



**HAL**  
open science

# Intégration des incertitudes des paramètres de conception dans les modèles mécaniques d'une pile à combustible

Ghinwa Ouaidat

► **To cite this version:**

Ghinwa Ouaidat. Intégration des incertitudes des paramètres de conception dans les modèles mécaniques d'une pile à combustible. Matériaux et structures en mécanique [physics.class-ph]. Université de Technologie de Troyes, 2020. Français. NNT : 2020TROY0024 . tel-03808707

**HAL Id: tel-03808707**

**<https://theses.hal.science/tel-03808707v1>**

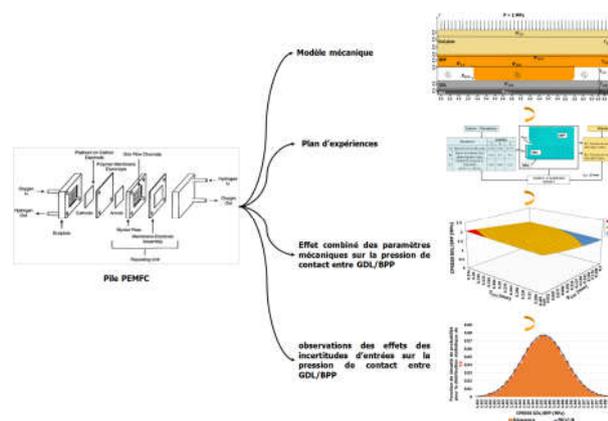
Submitted on 10 Oct 2022

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Ghinwa OUAIDAT**

# Intégration des incertitudes des paramètres de conception dans les modèles mécaniques d'une pile à combustible



**Champ disciplinaire :**  
Sciences pour l'Ingénieur

2020TROY0024

Année 2020

---

---

# THESE

*pour l'obtention du grade de*

## DOCTEUR

de l'UNIVERSITE DE TECHNOLOGIE DE TROYES

EN SCIENCES POUR L'INGENIEUR

**Spécialité : MATERIAUX, MECANIQUE, OPTIQUE, NANOTECHNOLOGIE**

*présentée et soutenue par*

**Ghinwa OUAIDAT**

*le 8 décembre 2020*

---

---

**Intégration des incertitudes des paramètres de conception  
dans les modèles mécaniques d'une pile à combustible**

---

---

## JURY

M. Thierry BARRIÈRE	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Président
M. Denis CANDUSSO	DIRECTEUR DE RECHERCHE - HDR	Rapporteur
M. Abdelkhalak EL HAMI	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Rapporteur
Mme Dominique CHAMORET	MAITRE DE CONFERENCES	Examinatrice
M. Yann MEYER	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Examineur
M. Raed KOUTA	MAITRE DE CONFERENCES - HDR	Directeur de thèse
M. Abel CHEROUAT	PROFESSEUR DES UNIVERSITES	Directeur de thèse



# Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier **l'Université de Technologie de Troyes (UTT)** pour m'avoir accueillie au sein des équipes GAMMA3 et M2S.

Je tiens à remercier particulièrement la **fondation HARIRI** au Liban qui a financé les travaux présentés dans cette thèse.

Je remercie aussi les personnes suivantes qui m'ont soutenue et encouragée durant mon travail de recherche :

Monsieur **Abel CHEROUAT**, mon directeur de thèse, pour sa rigueur scientifique, sa qualité d'encadrement et pour son aide sur la rédaction de ce manuscrit.

Monsieur **Raed KOUTA**, mon directeur de thèse, pour avoir proposé ce sujet et encadré ce travail et pour sa rigueur scientifique.

Madame **Dominique CHAMORET**, de l'UTBM pour sa qualité d'encadrement, sa rigueur scientifique, ses conseils, ses encouragements tout au long de mon travail de recherche et pour son aide sur la rédaction de ce manuscrit.

Je tiens ensuite à remercier les membres du jury de thèse :

- Monsieur **Thierry Barrière**, Professeur à l'Université de Bourgogne-Franche-Comté, pour avoir accepté d'être examinateur de ce travail.
- Monsieur **Yann MEYER**, Professeur à l'Université de Technologie de Compiègne, d'avoir accepté d'être examinateur de ce travail et membre de mon jury.
- Monsieur **Denis CANDUSSO**, Directeur de Recherche HDR à l'Université Gustave Eiffel, d'avoir accepté d'être rapporteur de ce travail ainsi que pour son lecture attentive de ce document.
- Monsieur **Abdelkhalak ELHAMI**, Professeur au Laboratoire de Mécanique de Normandie INSA Rouen, d'avoir accepté d'être rapporteur de ce travail de thèse ainsi que pour son lecture attentive de ce document.

Je tiens à remercier mes amis **Khadidja BOUZIANE** et **EL Mahdi KHETABI**, doctorants à l'institut FCLAB à Belfort pour les échanges enrichissants qui ont eu lieu lors de ma visite à la plateforme pile à combustible de Belfort.

Enfin, je remercie mes parents, mes proches et mes amis pour leur amour, leur soutien et leur encouragement tout le long de ma thèse.

---

# Résumé de thèse

Dans le contexte actuel de maîtrise des énergies, l'optimisation du système pile à combustible PAC est un enjeu majeur.

Comme la pile à combustibles PEMFC est un système complexe dont la durabilité reste un phénomène important à explorer, les modélisations théoriques et numériques sont devenues indispensables pour l'étude des performances des PEMFC. L'objectif général de cette thèse est de participer au développement d'outils numériques permettant de comprendre et de d'anticiper les dégradations des performances de la pile et de maîtriser la fiabilité des composants.

Pour appréhender l'effet des phénomènes mécaniques sur la performance de la pile, des modèles numériques mécano-probabiliste prenant en compte les incertitudes de certains paramètres de conception ont été développés : porosité de la GDL, épaisseur de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire.

Deux approches complémentaires ont été mises en œuvre. Dans un premier temps, un modèle éléments finis 2D associé à un plan d'expériences a permis la mise en place d'un modèle déterministe. Ce modèle a servi pour l'intégration et l'analyse des incertitudes sur les paramètres mécaniques.

Dans un second temps, une approche 3D multi physique a été développée pour tenir compte des interactions thermoélectriques sur les répartitions des pressions de contact. Pour cette étude, l'intégration des incertitudes sur les paramètres de conception est faite dans une démarche physico-probabiliste de type stochastic finite element method (SFEM).

**Mots-clés :** PEMFC, Plan d'expériences, Porosité, Incertitudes, Méthode Eléments finis, Multiphysique, Simulation, Optimisation.

---

# Summary

Energy management has become a major issue in the socio-economic context and the optimization of electric energy production systems by fuel cell has contributed to the development of new reliable and robust techniques.

As the PEMFC fuel cell is a complex multiphysics system whose reliability and durability remains important phenomena to be performed experimentally, theoretically and numerical in order to optimize the fuel cell. The general aims of this thesis is to contribute in the development of numerical tools to analyse the electrical performance, to predict the degradation and lifetime of fuel cell performance and to control the reliability of the components.

To understand the effect of the mechanical phenomena on fuel cell reliability, a numerical mechanical-probabilistic model taking into consideration the uncertainties of design parameters is developed by two complementary approaches.

Firstly, a 2D FEA associated with a Design of Experiments has allowed the development of a deterministic model by integration of uncertainties mechanical parameters: porosity of the GDL, thickness of the GDL and bending radius of the bipolar plate.

Secondly, a multi-physics 3D model is proposed to predict the thermo-electric interactions between the components on the distribution of mechanical contact pressure. The integration of uncertainties mechanical parameters is realized by a physico-probabilistic approach of the stochastic finite element method (SFEM).

**Keywords:** PEMFC, Design of experiments, Porosity, Uncertainties, Finite element method, Multiphysics, Simulation, Optimization.

---

# Nomenclature

PEMFC	Pile à combustible à membrane échangeuse de protons	$E_{MEA}$	Module d'Young de la MEA (GPa)
PAC	Pile à combustible	$\nu_{MEA}$	Coefficient de Poisson de la MEA
EP	Plaques d'extrémité	P	Pression de serrage (MPa)
BPP	Plaques bipolaires	m	Nombre de pores
GDL	Couche de diffusion de gaz	R	Résistance de contact électrique entre la GDL/BPP ( $m\Omega \cdot mm^2$ )
MEA	Assemblage membrane électrodes	$S_{GDL/BPP}$	Surface de contact entre GDL/BPP ( $mm^2$ )
$\varepsilon$	Porosité de la GDL	$C_{press}$	Pression de contact (MPa)
$\rho$	Masse volumique ( $Kg/m^3$ )	J	Densité de courant à l'interface GDL/BPP ( $A/mm^2$ )
$C_p$	Chaleur spécifique ( $J/Kg \cdot ^\circ C$ )	$U_{BPP}$	Potential électrique sur la surface de la BPP (mV)
K	Conductivité thermique ( $W/m \cdot ^\circ C$ )	$U_{GDL}$	Potential électrique sur la surface de la GDL (mV)
$\bar{q}$	Source de chaleur volumique ( $w/m^3$ )	Y1	Pression de contact entre GDL/MEA (MPa)
$\alpha$	Coefficient de la dilatation thermique ( $10^{-6}/^\circ C$ )	Y2	Pression de contact entre GDL/BPP (MPa)
$T_{EP}$	Epaisseur d'EP (mm)	COV	Coefficient de variation
$W_{EP}$	Largeur d'EP (mm)	$\sigma$	Ecart-type
$E_{EP}$	Module de Young d'EP (GPa)	mA	Moyenne de l'épaisseur de la GDL
$\nu_{EP}$	Coefficient de poisson d'EP	COV A	Coefficient de variation de l'épaisseur de la GDL
$T_{BPP}$	Epaisseur de la BPP (mm)	mB	Moyenne du rayon de courbure de la BPP
$W_{BPP}$	Largeur de la BPP (mm)	COV B	Coefficient de variation du rayon de courbure de la BPP
$W_{CN}$	Largeur des canaux de la BPP (mm)	mC	Moyenne du module de Young de la GDL
$W_{RIB}$	Largeur de dents de la BPP (mm)	COV C	Coefficient de variation du module de Young de la GDL

$T_{CN}$	Profondeur des canaux de la BPP (mm)	ECC	Conductance électrique
$R_{RIB}$	Rayon de courbure de la BPP (mm)	TCC	Conductance thermique
$E_{BPP}$	Module d'Young de la BPP (GPa)	ANOVA	Analyse de la variance
$\nu_{BPP}$	Coefficient de Poisson de la BPP	RML	Régression multilinéaire
$T_{GDL}$	Epaisseur de la GDL (mm)	Epot	Potentiel électrique
$W_{GDL}$	Largeur de la GDL (mm)	$K^m$	Matrice de raideur
$\varnothing_P$	Diamètres des pores de la GDL (mm)	$K^t$	Matrice de conductivité thermique
$E_{GDL}$	Module d'Young de la GDL (GPa)	$K^e$	Matrice de conductivité électrique
$\nu_{GDL}$	Coefficient de Poisson de la GDL	T	Température
$T_{MEA}$	Epaisseur de la MEA (mm)	$f_X(x)$	Fonction de densité de probabilité
$W_{MEA}$	Largeur de la MEA (mm)	PE	Plan d'expériences

# Introduction générale

## Contexte général de la thèse et motivations

La consommation des ressources en énergie (pétrole, charbon...) augmente avec le développement de l'industrie. Pour lutter contre la pollution environnementale (réchauffement par effet de serre, pluie acide, gaz polluants) provenant de l'industrie ou des moyens de transports, l'hydrogène est une des meilleures solutions comme source d'énergie non polluante, durable et renouvelable.

Pourquoi l'hydrogène ? Le passage à l'utilisation de l'hydrogène dans les différents domaines (domaines des transports, domaine de l'industrie) permet de contrôler les besoins et l'efficacité énergétique et de stocker et de transporter de l'énergie. En plus, il permet d'obtenir de l'électricité à l'aide des réactions chimiques et de diviser par deux les émissions d'une voiture électrique équipée d'une pile à combustible. Pour information, le tableau 1 illustre les caractéristiques de l'hydrogène en comparaison avec d'autres combustibles :

Combustibles	Masse volumique (Kg/m <sup>3</sup> )	Pouvoir calorifique inférieur (PCI moyen) (Wh/Kg)	CO <sub>2</sub> Kg/Kg
Charbon	730	9863	3.42
Essence	750	12133	3.25
Gasoil	845	11834	3.23
Gaz naturel	0.714	13585	2.79
Hydrogène	0.089	33361	0

Tableau 1 : Caractéristiques de différents combustibles [1]

Le concept du « vecteur hydrogène dans la transition énergétique » prend tout son sens. Dans ce contexte, la pile à combustible (PAC) est un convertisseur d'énergie performant. Elle transforme l'énergie chimique contenue dans l'hydrogène en énergie électrique et en chaleur, avec un rendement électrique compris entre 40% et 50%. La PAC n'engendre pas de pollution atmosphérique locale et n'émet pas de gaz à effet de serre à condition qu'elle soit directement alimentée par de l'hydrogène produit « proprement ».

La pile à combustible peut être utilisée dans des domaines différents tels que le transport, les applications portables (téléphones et ordinateurs) et les applications stationnaires. Malgré des développements importants de la technologie des piles à combustible PEM, certains problèmes tels que la durabilité, le coût et la performance doivent encore être traités avant de pouvoir remplacer les sources d'énergie traditionnelles.

L'environnement où la pile à combustible est placée influe sur son fonctionnement et sa durée de vie. Dans le domaine du transport, la durabilité de la pile est un problème important qui constitue un obstacle à son développement commercial. En effet, la pile à combustible possède une durée de vie limitée (2500 heures), alors qu'une durée de vie de 5000 heures serait nécessaire pour une commercialisation dans le secteur automobile. Cet objectif n'est

pas atteint si nous considérons l'autonomie des prototypes actuels. L'échec est notamment dû au manque de maîtrise des phénomènes physiques aléatoires se déroulant à l'intérieur de la cellule. Ces phénomènes sont, en grande partie, dus aux incertitudes des paramètres opératoires (température, pressions, humidités relatives ...) de la cellule, des caractéristiques des composants de la cellule et leur mécanisme de dégradation. Ces incertitudes affectent la performance de la cellule et ainsi, celle de la pile entière. Il apparaît donc nécessaire d'avoir un modèle de fiabilité qui prévoit la performance et l'endurance de la pile.

La pile est un système constitué d'un empilement de cellules élémentaires chacune étant constituée de deux parties : les plaques bipolaires (BPP) et l'assemblage membrane électrodes (AME).

- Les BPP permettent l'arrivée des gaz et la collecte du courant.
- L'AME comprend deux électrodes (anode et cathode) entre lesquelles s'insère un électrolyte (membrane). Les électrodes sont le lieu des réactions d'oxydation de l'hydrogène à l'anode et de réduction de l'oxygène à la cathode.
- La membrane a pour rôle de conduire les protons de l'anode vers la cathode tout en étant un excellent isolant électronique. Elle permet aussi de séparer les gaz hydrogène et oxygène.

La pile à combustible à membrane d'échange de protons PEMFC est la plus étudiée pour une application dans les transports terrestres du fait notamment de sa température de fonctionnement faible (inférieure à 100 °C) qui lui permet un démarrage à froid rapide. Son développement est en bonne voie. L'environnement où la pile à combustible est placée, influe sur son fonctionnement et sa durée de vie. Dans le domaine de transport, la durabilité de la pile est un problème important qui constitue un obstacle à son développement commercial.

La pile PEMFC est un système multi-physique (mécanique, électrochimique, thermique et fluidique), sa performance dépend de l'influence des plusieurs paramètres tels que les paramètres opératoires (température, humidité relative, pression interne...), les paramètres mécaniques d'assemblage (force de serrage), les paramètres de conception (dimensions et géométrie des composants, nombre de cellule) et paramètres matériaux des composants. Ces paramètres sont les causes de dégradations de plusieurs composants de la pile.

Les incertitudes de ces paramètres affectent la performance de la cellule et ainsi, celle de la pile entière. D'où la nécessité de disposer de modèles sophistiqués pour comprendre et anticiper les dégradations des performances de la pile et pour maîtriser la fiabilité des composants dans un contexte mécanique.

---

## Objectifs des travaux

La plupart des études antérieures concernant les piles à combustibles se sont focalisées sur les aspects physico-chimiques des piles. Les aspects mécaniques ont longtemps été placés au second plan malgré leurs impacts forts sur les performances. Depuis une dizaine d'années, les couplages mécaniques sont au cœur des études.

Nous aborderons dans ce travail l'influence sur la production d'énergie des incertitudes des paramètres mécaniques. Cette thèse s'inscrit dans la continuité des thèses de Tilda AKIKI [2], Latévi PLACCA [3] et de Nicolas NOGUER [4].

L'objectif majeur de notre travail est de mettre en place des outils numériques afin de comprendre l'influence des incertitudes des paramètres mécaniques (épaisseur de la GDL, rayon de courbure de la plaque bipolaire et porosité de la GDL) sur la performance et la durabilité de la pile. Une grandeur joue un rôle fondamental dans la performance de la pile : la pression de contact entre les composants de la pile. Il est donc nécessaire de porter une attention particulière à la répartition des pressions de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA.

Pour appréhender au mieux ces phénomènes thermo-électro-mécaniques (contraintes, déformations, pressions de contact entre les différentes couches), phénomènes complexes difficilement mesurables directement et comprendre l'influence de ces différentes grandeurs sur les performances de la pile, la modélisation par éléments finis s'impose. L'objectif de notre travail est donc de développer des modèles numériques tridimensionnels éléments finis mécano-probabiliste en tenant compte de l'influence des incertitudes des paramètres de conception mécanique.

## Plan de présentation de la thèse

La suite de ce rapport de thèse est organisée en quatre chapitres de la manière suivante :

Dans le Chapitre 1, nous commençons par une description des piles à combustible, de leur principe de fonctionnement et de leurs applications. Ensuite nous avons présenté en détail la pile à combustible à membrane échangeuse de protons ainsi que ses principaux composants et leurs caractéristiques géométriques et structurelles. La dernière partie du chapitre est consacrée aux principales dégradations qui peuvent affecter les différents composants de la pile.

Le second Chapitre est consacré à la présentation de l'ensemble des phénomènes physiques mis en jeu dans un système pile : fluidiques, thermiques, électriques et mécaniques. Une liste non exhaustive des paramètres de natures différentes influençant les performances de la pile proposée. Pour terminer, un état de l'art dans la littérature des modèles numériques des différents phénomènes physiques mis en jeu est effectué.

---

Dans le Chapitre 3, nous étudions l'influence des incertitudes de différents paramètres (géométriques et mécaniques) sur la répartition des pressions de contact uniquement d'un point de vue mécanique. Pour ce faire un modèle éléments finis 2D associé à un plan d'expérience est développé pour établir des modèles déterministes des pressions de contact et des résistances électriques à partir de certains paramètres mécaniques (voir Figure 1).

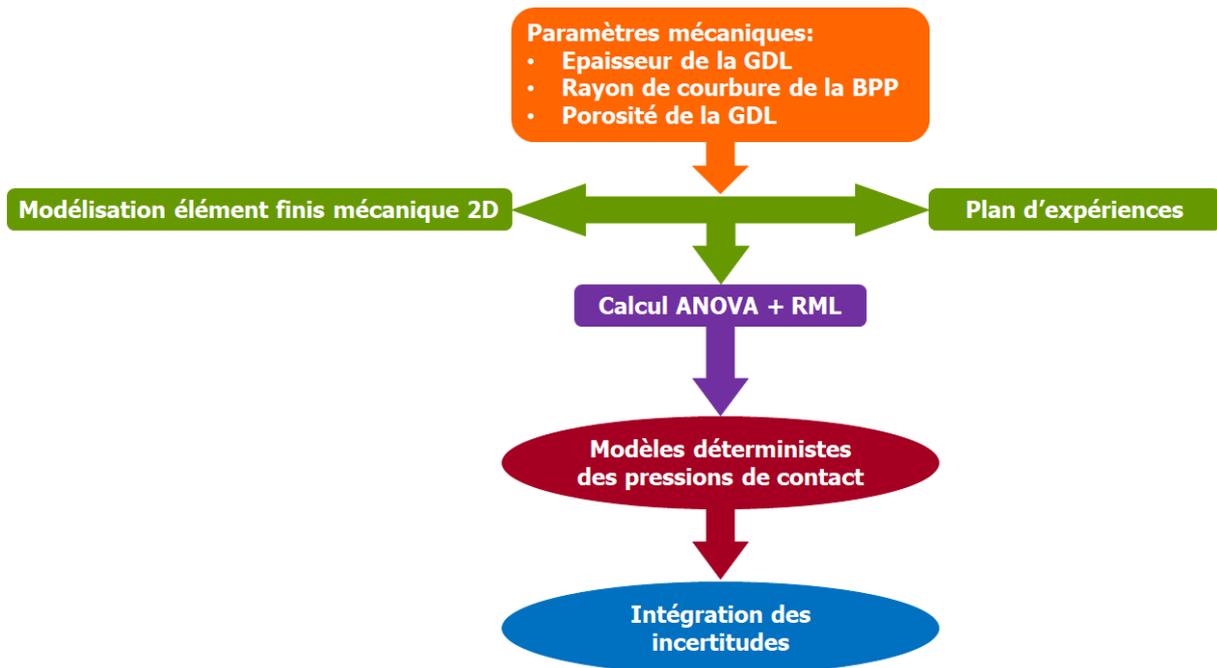


Figure 1 : Démarches appliquées pour le modèle mécanique 2D.

Pour se faire, nous avons décomposé ce chapitre en deux parties :

Dans la première partie, un modèle éléments finis 2D purement mécanique permettant la simulation des pressions de contact, à partir de paramètres déterminés et constants est mis en place. Des plans d'expériences et des calculs ANOVA sont ensuite menés à partir de ces simulations éléments finis. Les paramètres retenus dans notre travail sont la porosité de la GDL ainsi que des paramètres géométriques : épaisseur de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire. Ici, deux cas de porosité (forte (entre 68 et 88%) et faible (entre 10 et 57%)) sont étudiés et ont amené à deux plans d'expériences effectués sur la base des mêmes paramètres.

Les résultats du plan d'expérience nous permettent d'identifier les paramètres idéaux pour une performance optimale de la pile. A partir de ce jeu de paramètres idéal, nous pouvons déterminer la variation de la résistance de contact entre GDL/BPP en fonction de la pression de serrage. Nos résultats numériques ont été ensuite comparés à des résultats expérimentaux. La deuxième partie du chapitre présente la méthodologie proposée pour

l'intégration et l'analyse des incertitudes sur les paramètres mécaniques du modèle déterministe développé dans la première partie.

Dans le Chapitre 4, la modélisation du système PAC se complexifie (voir figure 2). Un modèle éléments finis 3D incluant un couplage des phénomènes thermo-électro-mécaniques est proposé. Ce modèle est ensuite associé à un plan d'expériences où trois facteurs mécaniques sont retenus : le rayon de courbure de la plaque bipolaire, l'épaisseur de la GDL et la pression de serrage. A partir de là, une identification des paramètres optimaux et une validation du modèle éléments finis par des résultats expérimentaux est effectuée. Pour terminer ce chapitre nous incluons des incertitudes sur les différents paramètres.

Pour finir, le manuscrit souligne l'ensemble des travaux réalisés dans une conclusion générale et indique des perspectives.

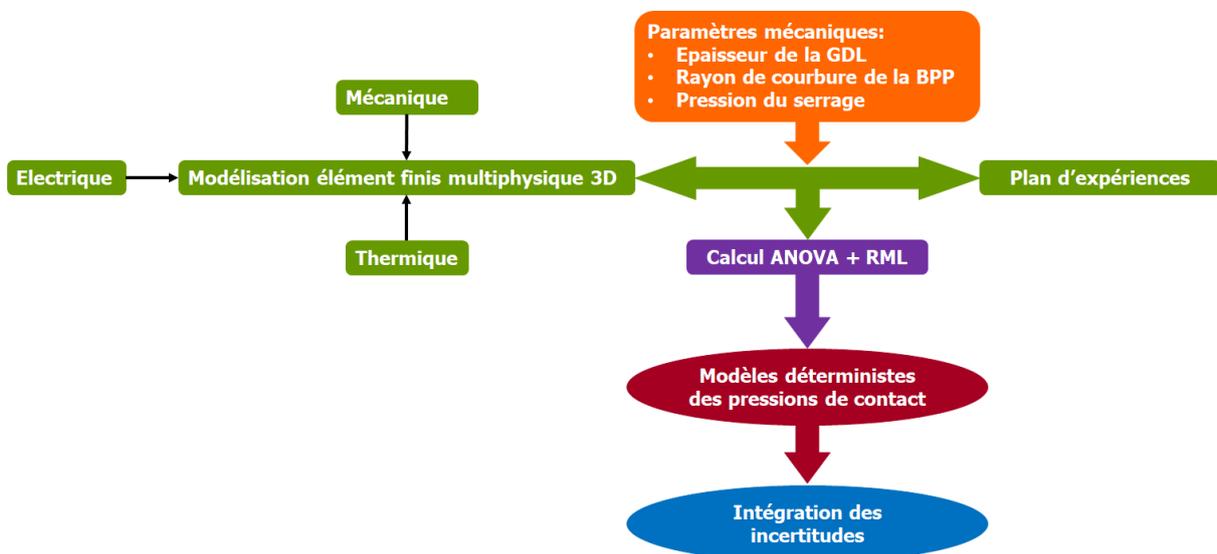


Figure 2 : Démarches appliquées pour le modèle 3D multi-physique.

## Références

- [1] Séminaire UTT, David Bouquain, 2020.
- [2] Akiki, T. (2011). Modélisation de la dégradation de la production de puissance d'une pile à combustible suite aux sollicitations mécaniques (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard)
- [3] Placca, L. (2010). Impact des incertitudes sur le fonctionnement des piles à combustible par approche fiabiliste (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard, France).
- [4] Noguier, N. (2015). Aide à l'analyse fiabiliste d'une pile à combustible par la simulation (Thèse de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard).

# Chapitre 1

## Pile à combustible PEMFC

1	Introduction .....	14
2	Bref historique des piles à combustible.....	14
3	Différents types de pile à combustible .....	15
4	Focus sur la pile à combustible PEMFC.....	18
4.1	Principe de fonctionnement.....	19
4.2	Rôle de chaque composant .....	20
4.2.1	Plaque bipolaire.....	21
4.2.2	Couche de diffusion de gaz (GDL) .....	24
4.2.2.1	Porosité de la GDL .....	25
4.2.3	MEA .....	28
4.2.4	Plaque d'extrémité.....	29
5	Dégradations des performances des composants de la pile PEMFC.....	30
5.1	Dégradation de la membrane.....	30
5.2	Dégradation de la GDL.....	31
5.3	Dégradation de la plaque bipolaire .....	31
6	Conclusion.....	33

---

### Listes des figures

Figure 1.1 : Electrolyse de l'eau dans la pile à combustible inventée par Grove a : Electrolyse de l'eau, b : Combinaison des deux gaz [3]

Figure 1.2 : Comparaison de performance des systèmes de stockage d'énergie [10].

Figure 1.3 : Principe de fonctionnement de la pile PEMFC

Figure 1.4 : Structure d'un empilement et vue détaillée de la pile à combustible PEMFC [12]

Figure 1.5 : Géométries des différents canaux des plaques bipolaires [17].

Figure 1.6 : Morphologie de la microstructure de la GDL avec différentes caractéristiques de pores [21]

### Listes des tableaux

Tableau 1.1 : Classifications des différents types de PAC [9].

Tableau 1.2 : Comparaison entre différents types de plaques bipolaires : avantages et inconvénients.

Tableau 1.3 : Caractéristiques de GDL de la série de TGP-H.

Tableau 1.4 : Certaines valeurs du coefficient C.

Tableau 1.5 : Influence des niveaux de pressions de serrage (faible, forte et optimal) sur la performance de la pile.

Tableau 1.6 : Caractéristiques des différents types de membranes de la série de Nafion.

Tableau 1.7 : Rôles physiques de chaque composant de la pile PEMFC.

Tableau 1.8 : Dégradation des différents composants de la pile [42].

---

## 1 Introduction

Comme évoqué dans l'introduction générale, notre étude se limitera dans ce manuscrit à l'étude des piles à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC). Dans ce chapitre, un bref historique sur les piles à combustibles est présenté, ensuite la pile PEMFC ainsi que ses principaux composants sont présentés. La dernière partie de ce chapitre est consacrée aux dégradations qui peuvent affecter les différents composants de la pile. La pile PEMFC peut être le siège de nombreux problèmes et de fait de dégradations avec pertes de performances. Dans cette thèse, nous nous intéresserons seulement à certains d'entre eux en lien direct avec la mécanique : la déformation de la plaque GDL et les pressions de contact entre les différents composants.

## 2 Bref historique des piles à combustible

En 1802, la construction d'une cellule en carbone fonctionnant à haute température avec de l'acide nitrique comme électrolyte a été découverte par Sir Humphry Davy [1]. Le principe des piles à combustible a été observé en 1839 par Sir William Grove, avocat anglais et chercheur amateur en électrochimie. Dans son expérience (Figure 1.1), il a utilisé un tube en U avec deux électrodes de platine poreux et de l'acide sulfurique comme électrolyte pour réaliser la réaction inverse de l'électrolyse de l'eau [2].

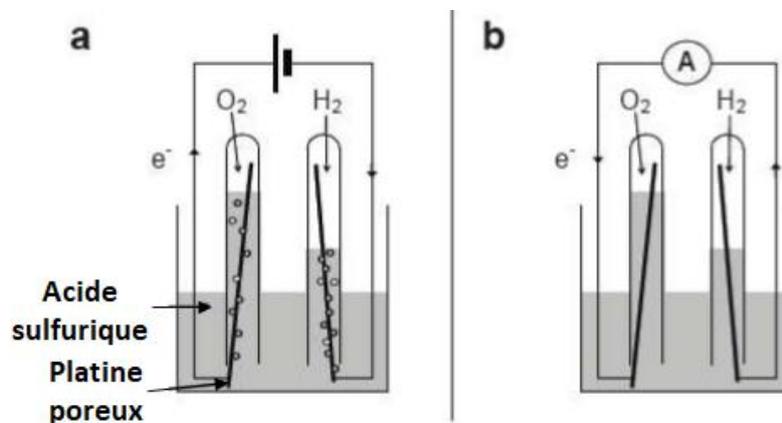


Figure 1.1 : Electrolyse de l'eau dans la pile à combustible inventée par Grove  
(a) : Electrolyse de l'eau, (b) : Combinaison des deux gaz [3]

Durant l'électrolyse et sous l'action du courant électrique, l'eau est décomposée en hydrogène et en oxygène qui sont recueillis dans les tubes à essais, selon la Figure 1.a. Remplaçant la source de courant par un ampèremètre, un faible courant est observé (Figure 1.b). L'électrolyse a été inversée, tout comme le sens de circulation des électrons : l'oxygène et l'hydrogène se recombinent ensemble pour produire du courant électrique et de l'eau. Ce phénomène représente le principe de base des piles à combustible. Cependant, cette technologie n'a pas eu beaucoup d'intérêt devant le développement plus rapide des moteurs,

des accumulateurs et des piles électriques aux environs des années 1860. En 1889, des améliorations dans la pile ont été apportées par L. Mond et C. Langer notamment avec l'introduction de catalyseurs en noir de platine et des électrolytes à base de matrices poreuses en plâtre ou en amiante [2]. Ensuite, la première pile hydrogène-oxygène a été réalisée par Francis Thomas en 1935. Cette réalisation aboutira à la fabrication d'un premier générateur de 1kW en 1953 [4]. Après cette réalisation, plusieurs recherches ont été menées afin d'améliorer les différents composants de la pile : membrane, électrode, plaque bipolaire, couche de diffusion de gaz et plaque de serrage. En 1955, la membrane échangeuse d'ions (électrolyte), qui représente la plus grande partie de la pile, a été utilisée par Willard Thomas Grubb de General Electric. Suite à cette utilisation, Leonard Niedrach a déposé du platine comme catalyseur sur un support en titane appliqué sur la membrane. Cela a constitué la base de la pile à combustible de type PEMFC (**P**ile à **C**ombustible à **M**embrane **E**changeuse de **P**rotons). Plus tard vers 1965, cette technologie a été utilisée dans le projet spatial de Gemini, puis abandonnée par la NASA dans le but d'obtenir de l'eau et de l'électricité pour les futurs voyageurs de l'espace [5]. Dans les années 1980, une compagnie canadienne, Ballard, reprend le développement de cette technologie avec une commercialisation en vue : premier véhicule muni d'une pile à combustible en 1993 [6].

De nos jours, les constructeurs automobiles se sont lancés dans l'aventure de la pile à combustible, Mercedes-Benz a équipé 30 bus d'une pile à combustible (fabriquée par Ballard) d'une puissance de 205 kW. Ces 30 bus sont répartis dans différentes villes européennes, Mercedes-Benz a aussi livré une cinquantaine de voiture NECAR en 2004. Tous les autres grands constructeurs se lancent dans l'aventure General Motors, BMW... Les premières stations à hydrogène gazeux ou liquide viennent également de voir le jour, en particulier en Allemagne, en Islande et au Japon [6].

La France participe à la création d'un réseau pile à combustible (Réseau PACO) avec l'implication des entreprises telles qu'EDF, GDF, ALSTOM, PSA, Renault, Air Liquide, Helion et d'autres. La première pile d'Helion a vu le jour en 2002, suivi par les piles d'Axane (EVOPAC) et PSA a présenté un nouveau prototype : H<sub>2</sub>O. Des prototypes de PEMFC sont étudiés pour des applications stationnaires de petite puissance. Après la réalisation de ces différents prototypes, les recherches et les développements se sont accentués sur les piles PEMFC [46].

### 3 Différents types de pile à combustible

La pile à combustible, est un convertisseur d'énergie permettant de transformer l'énergie chimique contenue dans l'hydrogène en énergie électrique et thermique. C'est un système qui n'engendre pas de bruits sonores, vu qu'il ne contient pas de composants mécaniques en mouvement tels que les turbines et les moteurs. L'énergie électrique générée peut être utilisée pour alimenter différents dispositifs et la chaleur produite peut être récupérée sans être gaspillée (chauffage). Une pile est composée de deux électrodes (anode et cathode) séparées par un électrolyte. Il faut noter que les piles PEMFC utilisent un électrolyte solide à

basse température qui conduit les ions d'hydrogène. La nature de l'électrolyte ainsi que la température de fonctionnement [7] d'une pile sont les deux paramètres permettant de définir les différents types de pile et ainsi de les classer [8], [44], [45].

Il existe ainsi plusieurs types de PAC, chacun offrant des avantages et des inconvénients suivant les applications visées. Six catégories de PAC peuvent être définies en fonction de leurs conditions de fonctionnement. Le Tableau 1.1 propose une synthèse de ces différents types de piles, de leurs caractéristiques, de leurs domaines d'applications et des principales équations à l'anode et à la cathode.

Type des piles	Basse température				Haute température	
	AFC	PEMFC	DMFC	PAFC	MCFC	SOFC
<b>Electrolyte</b>	Potasse (KOH) Liquide	Membrane en polymère solide	Membrane en polymère solide	Acide phosphorique liquide	Sel de carbonate (Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> et KCO <sub>3</sub> ) fondu dans une matrice liquide LiALO	Céramique solide ZrO <sub>2</sub> et Y <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
<b>Ions des électrolytes</b>	OH <sup>-</sup>	H <sup>+</sup>	H <sup>+</sup>	H <sup>+</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	O <sup>2-</sup>
<b>Température de fonctionnement</b>	50°-200 °C	30° -100 °C	20° -90 °C	190 ° -220°C	600 ° -660 °C	600° -1000°C
<b>Combustible</b>	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> (pur ou reformé)	Méthanol	H <sub>2</sub> (pur ou reformé)	H <sub>2</sub> (pur ou reformé)	H <sub>2</sub> (pur ou reformé)
<b>Oxydant</b>	O <sub>2</sub> (pur)	Air	Air	Air	Air	Air
<b>Rendement électrique</b>	20-50%	50-60%	20-30%	55%	60-65%	55-60%
<b>Domaine d'application</b>	Portable, Spatial	Automobile, Portable, Cogénération, Maritime	Portable	Cogénération	Cogénération, Production Centralisée d'énergie	Cogénération, Production Centralisée d'énergie
<b>Gamme de Puissance</b>	1W à 10MW	1W à 10MW	1W à plusieurs kW	200kW à 10 MW	500kW à 10MW	1kW à 100MW
<b>Principaux constructeurs</b>	Ballard Nuevera Axane et Helion	Siemens Hitachi Sanyo	Siemens Ifc (onsi) Fuji	Siemens Fuji Zevco Ifc	Siemens Westinghouse Sulzer	IFC Hitachi Fuji
<b>Principaux équations à l'anode et à la cathode</b>	A l'anode : $2H_2 + 4HO^- \rightarrow 4H_2O + 4e^-$ A la cathode : $O_2 + 4e^- + 2H_2O \rightarrow 4OH^-$	A l'anode : $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ A la cathode : $\frac{1}{2}O_2 + 2e^- + 2H^+ \rightarrow H_2O$	A l'anode : $CH_3OH + H_2O \rightarrow 6H^+ + 6e^- + CO_2$ A la cathode : $\frac{1}{2}O_2 + 6H^+ + 6e^- \rightarrow 3H_2O$	A l'anode : $2H_2 \rightarrow 4H^+ + 4e^-$ A la cathode : $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$	A l'anode : $H_2 + CO_3^{2-} \rightarrow H_2O + CO_2 + 2e^-$ A la cathode : $\frac{1}{2}O_2 + CO_2 + 2e^- \rightarrow CO_3^{2-}$	A l'anode : $2H_2 + 2O^{2-} \rightarrow 2H_2O + 4e^-$ A la cathode : $O_2 + 4e^- \rightarrow 2O^{2-}$

Tableau 1.1 : Classifications des différents types de PAC [9].

Dans ce manuscrit, notre étude se focalisera sur une catégorie particulière : les piles PEMFC. Son développement est en plein essor. Cette catégorie de piles a un fort potentiel pour une application dans le domaine du transport terrestre et ceci pour trois raisons essentielles :

1. Sa température de fonctionnement faible (inférieure à 100 °C pour les LT-PEMFC (Low Temperature PEMFC)) lui permet un démarrage à froid rapide et une évacuation de la chaleur produite à température ambiante.
2. Elle est insensible à la présence de CO<sub>2</sub> dans l'air, contrairement à la pile alcaline.
3. Sa technologie est « tout solide », ce qui autorise une durée de vie plus longue et une industrialisation plus aisée. Sa densité massique énergétique est très élevée par rapport aux systèmes alternatifs aux moteurs à combustion interne comme le montre le diagramme de Ragone (Figure 1.2).

Une description détaillée de son principe de fonctionnement et des composants constituant un assemblage typique de cellules de pile PEMFC est présentée dans la section suivante.

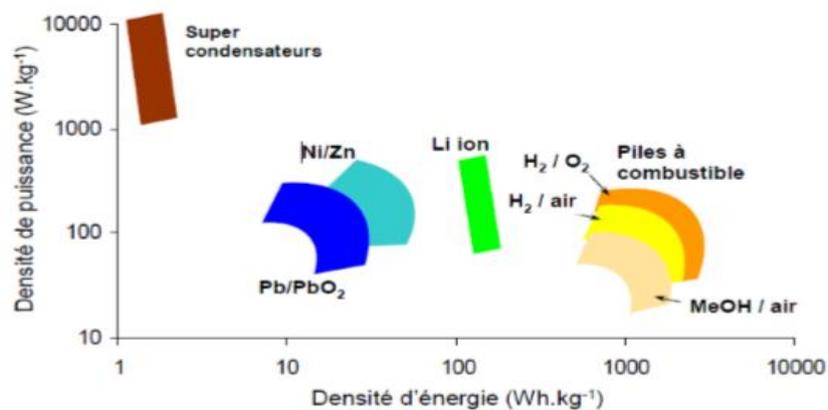


Figure 1.2 : Comparaison de performance des systèmes de stockage d'énergie [10].

#### 4 Focus sur la pile à combustible PEMFC

Certains secteurs notamment celui du transport (automobile) s'intéressent particulièrement aux piles de type PEMFC. D'importants efforts de développement sont faits pour augmenter la performance et diminuer le coût de ces piles qui peuvent être des freins à une phase de commercialisation. Un point important reste aussi à améliorer : la durabilité. Ce point est crucial pour pouvoir déployer les piles à plus grande échelle et imaginer un jour les voir remplacer les sources d'énergies dites traditionnelles.

Les piles PEMFC fonctionnent selon le principe inverse de l'électrolyse de l'eau. Elles présentent deux avantages majeurs :

- Une température de fonctionnement faible, aux alentours de 60°C. Ceci permet un démarrage à froid rapide.

- Une forte densité de puissance, et de fait un rendement énergétique très élevé.

#### 4.1 Principe de fonctionnement

Une PEMFC est un dispositif électrochimique produisant du courant pour une tension donnée. Elle est composée de deux électrodes (anode et cathode) séparées par un électrolyte (la membrane). Comme indiqué par son nom, c'est un polymère conducteur ionique qui est utilisé comme l'électrolyte et l'hydrogène est utilisé comme carburant (réducteur) et l'oxygène (ou l'air) sert de comburant (oxydant) [11].

Le principe de fonctionnement, illustré par la Figure 1.3, consiste à récupérer l'énergie de combustion de l'hydrogène pour la convertir en énergie électrique et en chaleur. La figure 1.3 met en évidence quatre composants principaux d'une cellule : la membrane, les électrodes (Anode, Cathode), la GDL, les plaques bipolaires et les plaques d'extrémité.

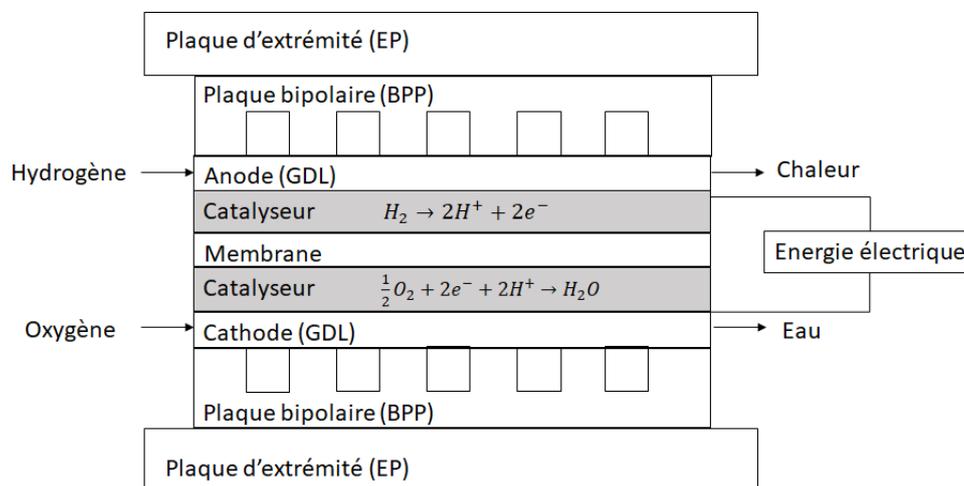


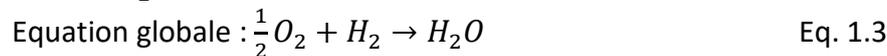
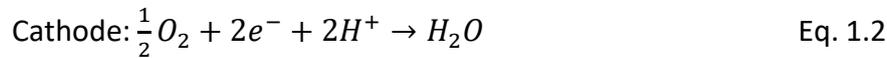
Figure 1.3 : Principe de fonctionnement de la pile PEMFC

À l'anode, pôle négatif de la pile, l'hydrogène  $H_2$  (soit pur, soit obtenu à partir de combustibles embarqués (gaz naturel, méthanol...)) est admis via les canaux de la plaque bipolaire (BPP) à l'anode. Il est ensuite réparti de façon homogène grâce aux pores de la GDL (couches de diffusion de gaz) sur toute la surface de l'électrode où il s'oxyde (perte d'électrons).

Les protons  $2H^+$ , résultants de l'équation 1.1, traversent la membrane tandis que les électrons se dirigent à travers la GDL et la BPP anodique vers le circuit extérieur, pour boucler le circuit électrique. Ils parcourent le circuit avant d'atteindre la cathode où l'oxygène  $O_2$  est admis par les canaux de la BPP cathodique, puis réparti de façon homogène via la GDL sur la surface de l'électrode. Il se réduit puis se combine avec les protons pour former de l'eau/vapeur qui sera évacuée, comme la chaleur produite, par la GDL puis par la BPP.

Pour résumer, l'oxydation de l'hydrogène (Eq. 1.1) et la réduction de l'oxygène (Eq. 1.2) conduisent à la formation d'eau, de chaleur et d'un courant électrique. Les phénomènes au

cœur de pile et la réaction globale (Eq. 1.3) se produisant dans la pile peuvent être résumés par les équations suivantes :



Les réactions 1 et 2 sont catalysées, à l'aide de platine, pour augmenter les cinétiques de réactions, relativement lentes aux faibles températures de fonctionnement de la pile.

Les réactifs  $H_2$  ou  $O_2$  (Eq. 1.3) se trouvent en contact avec l'électrolyte. La combinaison de ces deux gaz réactifs avec l'ensemble électrode/catalyseur et l'électrolyte se fait dans une zone dite de « triple contact » dans laquelle se produisent les réactions. Dans cette zone, nous trouvons autour du catalyseur :

- Une continuité physique avec l'électrolyte (membrane) pour conduire les protons  $H^+$  de l'anode vers la cathode tout en étant un excellent isolant électronique.
- Une continuité physique avec l'électrode (conducteur électronique), pour assurer la conduction des électrons  $e^-$ .
- Une structure poreuse, appelée GDL, pour transporter, de manière homogène, le gaz réactif fourni par le canal d'écoulement vers toute la surface des électrodes et pour conduire les électrons à faible résistance et évacuer l'eau produite de la membrane vers le canal d'écoulement.
- Le canal d'écoulement de la plaque bipolaire qui permet l'arrivée des gaz et la collecte du courant. Ces canaux jouent un rôle primordial dans la distribution de gaz dans le MEA. De plus, ils assurent le refroidissement et la tenue mécanique du système.

Ces composants ainsi que leur rôle vont être présentés plus en détail dans la section suivante.

#### 4.2 Rôle de chaque composant

Une pile PEMFC est constituée d'un empilement de cellules élémentaires, appelé stack. Chaque cellule élémentaire est formée de plusieurs composants :

- Les plaques bipolaires (BPP),
- La couche de diffusion de gaz (GDL)
- L'assemblage membrane électrodes (MEA).

Ces composants sont serrés par des plaques d'extrémité (EP) aux deux extrémités de la pile pour assurer la conductivité électrique entre ces plaques.

La figure 1.4 montre la structure d'un empilement de la pile PEMFC, ainsi que ses composants constitutifs (EP, BPP, GDL et MEA).

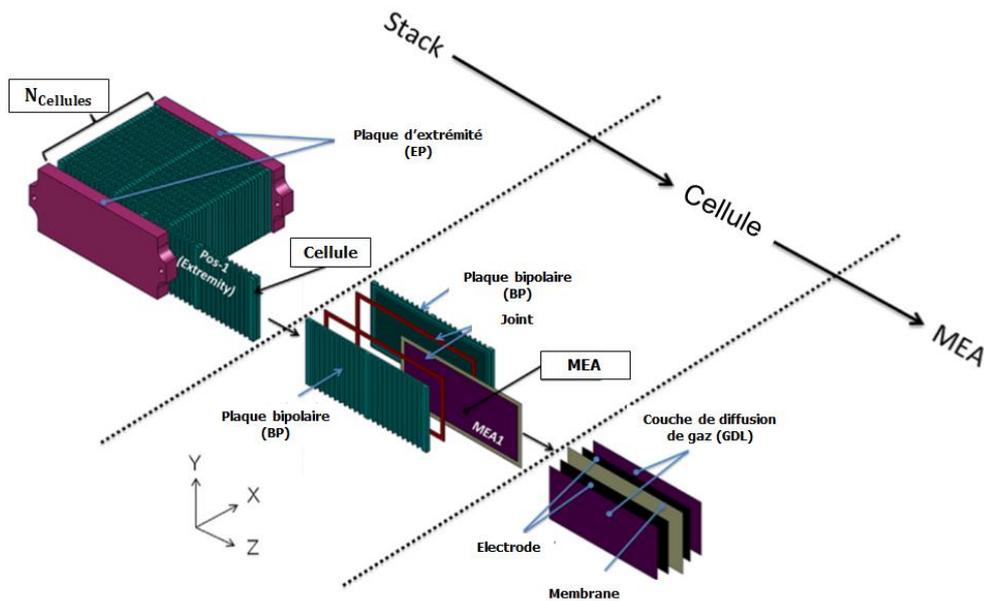


Figure 1.4 : Structure d'un empilement et vue détaillée de la pile à combustible PEMFC [12]

Pour obtenir la puissance souhaitée et une tension suffisante pour une application dans le domaine du transport, un nombre déterminé de cellules constituant le stack sont montées en série. Le stack fonctionne de manière analogue à un groupe de générateurs disposés en série dans un circuit électrique [13]. Dans un stack, toutes les cellules sont alimentées en même temps et parallèlement par de l'hydrogène et de l'oxygène à travers les canaux des plaques bipolaires. La tension maximale théorique d'une cellule à l'état standard, (25°C et 1 bar) est limitée à 1.299 V, par contre, sous chargement, la tension diminue à 0.6 – 0.7 V [43].

#### 4.2.1 Plaque bipolaire

Les plaques bipolaires permettent l'arrivée des gaz et la collecte du courant. Elles jouent un rôle principal dans la distribution de gaz dans le MEA. De plus, elles assurent le refroidissement et la tenue mécanique du système. La plaque bipolaire est à la fois pôle négative et pôle positive pour deux cellules adjacentes d'où le nom de plaque bipolaire. Le refroidissement du cœur de pile est assuré par l'insertion d'un circuit interne dans son épaisseur. La circulation du liquide de refroidissement, en général de l'eau, permet de limiter l'échauffement du cœur de pile qui pourrait engendrer des lésions irréversibles.

Les plaques bipolaires constituent 80% du poids d'un empilement de la pile. Ces plaques peuvent être fabriquées en graphite, caractérisées par une excellente conductivité électrique (supérieure à 10 siemens/cm), une bonne résistance à la corrosion et un bas coût. Elles permettent la séparation de l'hydrogène et de l'oxygène de la cellule : une plaque apporte l'oxygène du côté cathodique et l'hydrogène du côté anodique de la cellule suivante. Ces plaques permettent alors l'alimentation en parallèle des deux pôles d'une pile [14]. En plus d'une excellente conductivité électrique, elles doivent également avoir une conductivité thermique très importante dont le but est d'évacuer la chaleur produite par la réaction d'oxydoréduction.

A l'heure actuelle, les plaques utilisées dans la plupart de piles sont réalisées en graphite. Le graphite utilisé pour les bipolaires engendre quelques problèmes. Il doit être usiné ce qui provoque une augmentation considérable de coût, avec une faible cadence de production, difficilement compatible avec la grande série. De plus, les plaques bipolaires représentent 80% du poids total de la pile, et leurs prix représentent 45 % du prix total de la PAC [15]. Dans ce contexte, améliorer la conception des BPP et identifier des matériaux à faible coût est une nécessité. Ces dernières années, d'autres types de BPPs ont été développés. Nous pouvons en citer deux en particulier :

- Les plaques bipolaires à base de composites organiques : ces plaques sont basées sur l'utilisation de charges (carbone, graphite...) dispersées dans un matériau thermoplastique. Ces charges permettent aux plaques bipolaires d'avoir la conductivité électrique nécessaire à la collecte du courant, ainsi qu'une bonne tenue mécanique nécessaire à l'assemblage des différents éléments.
- Les plaques bipolaires à base de métaux et alliages, et particulièrement les aciers inoxydables : autres que la tenue mécanique, l'étanchéité, la conductivité électrique, ces matériaux présentent en plus des avantages tels que : leur densité supérieure à celle du graphite, ce qui rend l'évacuation de la chaleur et le contrôle de la température en fonctionnement plus précis par circulation d'un fluide de refroidissement interne.

Le tableau 1.2 présente les types des plaques bipolaires (BPP), ainsi que ses avantages et leurs inconvénients.

Types des plaques bipolaires (BPP)	Avantages	Inconvénients
BPP à base de graphite	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Excellence conductivité électrique</li> <li>• Bonne résistance à la corrosion</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Le graphite doit être usiné</li> <li>• <b>Augmentation considérable de coût</b></li> <li>• <b>Faible cadence de production</b></li> </ul> <p>les plaques bipolaires représentent 80% du poids total de la pile, et leurs prix représentent 45 % du prix total de la PAC</p>
BPP à base de composites organiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Basées sur l'utilisation de charges (carbone)</li> <li>• Bonne tenue mécanique</li> </ul>	-----
BPP à base de métaux	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Densité supérieure à celle du graphite</li> <li>• Assure la tenue mécanique et l'étanchéité entre les composants de la pile.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Peuvent nécessiter un traitement de surface additionnel (du fait du milieu corrosif)</li> </ul>

Tableau 1.2 : Comparaison entre différents types de plaques bipolaires : avantages et inconvénients.

Dans le cadre de notre travail et de nos modélisations, nous nous intéresserons en particulier aux plaques bipolaires métalliques (marquée sur un fond jaune dans le tableau 1.2).

L'utilisation de ces plaques nécessite un emboutissage de petits canaux et de petites dents alternés à la surface des plaques bipolaires afin d'assurer une alimentation uniforme en gaz sur toute la surface de la pile et une évacuation efficace de l'eau liquide. Plusieurs structures géométriques des canaux de différentes dimensions existent pour assurer un meilleur contact avec la couche de diffusion de gaz (GDL) et avoir ainsi une meilleure conductance thermique et électrique de l'ensemble du modèle.

Ces canaux jouent un rôle fondamental dans la répartition de pression permettant un fonctionnement stable des cellules [16]. Les différentes géométries existantes de ces canaux sont données dans la Figure 1.5 :

- A. Structure à canaux parallèles
- B. Structure serpents
- C. Structure interpénétrée.

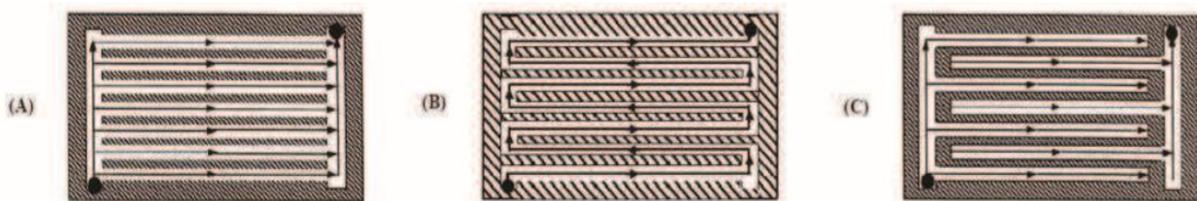


Figure 1.5 : Géométries des différents canaux des plaques bipolaires [17].

De nombreuses études se sont intéressées à l'influence des formes de ces canaux sur l'alimentation en gaz ainsi que sur l'évacuation de l'eau. Notons que le nombre de canaux et leurs dimensions conditionnent fortement le transport des gaz et de l'eau dans la cellule.

La forme la plus commune utilisée par les piles PEMFC est un prisme parallèle de plusieurs canaux de section rectangulaire serpentant sur la surface de la plaque bipolaire. C'est cette forme de canaux (section rectangulaire) qui est retenue dans notre travail.

La plaque bipolaire, avec des canaux de section rectangulaire, doit être mince avec des zones de contacts uniformes avec la GDL dont le but est de réduire la résistance de contact électrique et thermique. Garantir une performance élevée de la pile nécessite une amélioration de la conception de la plaque bipolaire.

Une solution consiste en la diminution de son épaisseur. Ainsi, son volume et son poids sont réduits ainsi son fabrication.

Diminuer l'épaisseur de la BPP nécessite le contrôle des autres paramètres de forme de la BPP tels que les dimensions des dents et du canal de la plaque (épaisseur, largeur).

Le dimensionnement des dents et de canaux a un impact fort sur la performance la pile. En effet, la fonction des dents est de transmettre le courant et les canaux servent à la distribution de l'oxygène à la cathode dans la pile.

De manière plus précise :

- La largeur des dents détermine l'aire de contact initiale entre la GDL et la BPP, ce qui représente un chemin pour le passage des électrons.
- La largeur des canaux influe sur la circulation des gaz réactifs comme l'hydrogène et l'oxygène, c'est-à-dire sur la capacité de flux des gaz réactifs pour la réaction électrochimique.

Un petit canal conduit à une alimentation insuffisante des gaz réactifs et une petite dent conduit à une résistance de contact élevée à l'interface. Etant donné que la dimension de la BPP est fixe, il apparait fondamental de trouver un bon rapport entre les dimensions du canal et de la dent.

D'autres paramètres tels que la pression de serrage et le poids doivent être améliorés afin de réduire la taille et l'inertie de la pile.

#### 4.2.2 Couche de diffusion de gaz (GDL)

La GDL (Gaz Diffusion Layer) est le composant le plus sensible dans la pile PEMFC. Il s'agit d'une couche très fine en papier carbone avec une porosité élevée afin de faciliter le transfert des gaz. Son rôle est de transporter, de manière homogène, le gaz réactif fourni par le canal d'écoulement vers la surface des électrodes ; de conduire les électrons à faible résistance de l'anode vers la cathode via le circuit externe et d'évacuer l'eau produite de la membrane vers le canal d'écoulement en évitant le phénomène de noyage de la cathode. [18]. Pour cela, la GDL doit posséder plusieurs propriétés : perméabilité aux réactifs et aux produits ; porosité élevée ; bonne conductivité électrique et thermique ; ne pas se déformer sous l'application d'une pression de serrage ; ne pas s'oxyder ; résistance mécanique et résistance de contact, .... [19].

La figure 1.6 montre deux types de GDL observées par micrographie SEM [20] : GDL constituée de fibres rectilignes et des fibres incurvées et entrelacées ayant un diamètre compris entre 5 et 10  $\mu\text{m}$  [18].

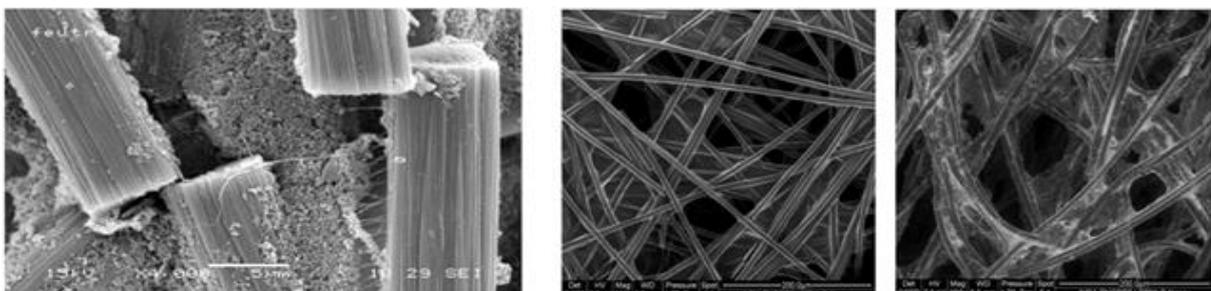


Figure 1.6 : Morphologie de la microstructure de la GDL avec différentes caractéristiques de pores [21]

Ces couches de la GDL sont recouvertes de Téflon (particules hydrophobes et isolant électronique de hautes performances en conduction électrique et thermique). Ce traitement hydrophobe est essentiel car il caractérise la mouillabilité des couches de diffusion, c'est-à-dire leur capacité à retenir ou à évacuer l'eau produite, qui représente un des aspects fondamentaux de la gestion de l'eau d'une pile en fonctionnement. Donc, rendre la GDL hydrophobe a pour fonction d'améliorer l'évacuation de l'eau [22].

Il existe plusieurs types de GDL (TORAY (TGP-H) au Japon, SGL en Allemagne et BALLARD au Canada) [23]. Dans notre étude, nous nous limiterons à la GDL de type de TGP-H de TORAY. Le tableau 1.3 ci-dessous montre les caractéristiques de la GDL de la série de TGP-H.

Type des GDL	Épaisseur (mm)	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Porosité (%)
TGP-H-030	0.11	0.40	80
TGP-H-060	0.192	0.44	78
TGP-H-090	0.28	0.44	78
TGP-H-120	0.375	0.45	78

Tableau 1.3 : Caractéristiques de la GDL de la série de TGP-H.

La structure de la GDL existe sous plusieurs formes qui dépendent du procédé de fabrication. Sa structure physique et son comportement initial peuvent évoluer notamment en compression, affectant ainsi les performances de la pile.

En compression, la porosité de la GDL est affectée, son épaisseur diminue, les contraintes mécaniques augmentent. La combinaison de l'ensemble de ces phénomènes conduit à une diminution des performances de la pile.

#### 4.2.2.1 Porosité de la GDL

Comme évoqué, la porosité est un paramètre vital dans l'état de fonctionnement d'une pile. Cette porosité est en lien direct avec d'autres paramètres, tels que la taille des pores, le rapport de la taille entre les pores le plus grand et le plus petit et la distance entre les pores.

La porosité  $\varepsilon$  est définie comme le rapport entre le volume occupé par la phase fluide (le volume poreux) et le volume total du matériau [24].

$$\varepsilon = \frac{S_{pore}}{S_{total}} \quad S_{total} = S_{pore} + S_{solide} \quad \text{Eq. 1.4}$$

La porosité initiale ( $\varepsilon_i$ ) de la GDL est déterminé par les caractéristiques du matériau. Elle est de l'ordre de 80% selon sa structure [25]. Elle peut varier entre 60 et 90% pour des épaisseurs comprises entre 50 et 450  $\mu\text{m}$ . En phase de compression, elle peut varier entre 40% et 10% afin d'assurer l'étanchéité [26].

Dans la pile à combustible, la GDL nécessite une porosité initiale élevée afin de faciliter l'alimentation du gaz pour la réaction électrochimique au sein de la pile. La capacité de la GDL à transporter les gaz réactifs est mesurée par la perméabilité [27-28]. La perméabilité est fonction de la porosité et du diamètre des fibres de carbone. Elle est donnée par l'équation connue sous le nom de Kozeny-Carman (KC) [29] :

$$K = C * \frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)^2} \quad \text{Eq. 1.5}$$

Dans cette expression K est la perméabilité ;  $\varepsilon$  est la porosité ; C est un coefficient constant. Cette relation est très utilisée dans l'étude des milieux poreux et donnée pour différents types de GDL. On peut trouver certaines valeurs pour certains types de GDL [30]. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 1.4.

GDL de type TGP-60-H	1.276e-11 m <sup>2</sup>
GDL SGL31BA.	3.952e-11 m <sup>2</sup>

Tableau 1.4 : Certaines valeurs du coefficient C.

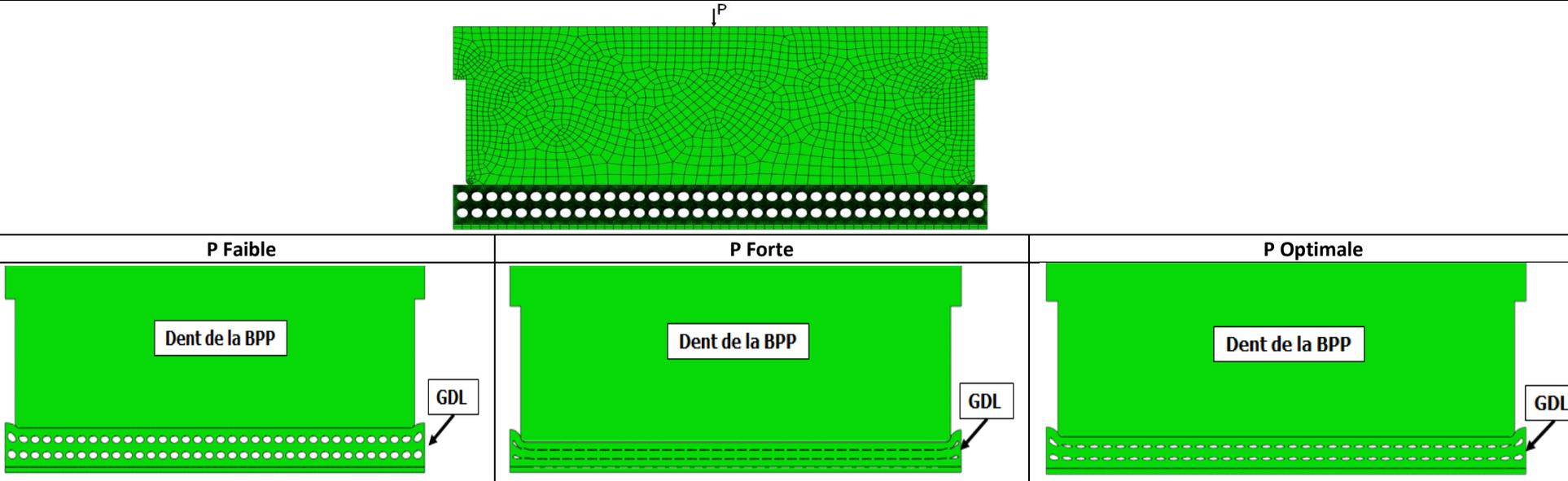
Comme déjà évoqué, la porosité et la perméabilité de la GDL sont des grandeurs liées aux paramètres géométriques de la GDL notamment son épaisseur ainsi que les diamètres des fibres de carbone.

Il est aussi fondamental de noter que cette porosité peut être influencée par la force de serrage. Une force de serrage élevée peut conduire à une baisse de la porosité de la GDL qui à son tour influe sur la pression de contact entre les composants de la pile en augmentant la résistance de contact et donc une dégradation de la géométrie de la GDL suivie d'une diminution de la performance de la pile. Par conséquent, une pression de serrage optimale doit être identifiée correspondant à une porosité optimale de la GDL.

Le tableau 1.5 suivant montre l'influence de la pression de serrage (faible, forte et optimale) sur la porosité de la GDL ainsi que sur la performance de la pile.

Les dimensions de la GDL ainsi que sa porosité apparaissent comme des grandeurs fondamentales dans l'étude des performances d'une pile. Ces grandeurs vont avoir un impact direct sur les pressions de contact entre les différents composants de la pile (Contact GDL/MEA et GDL/BPP).

Les pores sont remplis par un fluide ou un mélange de fluides. Les phénomènes de transport tels que les écoulements, la diffusion et la conduction dans ce milieu poreux et les phénomènes de contact nécessitent une modélisation robuste de la géométrie de la GDL et précisément des pores dans la GDL. Cette étude sera détaillée dans le chapitre 3.



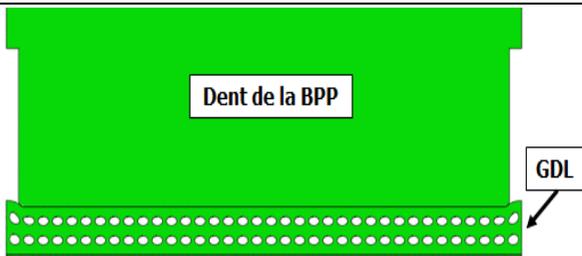
	P Faible	P Forte	P Optimale
Pression de serrage (P)			
Pression de contact	-	+++	++
Surface de contact	-	+	+++
Résistance de contact	+	-	---
Circulation des gaz réactifs	+	---	+
Performance	-	---	+++
Conséquence	<p>Une faible pression de serrage :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Provoque une fuite de gaz entre les composants.</li> <li>• Augmente la résistance de contact et réduit les performances de la pile à combustible.</li> </ul>	<p>Une forte pression de serrage :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Améliore la conductivité et réduit la résistance de contact entre la GDL/bipolaire.</li> <li>• Provoque une déformation non linéaire de la GDL (porosité non linéaires) : diminution de l'épaisseur de la GDL, ainsi que des diamètres des pores.</li> </ul>	<p>Une pression de serrage optimale :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Réduit la résistance de contact entre la GDL et la plaque bipolaire.</li> <li>• Améliore le transport de matière. Et par conséquent, améliore la performance de la pile.</li> </ul>

Tableau 1.5 : Influence des niveaux de pressions de serrage (faible, forte et optimale) sur la performance de la pile.

#### 4.2.3 La membrane MEA

La membrane MEA comprend deux électrodes (anode et cathode) entre lesquelles s'insère un électrolyte (membrane).

Les électrodes sont le lieu des réactions d'oxydation de l'hydrogène à l'anode et de réduction de l'oxygène à la cathode. Elles ont une triple fonction :

- Permettre le transfert des protons issus de l'oxydation de l'hydrogène, vers les sites de réduction de l'oxygène via la membrane.
- Evacuer les électrons produits à l'anode et les redistribuer à la cathode par l'intermédiaire du circuit externe.
- Assurer une bonne conductivité ionique et électronique.

Ces électrodes sont assemblées puis collées sur la membrane par pressage à chaud.

La membrane, cœur de la PAC, a pour rôle de conduire les protons de l'anode vers la cathode tout en étant un excellent isolant électronique. Elle permet aussi de séparer les gaz hydrogène et oxygène grâce à une faible perméabilité aux gaz. Sa structure polymérisée est composée des groupes d'acides échangeurs de protons généralement de terminaison  $-SO_3H$  ou  $COOH$ , permettant le transfert des protons de l'anode vers la cathode. Son fonctionnement est limité en température.

Il existe plusieurs types de membranes, avec une épaisseur comprise entre 50 et 200  $\mu m$  [31], parmi lesquelles la série Nafion membranes acides Perfluoro Sulfoniques (nommée PFSA et produit par Dupont) est largement utilisée dans le domaine des piles à combustible, garantissant à la fois une bonne isolation, une bonne conduction protonique, une faible perméabilité aux gaz et une bonne stabilité chimique en milieu oxydo-réducteur [32]. La température de fonctionnement des membranes Nafion est limitée à 90 °C.

Le tableau 1.6 met en évidence les caractéristiques de cette catégorie de MEA.

Type des membranes	Epaisseur (mm)	Densité ( $g/cm^3$ )	Conductivité (S/cm)
<b>Nafion-112</b>	0.051	1	0.083
<b>Nafion-113</b>	0.091	1.9	0.083
<b>Nafion-115</b>	0.127	2.5	0.083
<b>Nafion-117</b>	0.183	3.6	0.083

Tableau 1.6 : Caractéristiques des différents types des membranes de la série de Nafion.

## 4.2.4 Plaque d'extrémité PE

Les canaux de distribution des gaz de la plaque bipolaire sont reliés ensemble à travers les composants des cellules (GDL, MEA) avec une entrée et une sortie au niveau des plaques d'extrémités où une pression de serrage sera appliquée. Tous ces composants doivent être maintenus mécaniquement dans le but d'assurer une bonne étanchéité et une bonne conductivité électrique, permettant ensuite une meilleure performance de la pile.

La conception de la pile à combustible dépend des plaques d'extrémités qui présentent des avantages et des inconvénients. Elles jouent un rôle principal dans la compression de la pile afin d'avoir un empilement de cellules avec un bon contact entre les différents composants de la pile et en assurant une bonne étanchéité. Cependant, la déformation de ces plaques est difficile à contrôler et influe négativement sur la performance de la pile du fait qu'elles sont volumineuses et lourdes. Un premier challenge consiste à optimiser la conception de ces plaques tant sur l'aspect matériaux que géométrique (Réduction de masse).

Pour conclure cette partie, nous résumons le rôle de chaque composant dans le tableau 1.7.

Composants	Rôle physique de chaque composant
Plaque d'extrémité	<ul style="list-style-type: none"> <li>Assurer le support mécanique de la pile</li> </ul>
Plaque bipolaire	<ul style="list-style-type: none"> <li>Transporter les gaz sur toute la surface de la cellule</li> <li>Evacuation de l'eau produite du côté cathode</li> <li>Conduction de l'électricité vers les cellules voisines dans le stack</li> <li>Séparation de l'hydrogène et de l'oxygène de la cellule</li> <li>Conduction de la chaleur hors de la cellule</li> <li>Assurer le support mécanique de la pile</li> </ul>
GDL	<ul style="list-style-type: none"> <li>Diffusion des réactifs vers la couche catalytique</li> <li>Evacuation de l'eau produite du côté cathode vers les canaux afin d'éviter une trop forte accumulation d'eau liquide provoquant en effet une limite de leur diffusion.</li> <li>Conduction de l'électricité issue de la réaction vers la plaque bipolaire</li> <li>Evacuation de la chaleur vers la plaque bipolaire</li> <li>Support mécanique à la membrane</li> <li>Transfert des gaz dans les pores</li> </ul>
Membrane	<ul style="list-style-type: none"> <li>Conduire les ions (protons)</li> <li>Est un isolant électrique pour ne pas provoquer un court-circuit</li> <li>Doit être étanche pour séparer l'hydrogène de l'oxygène et éviter une explosion.</li> </ul>

Tableau 1.7 : Rôles physiques de chaque composant de la pile PEMFC.

Comme présenté ci-dessus, la pile à combustible est soumise à plusieurs contraintes mécaniques suite aux procédures d'assemblage différent et aux conditions environnementales agressives. Ces contraintes sont la cause de la dégradation mécanique des composants de la pile (MEA, GDL, BPP...) et la dégradation de la performance de la pile, d'où une durabilité insuffisante de la cellule de la pile [33-34].

Pour améliorer la durabilité de la pile PEMFC, une bonne compréhension des mécanismes de dégradation des différents composants de la pile paraît fondamentale. Nous allons présenter dans la section suivante, les différents mécanismes de dégradation des composants de la pile.

## 5 Dégradations des performances des composants de la pile PEMFC.

### 5.1 Dégradation de la membrane

La dégradation de la membrane est due à différents phénomènes : contraintes mécaniques, thermiques et dégradations chimiques. Les dégradations d'origine mécanique sont les plus communes [35]. En fonctionnement, la variation de la température influe sur la membrane : gonflement et rétrécissement. Ce comportement génère des contraintes de compression et de traction, appelées « contraintes hygrothermiques », provoquant l'apparition des défauts mécaniques (dégradation) surtout au niveau de la MEA. Ceci entraîne une faible durabilité et une faible performance de la pile. En plus, sous une température sous 0°C, le gel de l'eau dans la pile entraîne des contraintes inégales ce qui influe sur la conductivité de la membrane et sur le démarrage à froid provoquant ensuite la création de dommages mécaniques (formation de glace bloque la voie à l'oxygène qui entraîne l'arrêt de la tension de la cellule). Par contre, lorsque la glace fond, le volume diminue et la contrainte disparaît. Cette apparition et disparition de la contrainte entraîne un endommagement dans la structure de la membrane, ce qui réduit la performance de la pile [36].

La performance de la pile dépend de la conductivité de la membrane et cette conductivité dépend du niveau d'hydratation de la membrane. Un défaut d'origine mécanique, comme des déchirures et perforations de la membrane, est du aux phénomènes de gonflement et de rétrécissement de la membrane suivant le changement de teneur en eau. Le changement de volume de la membrane peut provoquer une contrainte mécanique dans son épaisseur. Une performance optimale est obtenue à condition que la membrane soit entièrement humidifiée.

Ces phénomènes d'hydratation et de déshydratation provoquent un allongement irréversible de la membrane ainsi que la dégradation de la performance de la pile et une réduction de la durée de vie de la membrane. Le teneur en eau de la membrane peut être estimé en mesurant la résistance électrique du stack. Plus la résistance est faible, plus la membrane contient d'eau et inversement.

L'augmentation de la résistance entraîne une augmentation des pertes ohmiques dans la membrane et donc une dégradation de la performance de la pile.

---

Les conditions opératoires (la température, les débits, l'humidité relative des gaz d'entrée) influent fortement sur la performance de la pile car une température très élevée entraîne un assèchement de la membrane [37]. Son fonctionnement est limité en température. Des fissures peuvent apparaître dans la membrane à cause de phénomènes d'assèchement, ce qui rend la membrane perméable aux gaz et provoquant des échauffements générant un dysfonctionnement dans le système de la pile. Une différence de pression non maîtrisée entre les compartiments anodiques et cathodiques peut également faire vieillir la membrane en provoquant l'apparition des trous et la formation de fissures dans la structure de la membrane [38]. Cette dégradation de la membrane provoque l'augmentation des fuites internes entre les compartiments  $H_2/O_2$  et peut conduire à l'arrêt du système.

## 5.2 Dégradation de la GDL

D'un point de vue mécanique, une force de serrage très importante permet de rompre les fibres de carbone et génère l'apparition de fissures, ce qui augmente la résistivité de la GDL et limite la diffusion [39]. Plusieurs autres paramètres peuvent dégrader la GDL tels que l'environnement in-situ et les ions radicaux OH qui attaquent et dissolvent le carbone ainsi que les particules hydrophobes de polytétrafluoroéthylène (PTFE) qui recouvrent la GDL [40]. Ces dégradations provoquent l'apparition de phénomènes de noyage suite à une accumulation d'eau liquide dans la GDL. L'accumulation d'eau dans la GDL entraîne une augmentation de la résistance de diffusion des gaz et une diminution de la diffusion du réactif de la plaque bipolaire à l'électrode, ce qui va interrompre la réaction chimique à cause du manque de réactif dans la couche active.

## 5.3 Dégradation de la plaque bipolaire

L'un des rôles principaux de la plaque bipolaire est d'assurer la tenue mécanique du système. Ces plaques sont soumises à des forces de serrage afin d'assurer une étanchéité complète des gaz. Par contre, une forte force de serrage peut provoquer l'apparition des fissures surtout au niveau du coin de dent de la plaque bipolaire.

L'environnement où est placée la pile à combustible entraîne son exposition aux vibrations qui à leur tour provoquent l'endommagement de ces composants, en particulier la plaque bipolaire, ainsi que l'apparition de trous, des fissures et des fuites des gaz, provoquant ensuite la réduction de la performance de la pile ainsi que de sa durabilité. Les véhicules terrestres subissent des vibrations de l'ordre de 8 à 16Hz à cause des conditions routières (vibration de la route, ...).

Des études ont montré que les piles PEMFC peuvent être soumises à une gamme de fréquence de 5 – 40 Hz. Ces fréquences peuvent entraîner des contraintes de cisaillement ainsi que l'augmentation d'apparition des défauts au niveau de composants de la pile [41]. Lors des fuites de gaz, l'eau présente dans la pile peut geler et obstruer des canaux provoquant ensuite des surpressions dans la pile.

Le tableau 1.8 suivant résume les dégradations principales que peuvent subir les différents composants de la pile à combustible PEMFC.

Composants	Dégradations	Causes	Conséquences
<b>Plaque bipolaire (BPP)</b>	Déformations	Couple de serrage	Fuites des réactifs
	Obstruction des canaux	Accumulation d'eau	- Mauvais accès des réactifs. - Suppressions locales (sur la membrane)
		Corrosion	Fragilisation
<b>Couche de diffusion de gaz (GDL)</b>	Ruptures des fibres de carbone	Couple de serrage	Augmentation de la Résistance électrique
	Dissolution du PTFE	- Faible humidité - Potentiel électrodes	- Accumulation d'eau
	Corrosion du carbone		- Résistance électrique
<b>MEA</b>	Assèchement	Mauvaise gestion de l'eau	Perforations de la membrane (« pinholes »)
	Empoisonnement des électrodes	Réactifs contenant des impuretés, des polluants	Baisse d'efficacité du catalyseur
	Perforations	- Formation de l'eau - Mélange H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub>	Rupture de la membrane

Tableau 1.8 : Dégradation des différents composants de la pile [42].

## 6 Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons commencé par un bref historique sur les piles à combustible. Ensuite, une description et une classification de chaque type de piles ont été présentées. Parmi les différents types des piles, notre étude se fera sur la PAC à membrane échangeuse de protons (appelée PEMFC). Dans la suite du chapitre, nous avons présenté en détail le principe de fonctionnement de la PEMFC ainsi que le rôle de chaque composant (section 4). La dernière partie de ce chapitre (section 5) a été consacrée aux principales dégradations qui peuvent affecter les différents composants de la pile.

Nous voyons que la pile PEMFC peut être sujette à de nombreux défauts. Dans cette thèse, nous nous intéresserons seulement à certains d'entre eux. L'un des défauts les plus importants à ce jour est la déformation de la GDL, de la membrane, ainsi que le phénomène de contact entre les différents composants de la pile PEMFC.

L'amélioration de la performance de la pile PEMFC nécessite une bonne connaissance et une bonne compréhension des phénomènes mécaniques dans la pile et en particulier des pressions de contact. Dans ce contexte, la modélisation par éléments finis s'impose pour appréhender au mieux ces phénomènes complexes difficilement mesurables directement et pour comprendre l'influence des différents paramètres mécaniques sur les performances de la pile.

Après avoir défini le principe de fonctionnement et les différents composants d'une pile PEMFC, et dans l'objectif d'établir notre modélisation, il est nécessaire de présenter les différents modèles numériques existants avec les dimensionnements mécaniques des composants afin de comprendre les différents phénomènes (effort de serrage, déformation de GDL, ...), et l'influence des paramètres mécaniques sur la performance de la pile. Ce que nous proposons de présenter dans le chapitre 2.

Le chapitre 2 présente l'Etat de l'art sur les modèles numériques existants montrant l'influence des paramètres mécaniques les plus influents sur la performance de la pile.

---

## Références

- [1] Thomas, S., Zalbowitz, M., & Power, F. C. G. (2001). Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico (1999).
- [2] P. Stevens, F. NovelCattin, A. Hammou, C. Lamy, and M. Cassir, "Piles à combustible," Techniques de l'Ingénieur no. D 3340, 2001.
- [3] Hadda, D. (2012) *MODELISATION ET SIMULATION NUMERIQUE DES PHENOMENES DE TRANSPORT DANS UNE PILE A COMBUSTIBLE DE TYPE PEMFC* (Doctoral dissertation, Université de Batna 2).
- [4] A. Corbeau. (2000) Les piles à combustible. [Online]. Available : [www.annso.freesurf.fr](http://www.annso.freesurf.fr).
- [5] P. Stevens, F. Novel-Cattin, and A. Hammou. « Pile à combustible, Techniques de l'Ingénieur ». Traité Génie Electrique, 2000.
- [6] Lachaize, J. (2004). *Etude des stratégies et des structures de commande pour le pilotage des systèmes énergétiques à Pile à Combustible (PAC) destinés à la traction* (Doctoral dissertation, Institut National Polytechnique de Toulouse).
- [7] Dicks, A. L. (2006). The role of carbon in fuel cells. *Journal of Power Sources*, 156(2), 128-141.
- [8] Ayad, A., Bouet, J., & Fauvarque, J. F. (2005). Comparative study of protonic conducting polymers incorporated in the oxygen electrode of the PEMFC. *Journal of power sources*, 149, 66-71.
- [9] Fuel Cell Handbook (seventh edition), Department of Energy Office of Fossil Energy, (2004)26507-0880.
- [10] Tarascon, J. M. (2011). *L'énergie : stockage électrochimique et développement durable* (Vol. 216). Fayard/Collège de France.
- [11] Silva, V. S., Mendes, A., Madeira, L. M., & Nunes, S. P. (2006). Proton exchange membranes for direct methanol fuel cells: Properties critical study concerning methanol crossover and proton conductivity. *Journal of membrane science*, 276(1-2), 126-134.
- [12] 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.
- [13] Jourdani, M. (2019). Simulation Numérique Couplée des Phénomènes Thermo- fluide, Electrochimique et Mécanique dans une Pile à Combustible type PEMFC (Thèse de doctorat, Ecole Mohammadia d'Ingénieurs, Maroc).
- [14] Middelman, E., Kout, W., Vogelaar, B., Lenssen, J., & De Waal, E. (2003). Bipolar plates for PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, 118(1-2), 44-46.
- [15] Nguyen, L. (2009). Développement et caractérisation de nouveaux matériaux à base de PET, PVDF, et de mélanges PET/PVDF, pour la fabrication de plaques bipolaires pour piles à combustibles à membrane échangeuse de protons, PEMFC. *Mémoire présenté à la Faculté des études supérieures de l'Université Laval*.
- [16] Charon, W., Ilchev, M. C., & Blachot, J. F. (2014). Mechanical simulation of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell stack using representative elementary volumes of stamped metallic bipolar plates. *International journal of hydrogen energy*, 39(25), 13195-13205.
- [17] Legrand, P. (2012). *Influence des conditions de fonctionnement de la pile à combustible sur les performances du dispositif et la durabilité de la membrane* (Doctoral dissertation, Université de Grenoble).
- [18] 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).
- [19] Mathias, M. F., Roth, J., Fleming, J., & Lehnert, W. (2010). Diffusion media materials and characterisation. *Handbook of fuel cells*.
- [20] Gostick, J. T., Ioannidis, M. A., Fowler, M. W., & Pritzker, M. D. (2007). Pore network modeling of fibrous gas diffusion layers for polymer electrolyte membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 173(1), 277-290.

- [21] Bouziane, K., Zamel, N., Francois, X., Meyer, Y., & Candusso, D. (2019). Effects of mechanical compression on the performance of Polymer Electrolyte Fuel Cells and analysis through in-situ characterisation techniques-A review. *Journal of Power Sources*, 424, 8-26.
- [22] Gostick, J. T., Fowler, M. W., Ioannidis, M. A., Pritzker, M. D., Volfkovich, Y. M., & Sakars, A. (2006). Capillary pressure and hydrophilic porosity in gas diffusion layers for polymer electrolyte fuel cells. *Journal of power sources*, 156(2), 375-387.
- [23] Toray Co. Japon.
- [24] Zhang, Z. (2010). Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible (Thèse de doctorat, Université de Evry-Val d'Essonne, France).
- [25] Gostick, J. T., Fowler, M. W., Ioannidis, M. A., Pritzker, M. D., Volfkovich, Y. M., & Sakars, A. (2006). Capillary pressure and hydrophilic porosity in gas diffusion layers for polymer electrolyte fuel cells. *Journal of power sources*, 156(2), 375-387.
- [26] Thomas, A. (2012). *Transferts d'eau et de chaleur dans une pile à combustible à membrane: mise en évidence expérimentale du couplage et analyse des mécanismes* (Doctoral dissertation).
- [27] Chang, W. R., Hwang, J. J., Weng, F. B., & Chan, S. H. (2007). Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 166(1), 149-154.
- [28] Scherer, G. G. (1997). Interfacial aspects in the development of polymer electrolyte fuel cells. *Solid State Ionics*, 94(1-4), 249-257.
- [29] Tomadakis, M. M., & Robertson, T. J. (2005). Viscous permeability of random fiber structures: comparison of electrical and diffusional estimates with experimental and analytical results. *Journal of Composite Materials*, 39(2), 163-188.
- [30] Feser, J. P., Prasad, A. K., & Advani, S. G. (2006). Experimental characterization of in-plane permeability of gas diffusion layers. *Journal of power sources*, 162(2), 1226-1231.
- [31] Smitha, B., Sridhar, S., & Khan, A. A. (2005). Solid polymer electrolyte membranes for fuel cell applications— a review. *Journal of membrane science*, 259(1-2), 10-26.
- [32] Zhou, B., Huang, W., Zong, Y., & Sobiesiak, A. (2006). Water and pressure effects on a single PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 155(2), 190-202.
- [33] Borup, R., Meyers, J., Pivovar, B., Kim, Y. S., Mukundan, R., Garland, N. ... & Zelenay, P. (2007). Scientific aspects of polymer electrolyte fuel cell durability and degradation. *Chemical reviews*, 107(10), 3904-3951.
- [34] Dubau, L., Castanheira, L., Chatenet, M., Maillard, F., Dillet, J., Maranzana, G. ... & Bas, C. (2014). Carbon corrosion induced by membrane failure: The weak link of PEMFC long-term performance. *International journal of hydrogen energy*, 39(36), 21902-21914.
- [35] Wu, J., Yuan, X. Z., Martin, J. J., Wang, H., Zhang, J., Shen, J., ... & Merida, W. (2008). A review of PEM fuel cell durability: Degradation mechanisms and mitigation strategies. *Journal of Power Sources*, 184(1), 104-119.
- [36] 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. [86] Noguier, N. (2015). *Aide à l'analyse fiabiliste d'une pile à combustible par la simulation* (Doctoral dissertation).
- [37] MAHMAH, B., CHETEHOUNA, K., BELHAMEL, M., & BENMOUSSA, H. Étude sur les risques dans les piles à combustible PEMFC. *2IWH 2007, 27-29 October 2007, Ghardaïa – Algeria*.
- [38] Wasterlain, S. (2010). *APPROCHES EXPERIMENTALES ET ANALYSE PROBABILISTE POUR LE DIAGNOSTIC DE PILES A COMBUSTIBLE DE TYPE PEM* (Thèse UFC - IFSTTAR, soutenue le 4 février 2010. 298 pages.
- [39] Frisk, J. W., Hicks, M. T., Atanasoski, R. T., Boand, W. M., Schmoekkel, A. K., & Kurkowski, M. J. (2004). *MEA component durability* (No. DOE/GO/13098-5). 3M Company, St. Paul, MN.
- [40] Ahmed, H. E. U., Banan, R., Zu, J. W., & Bazylak, A. (2011). Free vibration analysis of a polymer electrolyte membrane fuel cell. *Journal of Power Sources*, 196(13), 5520-5525.
- [41] Jiao, K., & Li, X. (2011). Water transport in polymer electrolyte membrane fuel cells. *Progress in energy and combustion Science*, 37(3), 221-291.

- [42] [150] Wasterlain, S. (2010). *APPROCHES EXPERIMENTALES ET ANALYSE PROBABILISTE POUR LE DIAGNOSTIC DE PILES A COMBUSTIBLE DE TYPE PEM* (Thèse UFC - IFSTTAR, soutenue le 4 février 2010. 298 pages.
- [43] Zhang, Zhiming. *Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible*. Diss. Evry-Val d'Essonne, 2010.
- [44] Wijayanti, W., Kusumastuti, R., Sasmoko, S., & Sasongko, M. N. A Numerical Study of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performances Affected by Various Porosities of Gas Diffusion Layer Materials (2020). *Eastern-European Journal of Enterprise Technologies*, 1(5), 65-75.
- [45] Tognan, M., Turpin, C., Rallières, O., Verdu, O., Lombard, K., & Rakotondrainibe, A. (2016, June). Analyse et modélisation du vieillissement d'un stack de Pile à Combustible PEM H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>. *SYMPOSIUM DE GENIE ELECTRIQUE (SGE 2016) : EF-EPF-MGE 2016, 7-9 JUIN 2016, GRENOBLE, France*.
- [46] Silva Sanchez, R. E. (2016). *Contribution au pronostic de durée de vie des systèmes pile à combustible de type PEMFC* (these de doctorat, Université du Québec à Trois-Rivières).
-

# Chapitre 2

## Modélisation du comportement des piles à combustible.

1	Introduction .....	39
2	Modélisation multiphysique de la PAC. Performance et durabilité. ....	39
2.1	Phénomène thermique.....	40
2.1.1	Convection thermique.....	40
2.1.2	Equation de Fourier pour la conduction .....	40
2.2	Phénomène électrique .....	41
2.3	Phénomène mécanique.....	42
2.3.1	Effets mécaniques produisant au cœur de la pile (contrainte de serrage). ....	44
2.4	Couplage multiphysique .....	45
2.4.1	Couplage thermo – électro – mécanique.....	46
2.4.1.1	Résolution éléments finis du problème thermo-électro-mécanique.....	49
3	Etat de l’art sur la modélisation du comportement des piles à combustible.....	50
4	Conclusion.....	57

---

### Listes des figures

Figure 2.1 : Système multi-physique d'une pile à combustible.

Figure 2.2 : liens entre différents paramètres mécaniques influençant la performance de la pile.

Figure 2.3 : Algorithmique montrant le couplage entre les différents phénomènes dans la pile.

Figure 2.4 : Couplage électro-thermo-mécanique

Figure 2.5 : Comportement du modèle multiphysique (thermo-électro-mécanique)

Figure 2.6 : Algorithme de résolution élément finis du couplage thermo-électro-mécanique

### Listes des tableaux

Tableau 2.1 : Données des matériaux du couplage thermo – électro – mécanique.

Tableau 2.2 : Conditions aux limites du couplage thermo – électro – mécanique.

Tableau 2.3 : Typologie des modèles issues de la littérature et qui sont en rapport avec le sujet de la thèse.

Tableau 2.4 : Effets des paramètres mécaniques sur les performances de la pile à combustible [\[43-44\]](#).

---

## 1 Introduction

Dans ce chapitre, nous commençons par une présentation des différents phénomènes physiques mis en jeu dans le système de la pile à combustible : fluidiques, thermiques, électriques et mécaniques.

L'objectif principal de notre travail est l'optimisation du fonctionnement de ce système multiphysique à l'aide de la simulation numérique. Pour atteindre cet objectif une bonne connaissance du système est nécessaire. Ceci passe par une revue de l'état des connaissances existantes dans le domaine de la simulation numérique des systèmes piles : modèle multiphysique, mécanique, thermique, fluide.

## 2 Modélisation multiphysique de la PAC. Performance et durabilité.

L'optimisation de la performance d'une pile passe par une bonne compréhension des phénomènes physiques mis en jeu. La modélisation est un moyen d'arriver à cette meilleure compréhension.

Cependant, la pile est un système complexe, siège de nombreux phénomènes physiques dans les différentes parties de la cellule tels que, le flux des réactifs, le transfert de chaleur, la consommation des réactifs et leur transport, la production d'eau, la gestion d'eau, le phénomène de diffusion et les contraintes mécaniques.

La pile à combustible est un système multi-physique où plusieurs phénomènes physiques sont couplés (Figure 2.1) : mécanique, électrique, thermique et fluide [1]. L'interaction entre ses différents phénomènes fortement couplés est importante pour le bon fonctionnement de la pile. Sa performance est influencée par plusieurs paramètres de phénomènes physiques de natures différentes, tels que les paramètres opératoires (la température, l'humidité relative...), les paramètres mécaniques (force de serrage, dimensions et géométrie des composants, propriétés des matériaux, nombre de cellule, ...). Ces paramètres sont les causes de dégradations de plusieurs composants de la pile.

Dans notre étude, nous nous sommes focalisés sur les phénomènes thermiques, électriques et mécaniques sans prendre en compte les phénomènes fluidiques. Nous présentons en détail les trois phénomènes thermique, électrique et mécanique pris en compte dans notre travail (le phénomène fluide n'est pas pris en compte dans notre étude et est détaillé dans l'Annexe 1).

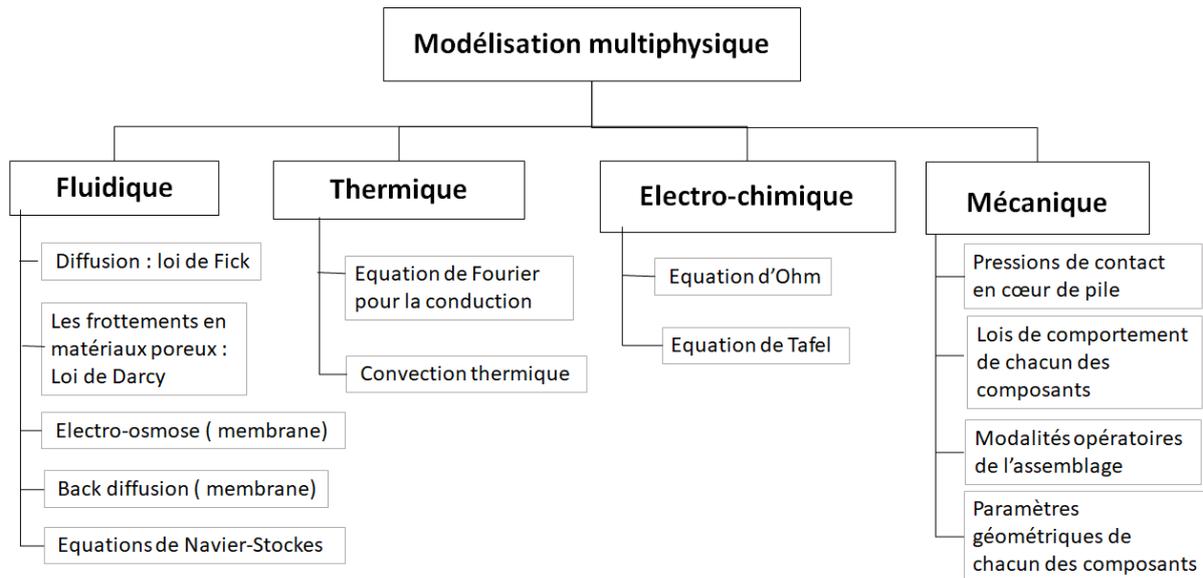


Figure 2.1 : Système multi-physique d'une pile à combustible.

## 2.1 Phénomène thermique

Au niveau du fonctionnement thermique, plusieurs phénomènes sont responsables de la production de chaleur dans les cellules de la pile tels que : l'effet Joule dû à la résistivité protonique de la membrane et les réactions électrochimiques aux électrodes [2]. Le transfert de chaleur dans la pile PEMFC se fait par les trois modes : par conduction, par convection et par rayonnement. Comme la pile PEMFC fonctionne à de basses températures alors le mode de transfert par rayonnement est négligé.

### 2.1.1 Convection thermique

Les déplacements du gaz de l'anode à la cathode emportent avec eux leur chaleur, ce qui représente la convection thermique (flux thermique). Ensuite, le contact de ces gaz avec un solide permet de refroidir ou réchauffer ce solide. Cela représente la convection forcée. La quantité de chaleur échangée entre les gaz et le solide ( $\varphi$ ) est calculée en utilisant la loi de Newton selon l'équation suivante :

$$\varphi = h \cdot (T_s - T_g) \quad \text{Eq. 2.1}$$

Où,  $h$  ( $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$ ) est le coefficient d'échange thermique (coefficient de convection),  $T_s$  et  $T_g$  sont respectivement les températures de la partie solide et de la partie gazeuse.

### 2.1.2 Equation de Fourier pour la conduction

Le processus de transfert d'énergie peut être régi par l'équation 2.2 :

$$\rho C_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} + \text{grad } T \cdot u \right) = \text{div} (K \cdot \text{grad } T) + \bar{q} \quad \text{Eq. 2.2}$$

- Avec :  $C_p$  est la chaleur spécifique (J/Kg.°C) ;
- $K$  est la conductivité thermique (W/m. °C)
- $\bar{q}$  est la source de chaleur volumique (w/m<sup>3</sup>) pour simuler la production de chaleur par les réactions chimiques.
- $\text{grad } T \cdot u$  : représente le phénomène de convection naturelle
- $\text{div} (K \cdot \text{grad } T)$  : représente le phénomène de la conduction

Dans notre étude, beaucoup d'hypothèses ont été faites : les propriétés des matériaux sont considérées isotropes et homogènes, le calcul est statique et il n'existe pas de convection naturelle. Suites à ces hypothèses, l'équation de diffusion de la chaleur se réduit à :

$$K \Delta T + \bar{q} = 0 \quad \text{Eq. 2.3}$$

En fonctionnement, la *variation de la température* influe sur la membrane de la pile en provoquant son gonflement et/ou son rétrécissement (dilatation de son matériau). La variation géométrique de la membrane, due à la dilatation, est relativement faible. Donc, cette influence de la variation de la température est définie comme une déformation thermique. Cette déformation est régie par l'équation 4 :

$$\varepsilon^{Th} = \alpha (T - T_0) \quad \text{Eq. 2.4}$$

Avec,  $\alpha$  (10<sup>-6</sup>/°C) est le coefficient de la dilatation thermique spécifique pour chaque matériaux [3].

## 2.2 Phénomène électrique

L'intégration de la pile à combustible dans un environnement électrique nécessite la connaissance de son modèle électrique. Une PEMFC est un dispositif électrochimique produisant du courant pour une tension donnée. Electriquement, sa performance est représentée par sa caractéristique courant -tension : Le potentiel de référence (théorique) d'une cellule à l'état standard, (25°C et 1 bar) est 1.299 V, par contre, sous chargement, la tension diminue à 0.6 – 0.7 V. comme la pile PEMFC est constituée d'un empilement des cellules, appelé stack, alors sa performance dépend de celles des cellules élémentaires.

Afin de maintenir un bon rendement de la PAC, il ne faut pas descendre en dessous de 0.64 V par cellule. La tension de cellule peut être décomposée en trois phénomènes prépondérants en fonction de la valeur de la densité de courant qui sont : la polarisation d'activation ( $V_{act}$ ), la polarisation ohmique ( $V_{ohmt}$ ), la polarisation de concentration ( $V_{conc}$ ) [4].

Le comportement électrique d'une pile est régi par les équations de Maxwell [5]. L'équation de conservation de la charge et la loi d'Ohm locale sont utilisées en supposant que le champ électrique dérive d'un potentiel :

$$\operatorname{div} J = 0 \quad \text{Eq. 2.5}$$

$$J = \sigma_e \cdot E \quad \text{Eq. 2.6}$$

$$E = -\operatorname{grad}V \quad \text{Eq. 2.7}$$

Avec :

- $J$  est la densité de courant électrique (A)
- $\sigma_e$  est la conductance électrique (1/Ohm)
- $E$  est le champ électrique (V)
- $V$  est le potentiel électrique (Volt)

La combinaison de ces trois équations conduit à l'équation :  $\operatorname{div} \sigma_e \operatorname{grad} V = 0$  Eq. 2.8

### 2.3 Phénomène mécanique

Pour optimiser le système PAC et améliorer sa durabilité, une bonne connaissance et une bonne compréhension de ces phénomènes mécaniques dans la pile paraissent fondamentaux : contraintes, déformations, déplacement, pressions de contact entre les différentes couches. Une grandeur fondamentale peut être associée à la performance d'une pile : la pression de contact. Les pressions de contact subies par la GDL vont impacter directement les performances électriques de la pile, en particulier les pertes ohmiques liées à la résistance de contact [6]. D'un point de vue mécanique, la performance de la pile est liée à l'état de contraintes et des pressions de contact en cœur de pile. Ces derniers sont influencés par divers phénomènes :

- Les lois de comportement de chacun des composants : la nature mécanique des différents comportements est une vraie interrogation
- Les modalités opératoires de l'assemblage (Force/Couple de serrage, type de joint, ...)
- Les paramètres géométriques de chacun des composants (dimensions des plaques, formes des canaux).

Dans la suite de notre étude, le comportement mécanique de tous les composants est supposé isotrope linéaire. La contrainte et la déformation élastique d'une cellule de la pile, due à la force de serrage, sont liées par la loi de Hooke [25].

$$\{\sigma_e\} = D \cdot \{\varepsilon\} \quad \text{Eq. 2.9}$$

Avec  $\sigma_e$  est le tenseur des contraintes,  $\varepsilon$  est le tenseur des déformations et  $D$  est le tenseur d'élasticité (détaillé en détail dans [43]) qui est défini comme suit [25] :

$$D = \begin{bmatrix} \lambda + 2\mu & \lambda & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & \lambda + 2\mu & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & \lambda & \lambda + 2\mu & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \mu & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \mu \end{bmatrix}$$

Avec  $\mu$  est coefficient de résistance au cisaillement et  $\lambda$  le coefficient de Lamé. Ces deux coefficients ( $\mu$  et  $\lambda$ ) dépendent des propriétés des matériaux  $E$  (module de Young), et  $\nu$  (coefficient de poisson) et sont définis par :

$$\mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad \lambda = \frac{\nu E}{(1-2\nu)(1+\nu)}$$

Pour un matériau isotrope, le tenseur de déformation mécanique ( $\varepsilon$ ) peut s'exprimer selon l'équation suivante [25] :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \text{tr}(\varepsilon_{ij}) \delta_{ij} \quad \text{Eq. 2.10}$$

Avec,  $\delta_{ij}$  la fonction Kronecker donnée par :  $\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j \\ 0 & \text{si } i \neq j \end{cases}$

Ces principales équations (2.9 et 2.10) nécessitent une modélisation par éléments finis pour appréhender au mieux ces phénomènes complexes difficilement mesurables directement et comprendre l'influence des différents paramètres mécaniques sur les performances de la pile.

L'amélioration de la performance de la pile PEMFC nécessite une bonne connaissance et une bonne compréhension des phénomènes mécaniques dans la pile et en particulier des pressions de contact. Dans ce contexte, la modélisation par éléments finis s'impose pour appréhender au mieux ces phénomènes complexes difficilement mesurables directement et comprendre l'influence des différents paramètres mécaniques sur les performances de la pile.

Dans ce contexte mécanique, les modalités opératoires, les paramètres géométriques et les lois de comportement de chacun des composants sont les grandeurs à retenir. La durée de vie des différents composants de la pile est sous l'influence des effets mécaniques se produisant au cœur de pile. Le critère de fin de vie est défini par une baisse importante des performances du stack (en général entre 10 et 20% de la tension à courant nominal), par le dépassement d'un seuil limite de taux de fuite interne entre les compartiments  $H_2$  et  $O_2$  [7].

La puissance délivrée par un stack de la pile est liée à deux paramètres géométriques : le *nombre de cellules de l'empilement*, mises en série électriquement (afin de déterminer la tension de sortie totale aux bornes du Stack qui est égale à la tension élémentaire d'une cellule multipliée par le nombre de cellules) et à *la surface des MEA* (pour déterminer le courant maximal que le Stack peut délivrer). L'augmentation de la puissance, liée à l'augmentation du nombre de cellules et de leurs surfaces, n'est possible que dans certaines limites surtout dans le domaine de transport [8].

Cette performance mécanique diminue au cours du temps, car les matériaux et assemblages se dégradent, ce qui conduit à la baisse des performances des cellules, voire même à la fin de vie du système, souvent parce que les composants de la pile (BPP, GDL, ED, et MEA) sont déformés. La durée de vie de ces composants est sous l'influence des phénomènes suivants :

### 2.3.1 Effets mécaniques se produisant au cœur de la pile (contraintes de serrage).

Un comportement normal de la pile est représenté par un contact optimal entre les différents composants de la pile. Cet état de contact est obtenu pour une pression de serrage bien définie. Lors de la phase d'assemblage des composants, une forte force de serrage provoque des déformations non-réversibles et des contraintes mécaniques élevées dans la membrane et la GDL, qui affectent la distribution de pression de contact, la porosité et la perméabilité de la plaque GDL. De plus, on note une diminution de la résistance de contact [9] et une augmentation de la performance. Cependant, une faible force de serrage peut aussi causer des fuites de gaz entre les composants, ce qui augmente la résistance de contact et fait baisser les performances de la pile. De plus une distribution inégale de la pression de contact sur la MEA peut provoquer la formation des points chauds dans la MEA.

L'augmentation du couple de serrage peut être une solution pour diminuer la résistance de contact, par contre, l'inconvénient de cette augmentation est une déformation de la membrane (Figure 2.2) et une dégradation des composants (fissures des plaques bipolaire). Alors, une modification dans l'assemblage de la pile est nécessaire pour améliorer la performance de la pile. Donc, plusieurs notions interagissent ensemble afin d'améliorer la performance de la pile.

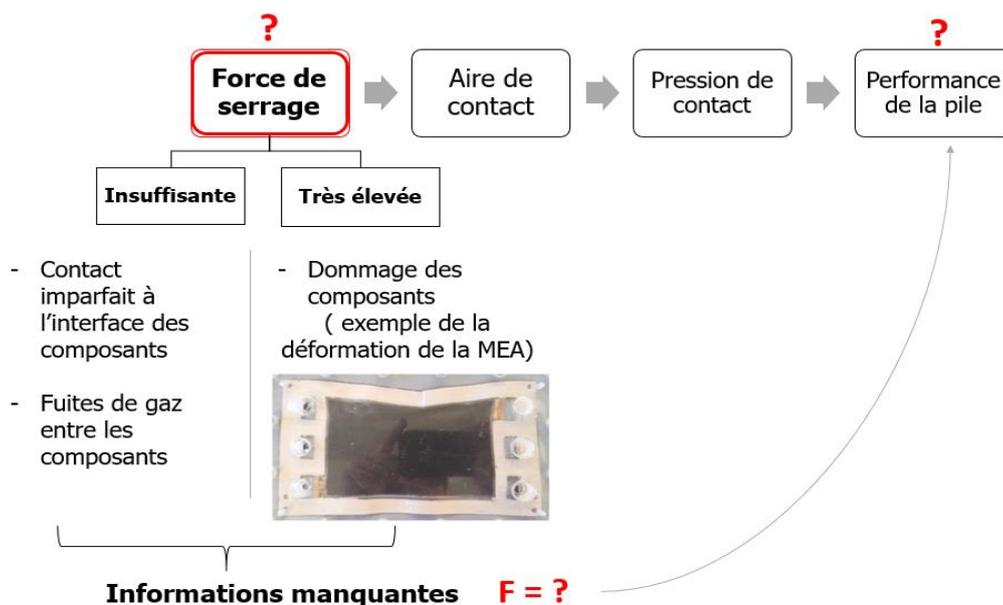


Figure 2.2 : Liens entre différents paramètres mécaniques influençant la performance de la pile.

D'un point de vue mécanique, la performance nécessite l'obtention d'une répartition de pression de contact uniforme au niveau des composants de la pile en évitant les points de contrainte élevée. Pour atteindre cet objectif, plusieurs paramètres mécaniques influents seront pris en compte : forme des canaux des plaques bipolaires, pression de serrage, épaisseurs de la plaque d'extrémité, propriétés des matériaux de BPP et GDL.

Sous une forte pression de serrage, plusieurs paramètres physiques, comme la porosité de la GDL, la pression de contact à l'interface entre la GDL et la plaque bipolaire (BPP), et la résistance de contact électrique et thermique entre la GDL et la plaque bipolaire présentent de fortes variations.

L'influence des effets thermiques et électriques sur les contraintes contribuent, par exemple, à la détérioration mécanique de certains des composants du cœur de la pile, notamment la couche de diffusion de gaz qui est un paramètre clé pour ces piles. Son rôle a pour triple missions, de transmettre la chaleur, l'électricité et les fluides jusqu'aux sites de réaction. Son matériau est un milieu poreux et fibreux, sa structure présente en effet une porosité élevée. Notons que dans la zone de contact entre les composants de la pile et en particulier entre la GDL et la plaque bipolaire, un échauffement localisé peut avoir lieu et conduire à la rupture des connexions. Le passage de courant dans les matériaux peut donc constituer une véritable source de vieillissement, et être directement responsable de l'endommagement. Il apparaît donc nécessaire d'étudier l'influence du couplage thermique – électrique – mécanique sur la distribution des contraintes dans la GDL et des pressions de contact entre les différents composants de la pile (cette étude sera détaillée dans le chapitre 4). Nous allons présenter dans la section 2.4 suivante une description globale du couplage multiphysique et ensuite, dans la section 2.4.1 le couplage entre les trois phénomènes thermique, électrique et mécanique.

## 2.4 Couplage multiphysique

Il apparaît clairement que la performance d'une pile est influencée par un grand nombre de phénomènes et de paramètres de nature différente. Les différentes équations caractérisant chaque phénomène (fluidique, thermique, électrique et mécanique) montrent des interdépendances potentielles entre les phénomènes et les paramètres. La figure 2.3 suivante illustre le couplage entre les différents phénomènes qui régissent le fonctionnement de la pile avec une description générale des équations du modèle thermo-fluide, du modèle électrochimique et du modèle thermomécanique pour tenir compte des interactions entre les différents paramètres qui affectent la performance de la pile à combustible PEMFC.

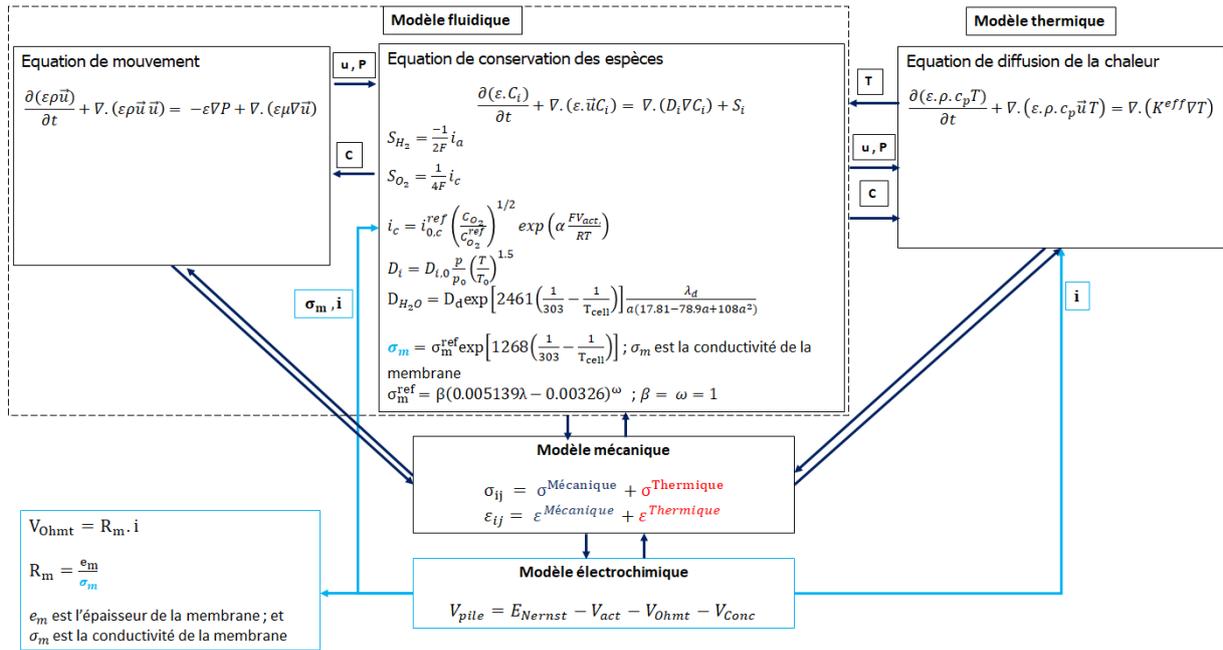


Figure 2.3 : Algorithmique montrant le couplage entre les différents phénomènes dans la pile.

La résolution des équations du modèle thermo-fluide nécessite de connaître le flux d'eau dans la membrane ( $\lambda$ ). Ce dernier ne peut être calculé sans la résolution du modèle électrochimique. Or, les concentrations d'eau aux interfaces membrane-électrode doivent être connues pour évaluer la diffusion d'eau dans celle-ci. En plus, la détermination des pressions partielles des réactifs et produits de réaction, du flux d'eau dans la membrane, permet de calculer les différentes surtensions aux électrodes  $V_{act}$  (équations de Volmer-Tafel) et dans la membrane (loi d'Ohm)  $V_{Ohmt}$ .

### 2.4.1 Couplage thermo – électro – mécanique

La figure 2.4 suivante montre les principales équations montrant la dépendance entre les trois phénomènes (mécanique, thermique et électrique).

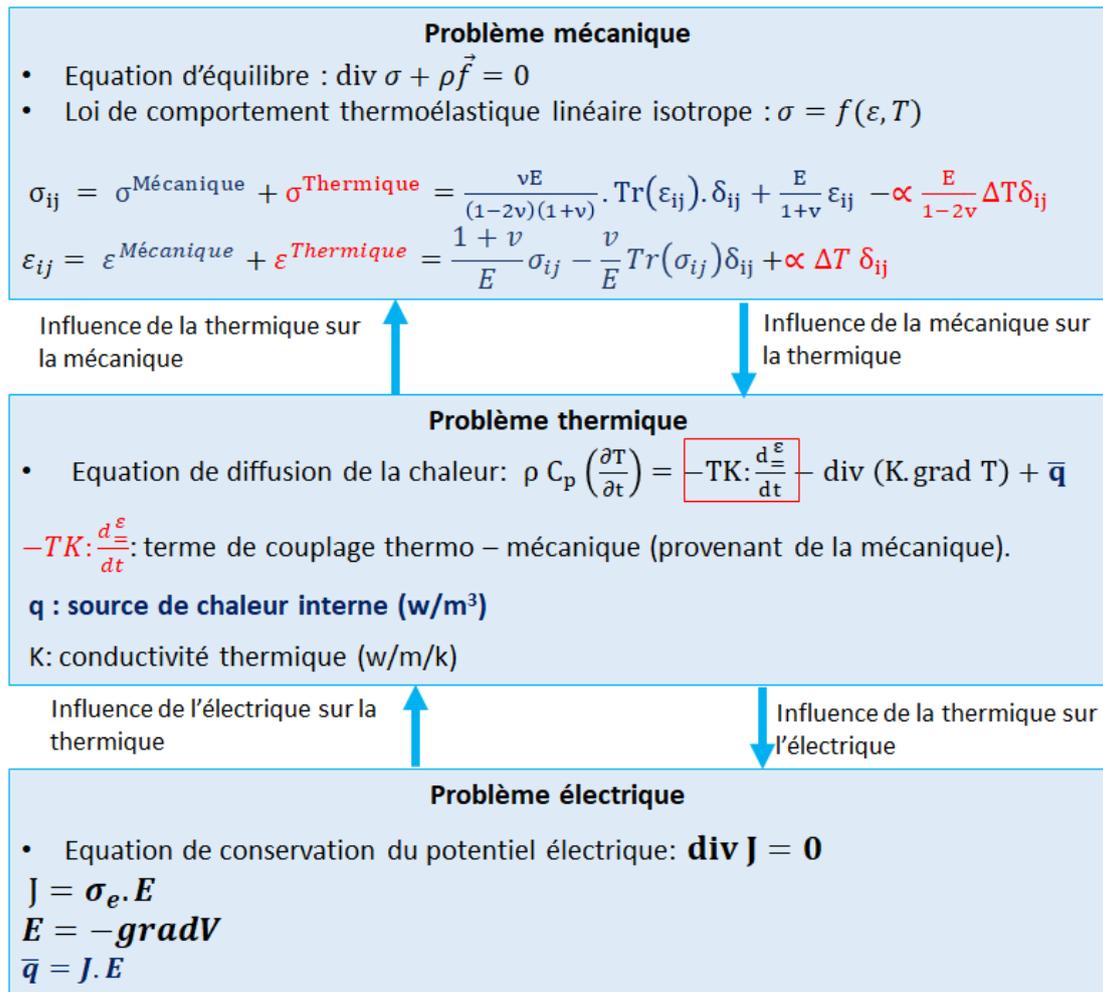


Figure 2.4 : Couplage électro-thermo-mécanique

On peut remarquer l'influence de la thermique sur le problème mécanique à travers la loi de comportement qui dépend de la température. En effet la température modifie le comportement mécanique du matériau. Lors de fonctionnement, la variation de la température influe sur la membrane de la pile en provoquant l'apparition de gonflements et de rétrécissements. Et par conséquent, une dilatation de son matériau. Donc, cette influence de la variation de la température est définie comme une déformation thermique ( $\varepsilon^{\text{Thermique}}$ ) marquée en rouge dans l'équation de la figure 2.4. La résolution du problème mécanique nécessite de connaître l'évolution temporelle du champ de température.

Inversement, l'influence de la mécanique sur la thermique est donnée par l'intermédiaire d'une source de chaleur (q) provenant de la déformation de la structure. La résolution du problème thermique nécessite de connaître l'évolution temporelle du champ de déformation et de contrainte.

Nous pouvons voir que d'une part le module de Young dépend de la température, et d'autre part la conductivité (K) dépend aussi de la température, donc nous avons bien un couplage thermomécanique.

Le couplage thermomécanique est dit « Fort » quand on doit prendre en compte les deux influences décrites ci-dessus. Un calcul de structure avec un couplage thermomécanique fort est souvent difficile à réaliser (temps de calcul très long, problèmes de convergence). On essaye donc de négliger l'une des deux influences. Le couplage thermomécanique est alors dit « faible ».

Le comportement électrique d'une pile est régi par les équations de Maxwell (figure 2.4). L'équation de conservation de la charge et la loi d'Ohm locale sont utilisées en supposant que le champ électrique dérive d'un potentiel. Nous pouvons remarquer le lien entre le comportement thermique et le comportement électrique à travers la relation entre la densité de courant électrique ( $J$ ), le champ électrique ( $E$ ) et la source de chaleur interne ( $q$ ) qui revient à la thermique.

Le comportement électrique va nous donner une énergie qui va être utilisée comme source de chaleur ( $q$ ) et cette source de chaleur va ramener une énergie thermique à la mécanique par le coefficient ( $\alpha \cdot \Delta T$ ) comme montré dans la figure 4 ci-dessus. D'où un couplage thermo-électro-mécanique. Le phénomène électrique influence la température (phénomène thermique) et la température influence la loi de comportement mécanique. Le tableau 2.1 montre les données des matériaux représentant chaque phénomène du couplage (thermique, électrique et mécanique) et le tableau 2.2 montre les conditions de limites pour chaque phénomène.

Données des matériaux		
Mécanique	Thermique	Electrique
Module de Young : $E(T)$	Conductivité thermique : $K(T)$	Conductivité électrique : $Ke$
Coefficient de poisson : $\nu$	Chaleur spécifique : $Cp$	Intensité de courant électrique : $J$
Coefficient de dilatation thermique : $\alpha$		

Tableau 2.1 : Données des matériaux du couplage thermo – électro – mécanique.

Conditions aux limites		
Mécanique	Thermique	Electrique
Déplacement	Température	Intensité de courant électrique : $J$
Effort imposé	Source de chaleur interne	
Contact mécanique	Contact thermique (TCC)	Contact électrique (ECC)

Tableau 2.2 : Conditions aux limites du couplage thermo – électro – mécanique.

Donc, finalement et grâce aux données des matériaux et aux conditions aux limites (tableau 2.1 et 2.2), le comportement du modèle multiphysique est décrit par : les relations aux dérivées partielles + les conditions aux limites et les conditions initiales (figure 2.5).

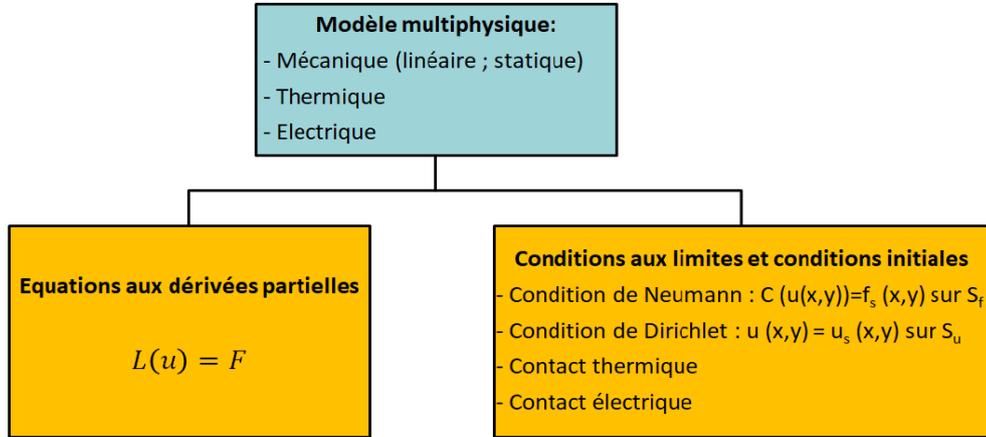


Figure 2.5 : Comportement du modèle multiphysique (thermo-électro-mécanique)

Le couplage des équations thermiques, électriques et mécaniques ( $L(u) = F$ ) rend souvent leur résolution difficile (absence de solutions analytiques), on cherche donc souvent à simplifier ces équations en réduisant au maximum leur couplage. Dans ce contexte, la méthode des éléments fins s'impose pour résoudre ce couplage défini par un système d'équation en tout point d'un volume, grâce à la formulation faible du modèle (présentée dans la partie suivante).

2.4.1.1 Résolution éléments fins du problème thermo-électro-mécanique.

La figure 2.6 présente succinctement la démarche de résolution par la méthode des éléments fins de ce problème couplé.

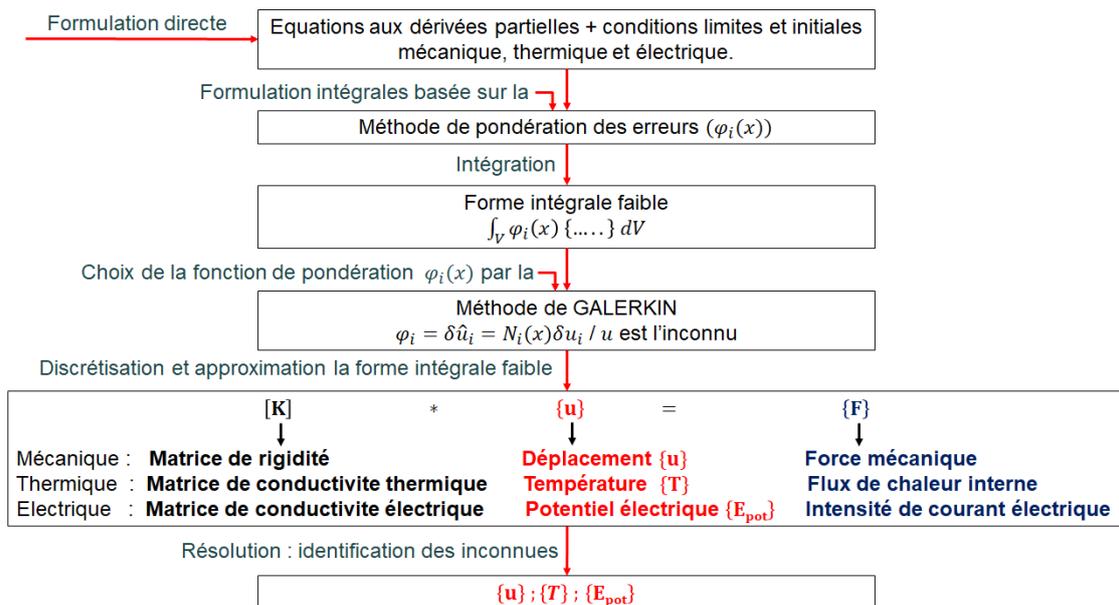


Figure 2.6 : Algorithme de résolution élément finis du couplage thermo-électro-mécanique

La méthode des éléments fins permet au final de résoudre un système de la forme  $[K].\{u\} = F$ , afin de trouver la solution (u, T et  $E_{pot}$ ). La matrice K regroupe la matrice de raideur en mécanique  $K^m$ , la matrice de conductivité thermique  $K^t$ , la matrice de conductivité électrique  $K^e$  ainsi que les matrices sur la diagonale qui représentent le couplage entre les trois phénomènes.

La difficulté liée au contrôle des phénomènes multiphysiques (mécanique, thermique, électrique,) de la pile à combustible PEMFC est considérée comme l'un des obstacles qui empêchent la progression de la commercialisation de la pile. Dans ce contexte, la modélisation mathématique occupe une place importante dans les recherches liées à la pile PEMFC afin de comprendre et de prévoir le comportement de son système. Établir un modèle mathématique, c'est décrire un processus de manière scientifique et quantitative. Cette description du processus permet de modéliser et optimiser le modèle développé de la pile en modifiant certains paramètres.

Dans la dernière décennie, un nombre important de modèles de pile a été développé. Ces modèles varient en fonction de leur niveau de complexité (modélisation thermique [10], modélisation par élément ou volume finis (« Computational Fluid Dynamics » : CFD), modélisation énergétique (Bond-graphs [11]), modélisation électrochimique [12], modèles dynamiques multi-physiques [13]), leur domaine de validité (une demi-cellule ou la totalité d'une cellule, empilement de cellules) et du domaine (1D, bi ou tridimensionnel) dans lequel se déroulent les phénomènes étudiés.

Nous présentons dans la section 3 suivante l'étude bibliographique sur les différents modèles de la pile à combustible PEMFC.

### 3 Etat de l'art sur la modélisation du comportement des piles à combustible

**Movahedi, M. et al. [14]** ont développé un modèle 3D multiphysique et ont étudié l'effet de la compression sur la géométrie de la cellule de la pile, en particulier la GDL et ses caractéristiques : l'épaisseur, la porosité et la perméabilité. Ils ont montré que la déformation de la GDL augmente avec la pression de serrage, par contre l'épaisseur et la porosité de GDL diminue. L'équation de la porosité inclut les termes de la porosité initiale, et l'épaisseur de la GDL avant et après compression. Les résultats montrent que la performance de la pile est améliorée avec l'augmentation de la porosité. Avec l'augmentation de la pression de serrage, la GDL se déplace vers le canal et elle prend la forme d'une bosse qui réduit une partie de l'espace du canal, cela augmente la vitesse des gaz dans le canal. Ensuite, ils ont montré qu'il existe une pression de serrage optimale pour chaque épaisseur de la GDL, où la densité de courant et la performance de la cellule sont maximales.

**Alizadeh, E. et al. [15]** ont développé un modèle paramétrique bidimensionnel, avec une charge de boulon appliquée comme une force concentrée sur la plaque d'extrémité, dont le but est d'étudier la répartition de pression de contact sur la MEA. Ils ont montré l'influence de plusieurs paramètres comme l'épaisseur et le matériau de la plaque d'extrémité, le nombre et la position de cellule sur la distribution de pression sur la MEA. Les résultats montrent qu'avec un grand nombre de cellule (15 cellules), et au centre de la pile, la distribution de pression sur la MEA est plus uniforme.

**Habibnia, M. et al. [16]** ont développé un modèle tridimensionnel et 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. Les résultats montrent qu'une répartition de pression uniforme sur la GDL nécessite le paramétrage suivant : Pression de serrage de 10 MPa et épaisseur de la plaque d'extrémité de 10 mm. En plus, ils ont étudié le problème de fuite entre les différentes composantes de la pile dont le but est de déterminer la pression de serrage minimale à exercer sur la plaque d'extrémité. Expérimentalement, ils ont montré que la pression de serrage doit être supérieure à 2 MPa pour assurer une étanchéité complète du modèle.

**Carral, C. et al. [17]** présentent un modèle numérique tridimensionnel pour étudier l'influence de nombre et de la position de la cellule sur la performance de la pile à combustible et notamment sur la pression de contact entre la plaque bipolaire et le MEA et sur la résistance de contact. Trois cas de nombre de cellule (2, 5 et 16) avec deux positions (extrémité et centre de la pile) sont étudiés.

Au niveau de la pression de contact entre la plaque bipolaire et le MEA, les résultats montrent qu'une meilleure homogénéité de pression de contact est observée pour un nombre de cellule très grand.

Au niveau de la résistance de contact, les résultats montrent que cette résistance est très grande pour un nombre de cellule très faible. Finalement l'augmentation du nombre de cellule améliore l'uniformité de l'état mécanique.

**Lai, Xinmin, et al. [18]** ont développé un modèle numérique 3D d'une pile à combustible et ont étudié les effets de la pression d'assemblage et la position des boulons de plaque d'extrémité sur la distribution de la pression du MEA. Ils ont montré que la pression d'assemblage  $P$  influe sur la distribution de pression de MEA plus que la position des boulons de la plaque d'extrémité et que la contrainte maximale de la membrane se produit lorsque la pression d'assemblage et la position des boulons sont à leur niveau le plus élevé.

**Akiki, T. [19]** a étudié les effets de différentes pressions de compression sur la déformation de la GDL et la résistance de contact électrique entre GDL/BPP. Un plan d'expérience a été réalisé en prenant trois valeurs des pressions de serrage (1, 5 et 10 MPa) pour trois types de

sections de dent de la plaque bipolaire (section rectangulaire, section trapézoïdale et section trapézoïdale avec congés de raccordement ( $R_{RIB} = 0.2 \text{ mm}$ )) avec les matériaux (acier et graphite). Les résultats de ces différentes simulations montrent qu'à pression très élevée, la plaque bipolaire en graphite à type de dent trapézoïdale correspond à la meilleure performance de la pile. En plus, Les résultats montrent que la résistivité électrique est plus faible sous la dent que sous le canal pour toutes les sections de dents de la plaque bipolaire en graphite, et que lorsque la compression augmente, la résistance de contact diminue.

**Vlahinos, A. et al. [20]** ont étudié l'effet des variations du module d'élasticité des plaques bipolaires ( $E_{BPP} = 5100 \text{ MPa}$ ), l'épaisseur de la plaque bipolaire ( $T_{BPP} = 1.27 \text{ mm}$ ), l'épaisseur de la membrane ( $T_{MEA} = 0.457 \text{ mm}$ ) et la charge du boulon  $F$  (100 N) sur la distribution de pression du MEA. Les résultats numériques ont montré que l'épaisseur de la plaque bipolaire et l'épaisseur de la membrane sont les facteurs les plus influents sur l'uniformité de la pression en haut de la pile. Par contre, la force appliquée sur le boulon, l'épaisseur de la MEA et les modules d'élasticité des plaques bipolaires sont les paramètres les plus influents sur l'uniformité de la pression des MEA au milieu de la pile.

**Muthukumar, M. et al. [21]** ont étudié l'influence de la largeur de canal d'écoulement sur la densité de courant. Un modèle tridimensionnel a été réalisé composé d'un canal d'écoulement sous une température de  $50^\circ\text{C}$  et une pression de 1.5 bar. Les auteurs constatent que la diminution de la largeur de canal d'écoulement produit une densité de puissance maximale.

**Kahveci, E. E., & Taymaz, I. [22]** ont montré que l'augmentation de la largeur de canal d'écoulement de la plaque bipolaire de 0.8 à 1.2 mm entraîne une diminution de la vitesse des gaz dans la couche de diffusion de gaz, ce qui dégrade la performance de la pile en diminuant la densité de courant.

**Bates, A. et al. [23]** ont développé un modèle tridimensionnel dont l'objectif est d'étudier l'influence du couple de serrage, appliqué sur la plaque d'extrémité, et du nombre de cellule sur la répartition de pression de la GDL. Ils ont montré que l'augmentation de couple de serrage sur une pile à une cellule entraîne une augmentation de la contrainte maximale dans les plaques d'extrémité et la plaque bipolaire, par contre la contrainte est proche de zéro au centre de la GDL. Cela signifie que la résistance de contact entre GDL/BPP est fortement élevée au centre provoquant une réduction de la performance de pile.

L'augmentation du couple de serrage peut être une solution pour diminuer la résistance de contact, par contre, l'inconvénient de cette augmentation est une déformation de la membrane et une destruction des matériaux (fissures des plaques bipolaire). Alors, une modification dans l'assemblage de la pile est nécessaire pour améliorer la performance de la pile.

Ensuite, ils ont montré que l'augmentation de nombre de cellule (16 cellules), avec une même valeur de couple de serrage entraîne une modification de la répartition de contrainte dans chaque cellule. Une contrainte de 1MPa est observée au centre de la GDL.

**Toghyani, S. et al. [24]** ont étudié l'influence des plusieurs paramètres mécaniques (épaisseur de la GDL, épaisseur de la membrane, largeur de canal de la plaque bipolaire, pression de serrage...) sur le comportement global de la pile. Ils ont montré que l'augmentation de la pression de serrage fait diminuer l'épaisseur de la GDL, ce qui augmente le transfert de masse dans la GDL et la fraction molaire d'oxygène dans la couche de catalyseur. En plus, les résultats montrent que la tension de sortie de la pile augmente en diminuant l'épaisseur de la membrane et qu'une densité de courant élevée est observée pour une largeur de canal plus faible.

**Zhang, Z. [25]** a défini un modèle 2D paramétrique et a étudié l'influence de la géométrie des dents de la plaque bipolaire sur la distribution de pression entre la GDL/BPP. Il a montré que l'augmentation de rayon de courbure de la dent de la BPP fait diminuer la pression maximale de contact.

**Chang, W. R. et al. [26]** ont étudié l'influence de la géométrie de la plaque d'extrémité sur la performance de la pile. Ils ont montré qu'une distribution de pression plus uniforme est obtenue pour des plaques d'extrémité nouvellement conçues (plaque d'extrémité avec 8 boulons) avec un couple de 2.82 Nm appliqué sur chaque boulon.

**Lai, X. et al. [27]** ont développé un modèle électromécanique bidimensionnel, pouvant simuler simultanément les champs mécanique et électrique, pour prédire la résistance de contact entre la BPP et la GDL sur la base de la résistivité expérimentale de contact interfaciale. En plus, ils ont étudié l'influence de la variation du rayon de courbure de la BPP sur la distribution de la pression de contact entre GDL/BPP. Les résultats montrent que l'augmentation de rayon de courbure de la BPP de 0.1 à 0.6 mm entraîne une diminution de la résistance de contact de 8.5 jusqu'à  $7 * 10^{-3} \Omega$ . Par contre, au-delà de 0.6 mm la résistance de contact commence à augmenter.

**Atyabi, Seyed Ali, et al. [28]** ont développé un modèle 3D multi-physique et étudié l'effet de la pression de serrage sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Les résultats montrent que l'augmentation de la pression de serrage conduit à une localisation de la répartition du courant électrique dans la zone située au coin de la plaque bipolaire. De plus, cette augmentation de la pression de serrage jusqu'à 3,5 MPa entraîne une augmentation du potentiel électrique qui s'accumulera dans la zone proche de la paroi du canal, par contre au-dessus de 3,5 MPa, le potentiel électrique diminue.

**Chien, Chi-Hui, et al. [29]** ont développé un modèle 3D thermomécanique pour étudier l'effet de la pression de serrage sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Les auteurs ont constaté que l'augmentation de la pression de serrage de 1 à 7 MPa conduit d'une part, à une augmentation de la contrainte Von Mises dans la GDL et dans la BPP et d'autre part, à une diminution de la résistance de contact et de la porosité. Ensuite, ils ont montré que la variation de la conductivité et de la porosité en fonction de la pression de serrage permet d'identifier la pression de serrage optimale (4MPa) permettant une meilleure performance de la pile à combustible.

**Zhang, L. et al. [30]** ont étudiée l'effet de la pression de contact sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Les résultats montrent que la résistance de contact diminue très rapidement pour une pression de contact allant de 0.5 à 1 MPa. Par contre, au-delà de 1MPa, la résistance de contact diminue lentement, pour atteindre un seuil inchangé correspondant à une pression de contact de 3 MPa et plus.

**Mason, T. J. et al. [31]** ont étudié l'influence de la compression (allant de 0.5 à 2.5 MPa) sur la performance de la pile. Ils ont montré qu'avec une pression de serrage de 0.5 MPa, une augmentation de la zone de transport de masse de la GDL est observée. Cette augmentation est plus élevée que la diminution de la résistance de contact engendrée par une pression de serrage de 2.5 MPa.

**Jourdani, M. [3]** a développé un modèle bidimensionnel couplé qui prend en compte tous les phénomènes physicochimiques qui se produisent dans le cœur de la pile : le sous-modèle Thermo-Fluide, le sous-modèle Electrochimique et le sous-modèle Mécanique. L'objectif du modèle est d'étudier l'influence des paramètres de fonctionnement (température, pression de gaz, conductivités protoniques) et l'influence des paramètres géométriques des composants (couple de serrage, épaisseur de la membrane et porosité de la GDL) sur la performance de la pile.

Au niveau des paramètres géométriques des composants, les résultats montrent que l'augmentation du *couple de serrage* entraîne l'apparition des concentrations des contraintes au niveau des coins de l'interface couche de diffusion (GDL) et plaque bipolaire (BPP). Cette concentration devient plus importante avec l'augmentation de la pression de serrage ce qui provoque ensuite une réduction de la porosité de la GDL. Au niveau de *l'épaisseur de la membrane*, les auteurs constatent que la réduction de l'épaisseur de la membrane entraîne une augmentation de la tension de la pile. Au niveau de la *porosité de la GDL*, les résultats montrent que l'augmentation de la porosité provoque une augmentation des performances de la pile.

**Zhou, Y. et al. [32]** ont développé un modèle multi-physique et ont étudié l'effet de la pression d'assemblage sur la déformation de la GDL et la résistance de contact. Ils ont montré que la résistance de contact est le paramètre le plus impactant sous les pressions

d'assemblage appliquées. La compression de la GDL entraîne une diminution de la surface de canal de gaz et une porosité variable.

**Habibnia, Mostafa, et al. [33]** ont développé un modèle tridimensionnel électromécanique dont l'objectif est d'étudier l'effet de la pression de serrage et l'épaisseur de la plaque d'extrémité sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Les auteurs ont constaté que l'augmentation de la pression de serrage et de l'épaisseur de la plaque d'extrémité entraîne une diminution de la résistance de contact.

**Mishra, V. et al. [34]** ont étudié expérimentalement l'influence de l'épaisseur de la GDL sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Plusieurs types de la GDL ont été étudiés (GDL -10BA ; GDL-10BB ; B-3/2050 ; B-2/120 ; B-1/B ; B-1/D). Les résultats montrent que la GDL de type 10BA (épaisseur 0.38 mm) présente la plus faible résistance de contact.

**Zhou, P. et al. [35]** ont étudié l'influence de l'épaisseur de deux types de GDL (GDL-10BA et GDL-10BB) et la géométrie de dent de la plaque bipolaire sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Les auteurs ont constaté que la GDL de type 10BA (épaisseur 0.38 mm) présente une faible résistance de contact par rapport au GDL de type 10BB. Au niveau de l'influence de la géométrie de la dent de la BP, les résultats montrent que la dent avec un rayon de courbure entraîne une augmentation de la résistance de contact et une diminution de la porosité de la GDL. Par contre pour la plaque bipolaire à dent rectangulaire, une faible résistance de contact et une porosité élevée de la GDL ont été observées.

**Ahmed, D. H. [36]** présentent un modèle tridimensionnel d'une cellule PEMFC pour étudier l'influence des différentes géométries des canaux de la plaque bipolaire (canal des sections rectiligne et trapézoïdale). Les auteurs ont constaté qu'un canal de section rectangulaire donne des tensions plus élevées par rapport à celui de section trapézoïdale. La simulation montre que la diminution de la largeur de la dent de la plaque bipolaire facilite la distribution des réactifs et permet de réduire les pertes de concentration.

**Mawardi, A. et al. [37]** ont développé un modèle monodimensionnel, non isotherme des phénomènes physiques et un modèle d'échantillonnage stochastique. L'objectif du modèle est d'analyser les effets d'incertitude de neuf paramètres opératoires (la température de la cellule, les pressions à l'anode et à la cathode, les humidités relatives à l'anode et à la cathode, les stœchiométries à l'anode et à la cathode, les fractions molaires dans le gaz sec à l'anode et à la cathode) sur les performances d'une PEMFC. Les auteurs ont constaté qu'après une analyse stochastique de convergence, 100 simulations sont suffisantes pour atteindre des résultats acceptables.

**Peng, L. et al. [38]** ont étudié les effets de l'erreur dimensionnelle de la plaque bipolaire sur la distribution de pression de la GDL. Les auteurs ont constaté que l'écart-type de l'erreur dimensionnelle a une influence plus significative que la moyenne sur l'uniformité de la distribution de pression de la GDL.

**Placca, L. et al. [39]** ont étudié l'effet de différentes vitesses de dégradation de la surface active de la membrane ( $k_2$ ) sur la durée de vie de la PAC ; ceci pour différentes températures de PAC ( $T$ ) et sur des durées de fonctionnement variables ( $t$ ). Ces trois facteurs sont considérés comme étant aléatoires et sont définis par leur moyenne et leur écart-type. Un plan d'expérience factoriel aléatoire a été réalisé composé de six paramètres à deux niveaux. Après analyse des effets des facteurs sur la tension de la cellule, les auteurs ont constaté que le paramètre qui a le plus d'effet sur la dispersion est la température.

**Noguer, N. et al. [40]** ont développé un modèle de connaissance afin d'étudier l'influence des effets des incertitudes de plusieurs paramètres sur la tension de la pile. Ils ont étudié l'influence de la variation aléatoire de la porosité de la GDL, qui suit une loi normale avec une dispersion de 10%, sur la tension de la pile. Les auteurs ont constaté que l'augmentation de la dispersion de la porosité de la GDL de 1% à 5% puis 10%, entraîne une distribution de sortie dont la forme se rapproche de plus en plus d'une loi de type Gamma inversée. Cette forme de distribution de la tension de la pile est physiquement liée à la limite qu'impose la diffusion des réactifs dans le cœur de pile [40].

**Zhang, W. et al. [41]** ont étudié l'influence de sept principaux paramètres tels que : le module de Young de la plaque d'extrémité et de MEA, les positions X et Y des boulons, la pression de chaque boulon, et l'épaisseur de la plaque d'extrémité sur la distribution des contraintes maximales des composants : MEA, plaque bipolaire et plaque d'extrémité. Les auteurs ont constaté que la position X d'un boulon a une influence majeure sur les contraintes maximales de la BPP et de la plaque d'extrémité, tandis que l'épaisseur de la plaque d'extrémité a le plus fort effet sur la contrainte maximale de la MEA. Pour la contrainte maximale de la plaque d'extrémité, il existe deux paramètres sensibles qui sont les positions des boulons  $x_{bolt}$  (mm) et  $y_{bolt}$  (mm). De plus, les résultats montrent que les propriétés du matériau de la plaque d'extrémité et la pression de chaque boulon sont deux facteurs qui influent sur la contrainte maximale de la BPP.

Après avoir présenté l'état de l'art sur les différents modèles de la pile à combustible PEMFC, et comme l'objectif de la thèse est de développer des modèles numériques tridimensionnels éléments finis mécano-probabiliste en tenant compte de l'influence des incertitudes des paramètres de conception mécanique, nous présentons dans le tableau 2.3 le type de modélisations des modèles qui sont en rapport avec le sujet de la thèse.

Modèles	Type de modélisations	Entrées	Résultats
Movahedi, M. et al. [14]	Modélisation 3D multiphysique (Résolution des équations par le logiciel ABAQUS).	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Epaisseur de la GDL</li> <li>- Porosité de la GDL</li> </ul>	La performance de la pile est améliorée avec l'augmentation de la porosité.
Akiki, T. [19]	Modélisation 2D (Résolution des équations par le logiciel COMSOL).	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Pression de serrage</li> <li>- Géométrie de la plaque bipolaire.</li> <li>- Matériaux de la plaque bipolaire</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- A pression de serrage très élevée, la plaque bipolaire en graphite à type de dent trapézoïdale correspond à la meilleure performance de la pile.</li> <li>- La résistivité électrique est plus faible sous la dent que sous le canal pour toutes les sections de dents de la plaque bipolaire en graphite.</li> </ul>
Jourdani, M. [3]	Modélisation 2D multiphasique de couplage thermique-fluidique-mécanique-électrochimique. (Résolution des équations par le logiciel COMSOL).	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Températures</li> <li>- Pression de gaz</li> <li>- Epaisseur d la membrane</li> <li>- Porosité de la GDL</li> <li>- Pression de serrage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- La réduction de l'épaisseur de la membrane entraine une augmentation de la tension de la pile.</li> <li>- L'augmentation de la pression de serrage entraine l'apparition des concentrations des contraintes au niveau des coins de l'interface couche de diffusion (GDL) et plaque bipolaire (BPP).</li> </ul>
Noguer, N. et al. [40]	Modélisation monodimensionnelle de couplage physico-fiabiliste. (Résolution des équations par le logiciel Modelica - Dymola).	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Porosité de la GDL</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- l'augmentation de la dispersion de la porosité de la GDL de 1% à 5% puis 10%, entraine une distribution de sortie dont la forme se rapproche de plus en plus d'une loi de type Gamma inversée. Cette forme de distribution de la tension de la pile est physiquement liée à la limite qu'impose la diffusion des réactifs dans le cœur de pile [40]</li> </ul>

Tableau 2.3 : Typologie des modèles issues de la littérature et qui sont en rapport avec le sujet de la thèse.

## 4 Conclusion

Il apparait clairement que la performance d'une pile est influencée par un grand nombre de paramètres, de natures différentes. Le tableau 2.4 suivant montre les conséquences de la variation des paramètres mécaniques et physiques sur la performance de la pile.

	Paramètres mécaniques	Explications	Conséquences
<b>MEA</b>	Epaisseur (mm) ( $0.051 \leq T_{MEA} \leq 0.183$ )	Déséquilibre dans le flux des ions H <sup>+</sup> à travers la membrane.	Une diminution de l'épaisseur de la membrane réduit sa résistance et diminue les pertes ohmiques.
<b>GDL</b>	Epaisseur (mm) ( $0.11 \leq T_{GDL} \leq 0.377$ )	Transport de masse de la GDL	Une diminution de l'épaisseur de la GDL augmente le transport de masse à travers elle et réduit ainsi les pertes de transport de masse.
	Porosité (%) ( $10 \leq \varepsilon \leq 90$ )	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 de noyage dans la plaque GDL.
	Pression de serrage (MPa) ( $0 < P \leq 10$ )	Déformation de la GDL et impact 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.
<b>BPP</b>	Largeur du canal (mm) ( $0.5 \leq W_{CN} \leq 4$ )	Circulation des gaz réactifs.	Un petit canal conduit à une alimentation insuffisante en gaz réactifs
	Largeur de dent (mm) ( $0.5 \leq W_{Rib} \leq 4$ )	Surface de contact entre la GDL et la plaque bipolaire.	Une petite dent conduit à une résistance de contact élevée à l'interface.
	Rayon de courbure (mm) ( $0.1 \leq R_{RIB} \leq 0.9$ )	Contact entre la plaque bipolaire et la GDL	Lorsque le rayon de courbure augmente, d'une part, la longueur de contact entre la plaque bipolaire et le GDL diminue, ce qui augmente la résistance de contact, mais, d'autre part, une augmentation de la pression de contact entraîne une diminution de la résistance.

Tableau 2.4 : Effets des paramètres mécaniques sur les performances de la pile à combustible [19-42].

Il existe diverses formes de canaux de plaque bipolaire, des géométries de la pile à combustible. Le comportement de la pile va différer en fonction de ces géométries. Afin de pouvoir évaluer l'influence de la géométrie de la pile sur son fonctionnement, il sera nécessaire de développer des modèles numériques éléments finis en 2D ou en 3D. Ces modèles permettront une analyse fine des phénomènes mis en jeu et conduiront à des améliorations.

Après avoir présenté les différents modèles d'études des piles à combustibles, nous avons pu établir les critères suivants :

- Plusieurs études numériques récentes montrent un rôle important de ces paramètres sur la performance de la pile par contre il n'existe pas d'études sur l'influence de la porosité de la GDL, (faible à travers des dimensions des pores) et forte (à travers un modèle homogénéisé de la GDL avec un module d'Young équivalent) sur la répartition des pressions de contact entre les différents composants de la pile : GDL/Plaque bipolaire et GDL/MEA.
- Comme la pile à combustible est un système complexe, la durabilité et la fiabilité restent des phénomènes importants à explorer. La plupart des études antérieures concernant les piles à combustibles se sont focalisées sur les aspects physico-chimiques des piles à combustibles. Ils ont montré l'influence des incertitudes des paramètres physiques, tels que la température, la pression et les coefficients de stœchiométries de l'anode et de la cathode (qui correspondent au rapport entre ce qui est apporté et ce qui est consommé par la PAC) et les vitesses de dégradation de la surface active de la membrane, sur la performance de la pile. Cependant, cette performance est aussi influencée par les incertitudes des paramètres structurels tels que, l'épaisseur de la GDL et de la membrane, la porosité de la GDL et la géométrie des plaques bipolaire. A partir de l'état de l'art présentée précédemment, nous constatons que l'étude des effets des incertitudes des paramètres mécaniques sur la performance de la pile et notamment la répartition des pressions de contact entre les composants n'est pas bien comprise et la littérature sur les aspects mécaniques est peu fournie.

Dans ce contexte, l'objectif de la suite de cette thèse est de développer des modèles numériques tridimensionnels mécano-probabilistes de la répartition des contraintes et des déformations en tenant compte de **l'influence des incertitudes de paramètres de conception mécanique**, dans le but d'améliorer la performance et d'augmenter la durée de vie des composants de la pile.

Dans cette thèse, l'étude des pressions de contact est faite en développant deux modèles : un modèle mécanique en 2D (chapitre 3) et un modèle multiphysique (thermo-électro-mécanique) en 3D (chapitre 4).

- Nous aborderons dans le chapitre 3, la modélisation éléments finis mécanique 2D montrant l'effet des variations de la porosité de la GDL, ainsi que l'effet d'autres paramètres mécaniques et géométriques (épaisseurs de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire) sur les pressions de contact entre les différents composants de la pile GDL/BPP et GDL/MEA et sur la résistance de contact entre GDL/BPP. Dans la deuxième section du chapitre, nous aborderons l'influence des incertitudes de ces paramètres mécaniques sur les pressions de contact.
  
  - Nous aborderons dans le chapitre 4, la modélisation éléments finis multiphysique 3D montrant l'influence des incertitudes de paramètres de conception mécanique sur la répartition des pressions de contact entre la GDL/BPP et GDL/MEA.
-

## Références

- [1] Massonnat, P. (2015). Développement d'un modèle multi physique multidimensionnel de pile à combustible à membrane échangeuse de proton en temps réel pour système embarqué (Doctoral dissertation, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard).
- [2] Mahmah, B., Mraoui, A., Belhamel, M., Moussa, H. B., & Cherigui, A. N. (2007, August). La gestion thermique dans les piles à combustible PEMFC. Albi, France. ENSTIMAC, 5p., 2007, ISBN 978-2-9511591-6-7.
- [3] Jourdani, M. (2019). Simulation Numérique Couplée des Phénomènes Thermo- fluide, Electrochimique et Mécanique dans une Pile à Combustible type PEMFC (Thèse de doctorat, Ecole Mohammadia d'Ingénieurs, Maroc).
- [4] Springer, T. E., Wilson, M. S., & Gottesfeld, S. (1993). Modeling and experimental diagnostics in polymer electrolyte fuel cells. *Journal of the Electrochemical Society*, 140(12), 3513-3526.
- [5] Le Ny, M. (2012). *Diagnostic non invasif de piles à combustible par mesure du champ magnétique proche* (thèse de doctorat de l'université de Grenoble).
- [6] Mishra, V., Yang, F., & Pitchumani, R. (2004). Measurement and prediction of electrical contact resistance between gas diffusion layers and bipolar plate for applications to PEM fuel cells. *Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage*, 1(1), 2-9.
- [7] Tritschler, P. (2010). *Optimisation de l'architecture électrique et gestion d'énergie pour un système à pile à combustible embarquée dédiée à l'application agricole* (Doctoral dissertation UNIVERSITE DE GRENOBLE INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE).
- [8] Candusso, D. (2013). *Contribution à l'expérimentation de générateurs à piles à combustible de type PEM pour les systèmes de transport* (mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches, ENS Cachan).
- [9] Zhang, L., Liu, Y., Song, H., Wang, S., Zhou, Y., & Hu, S. J. (2006). Estimation of contact resistance in proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 162(2), 1165-1171.
- [10] Laurent DUMERCY « Contribution à la caractérisation thermique et fluide d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) », Thèse de Doctorat de l'UFC et de l'UTBM – L2ES, 2004.
- [11] Alejandro Antonio FRANCO « Un modèle physique multi échelle de la dynamique électrochimique dans une pile à combustible à électrolyte polymère, une approche Bond Graph dimension infinie », Thèse de Doctorat de l'université Claude Bernard Lyon, 2005.
- [12] S. Walkiewicz « Etude par spectroscopie d'impédance électrochimique de piles à combustible à membrane échangeuse de protons », DEA Electrochimie INPG – LEPMI 2001.
- [13] Wolfgang FRIEDE « Modélisation et caractérisation d'une pile à combustible du type PEM » Thèse de Doctorat à l'INPL, Nancy et soutenue le 28 août 2003.
- [14] 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.
- [15] 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.
- [16] 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.
- [17] 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.
- [18] Lai, X., Ni, J., Peng, L., Lan, S., & Lin, Z. (2007). Robust design of assembly parameters on membrane electrode assembly pressure distribution. *Journal of Power Sources*, 172(2), 760-767.
- [19] Akiki, T. (2011). Modélisation de la dégradation de la production de puissance d'une pile à combustible suite aux sollicitations mécaniques (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard).

- [20] 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 1<sup>st</sup> International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology*. American Society of Mechanical Engineers Digital Collection, 2003. 111-120.
- [21] 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.
- [22] Kahveci, E. E., & Taymaz, I. (2015). Effect of humidification of the reactant gases in the proton exchange membrane fuel cell. *J Clean Energy Technol*, 3 (5), 356-359.
- [23] 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.
- [24] 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.
- [25] Zhang, Z. (2010). Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible (Thèse de doctorat, Université de Evry-Val d'Essonne, France).
- [26] Chang, W. R., Hwang, J. J., Weng, F. B., & Chan, S. H. (2007). Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell. *Journal of Power Sources*, 166(1), 149-154.
- [27] 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.
- [28] Atyabi, S. A., Afshari, E., Wongwises, S., Yan, W. M., Hadjadj, A., & Shadloo, M. S. (2019). Effects of assembly pressure on PEM fuel cell performance by taking into accounts electrical and thermal contact resistances. *Energy*, 179, 490-501.
- [29] Chien, C. H., Hu, Y. L., Su, T. H., Liu, H. T., Wang, C. T., Yang, P. F., & Lu, Y. X. (2016). Effects of bolt pre-loading variations on performance of GDL in a bolted PEMFC by 3-D FEM analysis. *Energy*, 113, 1174-1187.
- [30] Zhang, L., Liu, Y., Song, H., Wang, S., Zhou, Y., & Hu, S. J. (2006). Estimation of contact resistance in proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 162(2), 1165-1171.
- [31] Mason, T. J., Millichamp, J., Shearing, P. R., & Brett, D. J. (2013). A study of the effect of compression on the performance of polymer electrolyte fuel cells using electro- chemical impedance spectroscopy and dimensional change analysis. *International journal of hydrogen energy*, 38 (18), 7414-7422.
- [32] Zhou, Y., Lin, G., Shih, A. J., & Hu, S. J. (2009). Multiphysics modeling of assembly pressure effects on proton exchange membrane fuel cell performance. *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, 6(4).
- [33] Habibnia, M., Shakeri, M., Nourouzi, S., & Ghasemi Tamami, P. (2016). Investigation and optimization of a PEM fuel cell's electrical and mechanical behavior. *Iranian Journal of Hydrogen & Fuel Cell*, 3(1), 1-10.
- [34] Mishra, V., Yang, F., & Pitchumani, R. (2004). Measurement and prediction of electrical contact resistance between gas diffusion layers and bipolar plate for applications to PEM fuel cells. *Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage*, 1 (1), 2-9.
- [35] Zhou, P., Wu, C. W., & Ma, G. J. (2006). Contact resistance prediction and structure optimization of bipolar plates. *Journal of Power Sources*, 159 (2), 1115-1122.
- [36] Ahmed, D. H., & Sung, H. J. (2006). Effects of channel geometrical configuration and shoulder width on PEMFC performance at high current density. *Journal of Power Sources*, 162(1), 327-339.
- [37] Mawardi, A., & Pitchumani, R. (2006). Effects of parameter uncertainty on the performance variability of proton exchange membrane (PEM) fuel cells. *Journal of power sources*, 160(1), 232-245.
- [38] Peng, L., & Lai, X. (2009). Effect of dimensional error of metallic bipolar plate on the GDL pressure distribution in the PEM fuel cell. *International journal of hydrogen energy*, 34(2), 990-997.

- [39] Placca, L. (2010). *Impact des incertitudes sur le fonctionnement des piles à combustible par approche fiabiliste* (Doctoral dissertation, Thèse UTBM/CEA, soutenue le 17 décembre 2010).
- [40] Noguier, N. (2015). *Aide à l'analyse fiabiliste d'une pile à combustible par la simulation* (thèse de doctorat à l'Université de Technologie de Belfort-Montbéliard).
- [41] Zhang, W., Cho, C., Piao, C., & Choi, H. (2016). Sobol's sensitivity analysis for a fuel cell stack assembly model with the aid of structure-selection techniques. *Journal of Power Sources*, 301, 1-10.
- [42] Chupin, S. (2009). *Comportement local et performances électriques d'une pile à combustible à membrane : vers un outil de diagnostic* (Thèse de doctorat, Université du Québec à Trois-Rivières, Canada).
- [43] MECANIQUE DES SOLIDES ELASTICITE, cours presentee par A. ALLICHE Maître de Conférences à université pierre et marie curie paris, [http://www.dalembert.upmc.fr/home/alliche/images/cours\\_elasticite.pdf](http://www.dalembert.upmc.fr/home/alliche/images/cours_elasticite.pdf)
-

# Chapitre 3

## Modélisation numérique du comportement mécanique d'une cellule de pile et intégration des effets des incertitudes

1	Introduction .....	69
2	Modèle numérique d'une cellule de la pile à combustible .....	70
2.1	Géométrie du modèle par éléments finis.....	71
2.2	Modélisation de la porosité de la GDL .....	72
2.2.1	Modèle de la GDL à pore réel.....	73
2.2.2	Modèle homogénéisé de la GDL .....	73
2.3	Modélisation de la résistance du contact.....	77
2.3.1	Modélisation mécanique.....	77
2.3.2	Modélisation multi-physique .....	78
3	Analyse des résultats numériques .....	79
3.1	Présentation du plan d'expérience (PE) .....	80
3.1.1	Etape 1 : formaliser le problème et définir les objectifs.....	80
3.1.2	Etape 2 : choix des facteurs et de leurs modalités.....	81
3.1.3	Etape 3 : choix des réponses .....	84
3.1.4	Etape 4 : Analyses des résultats .....	84
3.1.4.1	Effets des paramètres.....	84
3.1.4.2	Analyse de la variance (ANOVA).....	84
3.1.4.3	Régression multilinéaire (RML) .....	85
3.2	Plan d'expériences (PE) pour une faible porosité de la GDL ( $10 \leq \epsilon \leq 57\%$ ) .....	86
3.2.1	Choix des modalités et des réponses .....	86
3.2.2	Graphes des effets des paramètres .....	86
3.2.3	Analyse de la variance (ANOVA) .....	88
3.2.4	Régression multilinéaire (RML) .....	89
3.2.4.1	Résultats de la RML et discussion.....	89

3.3	Plan d'expériences (PE) pour une porosité élevée de la GDL ( $68 \leq \varepsilon \leq 88\%$ ).....	91
3.3.1	Choix des modalités .....	91
3.3.2	Choix des réponses.....	91
3.3.3	Analyse des résultats.....	92
3.3.3.1	Graphes des effets.....	92
3.3.3.2	Analyse de la variance (ANOVA).....	93
3.3.4	Régression multilinéaire (RML) .....	94
3.4	Résultats du modèle élément fini pour le cas d'une porosité élevée.....	97
3.4.1	Effet de la pression de serrage sur la résistance de contact entre GDL/BPP. ...	99
4	Définition des notions d'incertitudes .....	100
4.1	Sources des incertitudes.....	101
4.2	Mode de représentation des incertitudes.....	102
4.3	Outils d'analyse de distributions statistiques.....	104
4.4	Modèle de prise en compte des incertitudes.....	105
5	Intégration des incertitudes dans le modèle homogénéisé de la GDL avec un module de Young équivalent ( $68 \leq \varepsilon \leq 88\%$ ) .....	107
5.1	Distributions statistiques des paramètres d'entrées .....	108
5.2	Résultats et discussion.....	108
5.2.1	Distributions statistiques des paramètres de sorties (Y1 : CPRESS GDL/MEA et Y2 : CPRESS GDL/BPP) .....	108
5.2.2	Interprétation physique de la forme de la distribution statistique des sorties (Y1 et Y2)	111
5.3	Etude stochastique menée par l'intermédiaire d'un plan d'expériences numérique	116
5.3.1	Analyse des résultats du plan d'expérience : graphes d'effets.....	117
5.3.1.1	Effets des paramètres sur la réponse Y1 : CPRESS GDL/MEA.....	117
5.3.1.2	Effets des paramètres sur la réponse Y2 : CPRESS GDL/BPP.....	120
5.3.2	Modèle statistique des réponses en fonction des paramètres étudiés .....	125
5.3.3	Validation des modèles statistiques issues de l'étude stochastique .....	126
6	Conclusion .....	129

## Liste des figures

Figure 3.1 : Démarche appliquée pour le modèle mécanique 2D.

Figure 3.2 : Schéma géométrique et conditions aux limites d'une cellule de la pile.

Figure 3.3a : Morphologie de la microstructure de la GDL avec différentes caractéristiques de pores [10].

Figure 3.3b : Modélisation de la GDL à pore réel.

Figure 3.3c : Modélisation de la GDL homogène-poreux

Figure 3.3d : Modélisation de la GDL homogène-continu.

Figure 3.3e : Approche d'identification inverse en utilisant des différents modèles

Figure 3.3f : Choix d'études de deux cas de porosité : faible et forte.

Figure 3.4a : Modélisations proposées pour déterminer la résistance de contact électrique (R).

Figure 3.4b : Modélisation mécanique de la résistance de contact électrique (R)

Figure 3.4c : Modélisation multiphysique de la résistance de contact électrique (R)

Figure 3.5 : Modalités des paramètres d'entrées et réponses étudiées

Figure 3.6 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA (Y1)

Figure 3.7 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP (Y2)

Figure 3.8 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et b) surfaces de réponse pour une faible porosité

Figure 3.9 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et b) surfaces de réponse pour une faible porosité

Figure 3.10a : Modalités des paramètres d'entrées

Figure 3.10b : réponses étudiés

Figure 3.11 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA

Figure 3.12 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP.

Figure 3.13 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et b) surfaces de réponse pour une porosité élevée.

Figure 3.14 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et b) surfaces de réponse pour une porosité élevée.

Figure 3.15 : Distribution de la contrainte Von-Mises et de la pression de contact tout le long de la GDL ( $P=1\text{MPa}$ ).

Figure 3.16 : Répartition de la pression de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP tout le long de la GDL.

Figure 3.17 : Résistivité de contact entre GDL/BPP en fonction de la position de la GDL ( $P=1\text{MPa}$ )

Figure 3.18 : Comparaison de la résistance de contact électrique en fonction de la pression de serrage entre le modèle EF (simulation) et résultats expérimentales.

Figure 3.19 : Sources des incertitudes

Figure 3.20 : Propagation des incertitudes

Figure 3.21 : Représentation schématique de la procédure d'intégration des incertitudes dans le modèle déterministe.

Figure 3.22 : Distributions obtenues sur Y1

Figure 3.23 : Distributions obtenues sur Y2

Figure 3.24 : Distributions obtenues sur  $R_{GDL/BPP}$  pour  $P = 1\text{MPa}$  avec COV 10%.

Figure 3.25 : Distributions obtenues sur  $R_{GDL/BPP}$  pour  $P = 1\text{MPa}$  avec COV 1%.

Figure 3.26 : Distributions des pressions de contact Y1 et Y2 pour deux dispersions des paramètres d'entrées : Coefficient de variation (COV) de 1 et 5%.

Figure 3.27 : Distribution de forme de la porosité de la GDL pour trois coefficients de variation du module de Young de la GDL : a) Coefficient de variation de 1% ; b) Coefficient de variation de 5% et c) Coefficient de variation de 10%

Figure 3.28 : Intervalle de variation de la porosité de la GDL pour trois coefficients de variation du module de Young de la GDL 1,5 et 10%.

Figure 3.29 : Récapitulatif des pourcentages d'effets des paramètres d'entrées et leurs interactions sur les paramètres de forme de la réponse Y1.

Figure 3.30 : Récapitulatif des pourcentages d'effets des paramètres d'entrées et leurs interactions sur les paramètres de forme de la réponse Y2.

Figure 3.31 : Distributions obtenues sur Y1

Figure 3.32 : Distributions obtenues sur Y2

### Liste des tableaux

Tableau 3.1 : Dimensions géométriques et caractéristiques de chaque composant de la pile

Tableau 3.2 : choix des paramètres d'entrées

Tableau 3.3 : Les 27 expériences du plan d'expériences numériques.

Tableau 3.4 : interprétation des effets des paramètres A, B et C sur les réponses (Y1 et Y2).

Tableau 3.5 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/MEA pour une faible porosité de la GDL (S : significatif)

Tableau 3.6 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/BPP pour une faible porosité de la GDL (S : significatif)

Tableau 3.7 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/MEA pour une porosité élevée de la GDL (S : significatif)

Tableau 3.8 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/BPP pour une porosité élevée de la GDL (S : significatif)

Tableau 3.9 : synthèse de la comparaison entre les résultats de deux plans d'expériences faites pour porosité faible et porosité élevée.

Tableau 3.10 : Descriptions des lois statistiques [21].

Tableau 3.11 : Descripteurs de formes des distributions statistiques [21]

Tableau 3.12 : Paramètres de forme de la distribution des paramètres d'entrées.

Tableau 3.13: Paramètres de forme de la distribution de  $R_{GDL/BPP}$  .

Tableau 3.14 : Avantage et inconvénient de la porosité de la GDL sur la répartition des pressions de contact Y1 et Y2.

Tableau 3.15 : Modalités des paramètres du plan d'expériences numérique.

Tableau 3.16 : Effets des paramètres d'entrées sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1).

Tableau 3.17 : Effets des paramètres d'entrées sur l'asymétrie et l'aplatissement de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1).

Tableau 3.18 : Effets des paramètres d'entrées sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

Tableau 3.19 : Effets des paramètres d'entrées sur l'asymétrie et l'aplatissement de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

Tableau 3.20 : Choix des paramètres d'entrées aléatoires pour chaque scénario mauvais et bons.

## 1 Introduction

Ce chapitre a pour objectif de proposer une démarche pour évaluer les effets des paramètres mécaniques d'une cellule de pile à combustible sur sa performance. Cette dernière est fortement influencée par la pression de contact entre les composants. Dans ce contexte, une attention particulière doit être portée sur la répartition des pressions de contact dans une pile. Ces pressions de contact subies par la GDL vont impacter directement les performances électriques de la pile, et plus particulièrement les pertes ohmiques liées à la résistance de contact [1-2].

D'après la conclusion de l'état de l'art présentée dans le chapitre 2, nous constatons que plusieurs études ont été menées en prenant en considération des paramètres de natures différentes influençant la performance de la pile. Cependant, il n'existe pas d'études sur l'influence de la porosité de la GDL (faible (à travers des dimensions des pores) et forte (à travers un modèle homogénéisé de la GDL avec un module de Young équivalent)) sur la répartition des pressions de contact entre les différents composants de la pile : GDL/Plaque bipolaire et GDL/MEA. De plus, l'étude des effets des incertitudes des paramètres mécaniques sur la performance de la pile et notamment la répartition des pressions de contact entre les composants n'est pas bien comprise et la littérature sur les aspects mécaniques est peu fournie.

Ce chapitre vise à comprendre l'influence des incertitudes des paramètres géométrique et mécanique sur la répartition des pressions de contact de la pile à combustible uniquement d'un point de vue mécanique. Cette étude s'effectue par l'intermédiaire d'un plan d'expériences. Pour réaliser ce plan d'expérience dans des temps de calculs raisonnables, nous l'avons associé à un modèle éléments finis mécanique 2D d'une pile à combustible. La figure 3.1 présente la démarche mise en œuvre dans notre étude.

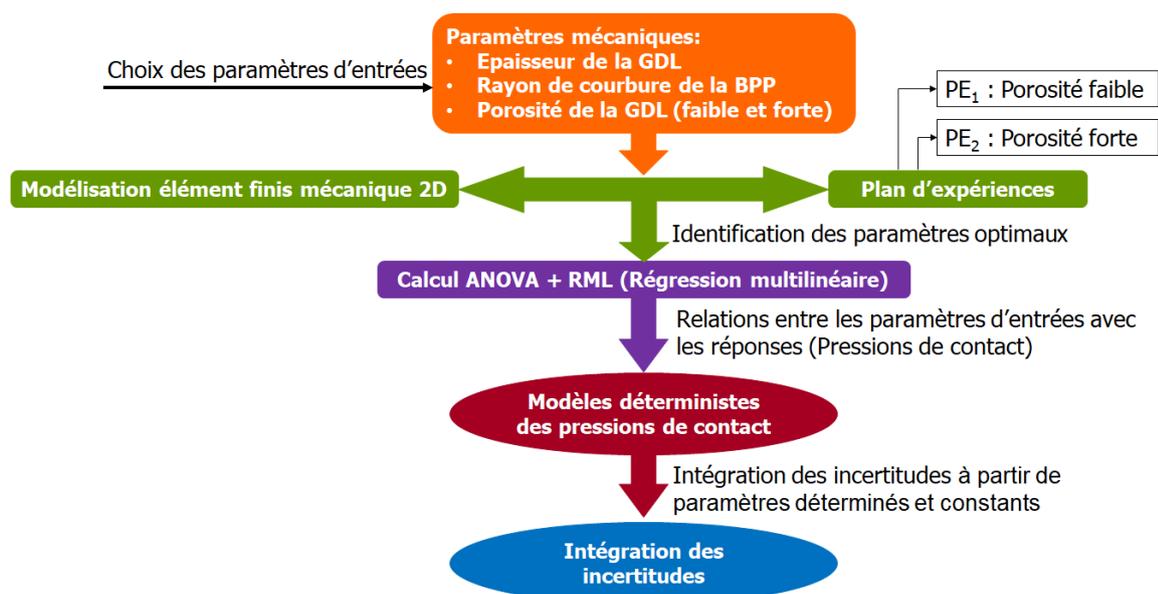


Figure 3.1 : Démarche appliquée pour le modèle mécanique 2D.

Ce chapitre est organisé comme suit :

La section 2.1 présente :

- La géométrie du modèle d'éléments finis 2D.
- La loi de comportement de chaque composant
- Les conditions aux limites
- La résolution du système d'équations se fera par l'utilisation du logiciel ABAQUS.

La section 2.2 présente les deux types de la modélisation proposée pour la porosité de la GDL :

- Modélisation en considérant les pores réels dans la GDL.
- Modélisation qui prend en compte un modèle homogénéisé de la GDL.

La section 2.3 présente les deux types de modélisation de la résistance de contact entre la GDL et la plaque bipolaire :

- Approche mécanique
- Approche multiphysique

La section 3 présente :

- Les résultats obtenus de deux plans d'expériences pour une porosité faible et une porosité élevée.
- Les paramètres optimaux correspondant à une meilleure performance de la pile qui sont ensuite utilisés pour calculer la résistance de contact entre GDL/BPP sous différentes pressions de serrage.
- Une comparaison avec les résultats expérimentaux pour valider l'approche proposée par le plan d'expériences.

La section 4 présente la nature et les principales sources d'incertitudes prises en compte (section 4.1). La section 4.2 présente les éléments méthodologiques concernant le mode de représentation des incertitudes. La section 4.3 présente les outils d'analyse de distributions statistiques. La section 4.4 présente les méthodes de propagation des incertitudes.

La section 5 présente l'étude de l'influence des incertitudes : nous aborderons l'influence sur la répartition des pressions de contact des incertitudes des paramètres de conception mécanique.

Et finalement, dans la dernière section, nous présentons une brève synthèse des points abordés dans ce chapitre.

## 2 Modèle numérique d'une cellule de la pile à combustible

Dans cette section, un modèle d'éléments finis paramétriques 2D d'une pile à combustible a été développé. Nous étudions numériquement, à l'aide du logiciel ABAQUS [3], la répartition

de la pression de contact sous charge mécanique isothermique afin d'optimiser le comportement de la pile à combustible. Ce comportement, représenté par la résistance de contact entre GDL/BPP, dépend de plusieurs paramètres et plus particulièrement, la géométrie de la GDL (porosité et épaisseur), la géométrie de la dent de la plaque bipolaire (rectangulaire, trapézoïdale). D'où la nécessité de présenter les différents types de modélisation de la porosité de la GDL ainsi que de la résistance de contact entre GDL/BPP.

Dans la suite de la section, nous présenterons les deux types de la modélisation proposée pour simuler le comportement de la GDL (porosité) et la résistance de contact entre GDL/BPP.

### 2.1 Géométrie du modèle par éléments finis

En raison de la symétrie de la cellule, du comportement isotherme isotrope et des conditions de charge, seulement deux demi-canaux et une dent de la cellule sont modélisés en 2D sous les hypothèses des déformations planes. La figure 3.2 montre le schéma géométrique et les conditions aux limites de l'assemblage MEA et BPP. Le comportement mécanique de tous les composants est supposé élastique isotrope linéaire (tableau 3.1). Pour assembler la pile, une pression de serrage  $P = 1$  MPa est imposée sur la plaque d'extrémité.

Le contact entre les différents composants est défini par le modèle de Coulomb isotrope avec un coefficient de frottement supposé  $\mu = 0,3$ . Dans ce modèle 2D, des éléments finis quadrilatéraux à huit nœuds à intégration réduite (CPEG8R) sont utilisés pour mailler les composants de la pile.

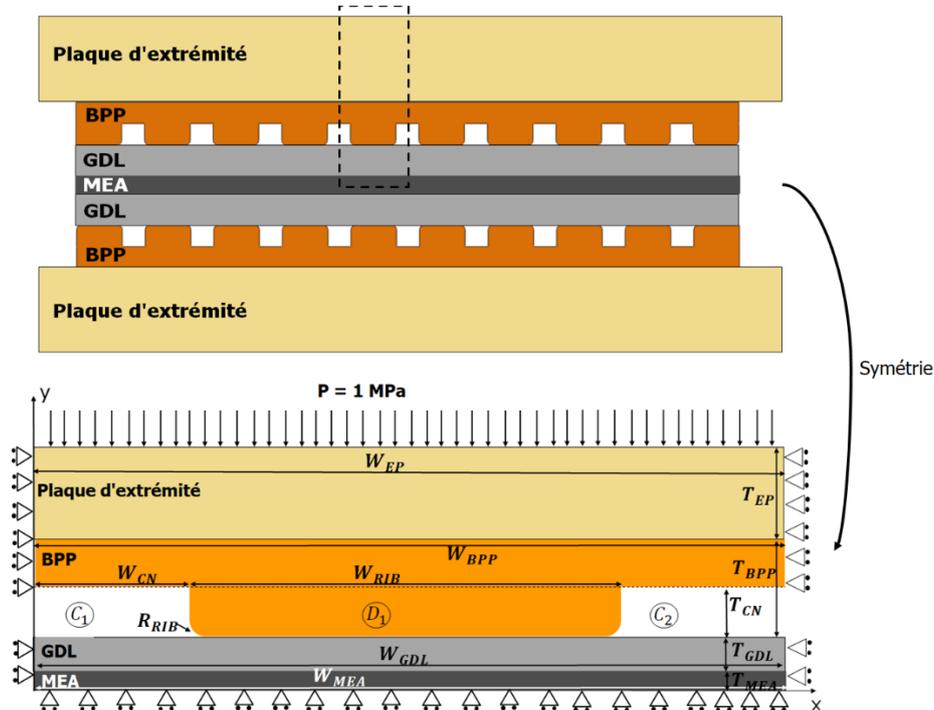


Figure 3.2 : Schéma géométrique et conditions aux limites d'une cellule de la pile.

Composants	Paramètres	Définition	Valeurs	Référence
<b>Plaque d'extrémité</b>	$T_{EP}$	Epaisseur (mm)	5	[6]
	$W_{EP}$	Largeur (mm)	4.2	[6]
	$E_{EP}$	Module d'Young (GPa)	70	[6]
	$\nu_{EP}$	Coefficient de Poisson	0.33	[6]
<b>BPP</b>	$T_{BPP}$	Epaisseur (mm)	1.5	[4]
	$W_{BPP}$	Largeur (mm)	4.2	[6]
	$W_{CN}$	Largeur des canaux (mm)	0.1	[7]
	$W_{RIB}$	Largeurs de dents (mm)	4	-
	$T_{CN}$	Profondeur des canaux (mm)	1	[4]
	$R_{RIB}$	Rayon de courbure (mm)	0.04	[5]
	$E_{BPP}$	Module d'Young (GPa)	200	[6]
	$\nu_{BPP}$	Coefficient de Poisson BPP	0.3	[6]
<b>GDL</b>	$T_{GDL}$	Epaisseur (mm)	0.375	[4]
	$W_{GDL}$	Largeur (mm)	4.2	[6]
	$\varnothing_P$	Diamètres des pores (mm)	0.053	[8]
	$E_{GDL}$	Module d'Young (GPa)	0.00613	[4]
	$\nu_{GDL}$	Coefficient de Poisson GDL	0.3	[4]
<b>MEA</b>	$T_{MEA}$	Epaisseur (mm)	0.045	[6]
	$W_{MEA}$	Largeur (mm)	4.2	[6]
	$E_{MEA}$	Module d'Young (GPa)	0.021	[9]
	$\nu_{MEA}$	Coefficient de Poisson	0.001	[9]

Tableau 3.1 : Dimensions géométriques et caractéristiques de chaque composant de la pile

## 2.2 Modélisation de la porosité de la GDL

La microstructure de la GDL présente plusieurs types (figure 3.3a). Le comportement de la GDL dépend de la fraction de volume occupée par la phase fluide, de la taille des pores, du rapport de la taille entre les pores le plus grand et le plus petit, et de la distance entre les pores. Les caractéristiques des pores (forme, répartition, nombre et dimension) et le comportement mécanique changent en compression ce qui permet de diminuer les performances de l'empilement [10].

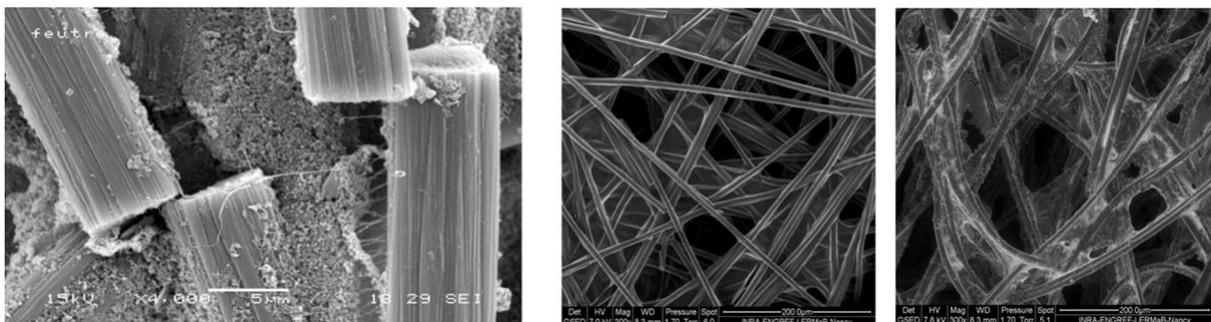


Figure 3.3a : Morphologie de la microstructure de la GDL avec différentes caractéristiques de pores [10].

Deux stratégies de modélisation numérique sont utilisées pour prendre en compte la microstructure de la GDL (**modèle poreux** et **modèle homogène-continu**).

### 2.2.1 Modèle de la GDL à pore réel

Pour modéliser la microstructure de la GDL, la modélisation des pores peut être représentée par des distributions périodiques et aléatoires en utilisant la méthode de conception assistée par ordinateur réalisée en utilisant le script du langage python et le logiciel MATLAB [11]. Dans ce cas, la microstructure réelle de la GDL poreux est basée sur l'hypothèse d'une distribution périodique des pores (figure 3.3b) dans laquelle la porosité varie entre  $10 \leq \epsilon \leq 57\%$ .

La porosité de la GDL est estimée par [4] :

$$\epsilon = \frac{m \cdot \pi \cdot \varnothing_p^2}{4 \cdot W_{GDL} \cdot T_{GDL}} \% \quad \text{Eq. 3.1}$$

Avec  $m$  est le nombre de pores,  $\varnothing_p$  est le diamètre des pores,  $W_{GDL}$  et  $T_{GDL}$  sont respectivement la largeur et l'épaisseur de la GDL et  $E_{GDL}$  est le module de Young.

### 2.2.2 Modèle homogénéisé de la GDL

Dans le modèle homogénéisé, le comportement de la GDL est supposé être celui d'un matériau élastique homogène avec un module d'Young équivalent [12]. Trois méthodes ont été réalisées pour trouver les propriétés élastiques équivalentes de la GDL :

1. *GDL poreuse* : la première méthode correspond à celle du modèle de la GDL à pore réel présenté dans le paragraphe (2.2.1) ci-dessus (figure 3.3b).

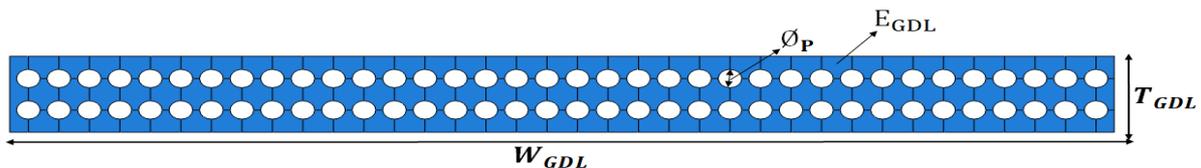


Figure 3.3b : Modélisation de la GDL à pore réel.

2. *GDL homogène-poreuse* : la structure globale de la GDL est considérée à l'échelle macroscopique comme homogène avec des inclusions (figure 3.3c). Dans ce cas, la structure poreuse de la GDL est basée sur l'hypothèse de milieux continus avec inclusions dans lesquels la géométrie de la microstructure des pores est associée à de faibles propriétés mécaniques élastiques  $E_{\text{Pore}} = 0,001 \text{ MPa}$ .

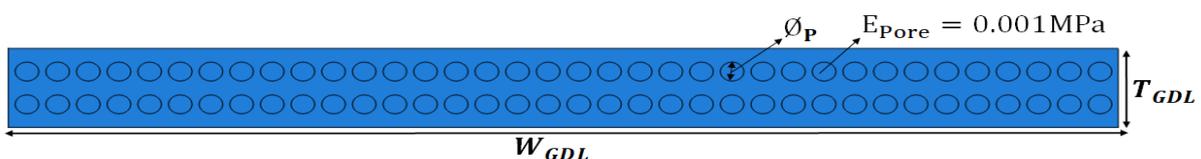


Figure 3.3c : Modélisation de la GDL homogène-poreux

3. *GDL homogène-continue* : Dans ce cas, le modèle de la GDL poreux est réalisé à l'aide de la méthode d'homogénéisation (figure 3.3d). La méthode qui relie la microstructure à l'échelle macroscopique du matériau est le modèle de Mori-Tanaka [13]. Le module d'Young équivalent du matériau de la GDL homogène continu  $E_{eq}$  est estimé numériquement par identification inverse (variation de la pression de contact entre GDL/BPP en fonction de la position de contact GDL). Le module d'Young homogène équivalent du modèle de la GDL poreux est fonction de la porosité de la GDL ( $\varepsilon$ ) et du coefficient  $0 < n < 1$  et est défini par :

$$E_{eq} = E_{GDL} \cdot (1 - \varepsilon)^n \quad \text{Eq 3.2}$$

Avec,  $E_{eq}$  est le module de Young équivalent,  $E_{GDL}$  est le module de Young de la GDL poreux et  $\varepsilon$  est la porosité.

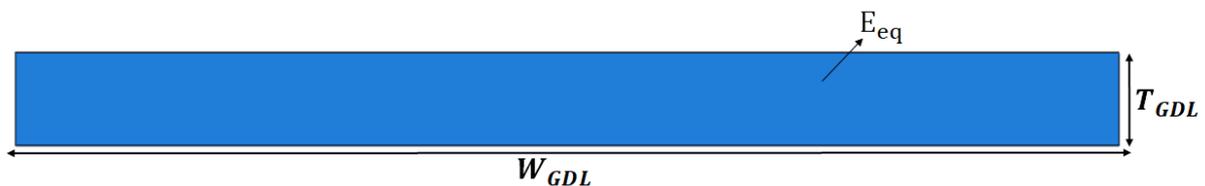


Figure 3.3d : Modélisation de la GDL homogène-continu.

D'une manière résumée, voilà les avantages et les inconvénients des trois modèles montrant les types de la modélisation de la porosité de la GDL.

- Le modèle de la GDL à pore réel permet de prendre en compte les inclusions réelles de la GDL poreux par contre celles-ci nécessitent des maillages importants et des temps de calcul importants. Les phénomènes de contact nécessitent une modélisation robuste de la géométrie de la GDL et plus précisément de ses pores. La difficulté de la modélisation est fortement liée aux caractéristiques singulières de la GDL (faible épaisseur de la GDL, taille des pores).
- L'avantage du modèle de la GDL homogène – poreux permet de considérer les propriétés microstructurales des matériaux poreux de la GDL et ne nécessite pas de grandes mailles, ni d'importants temps de calcul.
- Le modèle de la GDL homogène – continu permet de prendre en compte les propriétés constitutives effectives de la GDL poreuse en utilisant la méthode d'homogénéisation et notamment pour des porosités très élevées. Ce modèle ne nécessite pas de grandes mailles, ni d'importants temps de calcul.

Le graphique de la figure 3.3e montre la variation de la pression entre GDL/BPP en fonction de la position de la GDL correspondant aux trois modèles.

- **Pour le modèle poreux** (graphe en rouge et première figure en haut), une pression de contact nulle est observée sous les canaux correspondant à la zone de décollement entre la GDL et la plaque bipolaire. La pression de contact maximale augmente sous la dent de la plaque bipolaire et se situe au point de détachement de la GDL, ce qui génère un pic de pression ( $C_{press\ maxi} = 3.05\ MPa$ ). Cette pression de contact est répartie quasi-uniformément en dents de scie située entre  $C_{press} = 1,15$  et  $0,83\ MPa$  sous la dent de la BPP. Comme la structure de la GDL est composée des pores de formes circulaires, les pics de pression correspondent aux positions des pores situées sous la dent de la plaque bipolaire : sous la dent de la BPP, il y a 34 pores dans la GDL, ce qui correspond aux 34 pics.
- **Dans le modèle de la GDL homogène-poreux**, où la GDL est composée des pores mais avec un faible module de Young (voir figure 3b), la même variation de la pression de contact entre GDL/BPP est observée.
- **Dans le modèle de la GDL homogène continu** avec un module de Young équivalent, la pression de contact maximale est aussi localisée au niveau de point de détachement de la GDL de la BPP ( $C_{PRESS\ maxi} = 2.4\ MPa$ ). Par contre, ce qui différencie ce modèle des deux premiers modèles, est que sous la dent de la BPP, une répartition uniforme de la pression de contact entre GDL/BPP est observée ( $C_{PRESS} = 1.02\ MPa$ ). Cette pression de contact correspond à la moyenne des dents de scie observée dans les deux premiers modèles.

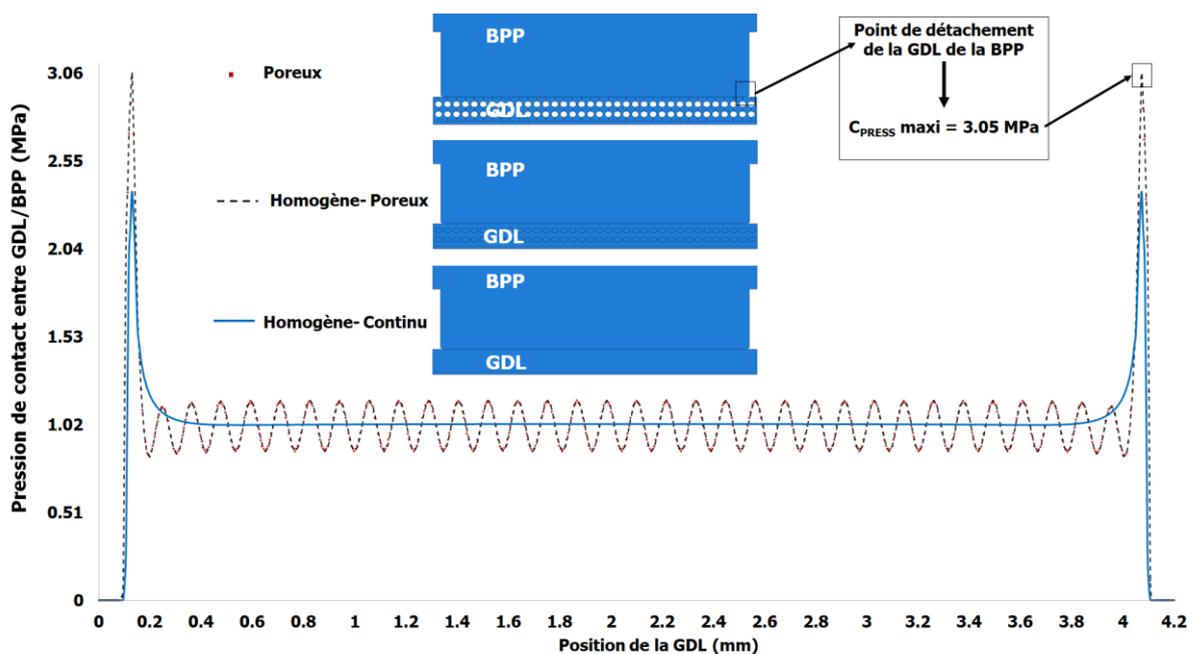


Figure 3.3e : Approche d'identification inverse en utilisant des différents modèles

Comme la GDL est le composant le plus sensible dans la PAC, alors sa structure physique et son comportement initial changent en compression. Une forte pression de serrage entraîne une **diminution de la porosité de la GDL** conduisant à une circulation insuffisante des gaz réactifs : l'eau produite par la réaction électrochimique ne s'évacue plus, ce qui conduit à un phénomène de noyage dans la plaque GDL, et donc à une diminution de la performance de la pile.

La porosité initiale de la GDL varie entre  $60 \leq \varepsilon \leq 90\%$  pour des épaisseurs comprises entre  $250 \leq T_{GDL} \leq 450 \mu\text{m}$ , par contre lors de la compression, afin d'assurer l'étanchéité, elle diminue de 10 à 40%. Afin d'assurer une étanchéité entre les différents composants de la pile, une pression de serrage optimale doit être identifiée.

Notons que la performance de la pile est améliorée par une diminution de la résistance de contact entre GDL/BPP (R) et l'augmentation de la conductivité et de la porosité de la GDL. Donc, la variation de la conductivité et la porosité de la GDL en fonction de la pression de serrage nous permet d'identifier la pression de serrage optimale ( $P_{Optimale}$ ) correspondant à une meilleure performance de la pile. Cette pression de serrage optimale identifiée peut correspondre à une porosité inférieure à 60% (zone de la porosité faible) (Figure 3.3f).

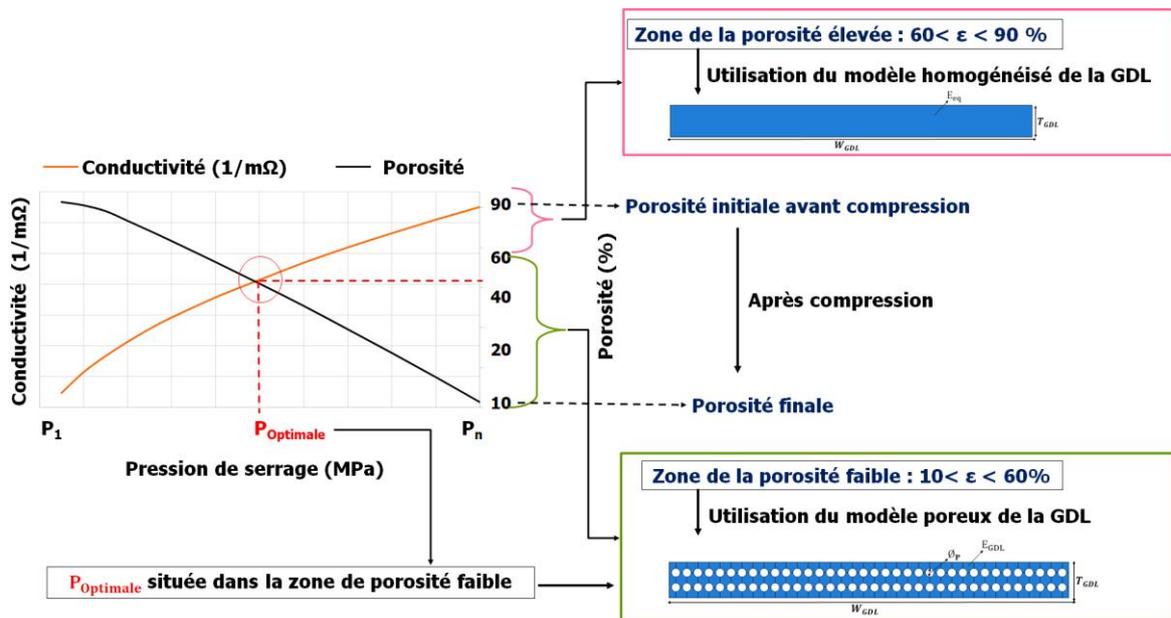


Figure 3.3f : Choix d'études de deux cas de porosité : faible et forte.

Il apparaît donc nécessaire d'étudier l'influence de deux cas de la porosité : Faible (inférieure à 60%) et Forte (supérieure à 60%). En se référant aux avantages et inconvénients des modèles montrant la modélisation de la porosité de la GDL, nous pouvons retenir le modèle poreux pour l'étude de faible porosité et le modèle homogénéisé pour l'étude de forte porosité sur la performance de la pile. Cette dernière performance est représentée par la résistance de contact entre GDL/BPP. Cette résistance de contact peut être calculée par deux types de modélisations différentes présentées dans la section 2.3 suivante.

### 2.3 Modélisation de la résistance du contact

Parmi les composants de la pile, la GDL et la plaque bipolaire, constituent des éléments principaux qui occupent plus de 80% de la masse de la pile. Le contact mécanique entre GDL/BPP dépend fortement de l'aire de contact réel qui permet le passage du courant électrique affectant ainsi la résistance de contact électrique.

Plusieurs études ont montré que 59% de la perte de puissance sont dues à la résistance de contact BPP/GDL [14]. Cet état de contact dépend fortement de la pression de serrage, de l'épaisseur de chaque composant, de la porosité et de la perméabilité de la GDL, de la largeur du canal de la BPP. L'objectif est d'identifier les paramètres des piles à combustible qui ont le plus d'influence sur la conductivité électrique de l'assemblage.

Pour déterminer la résistance de contact électrique dans la pile à combustible, deux modélisations ont été proposées (figure 3.4a).

- Mécanique
- Multiphysique

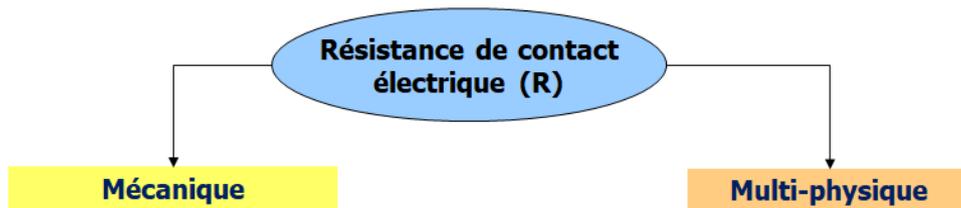


Figure 3.4a : Modélisations proposées pour déterminer la résistance de contact électrique

#### 2.3.1 Modélisation mécanique

Pour une modélisation mécanique, la pile à combustible est soumise à une charge mécanique isotherme ( $P = 1\text{MPa}$ ) pour estimer la surface de contact  $S_{\text{GDL/BPP}}$  et la pression de contact  $C_{\text{press}}$  entre la GDL/BPP. Ensuite, la résistance de contact électrique  $R$  entre la GDL/BPP est estimée analytiquement en utilisant la relation de réponse non linéaire [15] (figure 3.4b).

$$R = \frac{A}{S_{\text{GDL/BPP}}} * \left( \frac{B}{C_{\text{press}}} \right)^{\beta} \quad \text{Eq. 3.3}$$

Avec :

- $S_{\text{GDL/BPP}}$  ( $\text{mm}^2$ ) est la surface de contact entre GDL/BPP,
- $C_{\text{press}}$  (MPa) est la pression de contact interfaciale mécanique GDL/BPP ;
- $A = 3.32 \text{ E-01 } \Omega \cdot \text{mm}^2$  ;
- $B = 1.01 \text{ MPa}$  ;
- $\beta = 0.534$
- $A$ ,  $B$  et  $\beta$  sont les coefficients interfaciaux électriques et mécaniques de la BPP et de la GDL estimés expérimentalement [16].

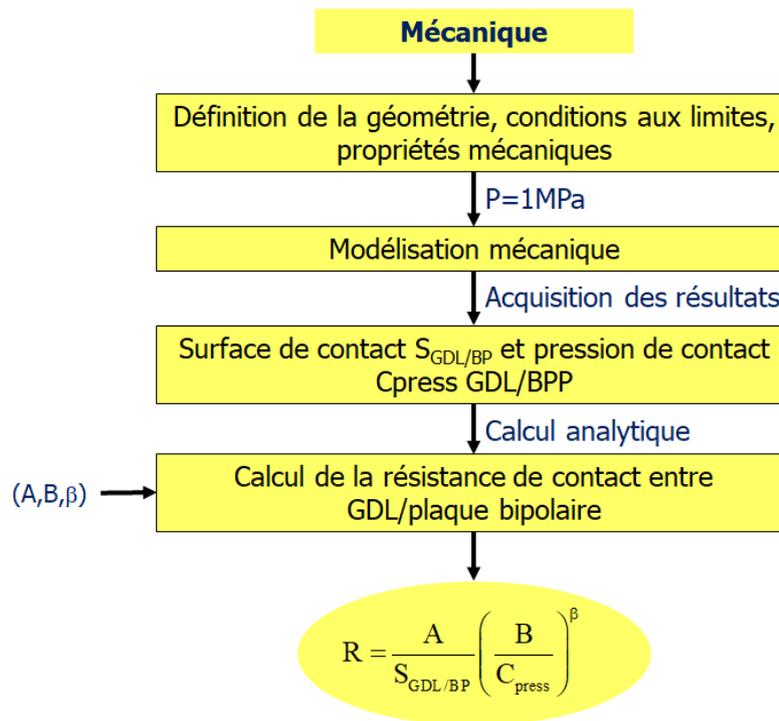


Figure 3.4b : Modélisation mécanique de la résistance de contact électrique (R)

La modélisation mécanique est adaptée pour estimer indirectement la résistance électrique en déterminant la répartition mécanique de la pression de contact et la surface de contact entre GDL/BPP.

### 2.3.2 Modélisation multi-physique

Pour une modélisation multiphysique, la pile à combustible est soumise à des charges mécaniques ( $P = 1\text{MPa}$ ) et électriques (densité de courant  $J$  ( $\text{A}/\text{mm}^2$ ) à l'interface GDL/BPP) pour estimer directement le potentiel de deux côtés de l'interface GDL/BPP (figure 3.4c).

La résistance de contact électrique entre la GDL/BPP est estimée en utilisant la relation :

$$R = \frac{E_{\text{pot}}(BPP) - E_{\text{pot}}(GDL)}{J} \quad \text{Eq. 3.4}$$

Avec :

- $J$  ( $\text{A}/\text{mm}^2$ ) est la densité de courant à l'interface GDL/BPP,
- $(E_{\text{pot}}(BPP) - E_{\text{pot}}(GDL))$  est la différence de potentiel électrique des deux côtés de l'interface GDL/BPP.

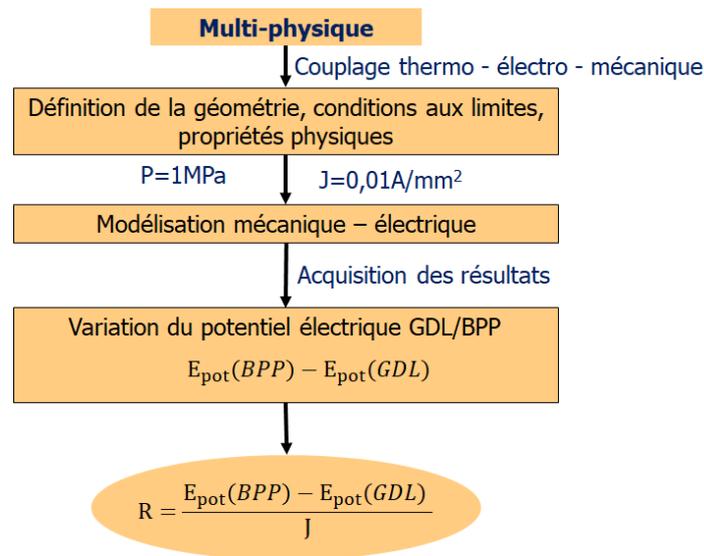


Figure 3.4c : Modélisation multiphysique de la résistance de contact électrique

La modélisation multi-physique est adaptée pour intégrer tous les phénomènes physiques dans la pile à combustible (mécanique, électrique et thermique). Cette modélisation donne des excellents résultats et permet d'estimer directement la résistance électrique entre GDL/BPP en intégrant la pression de serrage mécanique et les propriétés électriques de tous les composants des piles à combustible. Celle-ci sera l'objet du chapitre 4.

Dans ce chapitre, nous avons opté pour une résolution analytique de la résistance de contact (modélisation mécanique). Comme déjà montré dans la figure 3.4b, cette résistance de contact électrique est déterminée en fonction de la pression de contact ( $C_{PRESS}$ ). Cette pression de contact va nous donner des résultats en fonction de certains nombres des paramètres. Et ces paramètres, nous allons les faire varier pour étudier leurs effets.

Le choix de ces paramètres ainsi que l'analyse des résultats numériques (effets des paramètres sur les pressions de contact) sont présentées dans la section 3 suivante.

### 3 Analyse des résultats numériques

La pression de contact ( $C_{PRESS}$ ) entre les composants de la pile est fortement influencée par plusieurs paramètres de natures différentes. Cependant, l'état de l'art du chapitre 2 montre qu'il n'existe pas des études sur l'influence de la porosité de la GDL (faible (à travers des dimensions des pores) et forte (à travers un modèle homogénéisé de la GDL avec un module d'Young équivalent) sur la répartition des pressions de contact ( $C_{PRESS}$ ) entre les différents composants de la pile.

Dans ce contexte, parmi ces différents paramètres, nous avons choisi trois paramètres principaux influençant fortement la pression de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA et qui sont :

- L'épaisseur de la GDL ( $T_{GDL}$ )
- Le rayon de courbure de la plaque bipolaire ( $R_{RIB}$ ).
- La porosité de la GDL

Notons que la porosité de la GDL peut être modélisée par deux modèles : modèle poreux et modèle homogénéisé qui ont des avantages et des inconvénients. En plus, cette porosité est influencée par la pression de serrage comme déjà montré dans la figure 3.3f. Pour ces raisons, nous proposons d'étudier l'effet de deux cas de la porosité de la GDL, sur la répartition de la pression de contact entre la GDL/MEA et la GDL/BPP :

- Porosité faible représentée par les diamètres des pores de la GDL en utilisant le modèle poreux de la GDL.
- Porosité élevée représentée par le module de Young équivalent de la GDL en utilisant le modèle homogénéisé de la GDL.

Les raisons des choix des trois paramètres sont détaillées dans la section 3.1.2 ci-après. En faisant varier ces paramètres d'entrées, il est possible d'observer leurs impacts sur la répartition des pressions de contact entre GDL/MEA et la GDL/BPP. Pour faire varier ces paramètres et étudier leurs effets, la méthode du plan d'expériences (PE) s'impose. Le paragraphe 3.1 suivant présente la définition et la méthodologie de la méthode des plans d'expériences.

### 3.1 Présentation du plan d'expérience (PE)

Selon la norme ISO 3534-3 [17], la méthode du PE est basée sur plusieurs essais structurés dans lesquels nous faisons varier plusieurs paramètres en entrées afin de visualiser l'influence de ces variations sur les paramètres de sorties. L'utilisation de cette approche permet de déterminer les paramètres les plus influents sur le comportement de la pile et de mettre en évidence les interactions éventuelles qui lient ces paramètres [18]. Cette approche statistique conduit à une meilleure connaissance du système pour un nombre d'essais minimale et permet d'améliorer la modélisation mathématique en optimisant la performance du système pile à combustible. D'une manière générale, la méthode des plans d'expériences peut être décomposée selon les étapes suivantes :

#### 3.1.1 Etape 1 : formaliser le problème et définir les objectifs

La première étape consiste à formaliser le problème et définir les objectifs de l'étude. Dans notre étude, l'objectif est d'améliorer la modélisation éléments finis pour atteindre un optimum en pression de contact. Cet optimum en pression de contact permet de réduire la résistance de contact électrique et conduit par conséquent à une augmentation de la performance de la pile.

Cette amélioration passe par :

- L'étude de l'influence des paramètres mécaniques sur la pression de contact entre les composants de la pile.
- Une identification des paramètres les plus influents sur le comportement de la pile à combustible et des interactions éventuelles qui lient ces paramètres.

### 3.1.2 Etape 2 : choix des facteurs et de leurs modalités

En fonction des objectifs définis, la deuxième étape consiste à choisir les facteurs ainsi que leurs modalités. Les facteurs sont les paramètres du système susceptibles d'avoir une influence sur un phénomène. Ces facteurs sont définis par un intervalle sur lequel ces paramètres sont testés. Cet intervalle s'appelle le domaine de variation du facteur et peut être limité par un ou plusieurs niveaux :

- Le niveau bas ou niveau inférieure noté souvent -1
- Le niveau haut ou niveau supérieur noté souvent +1.

Dans notre cas d'étude, puisque l'objectif est d'étudier la répartition des pressions de contact entre les composants de la pile, nous avons choisi trois facteurs principaux qui influencent fortement les pressions de contact : épaisseur de la GDL (paramètres A), rayon de courbure de la BPP (paramètre B) et la porosité de la GDL (paramètre C) (tableau 3.2).

Paramètres d'entrées		modalités			
		-1	0	1	
<b>A</b>	Epaisseur de la GDL (mm)	0.192	0.28	0.375	
<b>B</b>	Rayon de courbure de la plaque bipolaire (mm)	0.04	0.1	0.2	
<b>C</b>	Porosité de la GDL	Porosité faible représentée par les <b>diamètres des pores</b> ( $\mu\text{m}$ )	53	74	90
		Porosité élevée représentée par le <b>module de Young de la GDL</b> (MPa)	4.59	4.99	5.25

Tableau 3.2 : choix des paramètres d'entrées

Plusieurs raisons existent pour le choix de ces trois paramètres :

- **Epaisseur de la GDL (paramètre A)** : nous avons vu dans l'état de l'art présentée dans le chapitre 2, que plusieurs études expérimentales ont été menées pour étudier l'influence de plusieurs types de GDL, caractérisés par leurs épaisseurs, sur la résistance de contact électriques entre GDL/BPP. Expérimentalement, les résultats montrent que l'augmentation de l'épaisseur de la GDL entraîne une diminution de la résistance de contact entre GDL/BPP. Il apparaît donc nécessaire d'étudier numériquement l'influence de la variation de l'épaisseur de la GDL sur la répartition

de pressions de contact entre les composants de la pile. Nous avons choisi trois modalités qui correspondent à trois types de GDL les plus étudiés expérimentalement :

- TGP-H-060 qui correspond à une épaisseur de 0.192
  - TGP-H-090 qui correspond à une épaisseur de 0.28
  - TGP-H-120 qui correspond à une épaisseur de 0.375
- **Rayon de courbure de la plaque bipolaire (paramètre B)** : le dimensionnement des dents de la plaque bipolaire a un impact fort sur la performance de la pile. Parmi les dimensions de la BPP, le rayon de courbure présente une forte influence notamment sur les pressions de contact et la surface de contact entre la GDL et la plaque bipolaire. Lorsque le rayon de courbure de la BPP ( $R_{RIB}$ ) augmente, d'une part, la longueur de contact entre la plaque bipolaire et le GDL diminue, ce qui augmente la résistance de contact, mais, d'autre part, la pression de contact augmente ce qui diminue la résistance de contact. Nous avons vu, dans la section 2.3.1 ci-dessus que pour une modélisation mécanique, la résistance de contact est estimée en fonction de la pression de contact entre GDL/BPP et la surface de contact entre ces deux composants (Eq. 3.3). Donc, la diminution du rayon de courbure de la plaque bipolaire (paramètre B) fait augmenter la surface de contact entre GDL/BPP. Cette augmentation de la surface de contact entraîne une diminution non linéaire de la résistance de contact entre GDL/BPP. Pour ces raisons, nous avons choisi trois modalités du rayon de courbure (faible 0.04 mm, forte 0.2 mm et moyenne 0.1 mm) afin d'étudier leurs effets sur les répartitions des pressions de contact.
- **Porosité de la GDL (paramètre C)** : la porosité est un paramètre vital qui va avoir un impact direct sur les pressions de contact entre les différents composants de la pile. Cette porosité est liée aux paramètres géométriques de la GDL notamment son épaisseur ainsi que les diamètres des fibres de carbone. Comme déjà évoquée dans la figure 3.3f de la section 2.2, notre étude se fera sur deux cas de porosité : porosité faible et porosité élevée qui correspondent à deux plans d'expériences effectués sur la base des mêmes paramètres.

Dans cette étape, après avoir défini les paramètres d'entrées ainsi que leurs modalités, la tâche suivante consiste à choisir le type de plan adapté au plan d'expériences (Plan complet, plan fractionnaire, ...). La réalisation du plan d'expériences peut être simple ou compliquée suivant le nombre de facteurs étudiés. Un plan complet considère toutes les interactions possibles entre les différents facteurs choisis. Par contre l'inconvénient de ce plan réside dans le nombre d'expériences et le temps de calcul importants. La question est alors de savoir s'il est possible de diminuer le nombre d'expériences tout en gardant une précision acceptable des résultats sans pour autant réaliser tous les essais du plan complet. Plusieurs travaux ont débouché sur les plans fractionnaires, qui sont réalisés sur l'hypothèse que certaines

interactions sont insignifiantes, et par conséquent peuvent être négligeables. Par exemple, les interactions du troisième ordre sont négligeables, ce qui est une hypothèse souvent réaliste. Les avantages de ces plans résident dans le fait qu'ils demandent moins d'essais.

Dans notre étude, puisque le temps de calcul d'une expérience est 4 min, nous avons retenus trois modalités pour chacun des paramètres. Nous avons donc un plan à trois paramètres et trois modalités soient un plan complet de 27 expériences. Le plan est synthétisé dans le tableau 3.3 suivant. Comme chaque paramètre du tableau 3.2 a trois modalités, ce qui donne des effets non linéaires.

N° Expérience	Epaisseur de la GDL(A)	Rayon de courbure de la plaque bipolaire (B)	Diamètre pore GDL (C)
1	-1	-1	-1
2	0	-1	-1
3	1	-1	-1
4	-1	0	-1
5	0	0	-1
6	1	0	-1
7	-1	1	-1
8	0	1	-1
9	1	1	-1
10	-1	-1	0
11	0	-1	0
12	1	-1	0
13	-1	0	0
14	0	0	0
15	1	0	0
16	-1	1	0
17	0	1	0
18	1	1	0
19	-1	-1	1
20	0	-1	1
21	1	-1	1
22	-1	0	1
23	0	0	1
24	1	0	1
25	-1	1	1
26	0	1	1
27	1	1	1

Tableau 3.3 : Les 27 expériences du plan d'expériences numériques

### 3.1.3 Etape 3 : choix des réponses

La troisième étape représente les réponses étudiées. Ces réponses sont les grandeurs mesurées afin de connaître les effets des facteurs sur le système. Dans cette étude, les réponses sont :

- La répartition des pressions de contact entre GDL/MEA
- La répartition des pressions de contact entre GDL/BPP.

### 3.1.4 Etape 4 : Analyses des résultats

La quatrième étape consiste à analyser les résultats des réponses. L'analyse des résultats consiste à établir les graphes des effets des paramètres, ensuite analyser les valeurs des réponses (analyse de la variance ANOVA) et finalement déterminer la relation entre les paramètres d'entrées et les paramètres de sorties (Y1 et Y2). Ces différentes étapes sont détaillées dans les parties suivantes :

#### 3.1.4.1 Effets des paramètres

Cette partie consiste à analyser les résultats des réponses en calculant les effets et les interactions entre les différents paramètres. Le calcul de leurs effets aide à trouver la relation qui lie les réponses Y1 et Y2 aux valeurs des paramètres d'entrées A, B et C. Le calcul d'effet principal du paramètre x au niveau i, noté  $E_{xi}$  peut être calculé selon l'équation 3.5 :

$$E_{xi} = \text{Moyenne des reponses lorsque } x \text{ est au niveau } i - \text{Moyenne generale} \quad \text{Eq 3.5}$$

#### 3.1.4.2 Analyse de la variance (ANOVA)

Après avoir calculé les effets des paramètres d'entrées, l'étape suivante consiste à analyser les valeurs des réponses dont le but est de mesurer l'influence des paramètres sur la variation constatée de la réponse. Pour atteindre cet objectif, il est apparu judicieux de procéder à une analyse de la variance. L'outil statistique « ANOVA » consiste à déterminer à partir de quel seuil un effet peut être considéré comme significatif. Les résultats de l'analyse de variance sont récapitulés dans un tableau de 7 colonnes :

- La première colonne représente les différents paramètres choisis ainsi que l'interaction entre eux.
- La deuxième est le degré de liberté (ddl) associé à chaque facteur.
- La troisième correspond à la somme des carrés des écarts (SCE) due à la variance du paramètre (nombre intermédiaire qui permet de calculer la variance de chaque paramètre) [21].
- La quatrième représente le pourcentage de contribution du facteur.
- La cinquième colonne, la variance qui représente une mesure de dispersion.
- La sixième colonne représente le test F.
- La dernière colonne (Prob>F) permet de savoir à partir du seuil  $\alpha$  choisi, l'importance de l'effet du facteur.

### 3.1.4.3 Régression multilinéaire (RML)

Après avoir obtenu les paramètres significatifs pour chacune des deux réponses étudiées, l'étape suivante consiste à modéliser les relations entre les paramètres d'entrées avec les réponses à travers la méthode de la régression multilinéaire. Cette modélisation en surface de réponse est faite pour estimer les paramètres d'un modèle précis, en mesurant la dépendance de la ou des réponses à l'égard des entrées du processus. La référence [22] détaille l'implémentation de cette méthode statistique.

La méthode de la régression multilinéaire est l'outil statistique le plus habituellement mis en œuvre pour l'étude de données multidimensionnelles.

L'équation générale de la régression multilinéaire est simple et est de la forme :

$$\hat{Y} = X \cdot a_i \quad \text{Eq. 3.6}$$

$$y = \hat{Y} + \varepsilon \quad \text{Eq. 3.7}$$

$y$  est la fonction mathématique des réponses (résultats obtenue dans ABAQUS),  $\hat{Y}$  est le vecteur des approximations polynomiales ( $Y_1, Y_2$ ),  $\varepsilon$  correspond à l'écart de la modélisation,  $X$  est la matrice des modèles (matrices d'effets) et  $a_i$  représente le vecteur colonne des coefficients estimés.

L'estimation de ces coefficients du modèle dépend donc de la matrice d'effets ( $X$ ) et des valeurs des réponses ( $y$ ) et sont ajustées par la méthode de moindres carrés. Ils sont de la forme suivante :

$$a_i = (X^t \cdot X)^{-1} \cdot X^t \cdot y \quad \text{Eq. 3.8}$$

Le modèle matriciel de l'équation de la régression multilinéaire s'écrit sous la forme classique suivante :

$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ \vdots \\ Y_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & X_{11} & X_{12} & \dots & X_{1,p-1} \\ 1 & X_{21} & X_{22} & \dots & X_{2,p-1} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \dots & \vdots \\ 1 & X_{n1} & X_{n2} & \dots & X_{n,p-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_0 \\ \alpha_1 \\ \vdots \\ \alpha_{p-1} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} e_1 \\ e_2 \\ \vdots \\ e_n \end{bmatrix} \quad \text{Eq. 3.9}$$

L'objectif est donc le calcul du vecteur  $a_i$ .

Une fois le vecteur  $a_i$  déterminé, nous pouvons établir les relations entre les réponses ( $Y_1$  et  $Y_2$ ) en fonction des paramètres d'entrées ( $A, B$  et  $C$ ).

Maintenant, nous allons présenter le premier plan d'expériences qui a été fait avec une faible porosité.

### 3.2 Plan d'expériences (PE) pour une faible porosité de la GDL ( $10 \leq \epsilon \leq 57\%$ )

#### 3.2.1 Choix des modalités et des réponses

La figure 3.5 présente les facteurs, leurs modalités et les réponses étudiées.

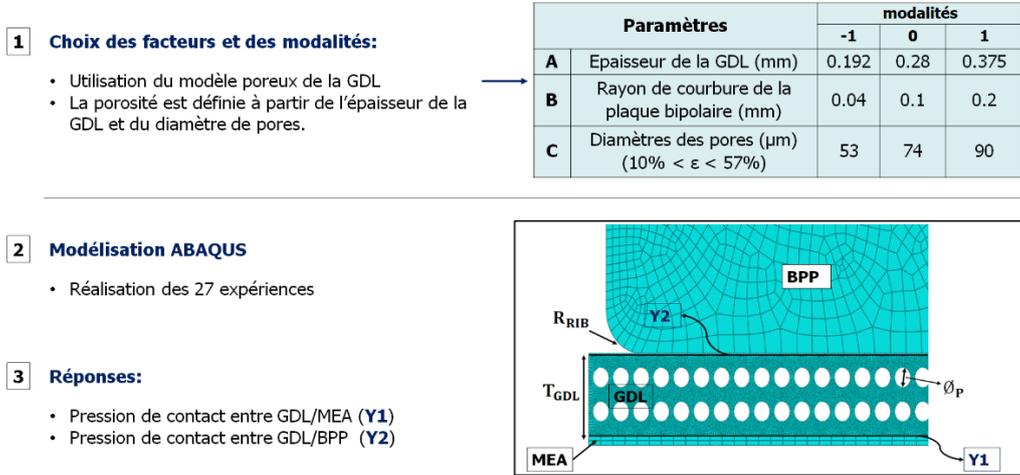


Figure 3.5 : Modalités des paramètres d'entrées et réponses étudiées

#### 3.2.2 Graphes des effets des paramètres

Les figures 3.6 et 3.7 montrent respectivement les graphes des effets de ces trois paramètres sur la pression de contact GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2).

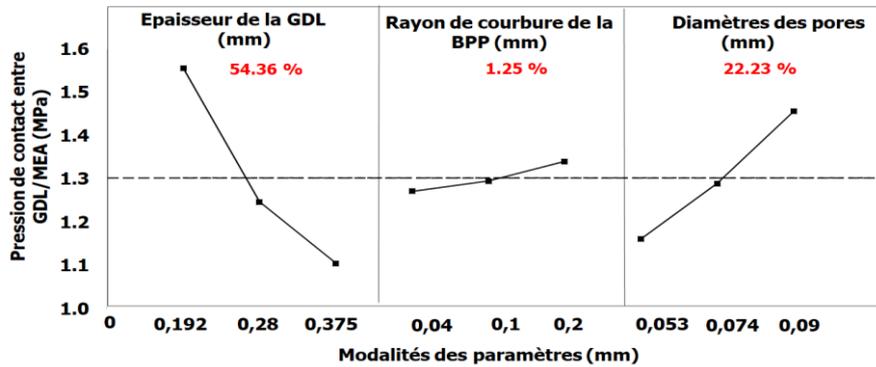


Figure 3.6 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA (Y1)

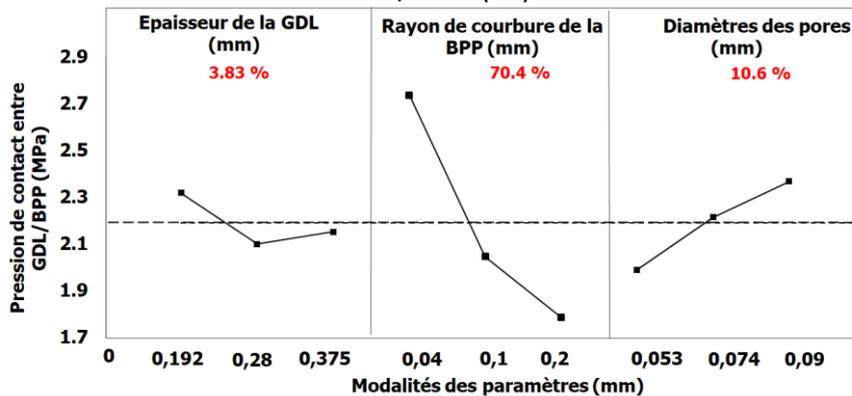


Figure 3.7 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP (Y2)

Le tableau 3.4 explique les effets des paramètres A, B et C (observés sur les figures 3.6 et 3.7) sur les pressions de contact Y1 et Y2.

Paramètres	Pression de contact entre GDL/MEA (Y1)	Pression de contact entre GDL/BPP (Y2)
<b>A : épaisseur de la GDL</b>	Une faible épaisseur de la GDL tend à augmenter la pression de contact de 1,105 à 1,56 MPa (influence significative : 54,36%). Avec l'augmentation de la pression de contact, une plus grande quantité d'eau favorise l'hydratation de la membrane.	Une diminution de l'épaisseur de la GDL tend à augmenter la pression de contact (Y2). Par conséquent, cela conduit à une meilleure évacuation de l'eau liquide et à une diminution de la résistance de contact entre GDL/BPP et donc à une amélioration de la performance de la pile à combustible.
<b>B : Rayon de courbure de la BPP</b>	Une faible influence a été observée (1.25%)	Lorsque le rayon de courbure augmente, la pression de contact entre GDL/BPP diminue de 70,24% (influence significative) de 2,75 à 1,8 MPa (mêmes résultats trouvés et observés dans [4]).
<b>C : Diamètres des pores</b>	<p>Une augmentation des diamètres des pores (de <math>\varnothing_p = 0,053</math> à <math>0,09</math> mm) :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Tend à augmenter de 22,23% la pression de contact GDL/MEA de 1,16 à 1,46 MPa. Cette augmentation de la pression de contact améliore la diffusion des gaz réactifs des canaux de la plaque bipolaire vers la membrane, ce qui évite les phénomènes de séchage de la membrane et améliore ainsi les performances de la pile.</li> <li>- Conduit à une augmentation de la porosité de la GDL : les effets des diamètres des pores doivent être liés à l'épaisseur de la GDL. En fixant les diamètres des pores dans la GDL à son niveau élevé (<math>\varnothing_p = 0,09</math> mm), les résultats du plan d'expériences montrent que la diminution de l'épaisseur de la GDL de 0,375 mm à 0,192 mm entraîne une augmentation de la porosité de 30 % à 57%.</li> </ul>	<p>L'augmentation du diamètre des pores <math>\varnothing_p</math> de 0,053 à 0,09 mm entraîne :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Une augmentation de la porosité GDL (<math>\epsilon</math>) de 20 à 57% et de la pression de contact <math>C_{press}</math> de 1,987 à 2,366 MPa.</li> </ul> <p>Un diamètre <math>\varnothing_p</math> de 0,09 mm :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Accélère la diffusion des gaz réactifs et l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique,</li> <li>- Évite les phénomènes de noyage dans la plaque GDL.</li> <li>- Entraîne une diminution de la saturation en eau et donc une augmentation des performances de la pile à combustible (plusieurs études sont arrivées à la même conclusion [19, 20]).</li> </ul>

Tableau 3.4 : interprétation des effets des paramètres A, B et C sur les réponses (Y1 et Y2).

En compléments des graphes d'effets, une analyse de variance (ANOVA) a été effectuée pour les deux réponses :  $C_{\text{PRESS}} \text{ GDL/MEA}$  (voir tableau 3.5) et  $C_{\text{PRESS}} \text{ GDL/BPP}$  (voir tableau 3.6).

### 3.2.3 Analyse de la variance (ANOVA)

Dans l'ANOVA correspondant à  $C_{\text{PRESS}} \text{ GDL/MEA}$  (tableau 3.5), une forte interaction est observée entre les deux paramètres A (épaisseur de la GDL) et C (diamètre des pores de la GDL) : Afin d'assurer une porosité élevée, les effets des diamètres des pores doivent être liés à l'épaisseur de la GDL. En se référant au tableau 3.4, nous constatons qu'une faible épaisseur de la GDL avec un diamètre de pore élevé améliore la diffusion des gaz réactifs des canaux de la BPP vers la membrane, ce qui évite les phénomènes de séchage de la membrane. D'où l'interaction forte entre A et C. Il n'y a pas d'interaction entre les paramètres AB et BC.

Dans l'ANOVA correspondant à la pression de contact entre GDL/BPP (tableau 3.6), les paramètres A, B et C sont les plus significatifs. Les interactions AB et AC ont une forte influence ; cependant, les interactions BC et ABC présentent un faible effet.

Paramètres		SCE	%	ddl	V	Fvalue	Test ( $f_{\text{Stheo}} = 3.01$ )
<b>0.192 &lt; <math>T_{\text{GDL}}</math> &lt; 0.375</b>	<b>A</b>	<b>9.16E-01</b>	<b>52</b>	<b>1</b>	<b>9.16E-01</b>	<b>5.64E+03</b>	<b>S</b>
	A <sup>2</sup>	4.22E-02	2.4	1	4.22E-02	2.60E+02	S
0.04 < $R_{\text{RIB}}$ < 0.2	B	2.14E-02	1.2	1	2.14E-02	1.31E+02	S
<b>0.053 &lt; <math>\varnothing_p</math> &lt; 0.09</b>	<b>C</b>	<b>3.90E-01</b>	<b>22.1</b>	<b>1</b>	<b>3.90E-01</b>	<b>2.40E+03</b>	<b>S</b>
	A <sup>2</sup> C	2.01E-02	1.14	1	2.01E-02	1.24E+02	S
	C <sup>2</sup>	2.40E-03	0.14	1	2.40E-03	1.48E+01	S
	AC <sup>2</sup>	3.38E-03	0.19	1	3.38E-03	2.08E+01	S
	<b>AC</b>	<b>3.65E-01</b>	<b>20.7</b>	<b>1</b>	<b>3.65E-01</b>	<b>2.25E+03</b>	<b>S</b>
	RES	2.92E-03	0.17	18	1.62E-04	-	-
	Total	1.76E+00	100	26	-	-	-

Tableau 3.5 : ANOVA de la  $C_{\text{Press}} \text{ GDL/MEA}$  pour une faible porosité de la GDL (S : significatif)

Paramètres		SCE	%	ddl	V	Fvalue	Test ( $f_{\text{Stheo}} = 3.05$ )
0.192 < $T_{\text{GDL}}$ < 0.375	A	1.25E-01	2	1	1.25E-01	3.39E+01	S
0.04 < $R_{\text{RIB}}$ < 0.2	B	4.07E+00	66	1	4.07E+00	1.10E+03	S
	AB	1.95E-01	3.2	1	1.95E-01	5.29E+01	S
	B <sup>2</sup>	2.78E-01	4.51	1	2.78E-01	7.55E+01	S
0.053 < $\varnothing_p$ < 0.09	C	6.44E-01	10.5	1	6.44E-01	1.75E+02	S
	AC	3.65E-01	5.9	1	3.65E-01	9.91E+01	S
	A <sup>2</sup>	1.11E-01	1.8	1	1.11E-01	3.02E+01	S
	B <sup>2</sup> C	1.15E-01	1.9	1	1.15E-01	3.12E+01	S
	ABC	1.36E-01	2.2	1	1.36E-01	3.69E+01	S
	A <sup>2</sup> C	7.60E-02	1.23	1	7.60E-02	2.06E+01	S
	RES	5.89E-02	0.95	16	3.68E-03	-	-
	T	6.17	100	26	-	-	-

Tableau 3.6 : ANOVA de la  $C_{\text{Press}} \text{ GDL/BPP}$  pour une faible porosité de la GDL (S : significatif)

### 3.2.4 Régression multilinéaire (RML)

Après avoir identifié les paramètres significatifs résultants de l'analyse de la variance de deux réponses (Y1 et Y2), nous cherchons à déterminer la relation entre ces paramètres et les réponses (Y1 et Y2) par l'intermédiaire de la méthode de la régression multilinéaire.

#### 3.2.4.1 Résultats de la RML et discussion

Comme chaque paramètre de la figure 3.5 a trois modalités, ce qui donne des effets non linéaires, les équations de la régression multilinéaire simplifiées, pour chacune de deux réponses étudiées, sont de la forme :

1. Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA :

$$Y_1 = 1.213 - 0.243A + 0.0315B + 0.1005C + 0.102A^2 - 0.176AC + 0.0385C^2 + 0.073A^2C + 0.0265AC^2 \quad \text{Eq. 3.10}$$

2. Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP :

$$Y_2 = 2 - 0.02A - 0.4515B - 0.061C + 0.087A^2 - 0.124AB + 0.1715B^2 - 0.1818AC + 0.20575A^2C - 0.1304ABC + 0.2375B^2C \quad \text{Eq. 3.11}$$

Grâce à ces polynômes, nous pouvons calculer toutes les valeurs possibles de deux pressions de contact Y1 et Y2 dans le domaine de variation des modalités des paramètres A, B et C.

Les figures 3.8 et 3.9 illustrent la comparaison entre les réponses obtenues par la simulation éléments finis EF et les résultats de la régression multilinéaire (RML).

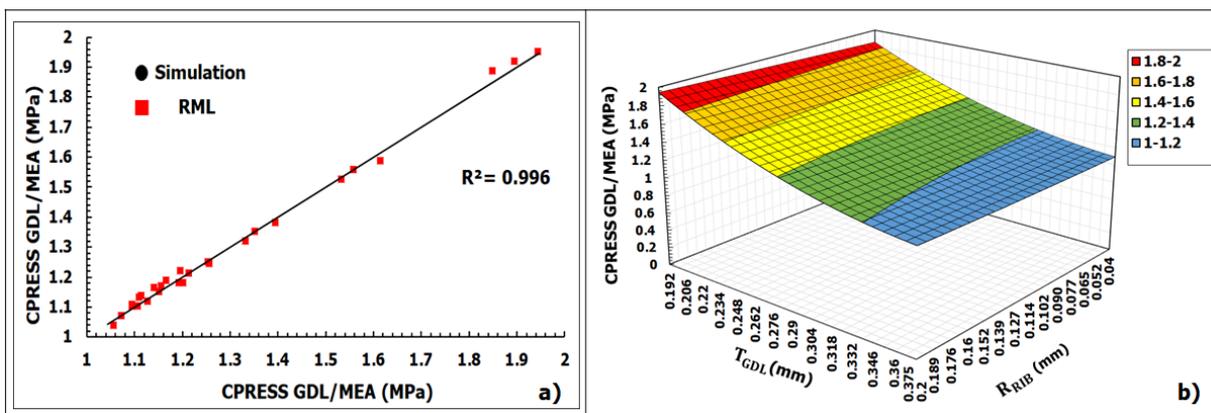


Figure 3.8 : (a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et (b) surfaces de réponse pour une faible porosité

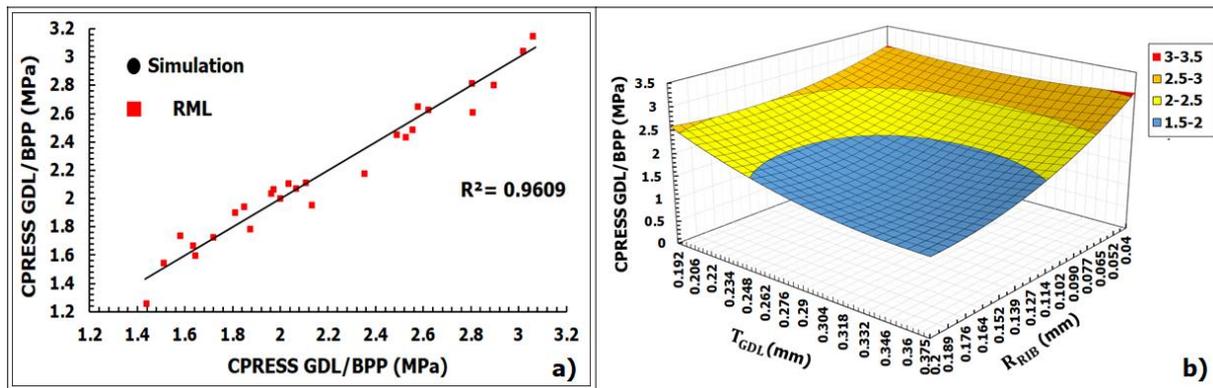


Figure 3.9 : (a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et (b) surfaces de réponse pour une faible porosité

Au niveau de la réponse de la pression de contact GDL/MEA (Y1) et de la réponse de la pression de contact GDL/BPP (Y2), les valeurs du modèle RML ne sont pas dispersées et restent proches des valeurs obtenues par simulation avec des coefficients de corrélation ( $R^2$ ) proches de 1. Le coefficient de corrélation  $R^2$  est utilisé pour montrer la robustesse de cette régression. Il correspond au pourcentage de variance expliquée par la RML dans un échantillon de données.

L'analyse des résultats du plan d'expériences (graphe des effets, ANOVA et RML) montre qu'un meilleur comportement de la pile à combustible est observé pour les modalités des paramètres suivants :

- Paramètre A : épaisseur de la GDL  $T_{GDL} = 0,192$  mm,
- Paramètre B : rayon de courbure de la BPP  $R_{RIB} = 0,04$  mm
- Paramètre C : diamètre des pores de la GDL  $\varnothing_p = 0,09$  mm avec une porosité de 57%.

Il convient de noter que le diamètre des pores  $\varnothing_p = 0,09$  mm augmente la pression de contact GDL/BPP (comme déjà vu dans la figure 3.7), ce qui diminue la résistance de contact électrique et améliore les performances de la pile à combustible. Cependant, le choix de la porosité de la GDL (distribution, position, orientation et forme des pores) dépend de la pression de serrage  $P$ .

Nous avons vu dans le tableau 1.5 du chapitre 1, une forte pression de serrage provoque une diminution de l'épaisseur de la GDL, ainsi qu'une diminution des diamètres des pores, ce qui peut provoquer une déformation non linéaire de la GDL (apparition de fissures, ...). Il apparaît donc nécessaire d'étudier le cas d'une porosité élevée de la GDL.

Nous présentons dans le paragraphe suivant 3.3, le plan d'expériences correspondant à l'étude de porosité élevée.

### 3.3 Plan d'expériences (PE) pour une porosité élevée de la GDL ( $68 \leq \varepsilon \leq 88\%$ )

#### 3.3.1 Choix des modalités

Dans cette partie, nous montrons l'influence des paramètres présentés dans la section précédente (section 3.2)  $T_{GDL}$ ,  $R_{RIB}$  et  $E_{eq}$  mais cette fois - ci dans le cas d'une porosité élevée. La figure 3.10a montre les modalités des paramètres étudiés.

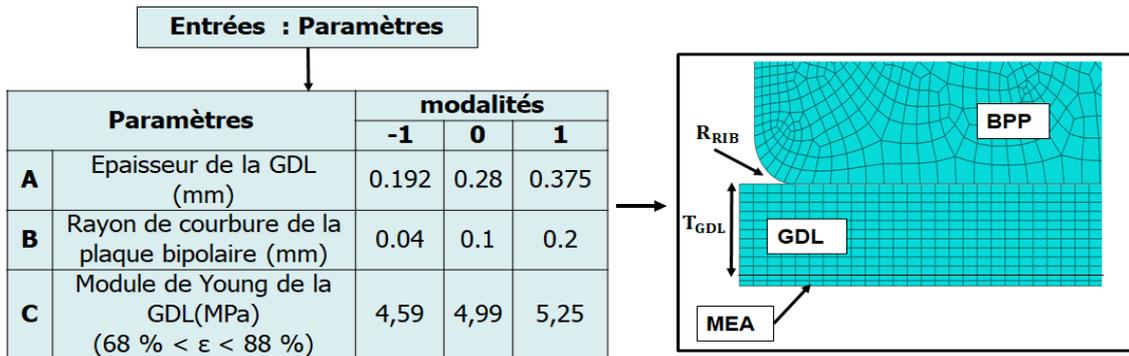


Figure 3.10a : Modalités des paramètres d'entrées

Les paramètres A et B présentent les mêmes modalités que dans l'étude du plan d'expériences précédent. Cependant, la modélisation de la porosité repose sur un modèle homogénéisé de la GDL avec un module de Young équivalent pour prédire la pression de contact GDL/MEA et GDL/BPP. Comme, la porosité initiale de la GDL varie entre  $60 \leq \varepsilon \leq 90\%$  avec compression, donc, pour notre plan d'expériences, trois niveaux de porosité ont été choisis (68, 78 et 88%). En appliquant la démarche d'homogénéisation, présentée dans la section 2.2, nous pouvons déterminer le module de Young équivalent de la GDL correspondant à ces trois niveaux de porosité. Ces trois niveaux de porosité 68%, 78% et 88% correspondent respectivement aux modules de Young 5.25 MPa, 4.99 MPa et 4.59 MPa.

#### 3.3.2 Choix des réponses

La figure 3.10b montre les réponses étudiées et qui sont : la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) et la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

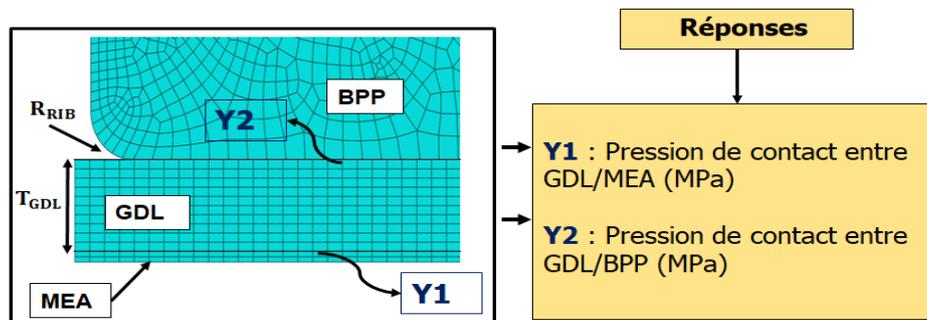


Figure 3.10b : réponses étudiées

### 3.3.3 Analyse des résultats

#### 3.3.3.1 Graphes des effets

Les figures 3.11 et 3.12 montrent respectivement les graphes des effets de ces trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP.

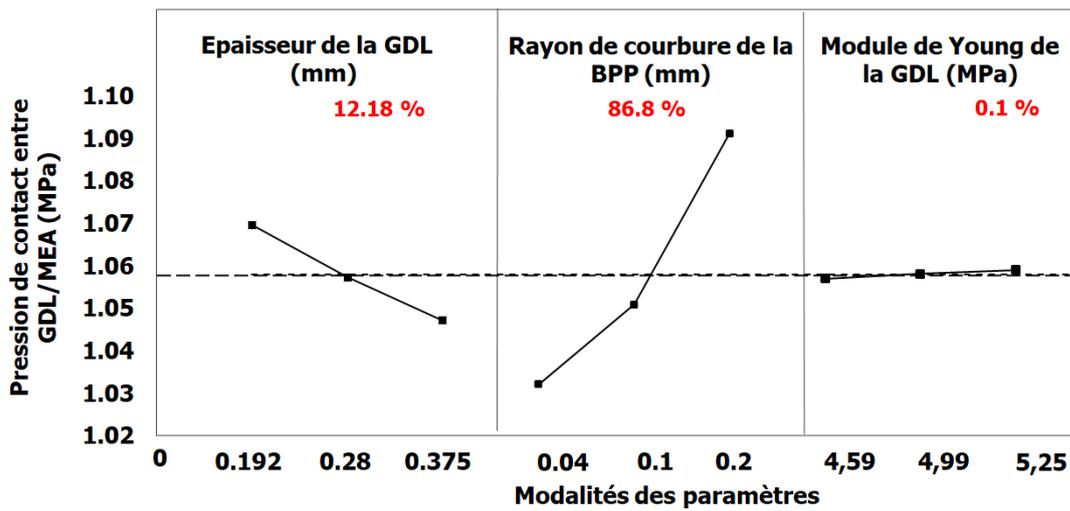


Figure 3.11 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA

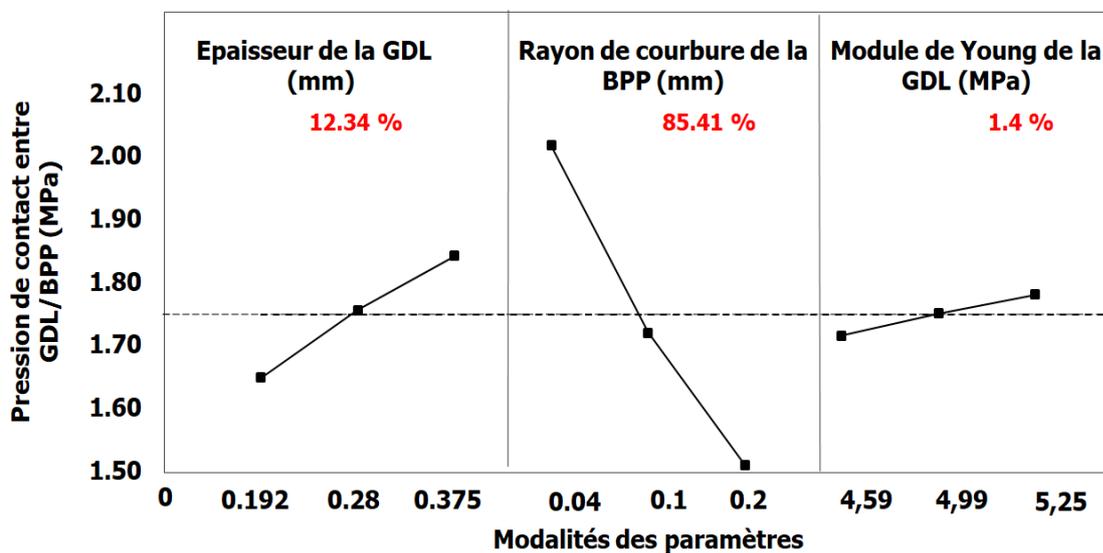


Figure 3.12 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP.

Sur la figure 3.11, nous pouvons voir :

- Une influence significative (une augmentation de l'ordre de 86,8%) du paramètre B (rayon de courbure de la plaque bipolaire) sur la répartition de la pression de contact GDL/MEA. Cette pression de contact augmente avec le rayon de courbure.
- Une petite influence a été observée pour le module de Young de la GDL (paramètre C).
- L'augmentation de l'épaisseur de la GDL (paramètre A) de 0.192 à 0.375 mm entraîne une diminution de la pression de contact GDL/MEA avec un pourcentage d'environ 12,18%.

Pour la pression de contact entre GDL/BPP (figure 3.12), nous observons que :

- L'augmentation de l'épaisseur de la GDL (paramètre A) entraîne une augmentation de 12.34% de la pression de contact (résultats observés expérimentalement dans [23]).
- L'augmentation du rayon de courbure de la BPP (paramètre B) entraîne une diminution de la pression de contact de 85.41%.  
Pour la même largeur de la GDL  $W_{GDL} = 4,2$  mm et la même pression de serrage  $P = 1$  MPa, si le rayon de courbure de la plaque bipolaire augmente, la surface de contact avec la GDL diminue ce qui entraîne une augmentation de la résistance de contact et par conséquent une diminution de la performance de la pile.
- Une porosité de la GDL de 68%, correspondant à un module de Young de 5.25 MPa, entraîne une augmentation de la pression de contact, ce qui induit une diminution de la résistance de contact entre GDL/BPP. (Plusieurs études ont obtenu des résultats similaires [7, 23, 24]).

### 3.3.3.2 Analyse de la variance (ANOVA)

Les tableaux 3.7 et 3.8 présentent respectivement les résultats de l'analyse de la variance pour les deux réponses étudiées : Y1 (pression de contact GDL/MEA), Y2 (pression de contact GDL/BPP). Dans l'ANOVA correspondant à la pression de contact GDL/MEA, les paramètres A (épaisseur de la GDL) et B (rayon de courbure de la plaque bipolaire) apparaissent significatifs. L'interaction entre les deux paramètres a peu d'effet.

Dans l'ANOVA correspondant à la pression de contact GDL/BPP, les trois paramètres A, B et C ont des effets significatifs sur la pression de contact. Cependant, le paramètre A<sup>2</sup> n'influence pas la pression de contact entre GDL/BPP.

Paramètres		SCE	%	ddl	V	fs	Test ( $f_{S_{theo}}=2.95$ )
<b>0.192 &lt; T<sub>GDL</sub> &lt; 0.375</b>	<b>A</b>	<b>2.29E-03</b>	<b>12.2</b>	<b>1</b>	<b>2.29E-03</b>	<b>1.46E+03</b>	<b>S</b>
<b>0.04 &lt; R<sub>RIB</sub> &lt; 0.2</b>	<b>B</b>	<b>1.57E-02</b>	<b>83.1</b>	<b>1</b>	<b>1.57E-02</b>	<b>9.98E+03</b>	<b>S</b>
	B <sup>2</sup>	6.90E-04	3.66	1	6.90E-04	4.40E+02	S
	AB	1.69E-04	0.90	1	1.69E-04	1.08E+02	S
	RES	3.45E-05	0.18	22	1.57E-06		
	T	1.88E-02	100	26			

Tableau 3.7 : ANOVA de la C<sub>Press</sub> GDL/MEA pour une porosité élevée de la GDL (S : significatif)

Paramètres		SCE	%	ddl	V	fs	Test ( $f_{S_{theo}}=2.99$ )
<b>0.192 &lt; T<sub>GDL</sub> &lt; 0.375</b>	<b>A</b>	<b>1.68E-01</b>	<b>12.3</b>	<b>1</b>	<b>1.68E-01</b>	<b>9.73E+02</b>	<b>S</b>
	AB <sup>2</sup>	6.94E-03	0.51	1	6.94E-03	4.01E+01	S
<b>0.04 &lt; R<sub>RIB</sub> &lt; 0.2</b>	<b>B</b>	<b>1.16E+00</b>	<b>84.6</b>	<b>1</b>	<b>1.16E+00</b>	<b>6.70E+03</b>	<b>S</b>
	B <sup>2</sup> C	1.59E-03	0.12	1	1.59E-03	9.17E+00	S
	B <sup>2</sup>	1.17E-02	0.85	1	1.17E-02	6.77E+01	S
	BC	6.31E-04	0.05	1	6.31E-04	3.65E+00	S
<b>4.52 &lt; E<sub>eq</sub> &lt; 5.25MPa</b> <b>68 % &lt; ε &lt; 88%</b>	<b>C</b>	<b>1.91E-02</b>	<b>1.40</b>	<b>1</b>	<b>1.91E-02</b>	<b>1.11E+02</b>	<b>S</b>
	RES	3.29E-03	0.24	19	1.73E-04		
	T	1.37	100	26			

Tableau 3.8 : ANOVA de la C<sub>Press</sub> GDL/BPP pour une porosité élevée de la GDL (S : significatif)

### 3.3.4 Régression multilinéaire (RML)

Les équations de régression multilinéaire simplifiées pour chaque réponse de la pression de contact GDL/MEA et GDL/BPP sont définies comme suit :

1. Pression de contact entre GDL/MEA :

$$Y_1 = 1.05 - 0.0105A + 0.03B - 0.004AB + 0.011B^2 \quad \text{Eq. 3.12}$$

2. Pression de contact entre GDL/BPP :

$$Y_2 = 1.737 + 0.124A - 0.249B + 0.0205C + 0.021B^2 - 0.046AB^2 - 0.0113BC + 0.02425B^2C \quad \text{Eq 3.13}$$

Les figures 3.13 et 3.14 présentent la comparaison entre les réponses de la simulation et les résultats de la régression multilinéaire. Au niveau de deux réponses ( $Y_1$  et  $Y_2$ ), les valeurs du modèle RML ne sont pas dispersées et restent proches des valeurs obtenues par simulation avec des coefficients de détermination proches de 1, ce qui correspond à un modèle avec un très bon pouvoir prédictif.

Pour visualiser l'effet combiné de ces paramètres, les surfaces de réponse ont été générées pour chaque paramètre des modèles ajustés. Les figures 3.13 et 3.14 montrent respectivement l'effet de l'épaisseur de la GDL ( $T_{GDL}$ ) et le rayon de courbure de la BPP ( $R_{RIB}$ ) sur la pression de contact GDL/MEA et GDL/BPP. Nous observons que la pression de contact maximale entre GDL/BPP se produit lorsque l'épaisseur de la GDL est à son niveau le plus élevé (0.375 mm) et que le rayon de courbure de la plaque bipolaire est au niveau le plus bas (0.04mm).

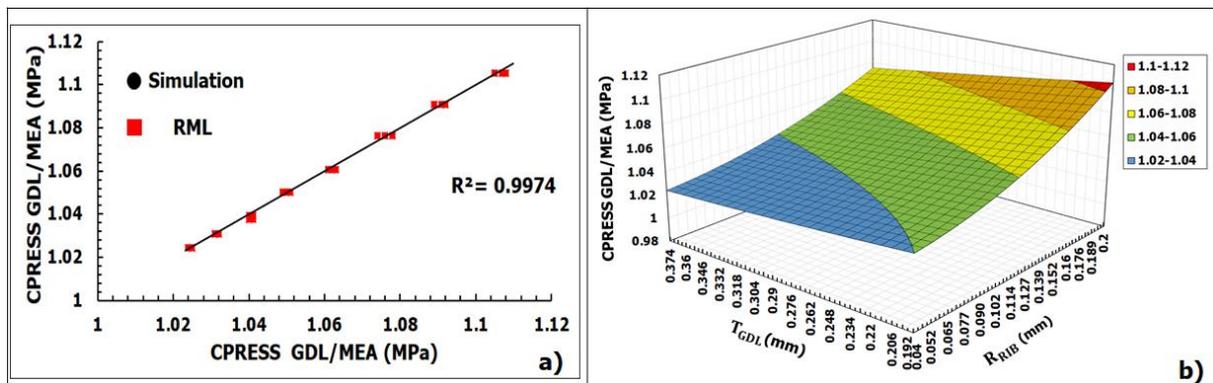


Figure 3.13 : (a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et (b) surfaces de réponse pour une porosité élevée.

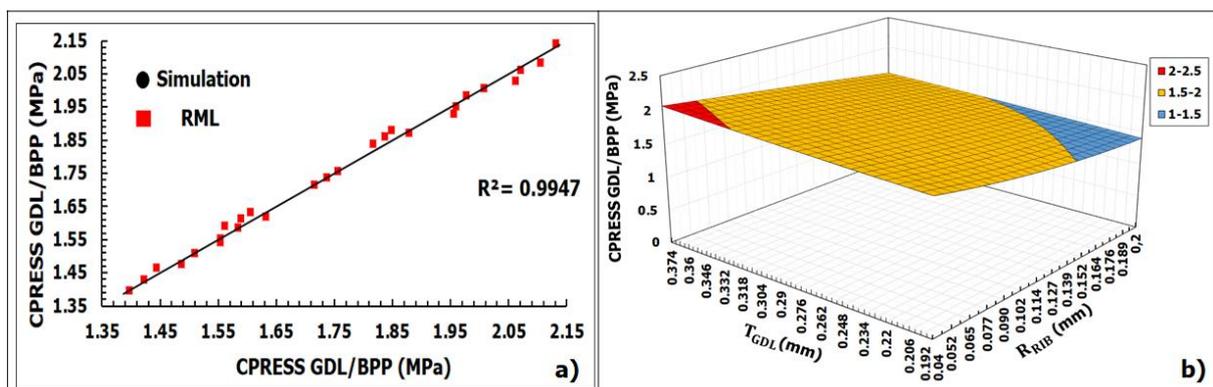


Figure 3.14 : (a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et (b) surfaces de réponse pour une porosité élevée.

L'étude du plan d'expérience nous donne le choix des paramètres optimaux correspondant à un meilleur comportement de la pile à combustible : l'épaisseur de la GDL est  $T_{GDL} = 0,375$  mm, le rayon de courbure de la plaque bipolaire est  $R_{RIB} = 0,04$  mm et le module de Young de la GDL est  $E_{eq} = 4,59$  MPa avec une porosité  $\varepsilon = 88\%$ .

Les deux plans d'expériences, présentés précédemment, nous ont permis d'identifier les paramètres idéaux pour une performance optimale de la pile. A partir de ce jeu de paramètres idéaux, notre objectif est de déterminer la variation de la résistance de contact entre GDL/BPP en fonction de la pression de serrage et de comparer les résultats numériques avec les résultats expérimentaux (tableau 3.9).

	Paramètres d'entrées		Porosité faible	Porosité élevée	
	Choix des paramètres optimaux	<b>A</b>	Epaisseur de la GDL (mm)	0.192	0.375
<b>B</b>		Rayon de courbure de la plaque bipolaire (mm)	0.04	0.04	
<b>C</b>		Porosité de la GDL	Porosité faible représentée par les <b>diamètres des pores</b> ( $\mu\text{m}$ )	90	-
			Porosité élevée représentée par le <b>module de Young de la GDL</b> (MPa)	-	4.59
Objectif	Déterminer la résistance de contact entre GDL/BPP		R	R	
	$R = \frac{A}{S_{GDL/BP}} \left( \frac{B}{C_{press}} \right)^\beta$				
Comparaison	Etudes expérimentales trouvées par la bibliographie		Inexistantes	<b>Existent</b>	

Tableau 3.9 : synthèse de la comparaison entre les résultats de deux plans d'expériences faite pour porosité faible et porosité élevée.

Dans le cas d'une porosité faible, nous n'avons pas comparé nos résultats avec les résultats expérimentaux vu qu'il n'existe pas d'expériences faites sur l'étude de faible porosité de la GDL. Cependant, dans le cas d'une porosité élevée, plusieurs études expérimentales ont été menées sur des GDL avec des porosités au-delà de 74% [16]. Ces études expérimentales ont été utilisées pour la comparaison et la validation de nos résultats numériques.

Nous voulons présenter dans la suite, les résultats du modèle correspondant à une porosité élevée (répartition des contraintes, et des pressions de contact entre les composants de la pile) ainsi que la variation de la résistance de contact entre GDL/BPP en fonction de la pression de serrage et la comparaison avec les résultats expérimentaux.

### 3.4 Résultats du modèle élément fini pour le cas d'une porosité élevée.

Sous la pression de serrage  $P = 1 \text{ MPa}$ , les résultats montrent la distribution des contraintes de Von-Mises dans la GDL et la BPP et la pression de contact entre GDL/BPP (figure 3.15). La contrainte de Von-Mises à l'interface de la GDL et de la BPP est estimée à  $0,99 \text{ MPa}$  et la valeur maximale autour de  $3,67 \text{ MPa}$  est localisée au coin de rayon de courbure de la BPP. La pression de contact maximale est située au point de détachement de la GDL de la plaque bipolaire, ce qui génère des pics de pression au point de détachement.

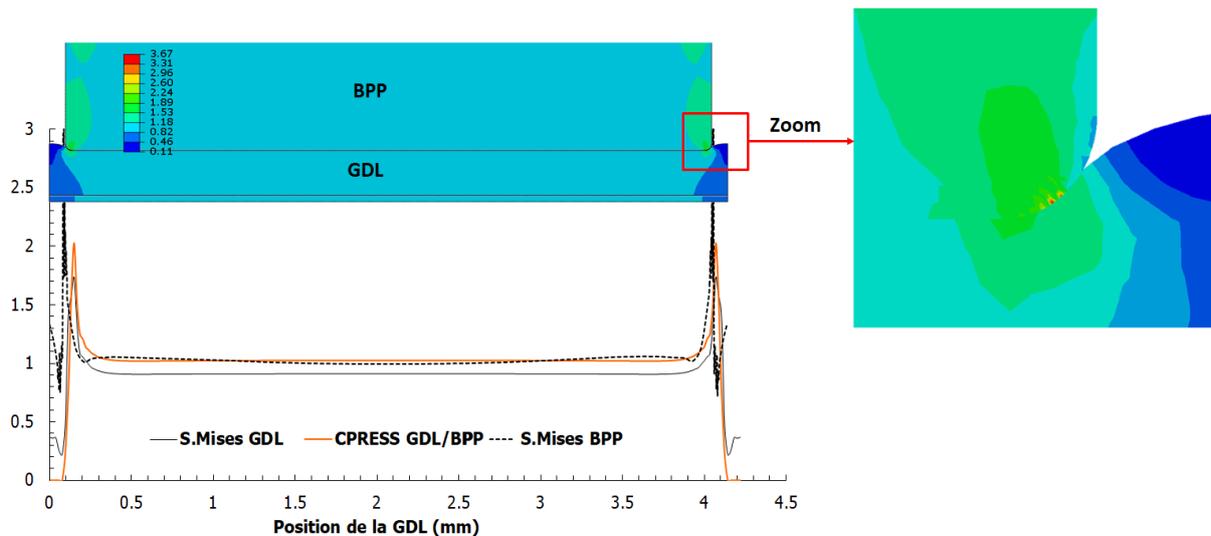


Figure 3.15 : Distribution de la contrainte Von-Mises et de la pression de contact tout le long de la GDL ( $P=1\text{MPa}$ ).

La pression de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP est répartie uniformément ( $C_{\text{press}} = 1,02 \text{ MPa}$ ) dans la zone située sous la dent de la plaque bipolaire (voir figure 3.16). Sous le canal de la BPP, un gonflement de la GDL est apparu, ce qui provoque une séparation entre la GDL et la MEA avec une pression de contact qui tend vers zéro. Cependant, comme la largeur du canal est très petite ( $0,1 \text{ mm}$ ), il n'y a pas eu une séparation complète entre la GDL et la MEA et la pression de contact GDL/MEA diminue pour atteindre une valeur minimale sous le canal ( $0,8 \text{ MPa}$ ).

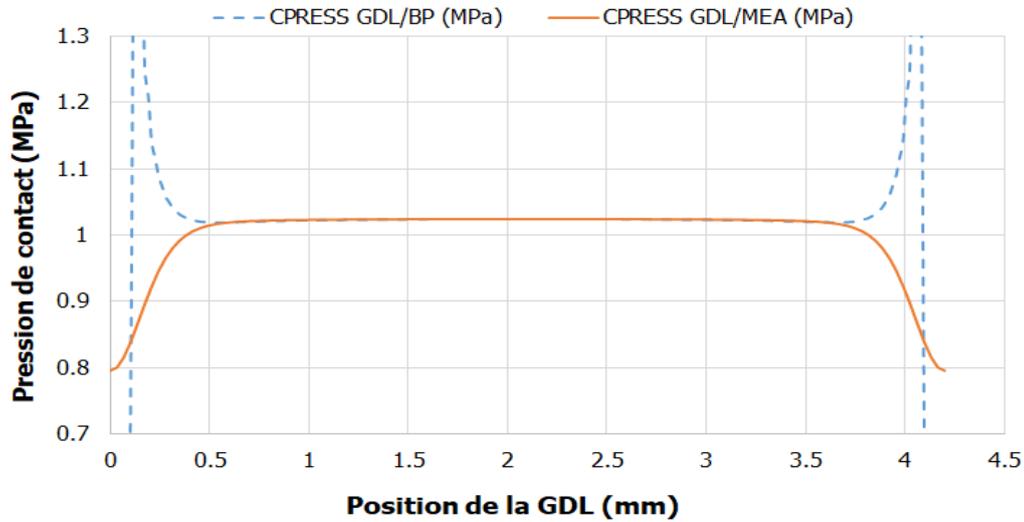


Figure 3.16 : Répartition de la pression de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP tout le long de la GDL.

La figure 3.17 illustre la variation de la résistivité de contact entre GDL/BPP en fonction de la position de la GDL. On note que la résistivité électrique par unité de surface de la pile  $R = 82,4 \cdot 10^{-3} \Omega$  est plus petite sous la dent que sous le canal vu que le contact GDL/BPP se perd sous le canal.

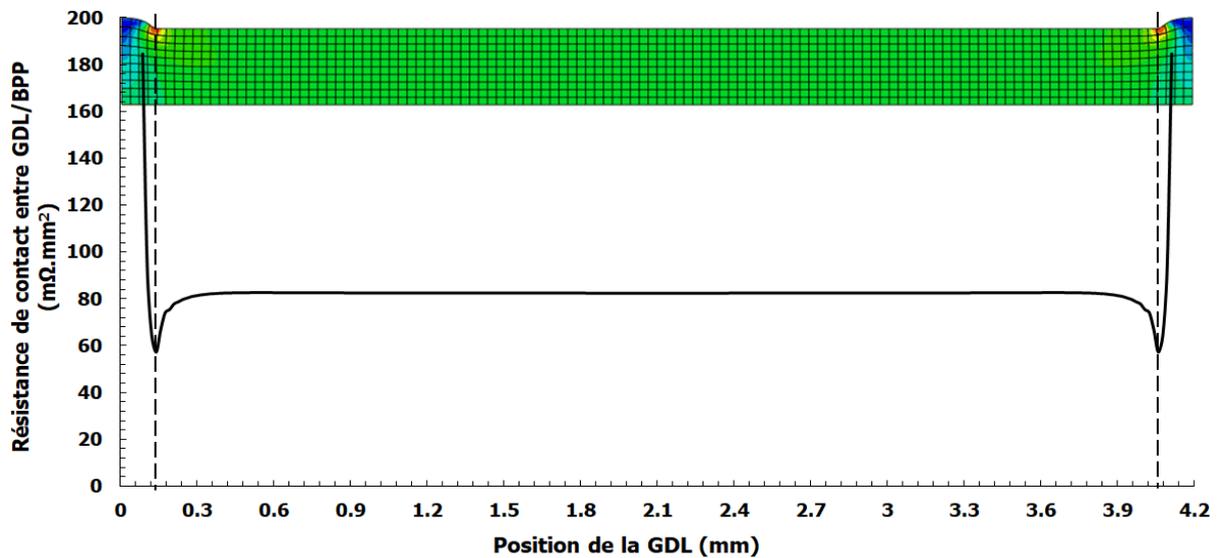


Figure 3.17 : Résistivité de contact entre GDL/BPP en fonction de la position de la GDL (P=1MPa)

### 3.4.1 Effet de la pression de serrage sur la résistance de contact entre GDL/BPP.

Pour étudier l'effet de la pression de serrage sur la résistance de contact électrique, une série de pression de serrage est effectuée avec une plage de P de 0,3 à 1,5 MPa. Pour chaque pression de serrage, une valeur moyenne de la résistance de contact GDL/BPP est obtenue. Sous une compression de P = 1,0 MPa, la pression de contact entre GDL/BPP en fonction de la position de la GDL est illustrée sur la figure 3.16. En utilisant l'Eq 3.3, nous calculons les différentes valeurs de la résistance de contact (R) pour chaque valeur de la pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP de la zone située sous la dent de la plaque bipolaire. Ensuite, une valeur moyenne de la résistance de contact est estimée.

Après avoir obtenu les valeurs pour chaque pression de serrage, une comparaison de la résistance de contact en fonction de la pression de serrage avec les valeurs expérimentales (trouvées dans la bibliographie) [16] est faite sur la figure 3.18. Mishra, V. et al. [16] ont étudié expérimentalement les effets de la pression de serrage pour six types de GDL (GDL -10BA, GDL -10BB, B-3/2050, B-2/120, B -1/B et B-1/D) afin de prédire la résistance de contact en fonction de la pression de serrage.

Un bon accord entre les résultats prévus et les valeurs expérimentales est observée. Nous voyons que la résistance de contact diminue selon l'équation (Eq 3.14) lorsque la pression de serrage augmente. Afin d'interpréter physiquement l'impact de cette diminution de la résistance de contact sur la performance de la pile, nous nous sommes basés sur des explications issues de la littérature : cette diminution de la résistance de contact entraîne une diminution des pertes ohmiques lors de la réaction chimique et accélère la diffusion des gaz réactifs et l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique, évitant ainsi les phénomènes de noyage dans la plaque GDL.

Pour trouver la relation entre la résistance de contact électrique et la pression de serrage P, les données de résistance de contact R ( $m\Omega.cm^2$ ) sont ajustées à la loi de puissance inverse comme :

$$R = \frac{K}{P^\alpha} \quad \text{Eq. 3.14}$$

Où les deux constantes sont déduites de la ligne de tendance des résultats numériques  $K = 3,2973$  et  $\alpha = 0,532$ .

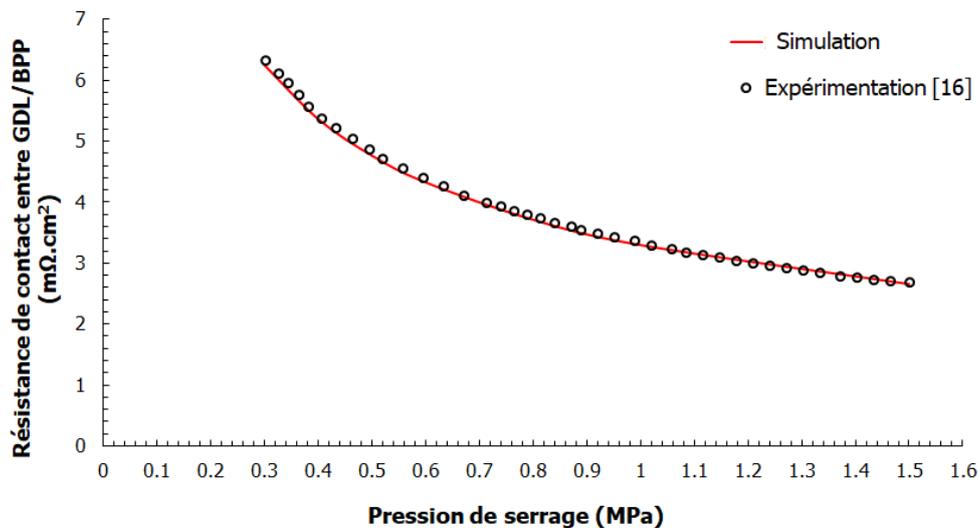


Figure 3.18 : Comparaison de la résistance de contact électrique en fonction de la pression de serrage entre le modèle EF (simulation) et résultats expérimentaux.

La parfaite adéquation entre les résultats numériques et expérimentaux nous permet de valider nos modélisations. En effet, les trois paramètres optimaux identifiés du PE peuvent être soumis à des variations. Ces variations, provenant d'une compression très élevée, nécessitent de prendre en compte la sécurité de leur dimensionnement. Cette prise en compte se fait via la modélisation/simulation en intégrant des incertitudes. Ce que nous proposons de faire dans la section 4 qui suit.

Avant de commencer à présenter la démarche adoptée pour l'intégration des incertitudes dans le modèle, nous commençons cette section par :

- Une brève définition des incertitudes (section 4) ;
- Les principales sources (section 4.1) ;
- Le mode de représentation des incertitudes (section 4.2) ;
- Les outils d'analyse de distributions statistiques (section 4.3) ;
- Les méthodes de propagations des incertitudes (section 4.4).

#### 4 Définition des notions d'incertitudes

Selon le dictionnaire Larousse, le mot « incertitude » est défini comme étant le "caractère de ce qui est incertain". Il est utilisé pour faire référence à des doutes sur la validité et la vérité d'une information. D'un point de vue mécanique, d'après Otto et Antosson [25] le mot « incertitude » regroupe les deux notions suivantes :

- **Imprécision** dans le domaine de la conception représentant une description de conception incomplète ; ce terme « imprécision » se réfère à des difficultés dans l'expression de l'information, c'est-à-dire si l'information n'est pas complètement connue ou si elle ne décrit pas exactement les caractéristiques ciblées [26].

- **Incertitude probabiliste** est une incertitude aléatoire permettant une représentation des incertitudes sur les paramètres de la cellule de la pile. En plus elle permet une étude facile de la propagation des incertitudes à travers les modèles afin d'étudier leurs effets sur la durabilité de la pile et une transition vers une modélisation fiabiliste de la performance de la cellule de la pile. Ci-dessous la définition de ces notions.

#### ❖ Définition de la fiabilité, durabilité

Dans les travaux récents, beaucoup d'attention est donnée à l'étude de la fiabilité et la durabilité d'une pile à combustible. Selon la norme NF-X 60 500, ces définitions sont les suivantes [21-27] :

- Fiabilité (*non défaillance*) est la capacité d'une entité à exécuter une fonction requise, dans des conditions environnementales et opérationnelles données et pour un intervalle de temps déterminé.
- La durabilité est la capacité de la pile à accomplir une fonction requise sous des conditions d'utilisation donnée, jusqu'à atteindre l'état de limite souhaitée.

Notons que les incertitudes en tant qu'évènements peuvent avoir des impacts négatifs comme positifs. D'où la nécessité d'identifier ses principales sources.

#### 4.1 Sources des incertitudes

Le processus de fabrication des composants de la pile nécessite une étape décisive représentée par l'identification des différentes sources d'incertitudes. La notion de « doute », associée à l'incertitude, provient de différentes sources qui sont regroupées en deux classifications : compressible (réductible) et incompressible (irréductible) [28]. La figure 3.19 suivante montre les caractéristiques de chaque classification.

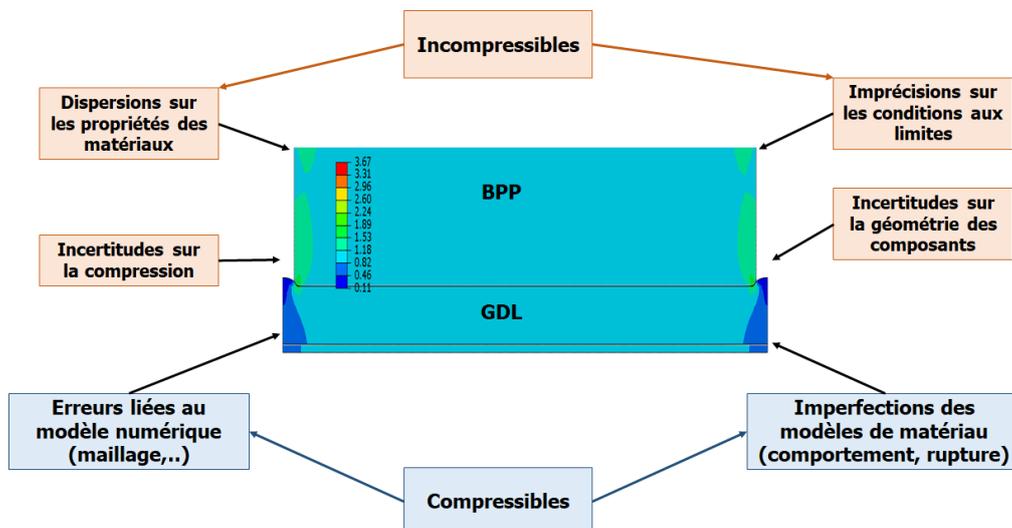


Figure 3.19 : Sources des incertitudes

1. Incertitudes sur les paramètres : ces incertitudes proviennent des variations affectant divers paramètres : paramètres des matériaux, paramètres géométriques, le contact et frottement entre les composants de la pile. Comme la pile à combustible est un phénomène multi-physique, alors la déformation de la plaque bipolaire, de la membrane et de la couche de diffusion de gaz (GDL) influence la performance de la pile en modifiant la résistance de contact électrique au niveau de la pile. Ce qui aboutit à une résistance ohmique variable avec le temps.
2. Incertitudes numériques : le maillage (la taille et le type des éléments) constitue des nouvelles sources d'incertitudes, qui à leur tour permettent de prédire d'une manière fiable la géométrie finale de la pile.
3. Incertitudes sur le modèle : (qui portent sur le modèle physique donnant une représentation de la réalité et non sur des méthodes permettant de les traiter numériquement).

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés aux « incertitudes sur les paramètres ». Ces incertitudes sont les phénomènes les plus recherchés. Rappelons que les trois paramètres de notre étude sont : l'épaisseur de la GDL, le rayon de courbure de la plaque bipolaire et la porosité de la GDL.

#### 4.2 Mode de représentation des incertitudes

Les paramètres d'entrées et les paramètres de sorties, du plan d'expériences réalisé précédemment, (section 3.3) sont deux variables aléatoires. Donc, le mode de représentation des incertitudes est équivalent à dire le mode de représentation d'une variable aléatoire. Cette représentation des incertitudes s'interprète d'une façon si elle est une entrée (paramètres d'entrées), et elle s'interprète d'une autre façon si elle est une sortie (paramètres de sortie).

Puisque, dans notre cas d'étude, nous parlons des incertitudes probabilistes, qui correspondent à une variable aléatoire homogène, alors les incertitudes (que ce soit pour les paramètres d'entrées ou pour les paramètres de sorties) se représentent par :

- La moyenne,
- La dispersion,
- Les bornes,
- L'organisation (les lois de distributions statistiques et les coefficients de forme d'asymétrie et d'aplatissement).

Il existe trois formes possibles d'organisation des incertitudes [21] : Normale, Uniforme et Gamma. Ces lois sont décrites brièvement, dans le tableau 3.10.

Lois statistiques	Description	Fonction de densité de probabilité f(x)	Paramètres de formes
<b>Normale</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Est centrée autour de sa moyenne avec d'une dispersion plus moins importante.</li> <li>Correspond à une dispersion optimiste si le COV est faible</li> <li>utilisée pour modéliser des phénomènes naturels issus de plusieurs événements aléatoires.</li> </ul>	$f_X(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2.\pi}} . e^{-\frac{1}{2}(\frac{x-m}{\sigma})^2}$	<p><b>m</b> : moyenne du paramètre étudié.</p> <p><b>COV</b> : pourcentage de la dispersion du paramètre étudié</p>
<b>Uniforme</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Définie sur un intervalle [a,b]</li> <li>Correspond à une incertitude non contrôlée ou pessimiste si a et b sont larges et si COV est très grand.</li> </ul>	$f_X(x) = \begin{cases} \frac{1}{b-a} & \text{pour } a \leq x \leq b, \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$	<p><b>a</b> : borne inférieure</p> <p><b>b</b> : borne supérieur</p>
<b>Gamma</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Correspond à une dispersion réaliste optimiste dans le cas où COV est faible.</li> <li>Utilisée dans le cas où les phénomènes de déplacement de la moyenne et d'asymétrie sont prédominants par rapport à ceux d'aplatissement.</li> </ul>	$f(x) = \frac{a^p}{\gamma(p)} x^{p-1} . e^{-ax}$ <p>facteur de normalisation <math>\gamma(p)</math> pour <math>p &gt; 0</math> :</p> $\gamma(p) = \int_0^\infty t^{p-1} . e^{-t} . dt$	<p><b>a</b> et <b>p</b></p> $a = \frac{p}{m}$ $p = \frac{1}{COV^2}$

Tableau 3.10 : Descriptions des lois statistiques [21].

### 4.3 Outils d'analyse de distributions statistiques

A la sortie, les incertitudes sont des conséquences des incertitudes d'entrées propagées dans le système. Les traitements statistiques qui seront effectués sur les distributions des réponses (paramètres de sorties), se basent sur le calcul de descripteurs de formes. Ces descripteurs de formes permettent de caractériser la nature de la distribution des réponses.

La forme de l'organisation de la distribution des sorties (réponses) se mesure par le :

- Coefficient de variation,
- Coefficient d'asymétrie,
- Coefficient d'aplatissement.

Nous présentons brièvement, dans le tableau 3.11, ces trois descripteurs de formes : d'asymétrie

Descripteurs de formes	Description	Equation
Coefficient de variation (COV)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• est défini par le rapport entre l'écart-type (<math>\sigma</math>) et la moyenne du paramètre étudié (<math>m</math>).</li> <li>• représente le pourcentage d'incertitudes.</li> </ul>	$COV = \frac{\sigma}{m}$
Coefficient d'asymétrie (skewness)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• est une mesure de l'asymétrie d'une distribution statistique par rapport à la moyenne.</li> </ul>	$Asymétrie = \frac{\mu_3}{\sigma^3}$ $\mu_3 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - m)^3$
Coefficient d'aplatissement (kurtosis)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• est une mesure de l'étalement d'une distribution de variable aléatoire réelle.</li> </ul>	$Aplatissement = \frac{\mu_4}{\sigma^4}$ $\mu_4 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - m)^4$

Tableau 3.11 : Descripteurs de formes des distributions statistiques [21]

#### 4.4 Modèle de prise en compte des incertitudes

La prise en compte des incertitudes sur les paramètres d'entrées nécessite de définir une technique permettant leurs propagations vers les paramètres de sortie. Ceci nous permet d'avoir accès à la répartition des caractéristiques finales des paramètres de sorties sous forme de densités de probabilité. La figure 3.20 permet d'illustrer la propagation des incertitudes des paramètres d'entrée vers les paramètres de sortie.

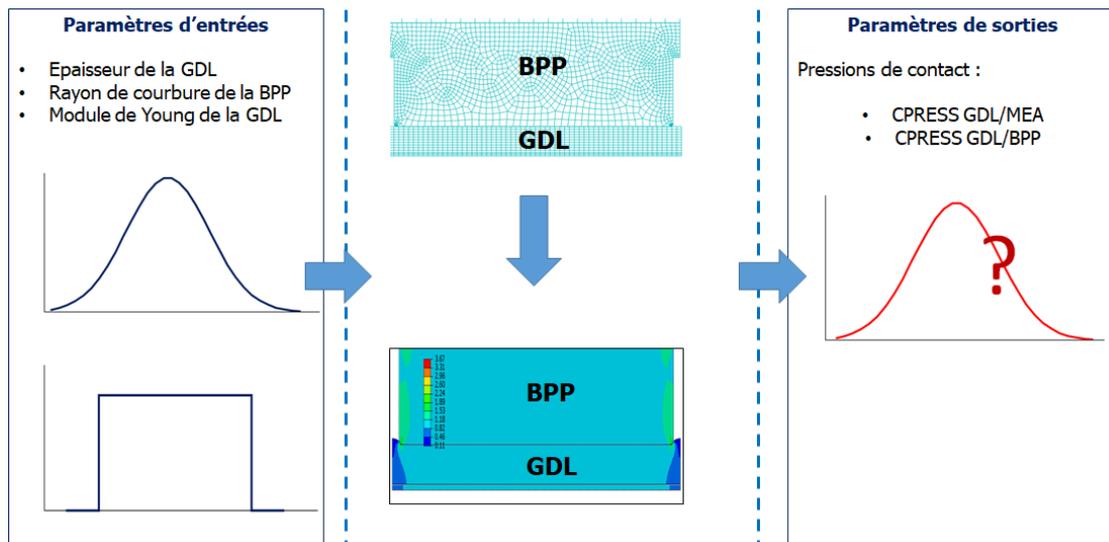


Figure 3.20 : Propagation des incertitudes

Dans ce contexte, les méthodes des éléments finis stochastiques (SFEM) offrent un outil puissant (robuste) pour prendre en compte la variation aléatoire sur les paramètres d'entrées. Ces méthodes peuvent être classées en deux catégories : **intrusives et non-intrusives** [29-40].

Dans cette thèse, nous avons choisi les méthodes intrusives. Parmi ces méthodes, nous avons choisi la méthode Monte Carlo, présentée dans la partie qui suit.

##### i. Méthode de Monte Carlo

C'est une méthode stochastique intrusive pour étudier la variabilité de la réponse du modèle dans le cadre de l'analyse probabiliste. L'avantage de cette méthode est qu'elle est une méthode universelle, utilisée dans des domaines variés, tel que, le calcul d'intégrale, pour résoudre les équations aux dérivées partielles, pour résoudre des systèmes linéaires, et des problèmes d'optimisation, des problèmes statiques, dynamiques et non linéaires.

Elle consiste à choisir un ou plusieurs paramètres d'entrées d'un modèle numérique et à leur affecter une distribution de probabilité. Pour chacune de ces entrées, nous effectuons un grand nombre de tirages aléatoires suivant la loi choisie relative à la nature que nous voulons accorder à l'incertitude.

Pour obtenir une convergence dans les résultats, le nombre de tirages aléatoires doit être supérieur à 10000. Afin de réduire le temps des simulations et optimiser le nombre de tirages, deux grandes techniques basées sur la méthode de Monte Carlo ont été développées : la méthode de Monte Carlo directe et la méthode de Monte Carlo associée à la méthode de surface de réponse.

- Méthode de Monte Carlo directe

La méthode de Monte Carlo directe est largement utilisée pour l'analyse probabiliste de structures composites. Elle est associée à l'analyse par éléments finis ; chaque tirage aléatoire fait appel au solveur éléments finis. Un grand nombre de paramètres d'entrées nécessite donc un temps de calcul très élevé. La robustesse de cette méthode permet de construire une méthode de référence permettant de valider les résultats obtenus par d'autres méthodes.

- Méthode de Monte Carlo associée à la méthode de surface de réponse

C'est une méthode qui permet de réduire le temps de calcul en construisant un modèle réduit. La méthode de surface de réponse consiste à construire des expressions analytiques de réponses étudiées. Ces expressions analytiques peuvent ensuite être utilisées avec des tirages de Monte Carlo pour l'analyse probabiliste. Donc, la résolution éléments finis est remplacé par l'évaluation du méta-modèle et le coût de chaque tirage est donc considérablement réduit. Les expressions analytiques, construites à partir de la méthode de surface de réponse, sont obtenues à l'aide de la méthode des plans d'expériences qui nous permet d'exprimer les réponses étudiées en fonction des paramètres d'entrées.

La méthode appliquée dans cette thèse est « la méthode de Monte Carlo associée à la méthode de surface de réponse ».

Dans notre cas d'étude, le plan d'expériences correspondant à une porosité élevée (section 3.3) nous a permis d'obtenir les modèles déterministes numériques des pressions de contact (Y1 et Y2) en fonction des paramètres d'entrées (A : épaisseur de la GDL ; B : rayon de courbure de la plaque bipolaire et C : porosité de la GDL). Ces modèles numériques sont validés expérimentalement. La validation de ces modèles numériques nous permet de les utiliser dans la prise en compte des incertitudes. Nous allons maintenant intégrer des incertitudes sur les paramètres (A, B et C) sous forme de distributions statistiques et mener une analyse statistique des résultats.

5 Intégration des incertitudes dans le modèle homogénéisé de la GDL avec un module de Young équivalent ( $68 \leq \epsilon \leq 88\%$ )

La Figure 3.21 présente de manière très synthétique la démarche générale adoptée pour l'intégration des incertitudes dans le modèle déterministe. Cette figure fait apparaître les distributions appliquées sur les paramètres d'entrée ainsi que les dispersions observées et les conséquences sur les sorties (pressions de contact).

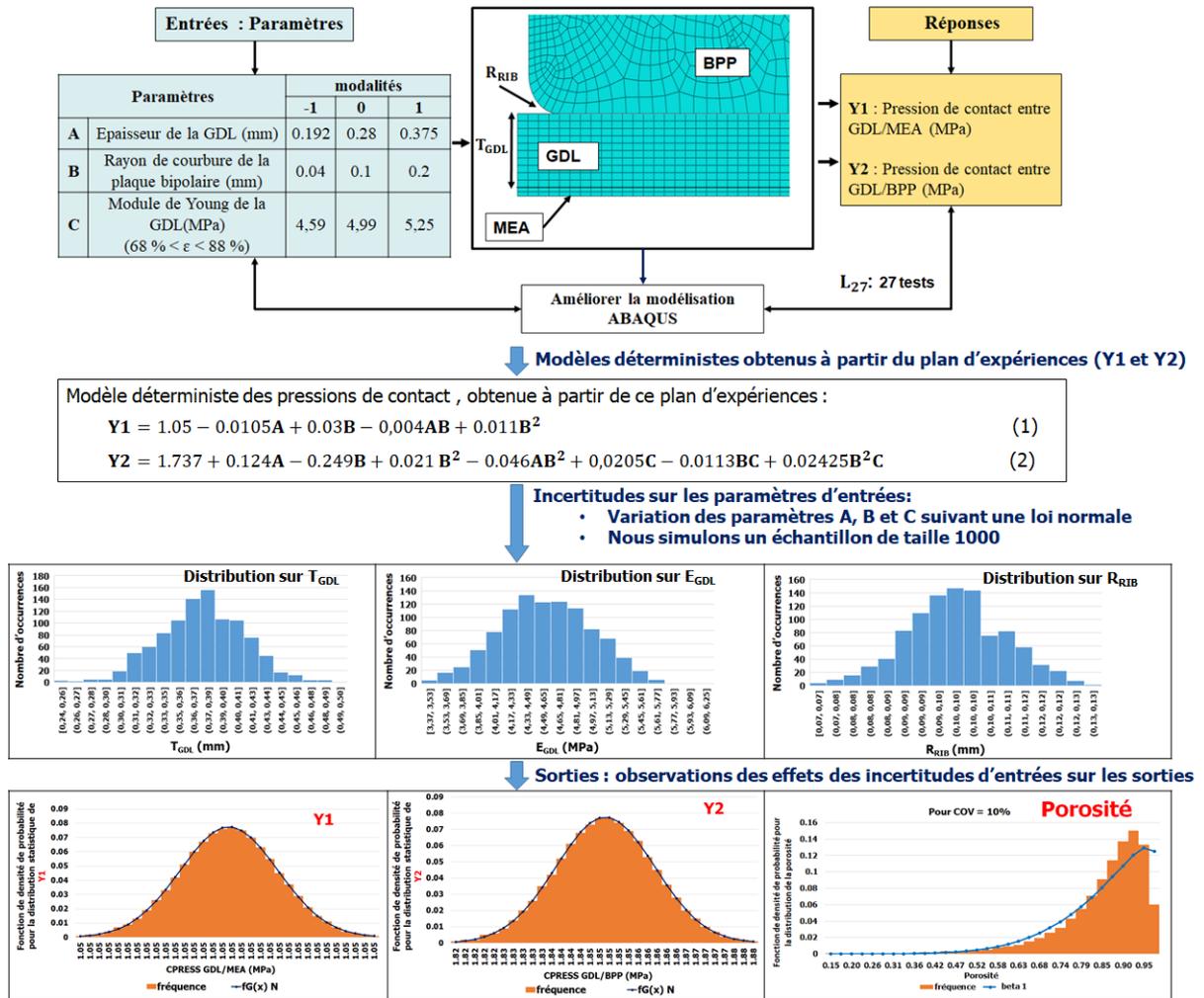


Figure 3.21 : Représentation schématique de la procédure d'intégration des incertitudes dans le modèle déterministe.

Après avoir défini la démarche permettant d'intégrer une ou plusieurs incertitudes dans notre modèle, nous procédons à une analyse statistique des réponses données par le modèle. Nous reprenons les équations 1 et 2 de la figure 3.21 qui correspondent respectivement aux pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2) et nous faisons varier les paramètres A, B et C suivant la loi normale (qui correspond à une dispersion optimiste pour un COV faible) afin d'observer les effets de ces distributions sur les pressions de contact.

## 5.1 Distributions statistiques des paramètres d'entrées

Nous avons choisi une dispersion qui est du niveau entre la dispersion maîtrisée ( $< 10\%$ ) et la dispersion réaliste ( $10 \leq \text{COV} < 20\%$ ), donc nous n'avons pas voulu être dans des niveaux ni réalistes à 100% ni très maîtrisés. C'est du réaliste avec une dispersion de 10%.

Pour définir des distributions statistiques, comme dans chaque démarche basée sur la simulation numérique, il est nécessaire de prendre des précautions pour que les résultats ne soient pas influencés par la simulation elle-même. Ce qui se fait par la définition du nombre de simulations à effectuer. Il s'agit d'assurer la convergence de la sortie des simulations, en l'occurrence celle de la moyenne et de l'écart-type des pressions de contact en fonction du nombre de simulations. Dans notre étude, 1000 simulations ont été exécutées ; ce nombre a été choisi pour obtenir un bon compromis entre le temps de simulation et la précision des résultats. Le tableau 3.12 montre les paramètres de forme (moyenne et écart-type) pour chaque paramètre d'entrées.

Paramètres d'entrées	moyenne	écart type	COV
$T_{\text{GDL}}$ (A)	0,375	0,0375	0,1
$R_{\text{RIB}}$ (B)	0,1	0,01	0,1
$E_{\text{GDL}}$ (C)	4,59	0,459	0,1

Tableau 3.12 : Paramètres de forme de la distribution des paramètres d'entrées.

## 5.2 Résultats et discussions

### 5.2.1 Distributions statistiques des paramètres de sorties (Y1 : CPRESS GDL/MEA et Y2 : CPRESS GDL/BPP)

Les distributions sur les paramètres d'entrées donnent lieu à des distributions statistiques sur les sorties étudiées.

Les figures 3.22 et 3.23 montrent respectivement la distribution obtenues (après 1000 simulation) des pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2).

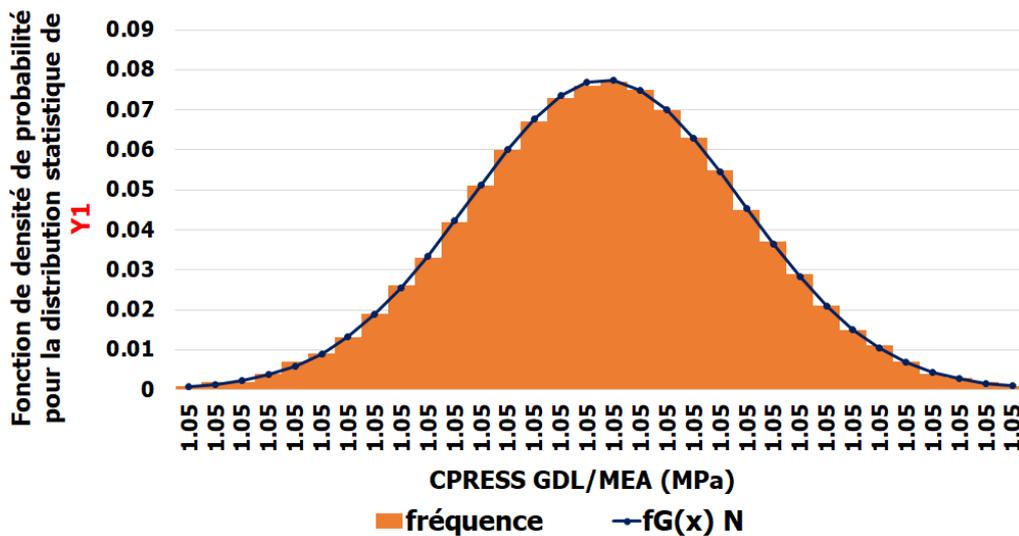


Figure 3.22 : Distributions obtenues sur Y1

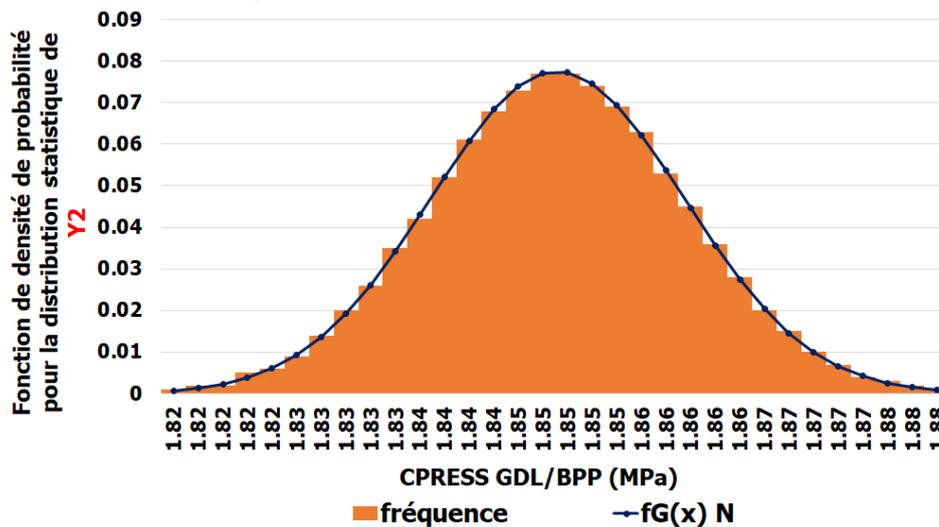


Figure 3.23 : Distributions obtenues sur Y2

En observant la forme de la distribution de deux réponses obtenues pour une incertitude de 10%, et d'après la théorie des surfaces de probabilités de K. Pearson [44], on constate que :

- Suite aux 1000 simulations exécutées, la distribution de la réponse Y1 ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$ ) est **numériquement modélisable par la loi de Gauss** avec une moyenne de 1.049 MPa et une covariance de **0.32**.
- De même, la réponse Y2 ( $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ) suit aussi la loi de Gauss avec une moyenne de 1.849 MPa et une covariance de **0.32**.

Comme déjà montré dans la figure 3.18, la résistance de contact diminue en fonction de la pression de serrage. En faisant varier la pression de serrage suivant une loi normale avec une moyenne de 1 MPa et un COV de 10%, la résistance de contact entre GDL/BPP suit une loi beta

1 (figure 3.24). Suite aux simulations, la covariance de la  $R_{GDL/BPP}$  est 0.39 avec un minimum de 2.88 et un maximum de 4  $m\Omega.cm^2$ .

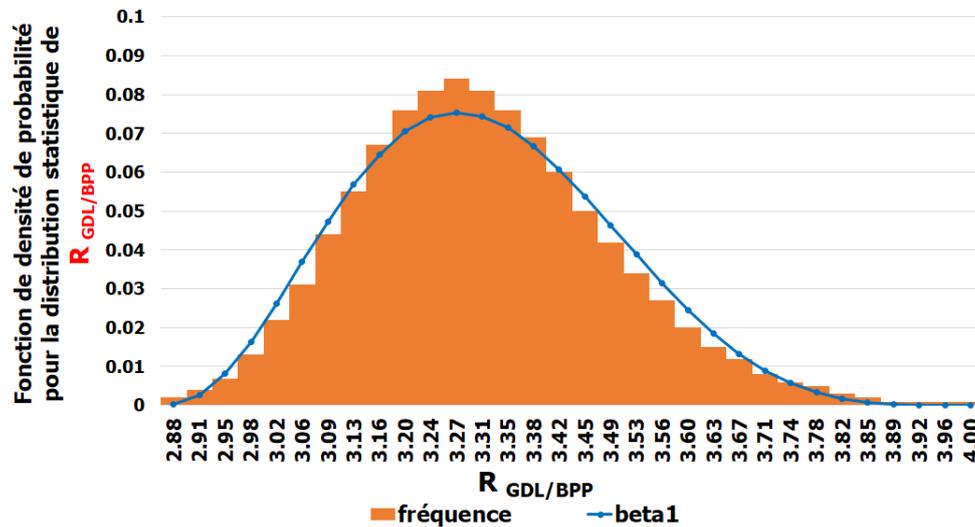


Figure 3.24 : Distributions obtenues sur  $R_{GDL/BPP}$  pour  $P = 1MPa$  avec  $COV 10\%$ .

Par conséquent, nous voyons que pour différentes pressions de serrage qui varient suivant une loi normale avec une dispersion de 10%, on trouve que la résistance de contact entre GDL/BPP suit une loi Beta 1. Le tableau 3.13 montre les paramètres de forme de la loi beta 1 (min, max et moyenne) pour chaque pression de serrage avec une dispersion de 10%.

Pression de serrage (MPa)	$R_{GDL/BPP}$ ( $m\Omega.cm^2$ )		
	min*	max*	Moyenne
0.3	5.38	7.99	6.28
0.5	4.2	5.96	4.78
0.6	3.76	5.18	4.34
0.8	3.25	4.58	3.73
1	2.88	4	3.31
1.5	2.29	3.22	2.67

Tableau 3.13: Paramètres de forme de la distribution de  $R_{GDL/BPP}$ .

Cependant, en faisant varier la pression de serrage suivant une loi normale avec une dispersion de 1%, on trouve que la résistance de contact entre GDL/BPP suit aussi la loi normale avec une moyenne de 3.3  $m\Omega.cm^2$ . La figure 3.25 suivante montre la distribution de la résistance de contact entre GDL/BPP sous une pression de serrage de 1MPa avec une dispersion de 1%. De même, pour différentes pressions de serrage qui varient suivant une loi normale avec une dispersion de 1%, on trouve que la résistance de contact entre GDL/BPP suit une loi normale.

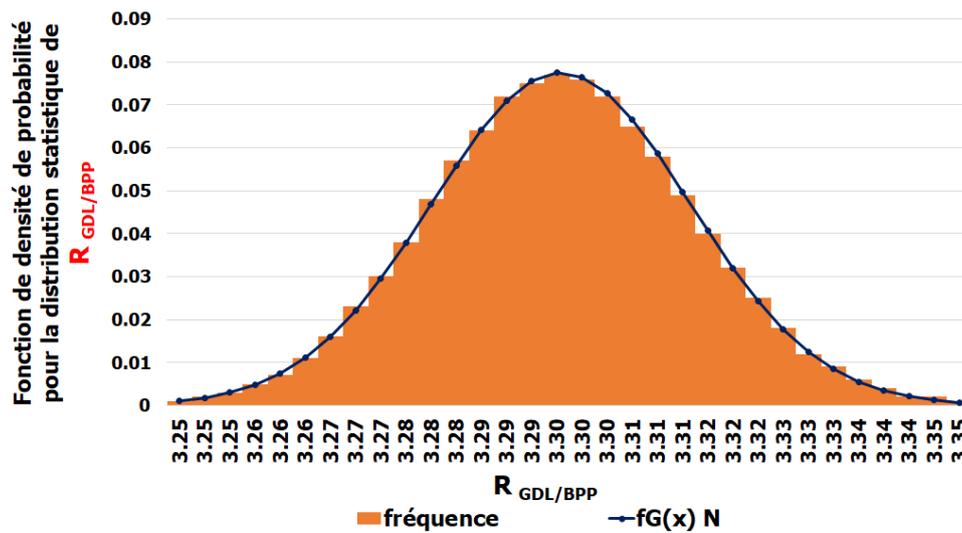


Figure 3.25 : Distributions obtenues sur  $R_{GDL/BPP}$  pour  $P = 1\text{MPa}$  avec COV 1%.

### 5.2.2 Interprétation physique de la forme de la distribution statistique des sorties (Y1 et Y2)

Dans cette partie, nous expliquons la forme de la distribution observée au niveau de deux réponses étudiées. Pour les deux réponses (Y1 et Y2), on constate que l'augmentation de la dispersion d'entrée (coefficient de variation allant de 1 à 5 puis 10%) conduit à une même distribution de sortie dont la forme suit la loi de Gauss (Figure 3.26).

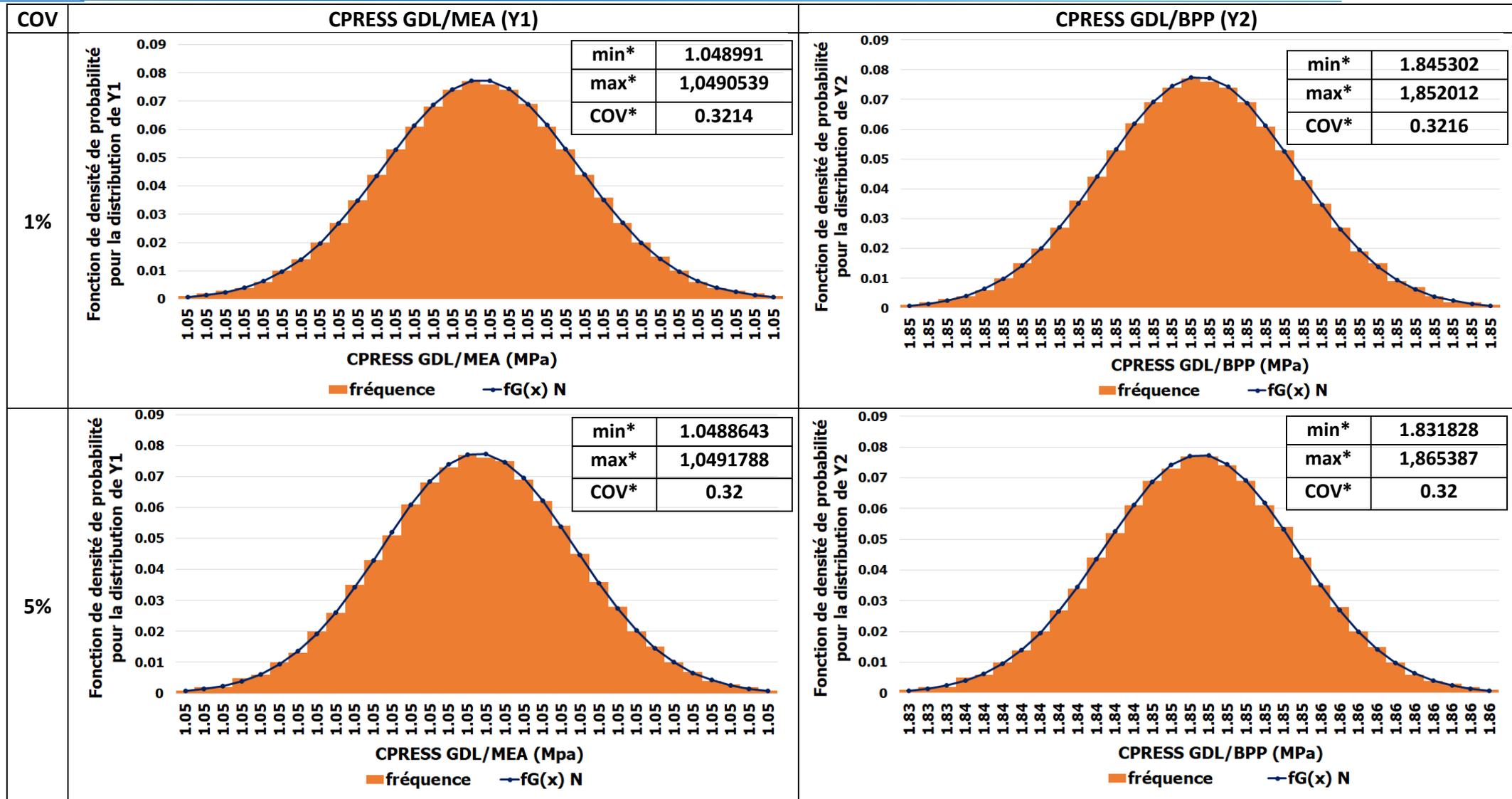


Figure 3.26 : Distributions des pressions de contact Y1 et Y2 pour deux dispersions des paramètres d'entrées : Coefficient de variation (COV) de 1 et 5%.

Comme les équations des pressions de contact ( $Y1$  et  $Y2$ ) sont fonctions des paramètres mécaniques, et en particulier le module d'Young de la GDL (équations 1 et 2 de la figure 3.21), et comme le module de Young de la GDL dépend de sa porosité (Eq 3.2) alors la **porosité de la GDL** est le paramètre principal de la variation de forme de la distribution des sorties (pressions de contact  $Y1$  et  $Y2$ ).

En faisant varier le module de Young de la GDL suivant une loi normale (Eq 3.2), on observe que la porosité de la GDL suit une loi beta 1 (Figure 3.27). L'augmentation de la dispersion d'entrée (coefficient de variation allant de 1 à 5 puis 10%) sur le module de Young de la GDL conduit à une distribution de sortie (porosité de la GDL) dont la forme se rapproche de plus en plus d'une loi de type beta 1 (Figure 3.27).

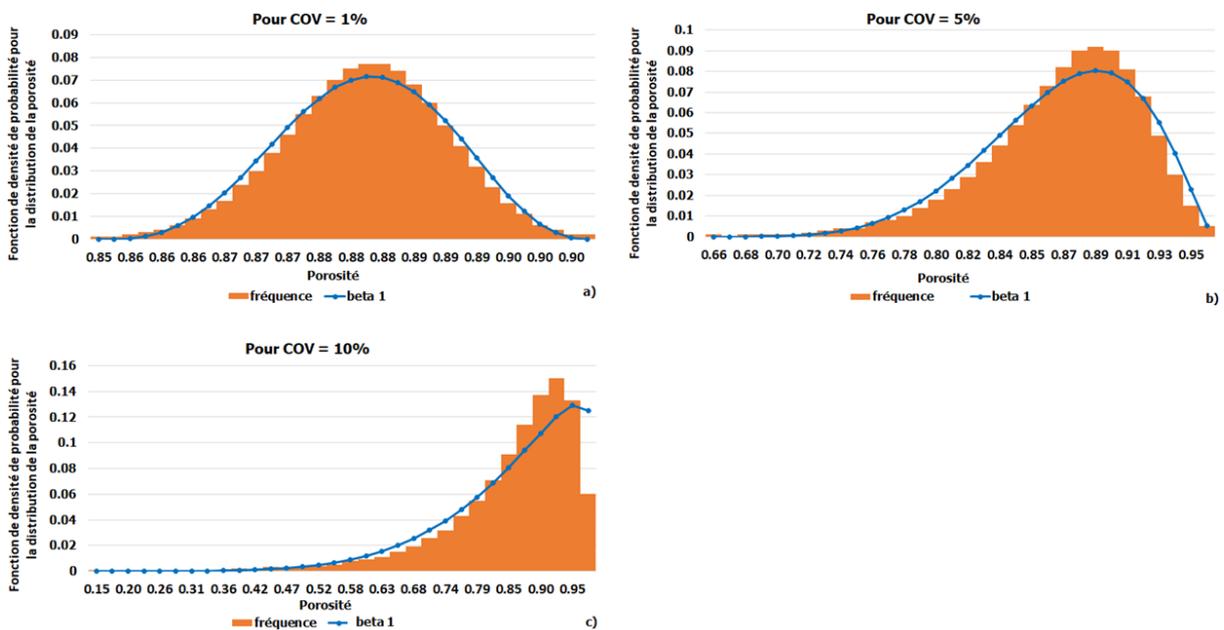


Figure 3.27 : Distribution de forme de la porosité de la GDL pour trois coefficients de variation du module de Young de la GDL : a) Coefficient de variation de 1% ; b) Coefficient de variation de 5% et c) Coefficient de variation de 10%

Notons que la variation de la porosité de la GDL (faible ; forte) entraîne une modification de la géométrie des deux composants (GDL et MEA) (tableau 3.14), et par conséquent, une répartition des pressions de contact non-uniforme entre les différents composants de la pile, cela signifie physiquement que la distribution des pressions de contact entre GDL/MEA ( $Y1$ ) et GDL/BPP ( $Y2$ ) est causée par la distribution de la porosité de la GDL.

Dans les mêmes conditions, l'augmentation de la dispersion de la porosité de 1 à 10% entraîne une augmentation de la zone de variation (intervalle) de la porosité (Figure 3.28) :

- Entre [84% ; 90 %] pour une dispersion de 1%
- Entre [55% ; 97 %] pour une dispersion de 5%
- Entre [10% ; 97 %] pour une dispersion de 10%

Suite à ces variations, nous constatons qu'une porosité avec une dispersion de 5% présente un intervalle de variation acceptable (ni faible, ni élevée) en comparaison avec celles observées dans la littérature.

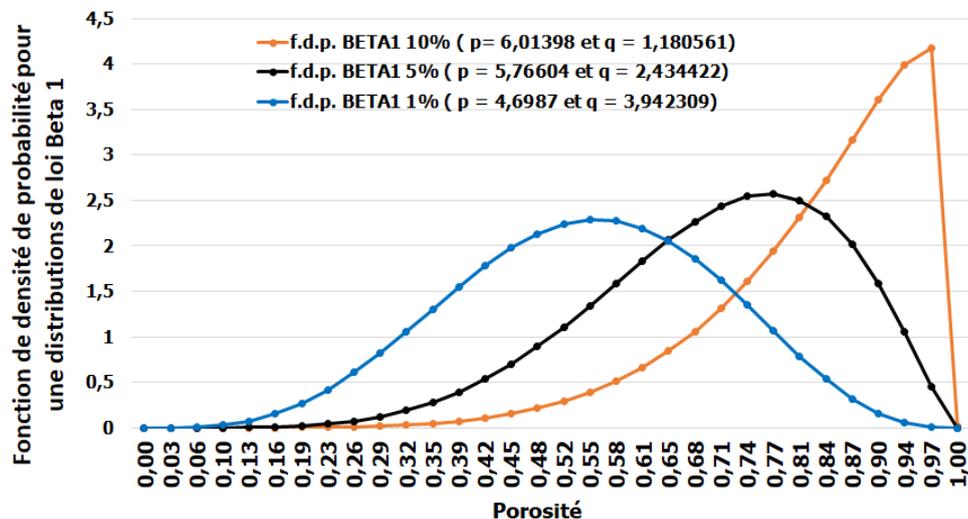


Figure 3.28 : Intervalle de variation de la porosité de la GDL pour trois coefficients de variation du module de Young de la GDL 1, 5 et 10%.

	Avantages	Inconvénients
Porosité élevée	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Augmente le transport de masse dans la cellule</li> <li>• Favorise la diffusion des gaz réactifs vers l'électrode</li> <li>• Favorise l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique</li> <li>• évite les phénomènes de noyage dans la plaque GDL tout en maintenant la membrane dans un état bien hydraté, ce qui provoque des conditions favorables pour la réaction électrochimique.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• La présence d'eau n'est pas toujours avantageuse : une porosité trop élevée peut bloquer l'élimination de l'eau de la GDL : Si le taux de production d'eau par la réaction chimique est plus rapide que le taux d'élimination, l'excès d'eau s'accumulera à travers les électrodes et les canaux d'écoulement, et bloquera les couches poreuses. Ce qui affecte les distributions des pressions de contact (GDL/BPP et GDL/MEA) entraînant finalement une augmentation de la résistance de contact entre GDL et la plaque bipolaire.</li> <li>• Conduire à un « envahissement » à des densités de courant élevées [41-42-43].</li> </ul> <p>Donc, cette augmentation de la porosité a une certaine limite.</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Entraîne une augmentation de la fraction des trous et une diminution de la fraction solide : Cette augmentation de la fraction des trous entraîne une augmentation de la concentration des contraintes autour des pores, ce qui entraîne une localisation des contraintes</li> <li>• Provoque une diminution du module d'élasticité provoquant ensuite une diminution de la ténacité du matériau de la GDL.</li> </ul>
Porosité faible	<p>Une faible porosité de la GDL avec une compression optimale permet de :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Diminuer la résistance de contact entre GDL/BPP</li> <li>• Éviter le phénomène de noyage de la GDL</li> <li>• Favoriser l'hydratation de la membrane.</li> <li>• Diminuer les pertes ohmiques dans la membrane.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Conduit à une circulation insuffisante des gaz réactifs</li> <li>• Peut sécher la membrane et même entraîner sa rupture</li> <li>• Rend la membrane perméable aux gaz en provoquant des échauffements permettant un dysfonctionnement dans le système de la pile.</li> </ul>

Tableau 3.14 : Avantages et inconvénients de la porosité de la GDL sur la répartition des pressions de contact Y1 et Y2.

On voit que la porosité présente des avantages autant que des inconvénients notamment sur les pressions de contact entre les différents composants de la pile. En réalité, lorsque la GDL poreuse est déformée sous la force d'assemblage, la porosité diminue et est distribuée de manière non uniforme. Donc, l'identification de l'intervalle de la variation de la porosité est requise afin d'éviter :

- L'assèchement de la membrane qui influence sur la répartition de pression de contact entre GDL/MEA (Y1).
- Le phénomène de noyage de la GDL et la réduction de l'aire de contact à l'interface qui influencent la répartition de pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

Nous savons que le noyage figure parmi les problèmes les plus frappants affectant la performance de la pile à combustible. Donc, l'optimisation des paramètres mécaniques tels que la géométrie de la plaque bipolaire, l'épaisseur de la structure poreuse (GDL) ainsi que sa porosité est considérée comme la méthode la plus appropriée pour gérer les noyages.

Nous avons vu, dans la section 5.2, qu'après avoir fait varier les paramètres A, B et C suivant la loi normale (paramètres aléatoires), nous constatons que les sorties Y1 et Y2 sont aléatoires avec un minimum et un maximum pour chacune (figures 3.22 et 3.23).

Comme Y1 (pression de contact entre GDL/MEA) et Y2 (pression de contact entre GDL/BPP) sont aléatoires, cela signifie, forcément, qu'il y a des situations qui sont mauvaises et des situations qui sont bonnes.

Puisque qu'il y a des scénarios inquiétants (situations mauvaises), comme les problèmes de noyage, de fuite de gaz, d'assèchement de la membrane et de déformations des composants de la pile (apparition des fissures, ...) dans ce cas nous cherchons à voir l'influence des entrées aléatoires sur les sorties aléatoires afin d'éviter ces différents problèmes. Et cela est fait par l'intermédiaire d'un plan d'expériences.

Donc, nous présentons dans le paragraphe suivant l'étude stochastique menée grâce à un plan d'expérience numérique afin de déterminer l'incidence de différentes dispersions (aléatoires) des paramètres d'entrées (la porosité dans la GDL, le rayon de courbure de la plaque bipolaire et l'épaisseur de la GDL) sur les pressions de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP pour encore mieux maîtriser ces sorties qui sont aléatoires.

### 5.3 Etude stochastique menée par l'intermédiaire d'un plan d'expériences numérique

Nous faisons varier les paramètres A, B et C suivant une loi normale de moyenne et covariance de modalités 2 pour chaque paramètre. Nous avons recours à un plan complet pour réaliser les expériences (nombre total d'expériences :  $L_{64} = 2^6 = 64$ ) ; chaque expérience donne lieu à 1000 tirages. Les valeurs des pressions de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP sont calculées en utilisant les équations du modèle déterministe déjà validé précédemment. Les modalités des différents paramètres sont indiquées dans le tableau 3.15.

Paramètres d'entrées		Modalités	
		-1	1
Epaisseur de la GDL	mA	0,192	0,375
	COV A	1%	10%
Rayon de courbure de la BPP	mB	0,04	0,2
	COV B	1%	10%
Module de Young de la GDL	mC	4,59	5,25
	COV C	1%	10%

Tableau 3.15 : Modalités des paramètres du plan d'expériences numérique.

Les raisons de choisir deux modalités pour chaque paramètre sont les suivantes :

- Nous avons vu que l'augmentation de la dispersion sur les paramètres A, B et C (de 1% à 5% jusqu'à 10%) conduit à une même distribution des sorties (Y1 et Y2) dont la forme suit la loi de Gauss (figure 3.26).
- En plus, nous avons vu que l'augmentation de la dispersion sur le module de Young de la GDL de 1% jusqu'à 10% entraîne une augmentation de la zone de variation de la porosité de la GDL (figures 3.27 et 3.28). A partir de ces zones de variation, nous constatons qu'une porosité avec une dispersion de 5% présente un intervalle de variation acceptable [55%, 97%] (ni faible, ni élevée) en comparaison avec celles observées dans la littérature. Pour ces raisons, nous avons choisi deux modalités, pour la dispersion du paramètre C, 1 et 10% qui sont inférieures et supérieures à 5%.

Et par conséquent, nous avons choisis deux modalités pour les autres paramètres.

Les réponses étudiées sont  $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$  (Y1) et  $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$  (Y2). Les paramètres pouvant être observés correspondent aux descripteurs de forme des distributions de sorties : la moyenne, la covariance, l'aplatissement, l'asymétrie. L'étude peut être menée avec les différents outils liés à la méthode des plans d'expériences.

Dans le paragraphe ci-après, nous mettons à profit les graphes des effets pour étudier l'impact des dispersions aléatoires des paramètres d'entrées sur quatre paramètres de forme (moyenne M, Covariance COV, asymétrie et aplatissement) de la distribution statistique des réponses ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$  et  $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ).

### 5.3.1 Analyse des résultats du plan d'expérience : graphes d'effets

#### 5.3.1.1 Effets des paramètres sur la réponse Y1 : $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$

Le tableau 3.16 montre les effets des paramètres sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) et le tableau 3.17 montre les effets de ces paramètres sur l'asymétrie et l'aplatissement d'Y1. Afin d'expliquer physiquement l'influence des paramètres d'entrées, nous nous sommes basés sur des explications issues de la littérature.

Entrées		Sorties : Pression de contact entre GDL/MEA (Y1)		Interprétations	
COV C mC COV B mB COV A mA	mY1	<p>1,054 1,053 1,052 1,051 1,05 1,049 1,048 1,047</p> <p>0 % 0 % 0 % 86,3 % 0 % 13,7 %</p> <p>1% 10% 4.59 5.25 1% 10% 0.04 0.2 1% 10% 0.192 0.375</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>		<ul style="list-style-type: none"> <li>- Les paramètres <b>COV C</b>, <b>mC</b>, <b>COV B</b> et <b>COV A</b> n'ont pas d'incidence sur la moyenne de la distribution d'Y1. Ces paramètres ne modifient donc pas la forme de la distribution obtenue en sortie du modèle.</li> <li>- L'augmentation du paramètre <b>mB</b> (moyenne du rayon de courbure de la BPP) entraîne une augmentation de la moyenne de <math>C_{PRESS}</math> GDL/MEA de 86,3%.</li> <li>- La diminution de la moyenne de l'épaisseur de la GDL (<b>mA</b>) entraîne une augmentation de la moyenne de la pression de contact GDL/MEA (mY1) de 13,7%. Cette augmentation de mY1 améliore la diffusion des gaz réactifs des canaux de la plaque bipolaire vers la membrane, ce qui évite le phénomène de séchage de la membrane ; une plus grande quantité d'eau favorise l'hydratation de la membrane.</li> </ul>	
	COV Y1	<p>0,325 0,324 0,323 0,322 0,321 0,32</p> <p>0 % 0 % 31,75 % 31,11 % 4,11 % 0 %</p> <p>1% 10% 4.59 5.25 1% 10% 0.04 0.2 1% 10% 0.192 0.375</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>		<ul style="list-style-type: none"> <li>- Les paramètres <b>COV C</b>, <b>mC</b> et <b>mA</b> n'ont pas d'incidence sur la COV d'Y1. Cela signifie que ces trois paramètres ne modifient pas la forme de la distribution de forme de la sortie (COV Y1).</li> <li>- L'augmentation du <b>COV B</b> entraîne une augmentation de la dispersion de la <math>C_{PRESS}</math> GDL/MEA de 31,75%.</li> <li>- L'augmentation de <b>mB</b> entraîne une augmentation de la dispersion d'Y1 de 31,11%. Cette augmentation de COV Y1 provoque une déformation dans la structure de la membrane (fissures dans la membrane, ...) résultant des phénomènes d'assèchement et de gonflement de la membrane. Donc, la membrane va se dilater ou se contracter en fonction de sa charge en eau et donc appliquer plus ou moins d'effort sur la GDL. Cet effort va modifier la porosité de la GDL.</li> <li>- L'augmentation de <b>COV A</b> entraîne une diminution de COV Y1 de 4,11%. Cette diminution de COV Y1 entraîne une diminution de la résistance dans la membrane ce qui favorise l'hydratation de la membrane.</li> </ul>	

Tableau 3.16 : Effets des paramètres d'entrées sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1).

Entrées		Sorties	Interprétations
COV C mC COV B mB COV A mA	Asymétrie Y1	<p>Asymétrie de Y1</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	<p>L'asymétrie et l'aplatissement d'Y1 sont fortement influencés par les mêmes paramètres influents la covariance d'Y1 et qui sont <b>mB</b> (la moyenne du rayon de courbure de la plaque bipolaire), <b>COV B</b> (la dispersion du rayon de courbure de la BPP)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- L'augmentation de COV B de 1 à 10% entraîne une augmentation de l'asymétrie de Y1 de -0.005 jusqu'à 0.02 (31.56%) et une augmentation de l'aplatissement de Y1 de -0.093 jusqu'à -0.0916 (37.59%).</li> <li>- L'augmentation de mB de 0.04 à 0.2 entraîne une augmentation de l'asymétrie de Y1 de -0.005 jusqu'à 0.02 (31.04%) et une augmentation de l'aplatissement de Y1 de -0.0928 jusqu'à -0.092 (31.44%).</li> </ul> <p>Nous pouvons voir que ces différentes valeurs de l'asymétrie et de l'aplatissement sont proches de zéro : Cela signifie que, l'asymétrie et l'aplatissement confirment le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) suit la distribution des paramètres d'entrées (loi normale).</p>
	Aplatissement Y1	<p>Aplatissement de Y1</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	

Tableau 3.17 : Effets des paramètres d'entrées sur l'asymétrie et l'aplatissement de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1).

La figure 3.29 récapitule les pourcentages d'effets des paramètres d'entrées ainsi que les interactions sur les quatre paramètres de forme de la distribution de  $C_{PRESS}$  GDL/MEA (Y1). Les paramètres les plus significatifs sont illustrés sur un fond rouge.

Paramètres d'entrées	% mY1	% COV Y1	% Asymétrie de Y1	% Aplatissement de Y1
COV C	0	0	0	0
mC	0	0	0	0
COV B	0	31,75 ↗	31,56 ↗	37,59 ↗
mB	86,3 ↗	31,11 ↗	31,04 ↗	31,44 ↗
COV A	0	4,11 ↘	4,25 ↘	0,16 ↘
mA	13,7 ↘	0	0	0
mB*COV B	0	29,25 ↗	29,22 ↗	30,07 ↗

Figure 3.29 : Récapitulatif des pourcentages d'effets des paramètres d'entrées et leurs interactions sur les paramètres de forme de la réponse Y1.

Le comportement de l'ensemble des paramètres aléatoires d'entrées est linéaire comme montre la figure 3.29. Nous pouvons voir que seule l'interaction linéaire entre mB (moyenne de rayon de courbure de la BPP) et COV B (covariance de rayon de courbure de la BPP) est influente. Cette interaction mB\*COVB ainsi que ces deux paramètres influencent de la même manière les trois paramètres de forme (COV, asymétrie et aplatissement de Y1).

Les équations statistiques montrant la relation entre ces quatre paramètres de forme (mY1, COV Y1, asymétrie d'Y1 et aplatissement d'Y1) et les paramètres d'entrées les plus significatifs ainsi que les interactions sont présentées dans la section 5.3.2 ci-après.

### 5.3.1.2 Effets des paramètres sur la réponse Y2 : $C_{PRESS}$ GDL/BPP

Le tableau 3.18 montre les effets des paramètres d'entrées sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2) et le tableau 3.19 montre les effets de ces paramètres sur l'asymétrie et l'aplatissement d'Y2.

Entrées		Sorties : Pression de contact entre GDL/BPP (Y2)	Interprétations
COV C mC COV B mB COV A mA	mY2	<p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Les COV A, COV B et COV C n'ont aucune influence sur mY2. Cela semble logique vu que dans la figure 3.26, nous avons constaté que l'augmentation de la dispersion sur les paramètres d'entrées contribue à une même distribution sur les forme de sorties.</li> <li>- L'augmentation du <b>mC</b> de 4.59 à 5.25 MPa, qui correspond respectivement à une porosité de 88 et 68%, a un effet positif sur mY2. Une porosité de 68 % augmente la ténacité du matériau de la GDL, ce qui évite le phénomène de noyage dans la GDL.</li> <li>- L'augmentation du <b>mB</b> de 0.04 à 0.2mm entraine une diminution de mY2 (74%). Cette diminution de mY2 entraine une diminution de la surface active disponible pour la réaction électrochimique, ce qui augmente la résistance de contact entre GDL/BPP.</li> <li>- L'augmentation de <b>mA</b> entraine une augmentation de mY2 de 19.5 %. Cela est logique, vu que l'épaisseur de la GDL de 0.375mm correspond au type TORAY TGP-H-120, qui présente une faible résistance de contact.</li> </ul>
	COV Y2	<p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- L'augmentation de <b>COV B</b> entraine une augmentation de 9.5 % de COV Y2.</li> <li>- L'augmentation de mB entraine une augmentation de 4.12% de COV Y2.</li> <li>- L'augmentation de COV A entraine une augmentation de COV Y2 de 0.76%.</li> <li>- Le paramètre mA n'a pas d'incidence sur la COV de Y2.</li> <li>- L'augmentation de <b>COV C</b> entraine une diminution de la covariance d'Y2 de 8.22%. Cet effet était significatif d'un point de vue statistique. Comme expliqué avant dans figure 3.28, une dispersion de 10 % entraine une augmentation de l'intervalle de variation de la porosité [10 ; 97%]. Cet intervalle présente des inconvénients lorsque la porosité de la GDL diminue au-dessous de 40%. En outre, une dispersion de 1% fait augmenter la covariance d'Y2 avec un intervalle de variation de porosité de [84 ; 90%]. Ce léger intervalle a un effet négatif tel qu'une grande porosité peut bloquer l'élimination de l'eau de la GDL. Donc, une dispersion de 5% (entre 1 et 10 %) dans laquelle la porosité varie dans un intervalle [55 ; 97%] paraît le plus fiable pour COV Y2.</li> <li>- Cela explique l'influence de mC sur COV Y2. Un module de Young de 5.25 MPa correspondant à une porosité de 68% diminue de 0.36% la COV Y2. Cette porosité (68%) se trouve dans l'intervalle de la porosité de dispersion 5% [55 ; 97%].</li> </ul>

Tableau 3.18 : Effets des paramètres d'entrées sur la moyenne et la covariance de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

Entrées		Sorties	Interprétations
COV C mC COV B mB COV A mA	Asymétrie Y2	<p>Asymétrie de Y2</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	<p>Les six paramètres d'entrées influencent de la même manière les deux paramètres de formes (asymétrie et aplatissement) de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>Les paramètres <b>COV C (8.21%)</b>, <b>COV B (11.9%)</b> et <b>mB (6.46%)</b> sont les plus influents (significatifs) sur l'asymétrie d'Y2. Les autres paramètres n'apparaissent pas significatifs d'un point de vue statistique.</li> </ul> <p>Nous pouvons voir que la variation des modalités entre le niveau inférieure et le niveau supérieure entraîne une variation de l'asymétrie de Y2 entre -0.01 et 0.07.</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>Les paramètres <b>COV B (7.31%)</b> et <b>mB (5.25%)</b> sont les plus influents (significatifs) sur l'aplatissement d'Y2.</li> </ul> <p>L'augmentation de COV B de 1 à 10% et de mB de 0.04 à 0.2mm entraîne une augmentation de l'aplatissement de Y2 de -0.094 jusqu'à -0.069.</p> <p>Nous pouvons voir que ces différentes valeurs de l'asymétrie et de l'aplatissement sont proches de zéro : Cela signifie que, l'asymétrie et l'aplatissement confirment le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2) suit la distribution des paramètres d'entrées (loi normale).</p>
	Aplatissement Y2	<p>Aplatissement de Y2</p> <p>Modalités des paramètres</p> <p>--- moyenne — COV C — mC — COV B — mB — COV A — mA</p>	

Tableau 3.19 : Effets des paramètres d'entrées sur l'asymétrie et l'aplatissement de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2).

La figure 3.30 récapitule les pourcentages d'effets des paramètres d'entrées ainsi que les interactions sur les quatre paramètres de forme de la distribution de  $C_{\text{PRESS}} \text{ GDL/BPP (Y2)}$ . Les paramètres les plus significatifs sont illustrés sur un fond rouge.

Paramètres d'entrées	% mY2	% COV Y2	% Asymétrie de Y2	% Aplatissement de Y2
COV C	0	<b>8,22</b> ↘	<b>8,21</b> ↘	3
mC	<b>6,5</b> ↗	0,36	0,26	0,1
COV B	0	<b>9,5</b> ↗	<b>11,9</b> ↗	<b>7,31</b> ↗
mB	<b>74</b> ↘	4,12	<b>6,46</b> ↗	<b>5,25</b> ↗
COV A	0	0,76	0,69	2,38
mA	<b>19,5</b> ↗	0,26	0,19	1,91
mB*COV B	0	4	<b>6,31</b> ↗	<b>5,21</b> ↗
COV C*COV B	0	<b>8</b> ↗	<b>8</b> ↗	3

Figure 3.30 : Récapitulatif des pourcentages d'effets des paramètres d'entrées et leurs interactions sur les paramètres de forme de la réponse Y2.

Les équations statistiques montrant la relation entre ces quatre paramètres de forme (mY2, COV Y2, asymétrie d'Y2 et aplatissement d'Y2) et les paramètres d'entrées les plus significatifs ainsi que les interactions sont présentées dans la section 5.3.2 suivante.

Avant de présenter les modèles statistiques montrant les relations entre les paramètres d'entrées aléatoires et les sorties Y1 et Y2, nous allons présenter dans le tableau 3.20 la synthèse des résultats des graphes des effets résultant du plan d'expériences.

Comme déjà évoqué précédemment, les sorties (pressions de contact Y1 et Y2) sont aléatoires, cela signifie, qu'il y a des scénarios Y1 et Y2 qui sont mauvais et des scénarios qui sont bons. Comme il y a des scénarios mauvais (comme les problèmes de noyage, de fuite de gaz, d'assèchement de la membrane et de déformations des composants de la pile par apparition des fissures), dans ce cas, nous cherchons à voir comment nous pouvons choisir des paramètres d'entrées aléatoires pour éviter ces scénarios.

Grâce aux résultats du plan d'expériences (graphes des effets), nous montrons dans le tableau 3.20, les modalités des paramètres d'entrées aléatoires correspondants à chacun des scénarios mauvais et bons. Les paramètres aléatoires écrits en rouge correspondant au cas des scénarios bons.

Scénarios Y1 et Y2		Scénarios mauvais	Scénarios bons
Paramètres d'entrées			
mA		0.192 - Empêche la diffusion des gaz réactifs des canaux de la plaque bipolaire vers la membrane, - Apparition du phénomène de séchage de la membrane,	<b>0.375</b> - Conduit à une meilleure évacuation de l'eau liquide, - Évite le phénomène de noyage de la GDL, - La GDL de type GP-H-120 présente la plus petite résistance de contact.
	mB	0.2 - Diminue la longueur de contact entre la plaque bipolaire et le GDL - augmente la résistance de contact entre GDL/BPP,	<b>0.04</b> - Augmente la surface active disponible pour la réaction électrochimique, - Diminue la résistance de contact entre GDL/BPP.
mC		4.59 - Correspond à une porosité de 88%, Cette augmentation de la porosité provoque une diminution du module d'élasticité et par conséquent, une diminution de la ténacité du matériau de la GDL.	<b>5.25</b> - Correspond à une porosité de 68%, Cette porosité (68%) se trouve dans l'intervalle de variation de la porosité pour COV C 5% [55 ; 97%], cela signifie : Une augmentation du transport de masse dans la cellule, Une accélération de la diffusion des gaz réactifs vers l'électrode et de l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique.
	COV C	1% Porosité de la GDL comprise entre [84 ; 90%]. Ce léger intervalle de variation peut bloquer l'élimination de l'eau de la GDL et par conséquent conduire à un « envahissement » à des densités de courant élevées.	Une <b>dispersion de 5%</b> (entre 1 et 10 %) dans laquelle la porosité varie dans un intervalle [55 ; 97%] paraît le plus fiable pour la variation des pressions de contact.
	10% Porosité de la GDL comprise entre [10 ; 97%]. Provoque une circulation insuffisante des gaz réactifs : l'eau produite par la réaction électrochimique ne s'évacue plus, ce qui conduit à un phénomène de noyage dans la plaque GDL, ce qui affecte le contact entre GDL/BPP et diminue la performance de la pile.		

Tableau 3.20 : Choix des paramètres d'entrées aléatoires pour chaque scénario mauvais et bon.

### 5.3.2 Modèle statistique des réponses en fonction des paramètres étudiés

Après avoir calculé et interprété les effets des paramètres étudiés, ainsi que leurs interactions, il est possible de proposer un modèle statistique des réponses issues du plan d'expérience présenté précédemment. Nous allons donner les équations de la moyenne, de la covariance, de l'asymétrie et de l'aplatissement de deux sorties : Y1 ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$ ) et Y2 ( $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ).

- **Au niveau de la réponse Y1 ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$ ) :**

Les modèles auront la forme suivante :

$$m_{Y1} = 1,050717 + 0,002521 * mB - 0,001 * mA \quad \text{Eq. 3.15}$$

$$COV_{Y1} = 0,3232 + 0,00149 * COV B + 0,00147 * mB + 0,00143 * COVB * mB \quad \text{Eq. 3.16}$$

$$\text{Asymétrie } Y1 = 0,00869 + 0,00929 * COV B + 0,00921 * mB + 0,00893 * COVB * mB \quad \text{Eq. 3.17}$$

$$\text{Aplatissement } Y1 = -0,0924 + 0,00041 * COV B + 0,00038 * mB + 0,00037 * COVB * mB \quad \text{Eq. 3.18}$$

Les équations 3.15 et 3.16 montrent que les coefficients multipliés par les paramètres d'entrées (mB, mA et COVB) ainsi que les interactions entre ces paramètres sont proches du zéro. Cela signifie qu'en faisant varier ces paramètres d'entrées avec un coefficient de variation entre 1 et 10 %, nous avons une dispersion de 32% pour la pression de contact entre GDL/MEA (réponse Y1) avec une moyenne de 1.05 MPa.

Les équations 3.17 et 3.18 montrent que toutes les coefficients sont proches du zéro (Asymétrie et aplatissement d'Y1 = 0), cela confirme le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) suit la loi normale.

- **Au niveau de la réponse Y2 ( $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ) :**

Les modèles auront la forme suivante :

$$m_{Y2} = 1,8391 + 0,00648 * mC - 0,0219 * mB + 0,01126 * mA \quad \text{Eq. 3.19}$$

$$COV_{Y2} = 0,3277 - 0,0056 * COV C + 0,00603 * COV B - 0,0056 * COV C * COV B - 0,0044 * COV C * mB * COV A - 0,0045 * COV C * COV B * mB * COV A \quad \text{Eq. 3.20}$$

$$\text{Asymétrie}_{Y2} = 0,031 - 0,026 * \text{COV C} + 0,031 * \text{COV B} - 0,0256 * \text{COV C} * \text{COV B} + 0,023 * \text{mB} + 0,023 * \text{COV B} * \text{mB} - 0,0208 * \text{COV C} * \text{mB} * \text{COV A} - 0,0212 * \text{COV C} * \text{COV B} * \text{mB} * \text{COV A}$$

Eq 3.21

$$\text{Aplatissement}_{Y2} = -0,0813 + 0,01149 * \text{COV B} + 0,00974 * \text{mB} + 0,0097 * \text{COV B} * \text{mB} - 0,0095 * \text{COV C} * \text{mB} * \text{COV A} - 0,0095 * \text{COV C} * \text{COV B} * \text{mB} * \text{COV A}$$

Eq 3.22

Au niveau des équations 3.19, 3.20, 3.21 et 3.22, nous pouvons expliquer les modèles de  $\text{COV}_{Y2}$  (équation 3.20) et de l' Aplatissement $_{Y2}$  (équation 3.22) :

- L'équation 3.20 montre que les coefficients multipliés par les paramètres d'entrées (COV C, COV B, COV A et mB) ainsi que les interactions entre ces paramètres sont proches du zéro. Cela signifie qu'en faisant varier ces paramètres d'entrées avec un coefficient de variation entre 1 et 10 %, nous avons une dispersion de 32% pour la pression de contact entre GDL/BPP (réponse Y2).
- L'équation 3.22 montre que les coefficients multipliés par les paramètres d'entrées (COV C, COV B, COV A et mB) ainsi que les interactions entre ces paramètres sont proches du zéro. Nous avons un coefficient d'aplatissement faible et proche de zéro (-0.0813), cela montre que la distribution de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2) tend à s'aplatir au niveau de sa moyenne et suit la loi normale.

Pour résumer, les résultats de l'étude stochastique menée grâce à un plan d'expérience numérique montrent qu'en faisant varier les paramètres d'entrée (A, B et C) avec un coefficient de variation compris entre 10 et 10%, nous avons une dispersion de 32% pour les deux réponses Y1 et Y2.

Les modèles générés (décrivant la répartition des pressions de contact entre les composants de la pile) permettent de présenter de manière simple et très synthétique des résultats obtenus après plusieurs simulations liées au modèle. Ces modèles statistiques pourraient par la suite être mis en œuvre facilement dans le cadre d'études fiabilistes.

### 5.3.3 Validation des modèles statistiques issues de l'étude stochastique

L'étude stochastique (plan d'expériences), présentée précédemment, nous a donné des idées sur la relation entre les pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2) avec les paramètres d'entrées (équations 3.15 – 3.22). Afin de valider ces modèles, nous avons fait une expérience (sous ABAQUS) qui n'a pas été faite dans le plan d'expériences en mettant les modalités des paramètres d'entrées à zéro (tableau 3.21).

Paramètres		Modalité
		0
Epaisseur de la GDL	mA	0.2835
	COV A	5.5%
Rayon de courbure de la BPP	mB	0.12
	COV B	5.5%
Module de Young de la GDL	mC	4,92
	COV C	5.5%

Tableau 3.21 : Modalité des paramètres de l'expérience faite sous ABAQUS.

En mettant les modalités des paramètres d'entrées à zéro, les modèles statistiques de deux réponses Y1 et Y2 issues de l'étude stochastique menée grâce à un plan d'expérience numérique donnent les valeurs des descripteurs de forme (moyenne, coefficient de variation, asymétrie et aplatissement) des distributions de sorties (Y1 et Y2). Les valeurs obtenues, sous ABAQUS, sur les descripteurs de forme des distributions de sorties (Y1 et Y2) sont à comparer aux valeurs souhaitées résultants du plan d'expériences.

L'objectif est de garantir la nature gaussienne de la distribution des pressions de contact Y1 et Y2. Pour se faire, 1000 simulations ont été exécutées sous ABAQUS en faisant varier les paramètres d'entrées suivant la loi normale avec une modalité zéro des paramètres (tableau 3.21). Les distributions sur les paramètres d'entrées donnent lieu à des distributions statistiques sur les sorties étudiées. Les figures 3.31 et 3.32 montrent respectivement la distribution obtenues sous ABAQUS (après 1000 simulation) des pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2).

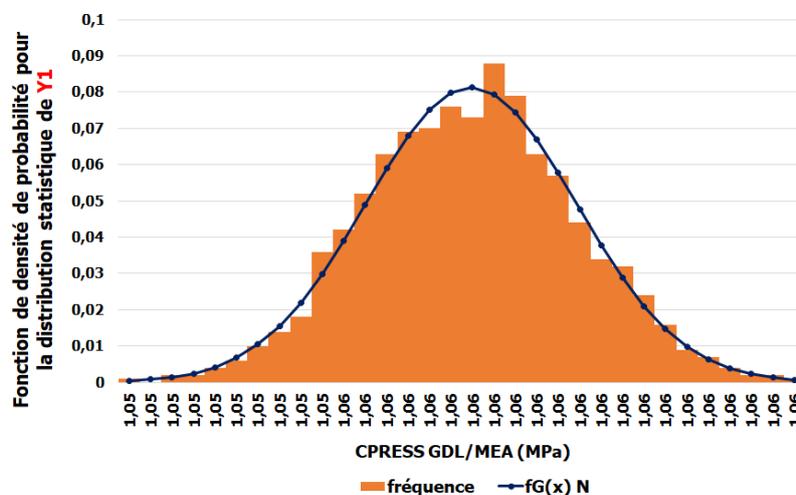


Figure 3.31 : Distributions obtenues sur Y1

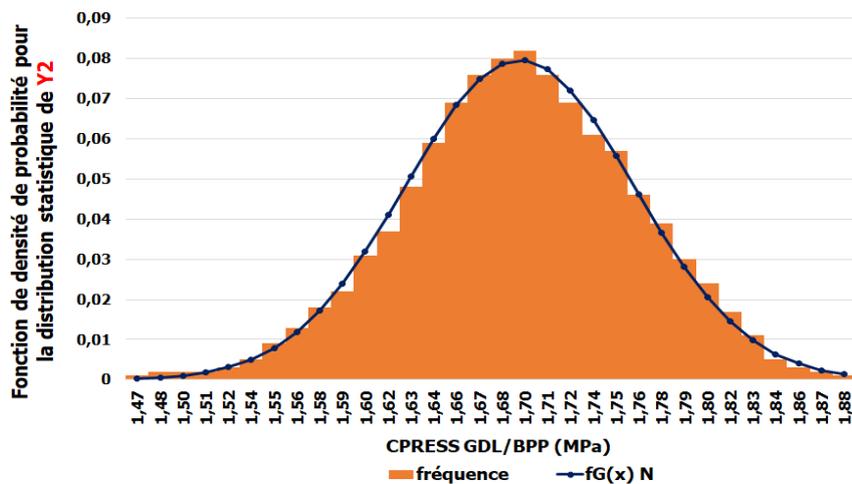


Figure 32 : Distributions obtenues sur Y2

En observant la forme de la distribution de deux réponses obtenues et d'après la théorie des surfaces de probabilités de K. Pearson [37], nous constatons que suite aux 1000 simulations exécutées, la distribution de la réponse Y1 ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$ ) est **numériquement modélisable par la loi de Gauss** avec une moyenne de 1.0568 MPa et une covariance de **0.2984**. De même, la réponse Y2 ( $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ) suit aussi la loi de Gauss avec une moyenne de 1.6928 MPa et une covariance de **0.2901**. Les valeurs obtenues sur les descripteurs de forme de la distribution des pressions de contact (Y1 et Y2) ont été comparées aux valeurs voulues (Tableau 3.22 et 3.23). Les tableaux 3.22 et 3.23 montrent respectivement la comparaison entre les résultats du plan d'expériences et les résultats ABAQUS sur les caractéristiques de la distribution de  $C_{\text{press GDL/MEA}}$  (Y1) et  $C_{\text{press GDL/BPP}}$  (Y2).

Descripteurs de forme	Résultats du plan d'expériences	Résultats ABAQUS
$m_{Y1}$	1.050717	1.0568297
$COV_{Y1}$	0.3232	0.2984
<b>Asymétrie</b> $Y1$	0.00869	0.03457
<b>Aplatissement</b> $Y1$	-0.0924	-0.0818

Tableau 3.22 : Comparaison entre les résultats du plan d'expériences et numériques sur les caractéristiques de la distribution de  $C_{\text{press GDL/MEA}}$  (Y1)

Descripteurs de forme	Résultats du plan d'expériences	Résultats ABAQUS
$m_{Y2}$	1.8391	1.6928
$COV_{Y2}$	0.3277	0.2901
<b>Asymétrie</b> $Y2$	0.0308	-0.1475
<b>Aplatissement</b> $Y2$	-0.0813	-0.004013

Tableau 3.23 : Comparaison entre les résultats du plan d'expériences et numériques sur les caractéristiques de la distribution de  $C_{\text{press GDL/BPP}}$  (Y2)

Au niveau de la réponse Y1 (tableau 3.22), nous constatons que les résultats ABAQUS sont proches des résultats du plan d'expériences : une bonne corrélation est observée au niveau de la moyenne de Y1 ( $\mathbf{m}_{Y1}$ ). Un faible écart de 8 % est observé au niveau du coefficient de variation d'Y1 ( $\mathbf{COV}_{Y1}$ ). Au niveau de l'asymétrie et l'aplatissement d'Y1, des faibles valeurs (proche de zéro) ont été observées, cela confirme le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) suit la loi normale.

Au niveau de la réponse Y2 (tableau 3.23), nous observons un faible écart de 8.6 % au niveau de la moyenne de Y2 ( $\mathbf{m}_{Y2}$ ) : cet écart est dû à la faible épaisseur de la GDL (0.23 mm). Nous avons vu dans la figure 3.12 que la diminution de l'épaisseur de la GDL fait diminuer la pression de contact entre GDL/BPP. Cela signifie que cette faible épaisseur de la GDL fait diminuer la moyenne d'Y2. De même, par rapport à la réponse Y1, un faible écart de 8 % a été observé au niveau du coefficient de variation d'Y2 ( $\mathbf{COV}_{Y2}$ ). Au niveau de l'aplatissement d'Y2, une faible valeur (proche de zéro) a été observée (-0.004105), cela confirme le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/BPP (Y2) suit la loi normale. Au niveau de l'asymétrie d'Y2, une valeur négative faible a été observée (-0.1469) en comparant avec celle de la valeur du plan d'expériences (0.0308).

## 6 Conclusion

Dans ce chapitre, l'analyse par éléments finis est associée à un plan d'expériences (PE) pour étudier l'influence de différents paramètres (épaisseur de la GDL, rayon de courbure de la plaque bipolaire et module de Young de la GDL) sur le comportement mécanique de la pile à combustible et en particulier sur les pressions de contact entre les composants GDL/BPP et GDL/MEA. Ensuite, Le modèle déterministe développé à partir du PE a été utilisé dans la prise en compte et l'analyse des incertitudes de ces paramètres mécaniques sur les pressions de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA. Nos résultats ont conduit aux principales conclusions suivantes :

La pression de contact maximale est située au niveau du point de détachement de la GDL de la plaque bipolaire, ce qui génère des pics de pression au point de détachement.

L'influence de la porosité de la GDL a également été étudiée. Pour établir une comparaison et avoir une bonne connaissance des phénomènes, des porosités faibles et élevées ont été étudiées.

L'étude de la faible porosité nous permet d'identifier les paramètres optimaux : épaisseur de GDL de 0,192 mm, diamètres de pores de 0,09 mm et rayon de courbure de la plaque bipolaire de 0,04 mm. Les résultats montrent que l'augmentation du diamètre des pores ( $\varnothing_p = 0,09$  mm), correspondant à une porosité de 57%, avec une faible épaisseur du GDL (0,192 mm) conduit à une augmentation des pressions de contact qui réduit la résistance de contact électrique et évite le dessèchement de la membrane.

Cependant, nous n'avons pas comparé nos résultats avec des résultats expérimentaux en raison du faible nombre d'expériences menées et disponibles sur l'étude de faible porosité de la GDL.

Ensuite, une étude à haute porosité a été réalisée, où la géométrie de la GDL avec pore a été remplacée par un modèle homogénéisé. Avec les paramètres optimaux identifiés (porosité 88%, rayon de courbure de la plaque bipolaire de 0,04 mm et épaisseur de la GDL de 0,375 mm), nous avons trouvé une bonne corrélation entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux trouvés dans la bibliographie. La parfaite adéquation entre les résultats numériques et expérimentaux nous permet de valider nos modélisations.

Dans la deuxième partie du chapitre (section 4 et 5), et après avoir défini la démarche permettant d'intégrer une ou plusieurs incertitudes dans le modèle EF, nous avons appliqué cette stratégie sur un seul cas d'étude : cas d'une porosité élevée. Les résultats montrent que :

En faisant varier les paramètres d'entrées suivant une loi normale, on constate que la distribution de la réponse Y1 ( $C_{\text{PRESS GDL/MEA}}$ ) est **numériquement modélisable par la loi de Gauss** avec une moyenne de 1.049 MPa et une covariance de 0.32. De même, la réponse Y2 ( $C_{\text{PRESS GDL/BPP}}$ ) suit aussi la loi de Gauss avec une moyenne de 1.849 MPa et une covariance de 0.32.

Une étude stochastique menée grâce à un plan d'expérience numérique a été réalisé afin de déterminer l'incidence de différentes dispersions de la porosité dans la GDL, ainsi que d'autres paramètres mécaniques (Rayon de courbure de la plaque bipolaire, épaisseur de la GDL) sur les pressions de contact entre GDL/MEA et GDL/BPP. Les résultats du plan d'expériences montrent que :

- Au niveau de la réponse Y1, le comportement de l'ensemble des paramètres aléatoires d'entrées est linéaire : Le coefficient de variation, l'asymétrie et l'aplatissement d'Y1 sont fortement influencés par les mêmes paramètres **mB** (la moyenne du rayon de courbure de la plaque bipolaire), **COV B** (la dispersion du rayon de courbure de la BPP) ainsi que l'interaction entre ces deux paramètres **mB \* COV B**.
- Au niveau de la réponse Y2, le comportement de l'ensemble des paramètres aléatoires d'entrées est aussi linéaire.

Après avoir calculé et interprété les effets des paramètres étudiés, ainsi que leurs interactions, des modèles statistiques ont été proposés afin de montrer la relation entre les paramètres d'entrées et les réponses étudiées (Y1 et Y2).

- Les modèles statistiques des réponses Y1 et Y2 montrent qu'en faisant varier les trois paramètres d'entrées avec un coefficient de variation entre 1 et 10 %, nous avons une dispersion de 32% pour Y1 et pour Y2.
- Au niveau de l'asymétrie et l'aplatissement d'Y1, les modèles statistiques montrent que tous les coefficients sont proches du zéro (Asymétrie et aplatissement d'Y1 = 0),

cela confirme le fait que la distribution de la pression de contact entre GDL/MEA (Y1) suit la loi normale.

Afin de valider ces différents modèles statistiques, nous avons fait une expérience (sous ABAQUS) qui n'a pas été faite dans le plan d'expériences en mettant les modalités des paramètres d'entrées à zéro. Les résultats obtenus sous ABAQUS montrent que la distribution des pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2) suit la loi normale avec un coefficient de variation de 29% (dispersion naturelle) pour Y1 et Y2. Les modèles statiques de deux réponses Y1 et Y2 sont validés par le modèle ABAQUS.

Dans cette étude, toutes les simulations ont été réalisées en appliquant une pression de serrage constante de 1MPa sur la plaque d'extrémité. De plus, la modélisation du couplage thermo-électro-mécanique n'a pas été prise en compte. Ce sont les deux principales critiques que nous pourrions faire à cette étude. En effet, il serait maintenant intéressant d'étudier l'influence de la pression de serrage sur les répartitions des pressions de contact Y1 et Y2 en tenant en compte le couplage thermo-électro-mécanique. C'est ce que nous proposons de faire dans le chapitre 4 qui suit.

## Références

- [1] 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.
- [2] Zhang, L., Liu, Y., Song, H., Wang, S., Zhou, Y., & Hu, S. J. (2006). Estimation of contact resistance in proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 162 (2), 1165-1171.
- [3] Hibbit, Karlson, Inc. S., « Abaqus », Theory Manual - version 6.5, 2005.
- [4] Zhang, Z. (2010). Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible (Thèse de doctorat, Université de Evry-Val d'Essonne, France).
- [5] Akiki, T. (2011). Modélisation de la dégradation de la production de puissance d'une pile à combustible suite aux sollicitations mécaniques (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard)
- [6] 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.
- [7] Jourdani, M. (2019). Simulation Numérique Couplée des Phénomènes Thermo- fluide, Electrochimique et Mécanique dans une Pile à Combustible type PEMFC (Thèse de doctorat, Ecole Mohammadia d'Ingénieurs, Maroc)
- [8] Thomas, A. (2012). Transferts d'eau et de chaleur dans une pile à combustible à membrane : mise en évidence expérimentale du couplage et analyse des mécanismes (Thèse de doctorat, Université de Lorraine, France).
- [9] 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*. American Society of Mechanical Engineers Digital Collection, 2003. 111-120.
- [10] Irmscher, P., Qui, D., Janßen, H., Lehnert, W., & Stolten, D. (2019). Impact of gas diffusion layer mechanics on PEM fuel cell performance. *International Journal of Hydrogen Energy*, 44 (41), 23406-23415.

- [11] Zhu, S., Bouby, C., Cherouat, A., & Zineb, T. B. (2019). 3D reconstitution and numerical analysis of superelastic behavior of porous shape memory alloy. *International Journal of Solids and Structures*, 168, 109-122.
- [12] Lafhaj, Z., Goueygou, M., Djerbi, A., & Kaczmarek, M. (2006). Correlation between porosity, permeability and ultrasonic parameters of mortar with variable water/cement ratio and water content. *Cement and Concrete Research*, 36 (4), 625-633.
- [13] Mori T. and Tanaka K. (1973). Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica*, 21 (5), 571-574.
- [14] Hamour, M., Grandidier, J. C., Ouibrahim, A., & Martemianov, S. (2015). Electrical conductivity of PEMFC under loading. *Journal of Power Sources*, 289, 160-167.
- [15] Zhou, P., Wu, C. W., & Ma, G. J. (2006). Contact resistance prediction and structure optimization of bipolar plates. *Journal of Power Sources*, 159 (2), 1115-1122.
- [16] Mishra, V., Yang, F., & Pitchumani, R. (2004). Measurement and prediction of electrical contact resistance between gas diffusion layers and bipolar plate for applications to PEM fuel cells. *Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage*, 1 (1), 2-9.
- [17] Témoignage de l'association Expérimentique [1996-2005]; sous la coordination de François LOUVET et Luc DELPLANQUE « Design of experiments : une approche pragmatique et illustrée : the French touch », Orléans : Expérimentique, DL 2005 ISBN : 2-9525126-0-4
- [18] Wahdame, B. (2006). Analyse et optimisation du fonctionnement de piles à combustible par la méthode des plans d'expériences (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard, France).
- [19] Carcadea, E., Varlam, M., Ismail, M., Ingham, D. B., Marinoiu, A., Raceanu, M., & Ion- Ebrasu, D. (2019). PEM fuel cell performance improvement through numerical optimization of the parameters of the porous layers. *International Journal of Hydrogen Energy*, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2019.08.219>
- [20] Larbi, B., Alimi, W., Chouikh, R., & Guizani, A. (2013). Effect of porosity and pressure on the PEM fuel cell performance. *International journal of hydrogen energy*, 38 (20), 8542-8549.
- [21] Noguier, N. (2015). *Aide à l'analyse fiabiliste d'une pile à combustible par la simulation* (Doctoral dissertation, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard).
- [22] A. Gelman, J. Hill, *Data analysis using regression and multilevel/hierarchical models*, Cambridge University Press, 2007, ISBN 0-521-86706-1.
- [23] Kahveci, E. E., & Taymaz, I. (2014). An Investigation of GDL Porosity on PEM Fuel Cell Performance. *Chemical Engineering Transactions*, 42, 37-42.
- [24] Taymaz, I., & Benli, M. (2010). Numerical study of assembly pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell. *Energy*, 35(5), 2134-2140.
- [25] K. Otto, "A formal representational theory for engineering design", Doctoral dissertation, California Institute of Technology, Department of Mechanical Engineering, December 1992.
- [26] J.M. Ben Amor, S. Martel. Le choix d'un langage de modélisation des imperfections de l'information en aide à la décision. Dans conference of the Administrative Sciences Association of Canada, volume Vol.25, (2004).
- [27] Loyer, B. (2009). Conception fonctionnelle robuste par optimisation multicritère de systèmes de suspension automobile passifs et semi-actifs (thèse de doctorat, Ecully, Ecole centrale de Lyon).
- [28] Rollet, Y. (2007). Vers une maîtrise des incertitudes en calculs des structures composites (thèse de doctorat de l'école Polytechnique, ONERA, Châtillon).
- [29] T.C. Sun, A finite element method for random differential equations with random coefficients, *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 1979, 16(6): p. 1019-1035.
- [30] R.G. Ghanem et P.D. Spanos, *Stochastic finite elements: a spectral approach*, 1991: Springer Verlag.
- [31] G. Stefanou, The stochastic finite element method: Past, present and future, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 2009, 198(9-12): p. 1031-1051.
- [32] S. Rahman et B. Rao, A perturbation method for stochastic meshless analysis in elastostatics, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 2001, 50(8): p. 1969-1991.

- [33] S. Rahman et H. Xu, A meshless method for computational stochastic mechanics, *International Journal for Computational Methods in Engineering Science and Mechanics*, 2005, 6(1): p. 41-58.
- [34] W.K. Hastings, Monte Carlo sampling methods using Markov chains and their applications, *Biometrika*, 1970, 57(1): p. 97-109.
- [35] Broniatowski, M., & Hermann, K. G. (2014). *Méthodes form et sorm*.
- [36] N. Devictor, « Fiabilité et mécanique : méthodes FORM/SORM et couplages avec des codes éléments finis par des surfaces de réponse adaptatives. » Thèse d'état, soutenue à l'Université Blaise Pascal, Clermont Ferrand, 1996.
- [37] BEAUFILS, D., RICHOUX, H., & Pagnol, L. M. (1997). Régression linéaire et incertitudes expérimentales. *Bull. Union Phys*, 796, 1361-1376.
- [38] M. Lemaire, « Eléments finis et fiabilité : un mariage à la mode. » *Fiabilité des Matériaux et des Structures*, 95-112, 1998.
- [39] D. Xiu and G. E. Karniadakis. The Wiener-Askey polynomial chaos for stochastic differential equations. *J. Sci. Comput.*, 24(2) :619–644, 2002.
- [40] K-K. Phoon. Representation of random variables using orthogonal polynomials. pages 97–104. Der Kiureghian, and Madanat, and Pestana (Eds.), 2003.
- [41] Movahedi, M., A. Ramiar, and A. A. Ranjber. "3D numerical investigation of clamping pressure effect on the performance of proton exchange membrane fuel cell with interdigitated flow field." *Energy* 142 (2018): 617-632.
- [42] Das, Prodip K., Xianguo Li, and Zhong-Sheng Liu. "Analysis of liquid water transport in cathode catalyst layer of PEM fuel cells." *International Journal of Hydrogen Energy* 35.6 (2010) : 2403-2416.
- [43] Jourdani, M. (2019). *Simulation Numérique Couplée des Phénomènes Thermo- fluide, Electrochimique et Mécanique dans une Pile à Combustible type PEMFC* (Thèse de doctorat, Ecole Mohammadia d'Ingénieurs, Maroc).
- [44] J-L. Norman, S. Kotz, N. Balakrishnan. « Continuous Univariate Distributions », A Wiley-Interscience Publication, 1994, 791 pages. ISBN: 978-0-471-58495-7.
-

# Chapitre 4

## Modélisation multiphysique 3D d'une cellule de PAC

1	Introduction.....	136
2	Modélisation numérique multiphysique d'une cellule de la pile.....	137
2.1.	Méthodologie de la modélisation multiphysique .....	137
2.1.1	Géométrie du modèle éléments finis.....	139
2.1.2	Conditions d'interface thermo-électro-mécanique .....	140
2.1.3	Les conditions de chargement.....	142
3	Analyse des résultats numériques.....	142
3.1.	Plan d'expériences.....	143
3.1.1.	Choix des modalités et analyses des graphes d'effets. ....	143
3.1.2.	Analyse de la variance (ANOVA).....	145
3.1.3.	Régression multilinéaire (RML) .....	146
3.2.	Optimisation du modèle éléments finis (Choix des paramètres optimaux) .....	147
3.2.1.	Effets des pressions de serrage sur la résistance électrique .....	149
4	Effet des incertitudes des paramètres .....	150
4.1.	Distributions statistiques sur les paramètres d'entrées .....	151
4.2.	Résultats et discussion .....	151
4.2.1.	Distributions statistiques sur les paramètres de sorties (Y1 : CPRESS GDL/MEA et Y2 : CPRESS GDL/BPP) .....	151
5	Conclusion .....	152

---

### Liste des figures

Figure 4.1 : Algorithme de résolution des problèmes thermo-électro-mécaniques dans ABAQUS.

Figure 4.2 : Méthodologie de la simulation de contact électromécanique et thermomécanique.

Figure 4.3 : a) modèle 3D EF de la pile et b) maillage du modèle 3D de la pile

Figure 4.4 : Paramètres influant sur le contact électrique entre la GDL et la plaque bipolaire (BPP).

Figure 4.5 : Modalités pour différents paramètres et réponses étudiées

Figure 4.6 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA

Figure 4.7 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP.

Figure 4.8 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et b) Surface de réponse

Figure 4.9 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et b) Surface de réponse

Figure 4.10 : Distribution de la contrainte de Von. Mises dans la pile sous une pression de serrage de 1MPa.

Figure 4.11 : Répartition de Pression de contact entre GDL/BPP.

Figure 4.12 : Variation de la résistance de contact et la conductivité en fonction de la pression de serrage.

Figure 4.13 : Comparaison de la résistance de contact électrique en fonction de la pression de serrage entre le modèle EF (simulation) et résultats expérimentales.

Figure 4.14 : Distributions obtenues sur Y1

Figure 4.15 : Distributions obtenues sur Y2

### Liste des tableaux

Tableau 4.1 : Dimensions géométriques et caractéristiques de chaque composant de la pile.

Tableau 4.2 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/MEA (S : significatif)

Tableau 4.3 : ANOVA de la  $C_{Press}$  GDL/BPP (S : significatif)

Tableau 4.4 : Paramètres de forme de la distribution des paramètres d'entrées.

## 1 Introduction

Dans le contexte actuel de maîtrise des énergies, l'optimisation du système pile à combustible PAC est un enjeu majeur. En effet, la PAC est sans doute à l'heure actuelle l'un des moyens les moins polluants pour fabriquer de l'énergie électrique. La pile à combustibles type PEMFC est un système complexe dont la durabilité reste un phénomène important à explorer par des approches expérimentales et numériques. Les modélisations théoriques et numériques permettant de comprendre et de d'anticiper les dégradations des performances de la pile et de maîtriser la fiabilité des composants dans un contexte mécanique.

Les performances thermiques, électriques et mécaniques d'une cellule de la pile dépendent des matériaux de chaque composant (membrane, GDL, plaque bipolaire, plaque d'extrémité), mais aussi de leur architecture et de la méthode d'assemblage de la pile (choix de couple de serrage, géométrie de la plaque bipolaire, ...). Or, ces performances diminuent au cours du temps compte tenu de la dégradation des matériaux, de l'évolution des conditions d'assemblage, de la circulation des fluides et de la déformation des structures [1-2]. Sous des fortes sollicitations mécaniques (couple de serrage important), plusieurs paramètres liés à la pile, comme le volume d'échange des gaz, la pression de contact à l'interface entre la GDL et la plaque bipolaire (BPP) et la résistance de contact électrique et thermique entre la GDL et la BPP subissent des grandes variations irréversibles [3-4].

De plus, l'influence des effets thermiques et électriques sur les contraintes mécaniques contribuent, par exemple, à la détérioration de certains composants du cœur de la pile, notamment la couche de diffusion des gaz qui est un matériau poreux et fibreux. Le rôle de cette dernière est primordiale car elle contribue à la transmission de la chaleur et de l'électricité jusqu'aux sites de réaction. D'où la nécessité d'étudier par l'approche multi-physique l'influence de couplage thermique – électrique – mécanique sur la distribution des contraintes et des pressions mécaniques et électriques dans chaque composante de la pile.

Ce chapitre est organisé comme suit :

Après présentation de l'approche multi-physique d'une cellule de pile, nous présentons dans la section 2 du chapitre le modèle éléments finis, de couplage thermo-électro-mécanique, tridimensionnel d'une demi-dent et demi-canal d'une cellule de la pile réalisé sous le logiciel ABAQUS.

Dans la section 3, nous présentons les résultats du plan d'expériences concernant l'analyse des effets des paramètres mécaniques sur la répartition des pressions de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA. Nous terminons cette section par une identification des paramètres optimaux, utilisés pour simuler la résistance de contact sous différentes pressions de serrage, et une validation par des comparaisons avec des résultats expérimentaux de la littérature.

Dans la section 4, nous présentons l'étude de l'influence des incertitudes des paramètres : nous abordons l'influence sur la répartition des pressions de contact des incertitudes des paramètres de conception mécanique.

## 2 Modélisation numérique multiphysique d'une cellule de la pile

### 2.1. Méthodologie de la modélisation multiphysique

La prédiction de la résistance de contact électrique de la pile passe par la connaissance de la distribution des pressions mécaniques de contact entre les différents composants et particulièrement entre la GDL et la BPP. Afin de déterminer la résistance de contact une approche multi-physique pour la résolution de l'équilibre de conservations des champs physiques est proposée. Le processus de la modélisation multi-physique consiste en une analyse simultanée avec un couplage fort et se fait selon deux étapes :

1. Une simulation mécanique est premièrement réalisée avec une pression de serrage appliquée sur la plaque bipolaire afin d'obtenir l'aire de contact entre la GDL et la BPP, le champ de contrainte et la distribution de la pression de contact à l'interface.
  2. Dans un second temps, une analyse thermique - électrique est réalisée en introduisant le contact électrique et thermique entre la GDL et la BPP (figure 4.2) et en appliquant une densité de courant électrique et un flux de chaleur sur le modèle afin de calculer le champ de température et les potentiels électriques en tenant compte des résultats du calcul mécanique.
  3. Finalement, la résistance de contact électrique calculée est fonction de la différence de potentiel électrique de chaque côté de l'interface de contact et de la densité de courant électrique (*voir section 2.3 dans chapitre 3*). Nous présentons l'algorithme de résolution du problème thermo-électro-mécanique dans la figure 4.1 suivante :
-

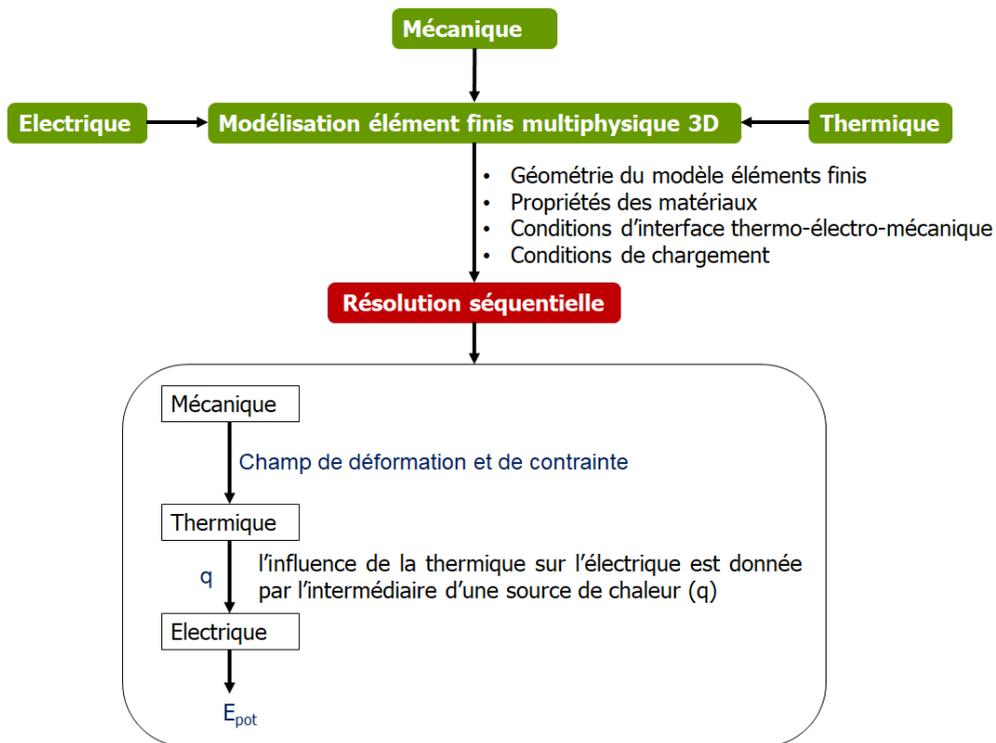


Figure 4.1 : Algorithme de résolution des problèmes thermo-électro-mécaniques dans ABAQUS.

Nous présentons dans la figure 4.2 les principales étapes de la démarche mise en œuvre concernant la définition des contacts électromécaniques et thermomécaniques dans le modèle :

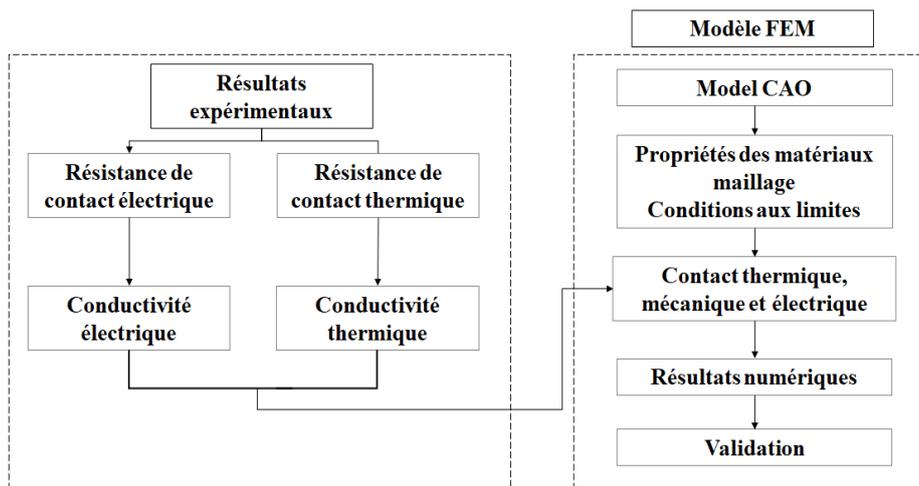


Figure 4.2 : Méthodologie de la simulation de contact électromécanique et thermomécanique.

## 2.1.1 Géométrie du modèle éléments finis

La description du modèle EF est illustrée dans la figure 4.3a. Le présent modèle se compose d'une demi-dent, d'un demi-canal de la plaque bipolaire, de la GDL et de la membrane. Afin de réduire la taille du problème et le temps de simulation, des conditions de symétrie ont été appliquées sur la pile. Des éléments hexaédriques à huit nœuds (Q3D8) sont utilisés pour mailler les composants du modèle tridimensionnel, ainsi notre modèle est composé de 10570 éléments et de 14011 nœuds (figure 4.3b). Les propriétés des matériaux pour les composants de la pile sont considérées comme homogènes élastiques linéaires et isotropes. Les dimensions et les propriétés des matériaux des composants de la pile sont données dans le tableau 4.1.

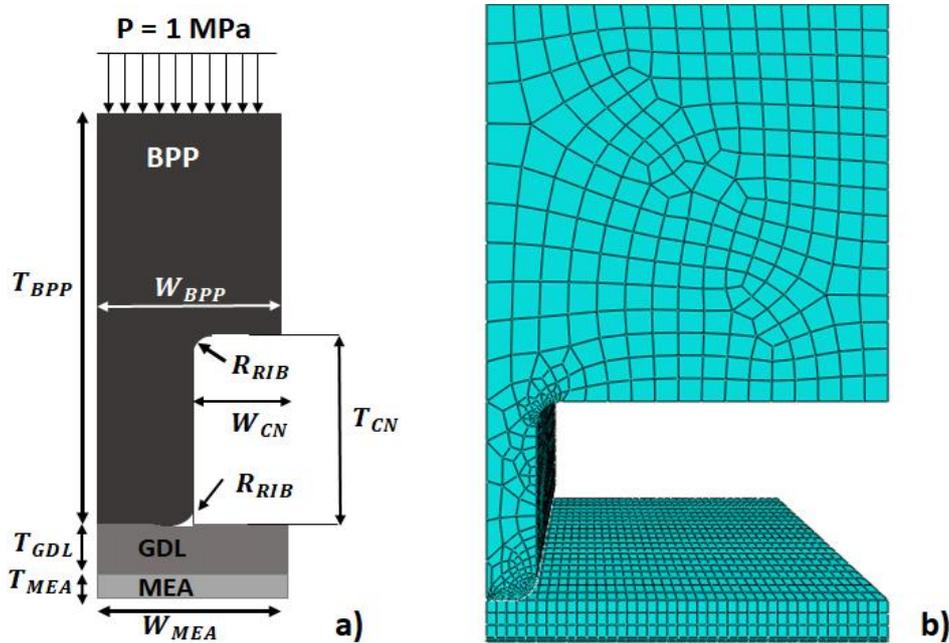


Figure 4.3 : (a) modèle 3D EF de la pile et (b) maillage du modèle 3D de la pile

Composants	Paramètres	Définition	Valeurs	Référence	
BPP	Mécanique	$T_{BPP}$	Epaisseur (mm)	6	[5]
		$W_{BPP}$	Largeur (mm)	4	[5]
		$W_{CN}$	Largeur des canaux (mm)	3.5	[5]
		$W_{RIB}$	Largeurs de dents (mm)	0.5	[5]
		$T_{CN}$	Profondeur des canaux (mm)	2	[5]
		$R_{RIB}$	Rayon de courbure (mm)	0.25	[-]
		$E_{BPP}$	Module d'Young (GPa)	210	[11]
		$\nu_{BPP}$	Coefficient de Poisson BPP	0.3	[11]
		$\alpha$	Coefficient de dilatation thermique ( $10^{-6}/^{\circ}C$ )	12	[9]
	Electrique	$K_e$	Conductivité électrique (S/mm)	59000	[8]
	Thermique	$K$	Conductivité thermique (mW/mm $^{\circ}C$ )	60.5	[9]
		$C_p$	Chaleur spécifique (mJ/tonne. $^{\circ}C$ )	434 e6	[9]
GDL	Mécanique	$T_{GDL}$	Epaisseur (mm)	0.375	[5]
		$W_{GDL}$	Largeur (mm)	4	[5]
		$E_{GDL}$	Module d'Young (GPa)	60	[11]
		$\nu_{GDL}$	Coefficient de Poisson GDL	0.09	[11]
		$\alpha$	Coefficient de dilatation thermique ( $10^{-6}/^{\circ}C$ )	-0.8	[9]
	Electrique	$K_e$	Conductivité électrique (S/mm)	1.250	[8]
	Thermique	$K$	Conductivité thermique (mW/mm $^{\circ}C$ )	1.3	[9]
		$C_p$	Chaleur spécifique (mJ/tonne. $^{\circ}C$ )	685 e6	[9]
MEA	Mécanique	$T_{MEA}$	Epaisseur (mm)	0.045	[6]
		$W_{MEA}$	Largeur (mm)	4	[5]
		$E_{MEA}$	Module d'Young (GPa)	0.021	[7]
		$\nu_{MEA}$	Coefficient de Poisson	0.001	[7]
		$\alpha$	Coefficient de dilatation thermique ( $10^{-6}/^{\circ}C$ )	123	[9]
	Electrique	$K_e$	Conductivité électrique (S/mm)	0.0083	[10]
	Thermique	$K$	Conductivité thermique (mW/mm $^{\circ}C$ )	0.455	[9]
		$C_p$	Chaleur spécifique (mJ/tonne. $^{\circ}C$ )	4188 e6	[9]

Tableau 4.1 : Dimensions géométriques et caractéristiques de chaque composant de la pile.

### 2.1.2 Conditions d'interface thermo-électro-mécanique

L'originalité du modèle réside dans le comportement des interfaces. En effet, dans le modèle développé, nous considérons un couplage thermo-électro-mécanique. Dans ces zones de contact, un échauffement localisé peut avoir lieu et conduire à la rupture des connexions. Le passage de courant dans les matériaux peut donc constituer une véritable source de vieillissement, être directement responsable de l'endommagement.

Le **contact mécanique** en fonction de la pression de contact, le frottement mécanique entre composant régi par une loi de Coulomb standard avec :

$$\tau = \mu * C_{PRESS} \quad \text{Eq. 4.1}$$

$\tau$  est la contrainte tangentielle à l'interface BPP/GDL,  $C_{PRESS}$  la pression de contact fonction de la pression de serrage et de la différence de température à l'interface et la résistance au frottement donnée par  $\mu$  le coefficient de frottement.

Le **contact électrique** : en fonction de la densité de courant, la résistance électrique est proportionnelle à la différence de potentiel électrique de contact. La conductance électrique de contact est définie comme suit :

$$J = E_{CC} * (U_{BPP} - U_{GDL}) \quad \text{Eq. 4.2}$$

Où J est la densité de courant (A/mm<sup>2</sup>),  $U_{BPP} - U_{GDL}$  est la différence de potentiel électrique à l'interface entre la BPP/GDL (en Volt) et  $E_{CC}$  est la conductance électrique ( $\Omega^{-1} \cdot \text{mm}^{-2}$ ) fonction de la capacité des matériaux à laisser passer le courant électrique. La valeur de la conductance est estimée expérimentalement.

Dans notre étude, nous avons utilisé les résultats expérimentaux de Bouziane. Khadidja, et al. [5] qui ont réalisé des tests expérimentaux sur une plage de pression de serrage variant de P= 0.1 à 5MPa pour différents types de GDL. Ils ont montré que les GDL de type SGL ont la plus grande résistance de contact. Les GDL de type Freudenberg et TORAY présentent des résistances acceptables.

Le **comportement thermique** : L'échange thermique conductif entre les composants est représenté par la résistance de contact thermique à l'interface entre la GDL et la BPP. Le contact thermique est défini par la conductance thermique notée  $T_{CC}$  définie selon l'équation 4.3 suivante :

$$q = T_{CC} * (T_{BPP} - T_{GDL}) \quad \text{Eq. 4.3}$$

avec, q est le flux de chaleur imposé par le courant électrique (W),  $T_{CC}$  est la conductance thermique (W/°C) obtenue expérimentalement, en fonction de la pression de serrage, et  $T_{BPP} - T_{GDL}$  est la différence de température à l'interface entre la BPP et la GDL.

Dans notre étude, nous avons utilisé les résultats expérimentaux issus des travaux de Sadeghi, E. et al. [12]. Ils ont réalisé des tests expérimentaux en variant la pression de serrage entre 0.1 et 1.5 MPa pour mesurer les résistances de contact thermique pour deux types de GDL (TGP-H-060 et TGP-H-120). Ils ont montré que la GDL de type TGP-H-0120 présente une faible résistance de contact thermique par rapport à la GDL de type TGP-H-060. Les valeurs de la conductance électrique et de la conductance thermique, obtenues expérimentalement, sont intégrées dans le modèle EF pour simuler le contact thermo-électromécanique entre GDL/BPP.

### 2.1.3 Les conditions de chargement

Trois types de charges ont été appliqués sur le modèle de la pile :

- Une pression mécanique de serrage de  $P=1\text{MPa}$  est appliquée sur la surface supérieure de la plaque bipolaire.
- Le comportement électrique de la pile est régi par l'équation de conservation des charges électriques :  $\text{div } E_{CC} \text{ grad } V = 0$ . A cette équation, il est nécessaire d'ajouter des conditions aux limites :

$$V = V_s \quad \text{sur la surface } S \quad \text{Eq. 4.4}$$

$$J \cdot \vec{n} = J_s \quad \text{sur la surface } S \quad \text{Eq. 4.5}$$

$$J \cdot \vec{n} = h(V - V_s) \quad \text{sur la surface } S \quad \text{Eq. 4.6}$$

L'équation 4.4 correspond à une condition de Dirichlet avec un potentiel  $V_s$  imposé. L'équation 4.5 correspond à une condition de Neumann avec une densité de courant  $j_s$  imposée. L'équation 4.6 correspond à une condition de Robin et  $h$  à une conductivité surfacique ( $\Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$ ). Ces trois conditions permettent de caractériser le comportement électrique de la pile.

Dans notre cas nous avons utilisé les conditions aux limites suivantes :

- Un courant d'intensité  $1 \text{ A/cm}^2$  est appliqué sur la surface de dent de la plaque bipolaire. Le but d'appliquer un courant est d'éviter un échauffement par effet Joule dans la GDL, ainsi que le changement brut de température [16].
- Une tension  $U=0$  est appliquée sur la surface inférieure de la GDL.

Une source de chaleur interne est appliquée sur la GDL et la membrane pour simuler la génération de chaleur par des réactions chimiques ( $q=8\text{W}$  [9] à une température  $21^\circ\text{C}$ ).

### 3 Analyse des résultats numériques

L'analyse du contact entre la GDL et la plaque bipolaire (BPP) est un sujet de recherche privilégié pour combler le manque de connaissances sur les phénomènes physiques à l'interface de contact. Le contact mécanique entre GDL/BPP dépend fortement de l'aire de contact réel qui permet le passage du courant électrique affectant ainsi la résistance de contact électrique. Les lignes de courant électrique se resserrent pour traverser la surface de contact réelle, provoquant une diminution de volume de matériau utilisé pour la conduction électrique et une augmentation de la résistance électrique. Plusieurs études ont montré que 59% de la perte de puissance sont dus à la résistance de contact BPP/GDL [13] et [14].

Nos efforts seront concentrés sur l'étude de la performance de la pile par l'amélioration de la qualité de contact mécanique et électrique entre la GDL et la BPP et ensuite sur la

détermination de la résistance de contact électrique en prenant en compte les paramètres mécaniques influant sur cette qualité de contact.

D'une manière générale, autre que la pression de serrage, l'état de contact entre la GDL et la plaque bipolaire est influencé par un grand nombre de paramètres tels que : l'épaisseur de chaque composant de la pile et en particulier la GDL, la porosité de la GDL, la géométrie de la BPP en particulier la géométrie de la dent de la plaque (le rayon de courbure) et l'intensité de courant électrique traversant le contact. Ce courant électrique induit des mécanismes de dégradation de l'état de contact et un effet non négligeable sur la résistance de contact. Ces paramètres qui affectent le contact entre la GDL et la BPP sont illustrés dans la figure 4.4.

Un modèle multiphysique 3D permettant de calculer les distributions de courant et de potentiel électrique à partir de ces différents paramètres tels que la pression de serrage, l'épaisseur de la GDL et le rayon de courbure de la plaque bipolaire est proposé. En faisant varier ces paramètres, il est possible d'observer leurs impacts sur les potentiels électriques des composants de la pile et la répartition des pressions de contact entre la GDL et la BPP. Dans ce contexte, nous avons mené un plan d'expériences sur le modèle, présenté dans la section qui suit.

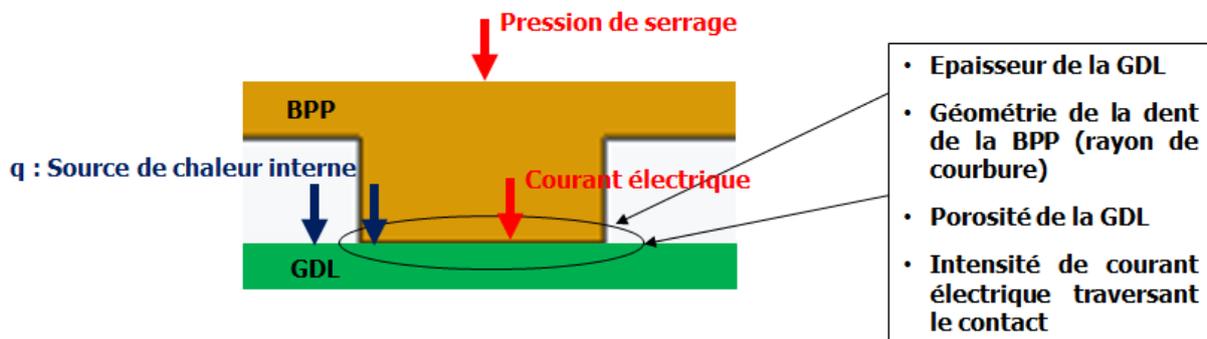


Figure 4.4 : Paramètres influant sur le contact électrique entre la GDL et la plaque bipolaire (BPP).

### 3.1. Plan d'expériences

#### 3.1.1. Choix des modalités et analyses des graphes d'effets.

Après l'étude du comportement de la pile, nous avons fait un inventaire des paramètres jugés comme influents sur la répartition des pressions de contact et nous avons retenus pour notre plan d'expérience les paramètres suivants :

- Paramètre A : épaisseur de la GDL  $0.192 \text{ mm} < T_{\text{GDL}} < 0.375 \text{ mm}$
- Paramètre B : rayon de courbure de la plaque bipolaire :  $0.1 \text{ mm} < R_{\text{RIB}} < 0.3 \text{ mm}$
- Paramètre C : pression de serrage  $0.3 \text{ MPa} < P < 3 \text{ MPa}$

Pour chaque paramètre, nous avons retenus trois modalités soit 27 expériences. Le plan proposé est synthétisé dans la Figure 4.5. Les résultats des simulations numériques illustrés sur les figures 4.6 et 4.7 sont obtenus sous ABAQUS et montrent que l'épaisseur  $T_{GDL}$  de la GDL et le rayon de courbure  $R_{RIB}$  de la BPP présentent une faible influence sur la répartition des pressions mécaniques de contact variant de l'ordre de 3MPa entre la GDL/MEA et de l'ordre de 1MPa entre la GDL/BPP.

Cependant, plus la pression de serrage sur la pile est grande plus la répartition des contraintes de contact entre la GDL/MEA et la GDL/BPP est grande. Pour un contact GDL/MEA, nous notons que la pression de contact varie de 4.5MPa pour une pression de serrage de  $P=0.3$ MPa à 22.5MPa pour une pression de 3MPa. Pour un contact GDL/BPP, on note que la pression de contact varie de 6MPa pour une pression de serrage de  $P=0.3$ MPa à 31MPa pour une pression de 3MPa. En effet, l'augmentation de la pression de serrage entraîne une augmentation des pressions de surface de contact entre les composants, et par conséquent une diminution de la résistance de contact entre la GDL/BPP. Cette diminution de la résistance de contact améliore la performance électrique de la pile (mêmes résultats observés dans [11]).

En plus, les résultats numériques montrent que pour des plaques bipolaires en acier, à section rectangulaire, les courbes de polarisation et de densité de puissance présentent une limite d'utilisation pour des valeurs de densité de courant très grand. Cependant une **géométrie de dent à section trapézoïdale avec un rayon de courbure de  $R_{RIB} = 0.2$  mm** est le meilleur choix.

En comparant nos résultats du plan d'expériences avec les résultats trouvés par AKIKI [11], nous pouvons conclure que l'influence des paramètres choisis dans notre plan ont permis d'obtenir le jeu de paramètres idéal pour une performance optimale de la pile. Ces paramètres optimaux identifiés sont présentés dans la Section 3.2.

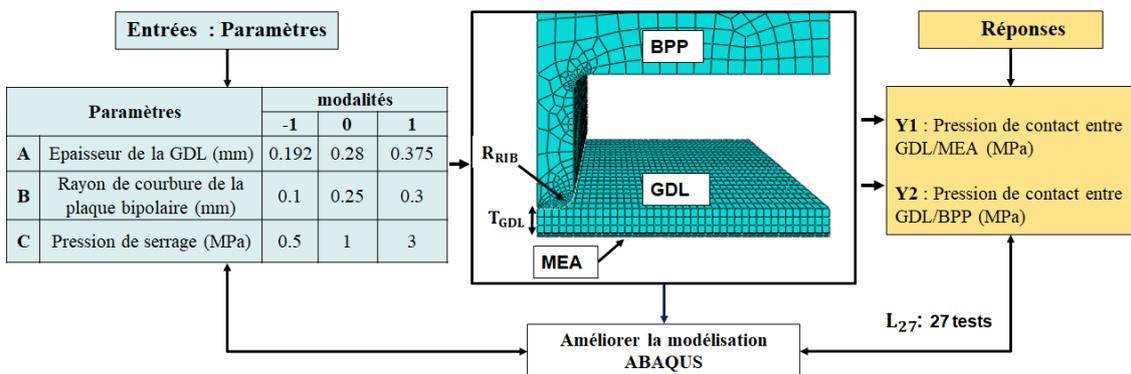


Figure 4.5 : Modalités pour différents paramètres et réponses étudiés

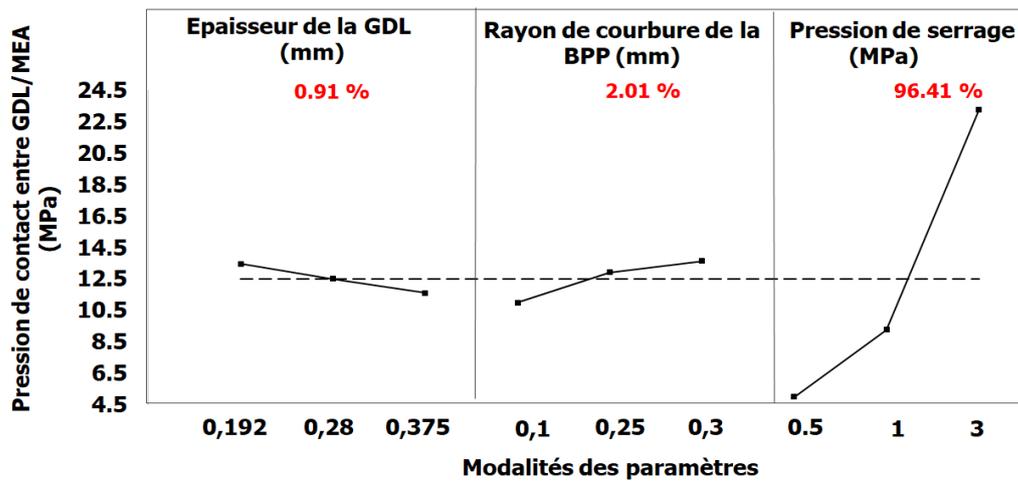


Figure 4.6 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/MEA

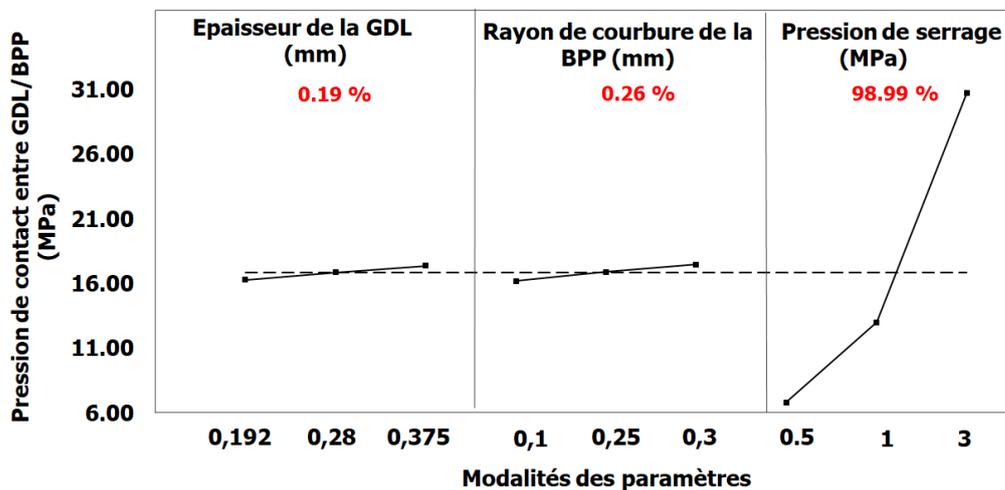


Figure 4.7 : Graphe des effets des trois paramètres sur la pression de contact entre GDL/BPP.

### 3.1.2. Analyse de la variance (ANOVA)

L'analyse de la variance ANOVA est appliquée pour analyser l'influence des interactions entre les paramètres sur les pressions de contact. Les tableaux 4.2 et 4.3 présentent respectivement les résultats de l'analyse de la variance pour les deux réponses étudiées de la pression de contact GDL/MEA (notée Y1) et de la pression de contact GDL/ BPP (notée Y2). Dans l'ANOVA correspondant à la pression de contact GDL/MEA (Y1), les trois paramètres  $T_{GDL}$ ,  $R_{RIB}$  et  $P$  apparaissent significatifs. L'interaction AC entre les deux paramètres épaisseur de la GDL  $T_{GDL}$  et la pression de serrage a un faible effet de l'ordre de 0.35% sur  $C_{press}$ .

Pour le cas du contact GDL/BPP, le paramètre C (Pression de serrage) est le plus significatif sur la pression de contact. L'interaction entre le rayon de la plaque  $R_{RIB}$  et la pression de serrage P (interaction BC) impacte de 0.28% la pression de contact  $C_{press}$ .

Paramètres		SCE	%	ddl	V	fs	Test ((f <sub>Stheo</sub> =2.96)
<b>0.192 &lt; T<sub>GDL</sub> &lt; 0.375</b>	<b>A</b>	<b>1.56E+01</b>	<b>0.91</b>	<b>1</b>	<b>1.56E+01</b>	<b>4.24E+01</b>	<b>S</b>
<b>0.1 &lt; R<sub>RIB</sub> &lt; 0.3</b>	<b>B</b>	<b>3.21E+01</b>	<b>1.88</b>	<b>1</b>	<b>3.21E+01</b>	<b>8.73E+01</b>	<b>S</b>
<b>0.5 &lt; P &lt; 3</b>	<b>C</b>	<b>1.50E+03</b>	<b>88.06</b>	<b>1</b>	<b>1.50E+03</b>	<b>4.09E+03</b>	<b>S</b>
	C <sup>2</sup>	1.43E+02	8.35	1	1.43E+02	3.88E+02	S
	AC	5.947392	0.35	1	5.95E+00	1.62E+01	S
	RES	7.72E+00	0.45	21	0.36742		
	T	1.71E+03	100	26			

Tableau 4.2 : ANOVA de la C<sub>Press</sub> GDL/MEA (S : significatif)

Paramètres		SCE	%	ddl	V	fs	Test ((f <sub>Stheo</sub> =2.97)
<b>0.192 &lt; T<sub>GDL</sub> &lt; 0.375</b>	<b>A</b>	5.16E+00	0.18	1	5.16E+00	2.01E+01	S
<b>0.1 &lt; R<sub>RIB</sub> &lt; 0.3</b>	<b>B</b>	7.33E+00	0.26	1	7.33E+00	2.85E+01	S
	AB	2.50E+00	0.09	1	2.50E+00	9.74E+00	S
<b>0.5 &lt; P &lt; 3</b>	<b>C</b>	<b>2.57E+03</b>	<b>91.92</b>	<b>1</b>	<b>2.57E+03</b>	<b>1.00E+04</b>	<b>S</b>
	C <sup>2</sup>	1.98E+02	7.08	1	1.98E+02	7.70E+02	S
	BC	7.90E+00	0.28	1	7.90E+00	3.07E+01	S
	RES	5.14E+00	0.18	20	2.57E-01		
	T	2795.50	100	26			

Tableau 4.3 : ANOVA de la C<sub>Press</sub> GDL/BPP (S : significatif)

### 3.1.3. Régression multilinéaire (RML)

Dans cette partie, la méthode de régression multiple RML pour décrire les variations entre variables endogènes (paramètres A, B et C) associée aux variations de plusieurs variables exogènes (Y1 et Y2). Les équations de régression multilinéaire simplifiées pour chaque réponse de la pression de contact C<sub>press</sub> entre la GDL/MEA et la GDL/BPP sont définies comme suit :

- 1 Pression de contact entre GDL/MEA :

$$Y_1 = 9.739 - 0.6945A + 1.239B + 9.301C - 0.76025AC + 4.7605C^2 \quad \text{Eq. 4.7}$$

- 2 Pression de contact entre GDL/BPP :

$$Y_2 = 13.62 + 0.935A + 0.68B - 0.4525AB + 12.2985C - 0.994BC + 4.9915C^2 \quad \text{Eq. 4.8}$$

Les figures 4.7 et 4.8 illustrent la comparaison entre les réponses de la simulation et les résultats de la régression multilinéaire. Au niveau de deux réponses (Y1 et Y2), les valeurs du modèle RML ne sont pas dispersées et restent proches des valeurs obtenues par simulation

avec des coefficients de détermination proches de 1, ce qui correspond à un modèle avec un très bon pouvoir prédictif.

Pour visualiser l'effet combiné de ces paramètres, des surfaces de réponse ont été générées pour chaque paramètre des modèles ajustés. Les figures 4.8 et 4.9 montrent respectivement l'effet de l'épaisseur de la GDL  $T_{GDL}$  et la pression de serrage  $C_{press}$  sur la pression de contact GDL/MEA et GDL/BPP. Nous observons que la pression de contact maximale entre GDL/BPP se produit lorsque l'épaisseur de la GDL vaut 0.375 mm et la pression de serrage est de 3MPa (figure 4.9).

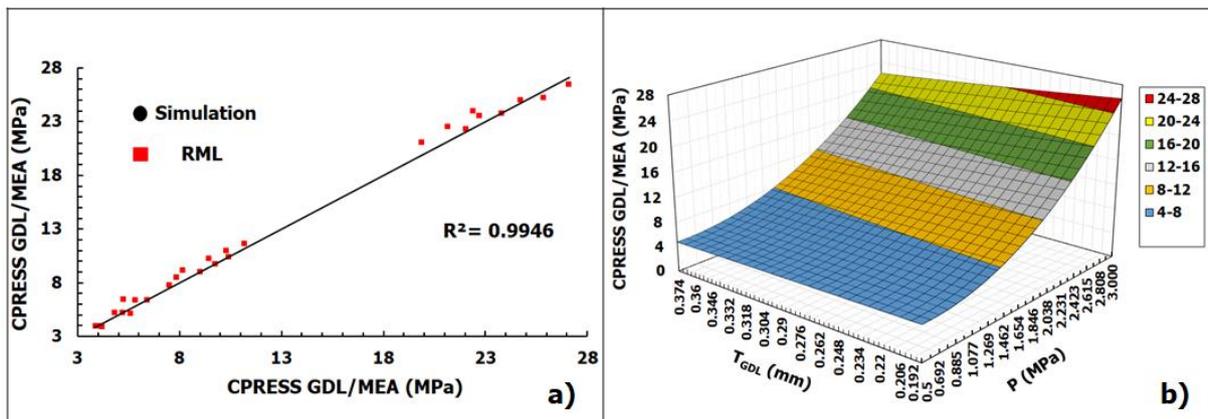


Figure 4.8 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/MEA et b) Surface de réponse

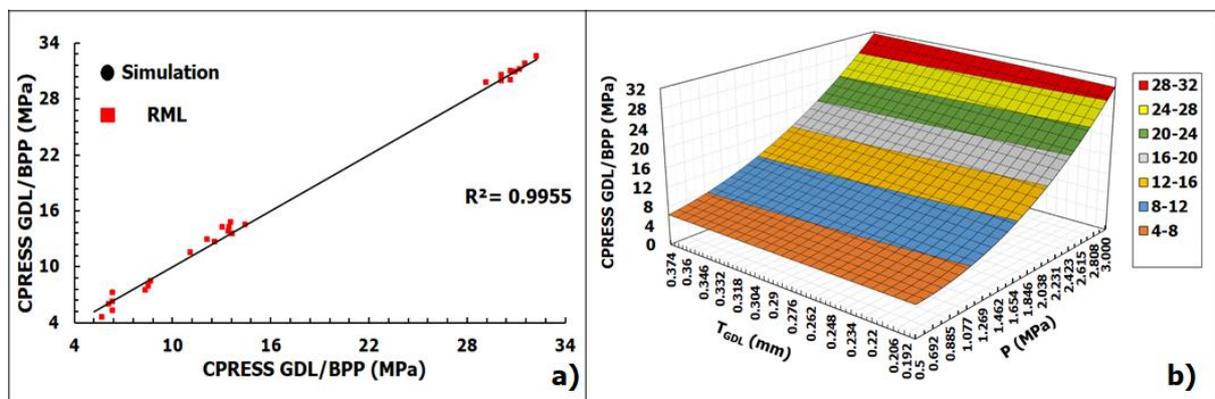
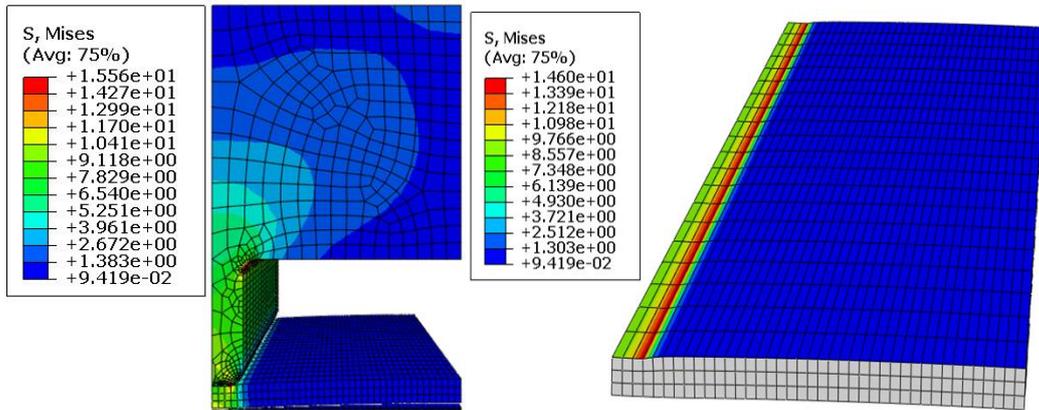


Figure 4.9 : a) Pression de contact  $C_{press}$  entre GDL/BPP et b) Surface de réponse

### 3.2. Optimisation du modèle éléments finis (Choix des paramètres optimaux)

L'étude du plan d'expérience nous donne le choix des paramètres optimaux correspondant à un meilleur comportement de la pile à combustible : l'épaisseur de la GDL  $T_{GDL} = 0,375$  mm, le rayon de courbure de la plaque bipolaire  $R_{RIB} = 0.25$  mm et la pression de serrage est  $P = 1$  MPa. Des simulations numériques par éléments finis sont effectuées en utilisant les paramètres « optimaux » pour analyser le plus finement possible les répartitions des contraintes au niveau de zones de contact entre composants.

Sous une pression de serrage de  $P=1$  MPa, les figures 4.10 (a, b) montrent respectivement la distribution de la contrainte équivalente de von-Mises dans les trois couches de la pile et dans la GDL. On note qu'une contrainte maximale de l'ordre de 15.56 MPa est localisée au niveau de coin de dent de la plaque bipolaire.



(a) Trois composants de la pile (b) GDL

Figure 4.10 : Distribution de la contrainte de Von. Mises dans la pile sous une pression de serrage de 1MPa.

L'analyse des contraintes de Von-Mises au niveau des surfaces de contact nous permet de répartir ces contraintes au niveau des surfaces de contact. La figure 4.11 montre la répartition de la pression de contact entre GDL/BPP. Nous pouvons observer que la pression de contact  $C_{press}$  est uniforme de l'ordre de 14.44MPa sous la dent de la plaque bipolaire puis elle augmente pour atteindre une valeur maximale au niveau de point de détachement du GDL de la plaque bipolaire, ce qui génère des pics de pressions maximales. Sous le canal de la plaque BPP, un gonflement de la GDL est apparu, ce qui provoque une perte de contact entre la GDL et la MEA avec une pression de contact qui tend vers zéro.

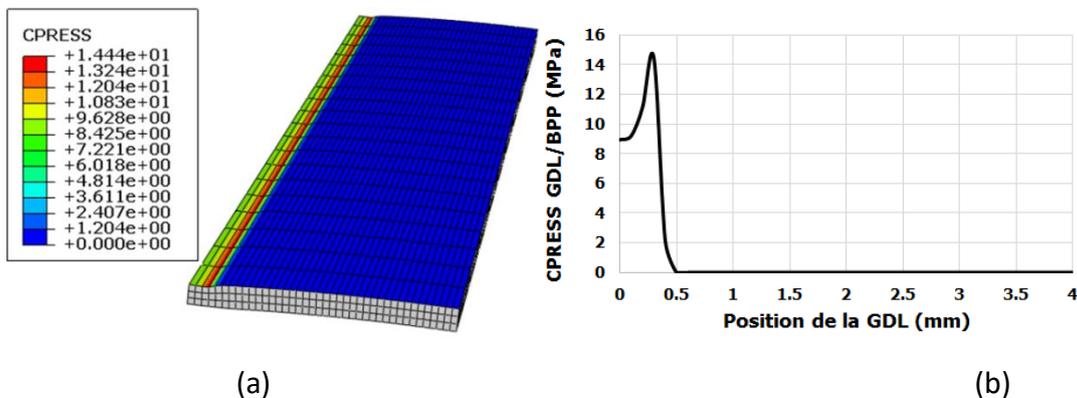


Figure 4.11 : Répartition de Pression de contact entre GDL/BPP.

### 3.2.1. Effets des pressions de serrage sur la résistance électrique

Pour étudier l'effet de la pression de serrage sur la résistance de contact électrique, une série de simulation numérique multi-physique couplant la mécanique, la thermique et l'électrique 3D sur ABAQUS en variant la pression de serrage de  $0.1 < P < 6.25\text{MPa}$  est effectuée. Les résistances électriques sont estimées en fonction de la différence du potentiel électrique ( $U_{BPP} - U_{GDL}$ ) de contact entre la GDL et la plaque BPP.

Par exemple, sous une pression de serrage de  $P = 1\text{MPa}$ , la différence du potentiel électrique ( $U_{BPP} - U_{GDL} = 6.201\text{ mV}$ ) ce qui nous donne une résistance électrique de l'ordre de :

$$R_{GDL/BPP} = \frac{(U_{BPP}-U_{GDL})\text{ mVolt}}{J\left(\frac{\text{A}}{\text{mm}^2}\right)} = \frac{6.201}{0.01} = 6.2\text{ m}\Omega.\text{ cm}^2 \quad \text{Eq. 4.9}$$

En variant la pression de serrage, on peut estimer son effet sur la résistance électrique de la pile. Les résultats des simulations numériques montrent que l'augmentation de la compression de serrage de 0.1 à 6.25MPa fait diminuer la résistance électrique de contact  $R_{GDL/BPP}$  de 13.75 à 4  $\text{m}\Omega.\text{cm}^2$ , entraîne par contre une augmentation de la conductivité ( $1/R$ ) de 0.073 à 0.25 (voir Figure 4.12).

En se référant à la littérature, physiquement, nous pouvons noter que cette diminution de la résistance de contact accélère la diffusion des gaz réactifs et l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique, évitant ainsi les phénomènes de noyage dans la plaque GDL. L'augmentation de la conductivité entraîne une diminution des pertes ohmiques lors de la réaction chimique.

Afin de valider nos résultats, une comparaison de la résistance de contact obtenue en fonction de la pression de serrage avec les valeurs expérimentales issues des travaux de Bouziane, Khadidja, et al. [5] a été réalisée. Une meilleure comparaison entre les résultats prévus et les valeurs expérimentales est observée sur la Figure 4.13. La variation de résistivité de contact en fonction de la pression de serrage montre la même tendance. Nous notons, aussi que la résistance électrique se stabilise pour des pressions de serrage de l'ordre de  $P=1.25\text{MPa}$ . Ces comparaisons montrent bien que le modèle développé dans ce travail illustre bien les comportements de deux types des interactions, mécanique et électrique, entre les deux principaux composants de la pile (GDL et BPP).

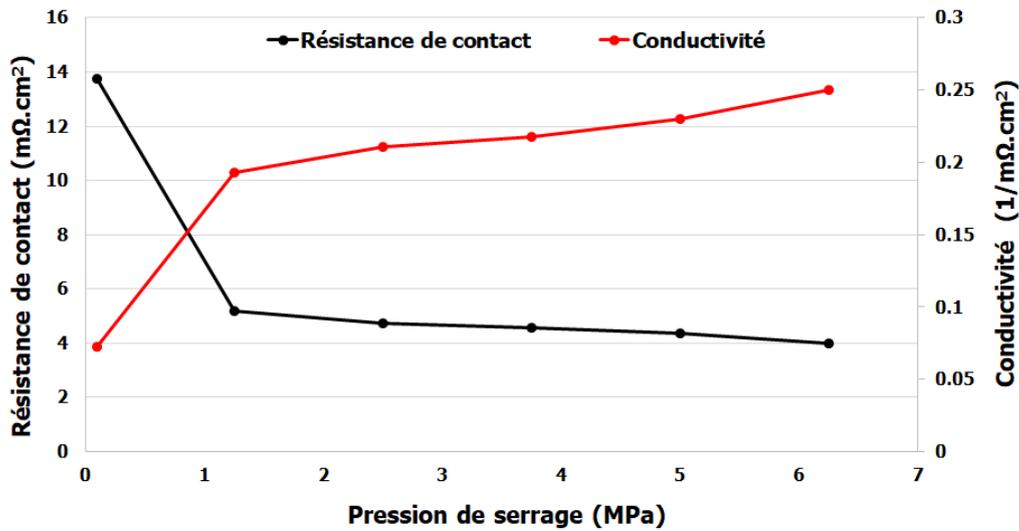


Figure 4.12 : Variation de la résistance de contact et la conductivité en fonction de la pression de serrage.

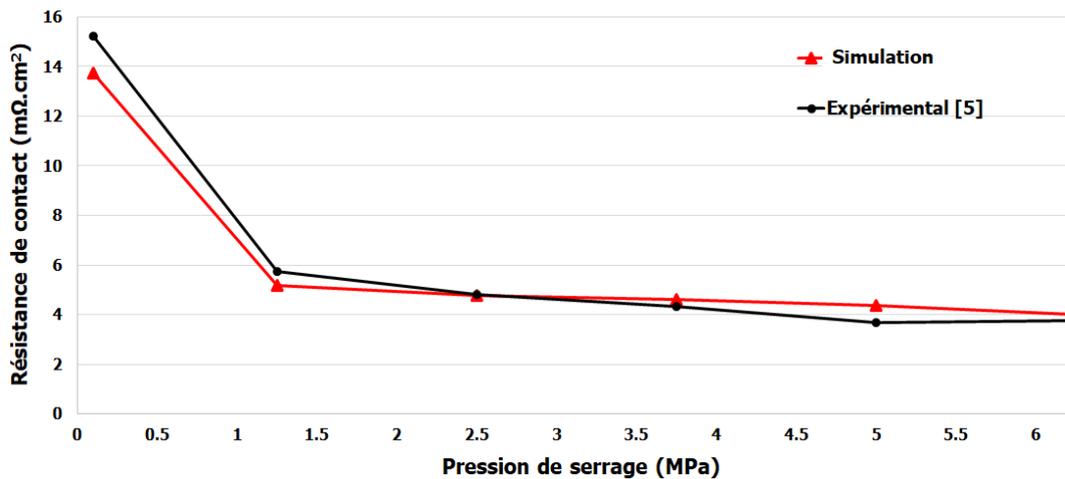


Figure 4.13 : Comparaison de la résistance de contact électrique en fonction de la pression de serrage entre le modèle EF (simulation) et résultats expérimentaux.

#### 4 Effet des incertitudes des paramètres

Dans les études précédentes, nous avons montré que les paramètres A, B et C ont un effet sur la performance de la pile. L'intégration des incertitudes de ces paramètres sur les réponses Y1 et Y2 est indispensable. L'intégration des incertitudes sur les trois paramètres A, B et C sous forme de distributions statistiques est réalisée par une analyse statistique des résultats. La même démarche appliquée sur le modèle 2D et présentée dans le chapitre 3 est utilisée.

Nous reprenons les équations 4.7 et 4.8 qui correspondent respectivement aux pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BP (Y2) et nous faisons varier les paramètres A, B et C suivant la loi normale (qui correspond à une dispersion optimiste) afin d'observer les effets de ces distributions sur la pression de contact  $C_{press}$ .

Rappelons que la loi normale (Gauss) est représentée par deux paramètres de formes : une valeur nominale du paramètre étudié (appelée moyenne  $m$ ) et le pourcentage de la dispersion du paramètre étudié (appelé coefficient de variation COV).

#### 4.1. Distributions statistiques sur les paramètres d'entrées

Dans cette étude, nous avons choisi une dispersion ni élevée ni faible, de l'ordre de 10%. Pour définir des distributions statistiques, 1000 simulations ont été exécutées ; ce nombre a été choisi pour obtenir un bon compromis entre le temps de simulation et la précision des résultats. Le tableau 4.4 montre les paramètres de forme (moyenne et écart-type) pour chaque paramètre d'entrées.

Paramètres d'entrées	Moyenne $m$	écart type	COV
$T_{GDL}$ (A)	0,375	0,0375	0,1
$R_{RIB}$ (B)	0.25	0.025	0,1
P (C)	1	0.1	0,1

Tableau 4.4 : Paramètres de forme de la distribution des paramètres d'entrées.

#### 4.2. Résultats et discussion

##### 4.2.1. Distributions statistiques sur les paramètres de sorties (Y1 : CPRESS GDL/MEA et Y2 : CPRESS GDL/BPP)

Le modèle déterministe développé (montrant la relation entre les paramètres d'entrées et les paramètres de sorties) a été utilisé dans la prise en compte des incertitudes. Les distributions sur les paramètres d'entrées donnent lieu à des distributions statistiques sur les sorties étudiées. Les figures 4.14 et 4.15 montrent respectivement la distribution obtenue, après 1000 simulations, des pressions de contact entre GDL/MEA (Y1) et GDL/BPP (Y2).

En observant la forme de la distribution de deux réponses obtenues pour une incertitude de 10%, et d'après la théorie des surfaces de probabilités de K. Pearson [15], on constate que :

- La distribution de la réponse Y1 (pression de contact  $C_{PRESS}$  GDL/MEA) suit une loi de Gauss avec une moyenne de 23.6MPa et une covariance de **0.35**.
- La réponse Y2 (pression de contact  $C_{PRESS}$  GDL/BPP) suit aussi la loi de Gauss avec une moyenne de 31.19 MPa et une covariance de **0.34**.

L'augmentation de la dispersion sur les paramètres d'entrées ne modifie pas les distributions statistiques des paramètres de sorties ( $C_{PRESS}$  entre la GDL/MEA ou entre la GDL/BPP).

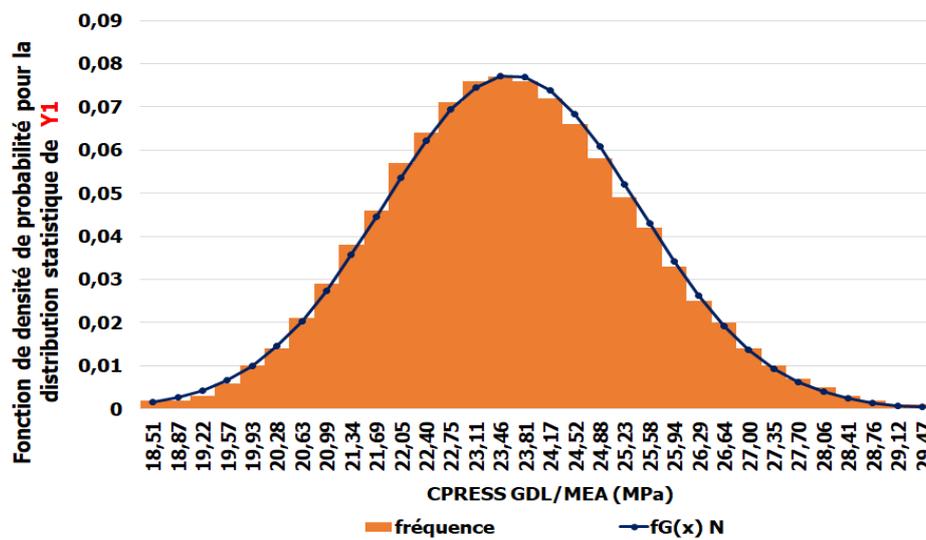


Figure 4.14 : Distributions obtenues sur Y1

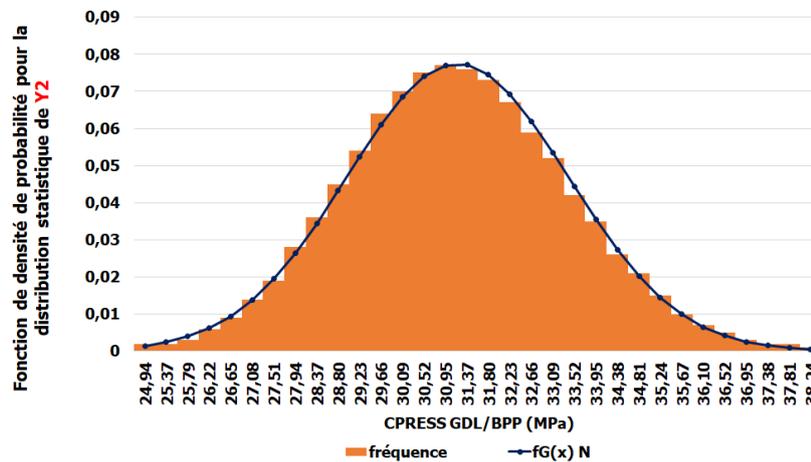


Figure 4.15 : Distributions obtenues sur Y2

## 5 Conclusion

Dans ce chapitre, la méthode élément finis est associée à un plan d'expériences (PE) pour étudier l'influence de différents paramètres (épaisseur de la GDL, rayon de courbure de la plaque bipolaire et la pression de serrage) sur les pressions de contact entre les composants GDL/BPP et GDL/MEA.

Le modèle déterministe développé à partir du PE a été utilisé dans la prise en compte et l'analyse des incertitudes de ces paramètres mécaniques sur les pressions de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA. Nos résultats ont permis de conclure que la pression de contact maximale est située au niveau du point de détachement de la GDL de la plaque bipolaire, ce qui génère des pics de pression au point de détachement.

Les résultats du plan d'expérience nous permettent d'identifier les paramètres optimaux :

1. Une épaisseur de la GDL de 0.375mm.
2. Un rayon de courbure de la plaque bipolaire de 0.25mm.
3. Une pression de serrage de 1MPa.

Avec ces paramètres optimaux, nous avons trouvé une bonne corrélation entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux trouvés dans la bibliographie. La parfaite adéquation entre les résultats numériques et expérimentaux nous permet de valider nos modélisations.

L'augmentation de la pression de serrage améliore l'état de contact entre BPP/GDL, ce qui fait diminuer la résistance de contact et augmenter la conductivité. Ensuite, le modèle déterministe développé (montrant la relation entre les paramètres d'entrées et les paramètres de sorties) a été utilisé dans la prise en compte des incertitudes. Les résultats montrent que l'augmentation de la dispersion sur les paramètres d'entrées ne modifie pas les distributions statistiques des paramètres de sorties ( $C_{PRESS}$  entre la GDL/MEA et entre la GDL/BPP).

Après avoir étudié l'influence de la compression sur la résistivité de contact électrique entre la plaque bipolaire et la GDL, il serait intéressant dans la prochaine étape d'étudier l'influence de la compression sur la résistivité de contact thermique entre GDL/BPP.

## Références

- [1] Ge, J., Higier, A., & Liu, H. (2006). Effect of gas diffusion layer compression on PEM fuel cell performance. *Journal of Power Sources*, 159(2), 922-927.
- [2] Wasterlain, S. (2010). *APPROCHES EXPERIMENTALES ET ANALYSE PROBABILISTE POUR LE DIAGNOSTIC DE PILES A COMBUSTIBLE DE TYPE PEM* (thèse de doctorat, Université de Franche-Comté).
- [3] Li, L., Wang, S., Wang, G., Yue, L., & Takuto, A. R. A. K. I. (2019). Effect of clamping stress on Cold Start Performance of PEMFC. *Energy Procedia*, 158, 1744-1749.
- [4] Kusoglu, A., Kienitz, B. L., & Weber, A. Z. (2011). Understanding the effects of compression and constraints on water uptake of fuel-cell membranes. *Journal of the Electrochemical Society*, 158(12), B1504-B1514.
- [5] Bouziane, K., Lachat, R., Zamel, N., Meyer, Y., & Candusso, D. (2020). Impact of cyclic mechanical compression on the electrical contact resistance between the gas diffusion layer and the bipolar plate of a polymer electrolyte membrane fuel cell. *Renewable Energy*, 153, 349-361.
- [6] 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.
- [7] 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 1<sup>st</sup> International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology*. American Society of Mechanical Engineers Digital Collection, 2003. 111-120.
- [8] Habibnia, M., Shakeri, M., Nourouzi, S., & Ghasemi Tamami, P. (2016). Investigation and optimization of a PEM fuel cell's electrical and mechanical behavior. *Iranian Journal of Hydrogen & Fuel Cell*, 3(1), 1-10.

- [9] Chien, C. H., Hu, Y. L., Su, T. H., Liu, H. T., Wang, C. T., Yang, P. F., & Lu, Y. X. (2016). Effects of bolt pre-loading variations on performance of GDL in a bolted PEMFC by 3-D FEM analysis. *Energy*, 113, 1174-1187.
- [10] Zhang, Z. (2010). Modélisation mécanique des interfaces multi-contacts dans une pile à combustible (Thèse de doctorat, Université de Evry-Val d'Essonne, France).
- [11] Akiki, T. (2011). Modélisation de la dégradation de la production de puissance d'une pile à combustible suite aux sollicitations mécaniques (Thèse de doctorat, Belfort-Montbéliard).
- [12] Sadeghi, E., Djilali, N., & Bahrami, M. (2011). Effective thermal conductivity and thermal contact resistance of gas diffusion layers in proton exchange membrane fuel cells. Part 1: Effect of compressive load. *Journal of Power Sources*, 196(1), 246-254.
- [13] Hamour, M., Grandidier, J. C., Ouibrahim, A., & Martemianov, S. (2015). Electrical conductivity of PEMFC under loading. *Journal of Power Sources*, 289, 160-167.
- [14] Avasarala, B., & Haldar, P. (2009). Effect of surface roughness of composite bipolar plates on the contact resistance of a proton exchange membrane fuel cell. *Journal of Power Sources*, 188 (1), 225-229.
- [15] J-L. Norman, S. Kotz, N. Balakrishnan. « Continuous Univariate Distributions », A Wiley-Interscience Publication, 1994, 791 pages. ISBN: 978-0-471-58495-7.
- [16] Kim, M., & Lim, J. W. (2018). Electrical contact resistance between anode and cathode bipolar plates with respect to surface conditions. *Composite Structures*, 189, 79-86.
- [17] 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.
-

# Conclusion générale et perspectives

La pile à combustible est utilisée dans des domaines différents tel que, le transport, les applications stationnaires. Malgré des développements importants de la technologie des piles à combustible PEM, certains problèmes tels que la durabilité, le coût et la performance doivent encore être traités. La pile à combustible à membrane d'échange de protons PEMFC est la plus utilisée dans l'industrie du fait de sa température de fonctionnement faible qui lui permet un démarrage à froid rapide. La PEMFC est un système multi-physique (mécanique, électrochimique, thermique et fluide) et sa performance est sous l'influence des paramètres opératoires (température, humidité relative, pression interne...), paramètres mécaniques d'assemblage (force de serrage), paramètres de conception (dimensions et géométrie des composants, nombre de cellule) et paramètres matériaux des composants. Ces paramètres sont les causes de dégradations de plusieurs composants de la pile.

L'objectif de cette thèse est d'étudier sur le plan numérique des systèmes multi-physiques comme les piles à combustible de type PEMFC. Une grande attention est accordée à l'étude de l'influence des incertitudes des paramètres mécaniques sur les performances de la pile. L'analyse locale de la répartition des pressions mécaniques de contact au niveau de la GDL a permis d'identifier les paramètres les plus influents sur les performances électriques de la pile, en particulier les pertes ohmiques liées à la résistance de contact.

## 1 Bilan des travaux réalisés

Dans le Chapitre 1, une description globale des piles à combustibles existantes, leur principe de fonctionnement et leurs applications sont présentés. Ensuite nous avons détaillé la pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) ainsi que ses principaux composants et leurs caractéristiques géométriques et structurelles.

La dernière partie de ce chapitre a été consacrée à l'analyse des principales dégradations qui peuvent affecter les différents composants de la pile PEMFC. Etant donné qu'une pile est considérée comme un système multi-physique (mécanique, électrochimique, thermique et fluide), sa performance est sous l'influence de plusieurs paramètres de natures différentes. Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés aux paramètres mécaniques sans prendre en compte les phénomènes fluidiques.

Le Chapitre 2 est centré sur la compréhension et l'identification des paramètres mécaniques influents sur le comportement de la pile et qui peuvent dégrader sa performance et sa durabilité. Dans la première partie du chapitre, la performance et la durabilité de la pile sont introduites, suivie d'une présentation des différents phénomènes (fluidiques, thermiques, électriques et mécaniques). Ensuite, la deuxième partie est consacrée à la présentation de l'état de l'art sur la modélisation multi-physique sur les piles à combustible.

Des modèles éléments finis d'une pile sont proposés afin d'étudier l'influence des incertitudes des paramètres géométriques et mécaniques sur la répartition des pressions mécaniques de contact ainsi que sur la résistance de contact électrique entre GDL/BPP. Afin d'analyser quantitativement et qualitativement la performance de la pile, deux approches ont été proposées et discutées. Une approche mécanique est appliquée sur un modèle mécanique bidimensionnel est présentée au Chapitre 3 et une approche multiphysique est appliquée sur un modèle tridimensionnel de couplage thermo-électro-mécanique est présenté au chapitre 4.

Dans le Chapitre 3, l'influence de trois principaux paramètres mécaniques sur la répartition des pressions de contact entre GDL/BPP et GDL/MEA à travers un plan d'expériences est abordée. Les paramètres retenus dans notre étude sont la porosité de la GDL ainsi que des paramètres géométriques : épaisseur de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire. Pour modéliser la porosité de la GDL, nous avons développé deux approches complémentaires. Une approche dans laquelle la géométrie réelle de la GDL poreuse de faible porosité est modélisée par des pores supposés sphériques. Une approche homogénéisée dans laquelle la GDL est modélisée par une structure continue homogène dont les propriétés mécaniques sont fonction de la porosité. Des plans d'expériences et les calculs ANOVA ont été réalisés sur des GDL de forte (entre 68 et 88%) et faible (entre 10 et 57%) porosité afin de déterminer la relation entre les paramètres de conception (paramètres d'entrée) et les pressions de contact.

Dans le chapitre 4, nos efforts se sont concentrés sur l'amélioration de la qualité de contact mécanique et électrique entre la GDL et la BPP et ensuite sur la détermination de la résistance de contact électrique en prenant en compte les paramètres mécaniques influant sur cette qualité de contact. Un modèle multi-physique de couplage thermo-électro-mécanique, tridimensionnel d'une demi-dent et d'un demi-canal d'une cellule de la pile a été réalisé sous ABAQUS pour la détermination de la résistance de contact électrique. Un plan d'expériences numérique est proposé afin d'analyser les effets de trois paramètres mécaniques tel que le rayon de courbure de la plaque bipolaire, l'épaisseur de la GDL et la pression de serrage sur les pressions de contact. L'analyse des résultats numérique et des comparaisons avec des valeurs expérimentales a permis d'identifier les paramètres influents sur les potentiels électriques de deux interfaces BPP et GDL. D'autre part, le plan d'expériences a montré la sensibilité des incertitudes des paramètres sur la résistance de contact et la conductivité électrique.

Pour analyser de l'effet des incertitudes sur la performance des piles, une démarche physico-probabiliste par des approches de type stochastic finite element method (SFEM) est proposée. Les résultats obtenus montrent qu'en faisant varier les paramètres d'entrée suivant une loi normale avec une dispersion de 10%, on constate que la distribution de deux réponses des

pressions de contact entre la GDL/MEA et la GDL/BPP peuvent être modélisées par une loi de Gauss. On note aussi que l'augmentation de la dispersion sur les paramètres d'entrée ne modifie pas les distributions statistiques des paramètres de sortie.

## 2 Perspectives et améliorations

Après avoir étudié l'influence de la compression sur la résistivité de contact électrique entre la plaque bipolaire et la GDL, il serait intéressant d'étudier en perspective :

- L'influence de la variation de la porosité de la membrane sur la conductivité de la membrane et le niveau d'hydratation.
  - Modéliser les phénomènes fluidiques et chimiques avec un couplage fort avec la thermique, électrique et mécanique.
  - Prise en compte de la géométrie réelle de la GDL dans la modélisation multiphysique.
  - Simulation multiphysique avec des géométries complexes des piles à combustible à membrane échangeuse de protons.
  - Développer des plans d'expérimentation sur des modèles de pile avec géométrie simplifiée.
-

# Annexe 1

## 1 Phénomène fluidique

### a. La diffusion :

Ce phénomène est localisé dans les canaux de la plaque bipolaire, dans la GDL et dans la membrane. Ces processus physiques consistent à résoudre les équations de Navier-Stokes, Darcy et MaxwellStefan [1].

Si on met deux gaz différents ensemble (Figure 1) : du dioxygène ( $O_2$ ) et du diazote ( $N_2$ ), alors ils vont se mélanger spontanément grâce à la deuxième loi de la thermodynamique qui dit que l'entropie augmente spontanément jusqu'à ce que le mélange soit totalement uniforme [1]. Ce phénomène correspond au déplacement des gaz de gauche à droite.

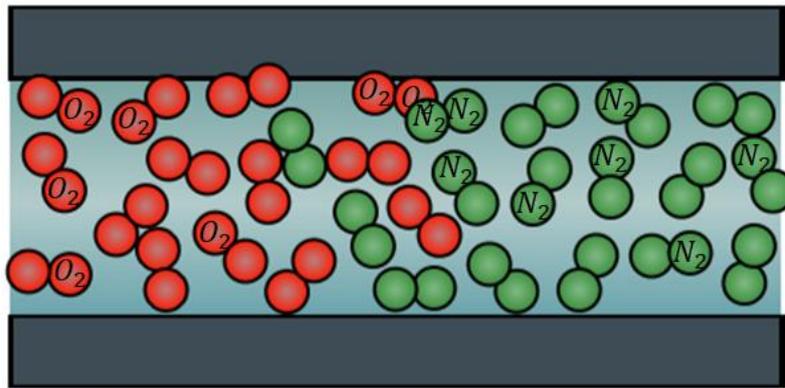


Figure 1 : mélange de deux gaz dioxygène et diazote [1]

Les gaz réactifs entrent et sortent de la pile à combustible par les canaux de gaz comme le montre la figure 15 du chapitre 1. La géométrie des canaux joue un rôle important dans la distribution homogène des gaz sur toute la surface de l'électrode. Par conséquent, ces canaux de gaz peuvent être considérés comme un milieu poreux de porosité  $\epsilon = 1$  et de perméabilité infinie [2].

Le flux de gaz sortant des canaux de la plaque bipolaire se diffusent à travers la couche de diffusion de gaz (GDL) et il est obtenu par la résolution des équations de Navier-Stokes en régime continu.

Dans la GDL (couche poreuse), sa géométrie est composée de carbone et de vide : Du carbone pour la conduction thermique et électrique et du vide pour la diffusion et l'évacuation de l'eau. Le transport dans les couches de diffusion de gaz est modélisé comme transport dans les milieux poreux.

L'équation de transport de masse est modélisée en utilisant l'équation de continuité dans la GDL :

$$\nabla \cdot (\rho \epsilon u) = 0 \quad \text{Eq 1}$$

Avec,  $\rho$  est la masse volumique de mélange de fluide ;  $u$  est la vitesse du flux et  $\epsilon$  est la porosité.

L'équation de mouvement dans GDL :

$$\nabla \cdot (\epsilon \rho \vec{u} \vec{u}) = -\epsilon \nabla P + \nabla \cdot (\epsilon \eta \nabla \vec{u}) \quad \text{Eq 2}$$

Dans la GDL, le flux ( $u$ ) est modelisé par la loi de Darcy :

$$u = -\frac{K}{\eta} \nabla p \quad \text{Eq 3}$$

Avec,  $\eta$  est la viscosité dynamique ;  $K$  est la perméabilité et  $p$  est la pression.

#### b. Les frottements en matériaux poreux :

*Les frottements en matériaux poreux* : lors du passage des gaz dans la GDL (couche poreuse), ils subissent un ralentissement dans cette couche dans laquelle, ils frottent contre les parois de ses alvéoles, ce qui fait apparaitre une force qui va dans le sens opposé à leur passage.

#### c. Electro-osmose :

Ce phénomène est localisé dans la membrane. Lors de la migration des protons  $H^+$  dans la membrane, ils vont emporter avec eux des molécules d'eau, et les faire migrer de l'anode vers la cathode. C'est la traînée électro-osmotique (electro-osmotic drag). La figure 2 montre le phénomène de transport d'eau dans la pile PEMFC.

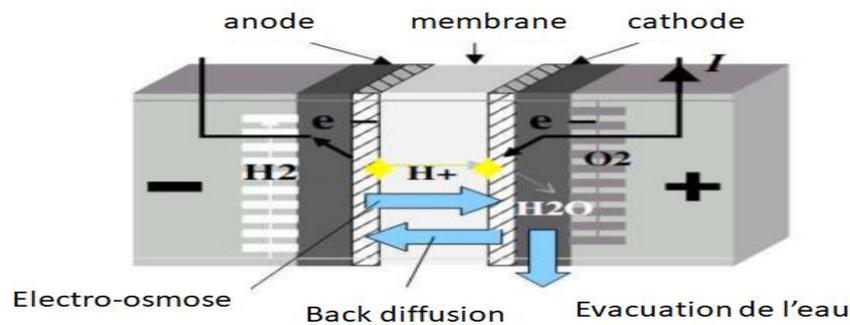


Figure 2 : transport d'eau dans la pile PEMFC [3-4-5]

La traînée électro-osmotique est calculée grâce à une formule empirique par l'équation 4 :

$$n_d = 2.5 \frac{\lambda_d}{22} \quad \text{Eq.4}$$

Où,  $\lambda_d$  est le contenu en eau dissoute de la membrane.

$$\lambda_d = \begin{cases} 0.043 + 17.81a - 39.85a^2 + 36a^3, & 0 \leq a \leq 1 \\ 14.0 + 14(a - 1), & 1 < a \leq 3 \end{cases} \quad \text{Eq.5}$$

$$\text{Eq.6}$$

Où  $a$  est l'activité de l'eau définie par :

$$a = \frac{P_w}{P_{sat}} \quad \text{Eq 7}$$

Avec :  $P_w$  est la pression partielle de la vapeur d'eau dans le système à la température d'opération et  $P_{sat}$  est la pression de saturation de la vapeur d'eau du système à la température de fonctionnement.

Comme les pressions partielles dépendent fortement de la température, alors la conductivité électrique de la membrane dépend de la quantité d'eau  $\lambda_d$  et de la température. Comme, dans la pile PEMFC, l'électrolyte utilisé est du Nafion alors la conductivité du Nafion aux protons est dominée par la quantité d'eau dans la membrane et peut être modélisée par cette quantité d'eau (eq.5 et 6). Plus cette quantité d'eau est grande plus la conductivité du Nafion est grande. Cette conductivité est donnée par l'équation 8 [6-7] :

$$\sigma_m = \sigma_m^{ref} \exp \left[ 1268 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T_{cell}} \right) \right] \quad \text{eq.8}$$

$$\text{Avec } \sigma_m^{ref} = \beta(0.005139\lambda - 0.00326)^\omega \quad \text{eq.9}$$

Où les constantes  $\beta$  et  $\omega$  (Coefficient et exposant de conduction protonique de la membrane) sont données selon Springer et al. [8-9] par :  $\beta = \omega = 1$

#### d. Back-diffusion :

Le phénomène de back diffusion est localisé aussi dans la membrane. Un mouvement de diffusion inverse (back diffusion) transporte les molécules d'eau de la cathode à l'anode. Il nécessite l'utilisation d'une grandeur empirique qui est le contenu en eau ( $\lambda_d$ ) qui représente la teneur d'eau dans la membrane.

Le coefficient de diffusion de l'eau dans la membrane est calculé comme suit :

$$D_w = D_d \exp \left[ 2461 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T_{cell}} \right) \right] \quad \text{eq.10}$$

Avec  $T_{cell}$  est la température de la membrane.

Le coefficient de diffusion ( $D_d$ ) mesuré à température constante (30°C) dépend du contenu d'eau  $\lambda_d$  de la membrane et est déterminé de façon empirique selon l'équation 11 :

$$D_d = \begin{cases} 3.1 \times 10^{-7} \lambda_d [\exp(0.28\lambda_d) - 1] \exp\left(\frac{-2346}{T}\right), & 0 < \lambda_d < 3 \\ 4.17 \times 10^{-8} \lambda_d [161 \exp(-\lambda_d) + 1] \exp\left(\frac{-2346}{T}\right), & 3 \leq \lambda_d < 17 \end{cases} \quad \text{eq.11}$$

Et finalement, Le coefficient de diffusion de la membrane est estimé par Siegel et al. :

$$D_w = 1.3 \times 10^{-10} \exp \left[ 2461 \left( \frac{1}{303} - \frac{1}{T_{cell}} \right) \right] \quad \text{eq.12}$$

## Références

- [1] Massonnat, P. (2015). Développement d'un modèle multi physique multidimensionnel de pile à combustible à membrane échangeuse de proton en temps réel pour système embarqué (Doctoral dissertation, Université de Technologie de Belfort-Montbeliard).
- [2] Jourdani, M. (2019). Simulation Numérique Couplée des Phénomènes Thermo- fluide, Electrochimique et Mécanique dans une Pile à Combustible type PEMFC (Thèse de doctorat, Ecole Mohammadia d'Ingénieurs, Maroc).
- [3] Gerbaux, L. (1996). *Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène/air et validation expérimentale* (Doctoral dissertation, Grenoble INPG).
- [4] Haghayegh, M., Eikani, M. H., & Rowshanzamir, S. (2017). Modeling and simulation of a proton exchange membrane fuel cell using computational fluid dynamics. *International Journal of Hydrogen Energy*, 42(34), 21944-21954.
- [5] Um, S., Wang, C. Y., & Chen, K. S. (2000). Computational fluid dynamics modeling of proton exchange membrane fuel cells. *Journal of the Electrochemical society*, 147(12), 4485.
- [6] Friede, W., Raël, S., & Davat, B. (2004). Mathematical model and characterization of the transient behavior of a PEM fuel cell. *IEEE Transactions on power electronics*, 19(5), 1234-1241.
- [7] You, L., & Liu, H. (2006). A two-phase flow and transport model for PEM fuel cells. *Journal of Power Sources*, 155(2), 219-230.
- [8] Zawodzinski Jr, T. A., Springer, T. E., Davey, J., Jestel, R., Lopez, C., Valerio, J., & Gottesfeld, S. (1993). A comparative study of water uptake by and transport through ionomeric fuel cell membranes. *Journal of the Electrochemical Society*, 140(7), 1981.
- [9] Springer, T. E., Zawodzinski, T. A., & Gottesfeld, S. (1991). Polymer electrolyte fuel cell model. *Journal of the electrochemical society*, 138(8), 2334.

## Annexe 2

### 1 Plan d'expériences (PE) pour une faible porosité de la GDL ( $10 \leq \varepsilon \leq 57\%$ )

#### 1.1 Résultats de la simulation issue de modèle élément finis.

Sous une pression de 1MPa, les résultats montrent la géométrie déformée de la GDL sous la dent de la plaque bipolaire. Un zoom est réalisé sous cette dent de la plaque bipolaire (Figure 1) et montre la distribution des contraintes de Von-Mises entre les composants. Une contrainte maximale de l'ordre de 6.4 MPa se situe au niveau des pores des canaux de circulation de l'hydrogène.

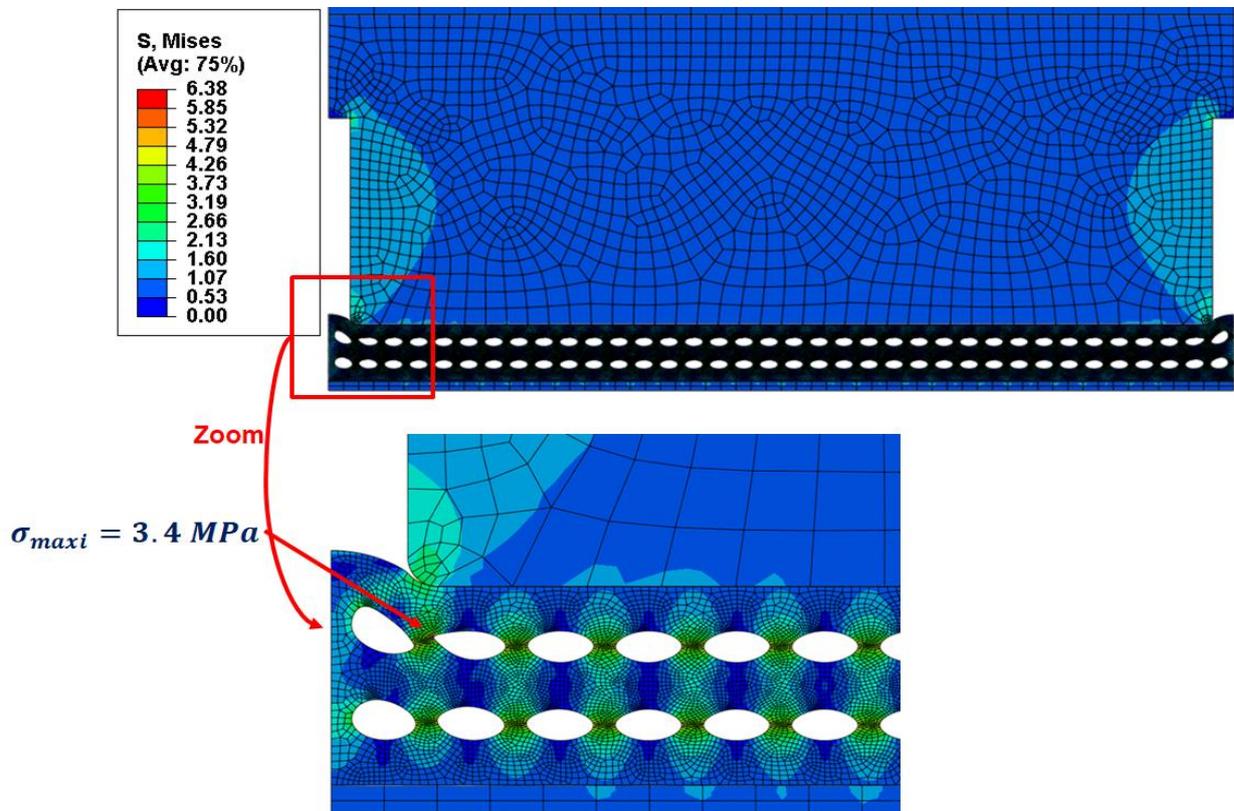


Figure 1 : Contrainte de Von-Mises sous la dent de la plaque bipolaire

# Ghinwa OUAIDAT

Doctorat : Matériaux, Mécanique, Optique, Nanotechnologie

Année 2020

## Intégration des incertitudes des paramètres de conception dans les modèles mécaniques d'une pile à combustible

Dans le contexte actuel de maîtrise des énergies, l'optimisation du système pile à combustible PAC est un enjeu majeur. Comme la pile à combustibles PEMFC est un système complexe dont la durabilité reste un phénomène important à explorer, les modélisations théoriques et numériques sont devenues indispensables pour l'étude des performances des PEMFC. L'objectif général de cette thèse est de participer au développement d'outils numériques permettant de comprendre et de d'anticiper les dégradations des performances de la pile et de maîtriser la fiabilité des composants. Pour appréhender l'effet des phénomènes mécaniques sur la performance de la pile, des modèles mécano-probabiliste prenant en compte les incertitudes des paramètres de conception (porosité de la GDL, épaisseur de la GDL et rayon de courbure de la plaque bipolaire) ont été développées. Deux approches de modélisation ont été mises en œuvre. Un modèle éléments finis 2D associé à un plan d'expériences a permis la mise en place d'un modèle déterministe pour l'intégration et l'analyse des incertitudes. Une modélisation 3D multi physique a été développée pour tenir compte des interactions thermoélectriques sur les répartitions des pressions mécaniques de contact. Les paramètres de conception sont pris en compte dans une démarche physico-probabiliste de type stochastic finite element method (SFEM).

Mots clés : PEMFC – plan d'expérience – porosité – incertitude – éléments finis, méthode des – multiphysique – optimisation mathématique.

## Integration of Uncertainties of Design Parameters in Mechanical Models of a Fuel Cell

Energy management has become a major issue in the socio-economic context and the optimization of electric energy production systems by fuel cell has contributed to the development of new reliable and robust techniques. As the PEMFC fuel cell is a complex multiphysics system whose reliability and durability remains important phenomena to be performed experimentally, theoretically and numerical in order to optimize the fuel cell. The general aims of this thesis is to contribute in the development of numerical tools to analyze the electrical performance, to predict the degradation and lifetime of fuel cell performance and to control the reliability of the components. To understand the effect of the mechanical phenomena on fuel cell reliability, a mechanical-probabilistic model taking into consideration the uncertainties of design parameters is developed by two complementary approaches. Firstly, a 2D FEA associated with a Design of Experiments is allowed to deterministic modelling by integration of uncertainties mechanical parameters: porosity of the GDL, thickness of the GDL and bending radius of the bipolar plate. Secondly, a multiphysics 3D model is proposed to predict the thermo-electric interactions between the components on the distribution of mechanical contact pressure. The integration of uncertainties mechanical parameters is realized by a physico-probabilistic approach of the stochastic finite element method (SFEM).

Keywords: PEMFC – experimental design – porosity – uncertainty – finite element method – multiphysics – mathematical optimization.

Thèse réalisée en partenariat entre :



Ecole Doctorale "Sciences pour l'Ingénieur"