.6179 et 0.613 MPa (zone encadrée en rouge). Comme la structure de la GDL est composée des pores de forme circulaire, alors les pics de pression de la figure 6 correspondent bien aux positions des pores situées sous la dent de la plaque bipolaire. Nous voyons que sous la dent, il existe 9 pores dans la GDL ce qui correspond aux 9 pics du graphe.





Figure 4 : Contrainte de von-Mises sous la dent n°3



Figure 5 : Répartition de la pression de contact entre GDL/MEA tout le long de la GDL.



Figure 6 : Répartition de la pression de contact entre GDL/MEA sous la dent n° 3.

Notons que les dimensions des pores dans la GDL n'influencent pas seulement la répartition de la pression de contact entre le GDL/MEA, mais aussi la répartition de la pression de contact GDL/Pb (Figure 7). La pression de contact maximale est localisée au niveau de point de détachement de la GDL / plaque bipolaire, ce qui génère des pics de pressions au point de détachement. Cette pression de contact est repartie quasi-uniformément en dents de scie entre 0.605 et 0.615MPa. De même, les pics des pressions correspondent aux pores (de la GDL) situées sous la dent de la plaque bipolaire.



Figure 7 : Répartition de la pression de contact entre GDL/Pb sous la dent n°3 de la plaque bipolaire.

3. Etude paramétrique

Après cette première étude, pour tenter de cerner au mieux le comportement des pressions de contact en cœur de pile, nous avons mis en place un plan d'expériences. Trois paramètres ont été retenus dans ce plan : Paramètre A : épaisseur de la GDL (e_{GDL}), Paramètre B : diamètre des pores (Φ_P) et Paramètre C : rayon de courbure de la plaque bipolaire (R_{Pb}) (Figure 8). Trois modalités ont été utilisées pour les trois variables. Nous avons donc un plan à 3 paramètres, 3 modalités par paramètres, c'est-à-dire 27 expériences (Tableau 3).



Figure 8 : Paramètres choisis pour plan d'expérience.

Paramètres		Modalités			
		-1	0	1	
А	Epaisseur de la GDL e _{GDL} (mm)	0.192	0.28	0.375	
В	Diamètre des pores $\Phi_{\rm P}(\mu m)$	2	5	7.5	
С	Rayon de courbure de la plaque bipolaire R_{Pb} (mm)	0.05	0.1	0.25	

Tableau 3 : Modalités pour différents paramètres

L'interprétation des résultats des analyses de la variance et de la régression multilinéaire nous donne les effets des paramètres sur la répartition de pression de contact entre GDL/Pb. La figure 9 montre l'effet de ces trois paramètres sur les pressions de contact entre GDL/Pb.



Figure 9 : Graphe d'effets pour les trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/Pb.

A partir de ces résultats, nous pouvons noter que :

- 1. Le rayon de courbure de la plaque bipolaire R_{Pb} influence de manière radicale la répartition des pressions de contact entre GDL/Pb. Lorsque ce rayon augmente, la pression de contact entre GDL/Pb diminue.
- 2. Un diamètre de pores $2\mu m \le \Phi_P \le 5\mu m$ n'a aucune influence sur la répartition de pression de contact GDL/Pb. Une augmentation de ce diamètre (7.5 µm) affecte la pression de contact qui diminue légèrement en diminuant l'épaisseur de la GDL.
- 3. L'augmentation de l'épaisseur de la GDL e_{GDL} de 0.19 à 0.28 mm, entraine une diminution 50% de la pression de contact entre GDL/Pb de 1.4 à 0.7 MPa, par contre, une augmentation de celle-ci de 0.7 à 1.6 MPa pour une épaisseur allant de 0.28 à 0.37mm.

Conclusion

Dans cette étude, une modélisation éléments finis 2D d'une pile associée à un plan d'expériences est proposée pour étudier l'influence de la variation du trois paramètres (diamètres des pores dans la GDL, épaisseur de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire) sur la distribution de la pression de contact sur l'ensemble Pb/GDL et GDL/MEA. Cette étude préliminaire des pressions de contact dans une pile est fondamentale. En effet, la performance de la pile est associée à la résistance de contact électrique. Or il s'avère que cette résistance électrique dépend des pressions de contact. Le travail à venir consiste à utiliser le modèle 2D pour établir la relation pression de contact/résistance électrique.

Références

Chupin, S. (2009). Comportement local et performances électriques d'une pile à combustible à membrane : vers un outil de diagnostic (Doctoral dissertation, Université du Québec à Trois-Rivières).
Toghyani, S., Nafchi, F. M., Afshari, E., Hasanpour, K., Baniasadi, E., & Atyabi, S. A. (2018). Thermal and electrochemical performance analysis of a proton exchange membrane fuel cell under assembly pressure on gas diffusion layer. *International Journal of Hydrogen Energy*, 43(9), 4534-4545.

[3] Dafalla, A. M., & Jiang, F. (2018). Stresses and their impacts on proton exchange membrane fuel cells: A review. *International Journal of Hydrogen Energy*, *43*(4), 2327-2348.

[4] Massonnat, P., Gao, F., Bouquain, D., & Miraoui, A. Synthese sur le vieillissement des pilesa combustiblesa membrane échangeuse de protons.

[5] Akiki, T. (2011). *Modélisation de la dégradation de la production de puissance d'une pile à combustible suite aux sollicitations mécaniques* (Doctoral dissertation, Belfort-Montbéliard).

[6] Movahedi, M., Ramiar, A., & Ranjber, A. A. (2018). 3D numerical investigation of clamping pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell with interdigitated flow field. *Energy*, *142*, 617-632.

[7] Muthukumar, M., Karthikeyan, P., Vairavel, M., Loganathan, C., Praveenkumar, S., & Kumar, A. S. (2014). Numerical studies on pem fuel cell with different landing to channel width of flow channel. *Procedia Engineering*, *97*, 1534-1542.

[8] Bouziane, K., Lachat, R., Meyer, Y., Candusso, D., & Francois, X. (2018, July). Etude expérimentale de l'influence de la compression mécanique d'une couche de diffusion de gaz sur la résistance électrique de contact dans une pile à combustible à membrane échangeuse de protons. In *SGE2018-Symposium de Génie Electrique* (pp. 7-p).

[9] Lai, X., Peng, L., & Ni, J. (2008). A mechanical–electrical finite element method model for predicting contact resistance between bipolar plate and gas diffusion layer in PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, *182*(1), 153-159.

[10] Vlahinos, A., Kelly, K., D'Aleo, J., & Stathopoulos, J. (2003, January). Effect of material and manufacturing variations on membrane electrode assembly pressure distribution. In *ASME 2003 1st International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology* (pp. 111-120). American Society of Mechanical Engineers.

[11] Alizadeh, E., Barzegari, M. M., Momenifar, M., Ghadimi, M., & Saadat, S. H. M. (2016). Investigation of contact pressure distribution over the active area of PEM fuel cell stack. *International Journal of Hydrogen Energy*, *41*(4), 3062-3071.

[12] Habibnia, M., Shakeri, M., & Nourouzi, S. (2016). Determination of the effective parameters on the fuel cell efficiency, based on sealing behavior of the system. *International Journal of Hydrogen Energy*, 41(40), 18147-18156.

[13] Carral, C., & Mele, P. (2014). A numerical analysis of PEMFC stack assembly through a 3D finite element model. *International journal of hydrogen energy*, 39(9), 4516-4530.

[14] Bates, A., Mukherjee, S., Hwang, S., Lee, S. C., Kwon, O., Choi, G. H., & Park, S. (2013). Simulation and experimental analysis of the clamping pressure distribution in a PEM fuel cell stack. *International journal of hydrogen energy*, 38(15), 6481-6493.

[15] Zhou, P., Lin, P., Wu, C. W., & Li, Z. (2011). Effect of nonuniformity of the contact pressure distribution on the electrical contact resistance in proton exchange membrane fuel cells. *International journal of hydrogen energy*, *36*(10), 6039-6044.

[16] Zhang, Z. (2010). *Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible* (Doctoral dissertation, Evry-Val d'Essonne).