REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE YAHIA FARES DE MEDEA



Faculté de Technologie

Département du Génie Mécanique

Mémoire de fin d'études de Master

Filière : Génie Mécanique

Spécialité : Énergies renouvelables

Thème :

Distribution de la densité de courant dans une pile à combustible (SOFC)

Dirigés par :

- *Mme KACIMI . H (Encadreur)*
- *Dr IBRIR Abdellah (Co-Encadreur)*

Présentés par :

- *BOUMEDJADJI Mohamed Ali*
- *ABIDI Mohamed*

Promotion 2022



Remerciements

Au nom de dieu le miséricordieux par essence et par excellence.

Je tiens à remercier vivement Mme KACIMI Habiba du département de génie mécanique pour m'avoir fait confiance et encadré au cours de ce travail. Je remercie également Dr IBRIR Abdellah que pour son encadrement et soutient sans oublier les examinateurs. Enfin, je remercie toute personne ayant contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce travail.

DEDICACE

Nous dédions ce modeste travaille a : A nos chers parents Pour leur soutien, leur patience, leur sacrifice et leur amour, vous méritez tout éloge, vous qui avez fait de nous ce que nous sommes maintenant. Nous espérons être l'image que vous êtes fait de nous, que dieu vous garde et vous bénisse. Nous dédions également ce travail à ma promotrice

Mme: KACIMI Habiba

et co-encadreur Dr IBRIR Abdellah

pour leur affection et leur encouragement qui on toujours été pour nous des plus précieux. Que ce travail soit pour vous le gage de notre profond amour A tout nos amis A tous ceux qui nous ont aidés. A tous ceux que nous aimons.

ABIDI MOHAMED

DEDICACE

Je dédie ce modeste travail à :

Mes chers parents, Qu'ils trouvent en moi la source de leur fierté

A mes frères, et mes soeurs

A mes amis qui m'ont soutenu dans mon

Dernier parcours Universitaire, en particulier

Sidali Zaoui et Lakhdar Alloune et yahya aloune et khaled b et samir s et

ramdan jondi le reste des amis

A ma promotrice Mme: KACIMI H

Et co-encadreur Dr IBRIR Abdellah

A toute la famille BOUMEDJADJI

Et tous ceux qui ont contribué à la réussite de

Ce modeste Travail

BOUMEDJADJI Mohamed Ali

Liste des Figures

Figure I-1: pile à combustible

Figure I-2: Expérience de Sir W. Groveen1839

Figure I-3: Structure de pile à combustible

Figure 1-4: principe de fonctionnement d'une pile à combustible

Figure II-1 :Schéma global de la modélisation de la pile SOFC

Figure II-2 : Diagramme schématique d'une pile SOFC

Figure II-3 : Evolution de la tension de sortie ,du rendement et de la puissance en régime

Figure II-4 : Circuit équivalent de l'effet de remplissage à double couche à l'intérieure d'une pile SOFC

Figure III-1 : Synoptique d'un cycle à vapeur

Figure III-02. Structure de notre modèle de la PAC SOFC sur Thermoptim.

Figure III-03. Ecran du composant pile SOFC

Figure III-04 : Ecran du composant pile SOFC

Figure III-05 : Air en entrée de la pile

Figure III-06 : Hydrogène humidifié en sortie, débit 19.24 g/s, PCI : 11230 Kj/Kg

Figure III-07 : Air appauvri en O_2, débit 104,76 g/s

Figure III-08. Ecran du composant pile SOFC , 400 Cellules.

Figure III- 09 : Ecran de l'éditeur de schémas

Figure III- 10. Ecran du composant pile SOFC

Figure III-11. Ecran du thermo coupleur

SOMMAIRE

Introduction générale…….. 1

Liste des Figures…….

Chapitre I : Généralité sur les piles à combustible

I.1. Introduction …….. 3

I.2. Historique des piles à combustible…….. 4

I.3. Structure d'une pile à combustible …… 5

I.4. Différents types des piles à combustible …… ;…… 5

I.4.1. La pile à combustible à membrane électrolyte polymérique (PEMFC)… 5

I.4.2. La pile à combustible à méthanol direct (DMFC) …… …… 6

I.4.3. La pile Alcaline AFC …… 6

I.4.4.La pile à acide phosphorique (PAFC)…… ……..……. 7

I.4.5. La pile à carbonate fondus (MCFC) …… ...…….. 7

I.4.6. La pile à oxyde solide (SOFC) ……. 8

I.5 Principe de fonctionnement:…… …… 11

I.6 Les avantages et les inconvénients de la pile à combustible :…….. 12

I.6.1 Les avantages……. 12

I.6.2 Les inconvénients……. 12

I.7 Conclusion…… 13

Chapitre II : Modélisation d'une pile à combustible SOFC

II.1. Introduction…….. 14

II.2 Application à la modélisation de la SOFC…… 14

II.2.1 Introduction……..……. 14

II.2.2 Modèles des piles SOFC…… 16

II.2.2.1 Modèle chimique de la SOFC…….. 16

II.2.2.2. Modèle thermique……... 19

II.2.2.3 Modèle électrique…… 20

II.3 calculs des chutes de tension…… … 21

II.4 Caractéristique de la pile SOFC…… 21

II.5 Effet de remplissage à double couche :…… 22

II.6 Conclusion…… 24

Chapitre III :Simulation dans Thermoptim

III.1 Introduction…… …. 25

III.2 Présentation de Thermoptim……. 25

III.2.1 Le logiciel Thermoptim :…….……. 25

III.2.2 Fonctionnalités de base du simulateur……..…. 26

III.3 Modélisation d'une PAC SOFC Dans Thermoptim…….… 26

III.3.1 Premier modèle :……..…… 28

III.3.1.1 Résultats du modèle simple…….. 29

III.3.2 Modèle de pile à combustible SOFC à l'hydrogène pur avec module électrique……. 31

III.3.2.1 Modèle électrique retenu……..…… 31

III.3.3. Modèle de pile à combustible SOFC refroidie :…….…. 32

III.3.3.1. Modèle thermique retenu…….…….. 33

III.4 CONCLUSION……..……. 35

Conclusion générale……. 37

Référence…….. 39

Résumé

Cette étude présente un modèle de pile à combustible à oxyde solide à haute température, dite ***SOFC***, alimentée en hydrogène pur, au moyen d'un outil de simulation pour comprendre les phénomènes mise en jeu au sein du système de la pile. Nous montrons comment établir le bilan des espèces chimiques , celui des énergies mises en jeu et calculer la densité du flux en fonction des différentes paramètre.

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

Abstract

This study presents a model of a high temperature solid oxide fuel cell, called SOFC, fed with pure hydrogen, using a simulation tool to understand the phenomena involved in the cell system. We show how to establish the balance of the chemical species, that of the energies involved and calculate the flux density according to the different parameters.

Keys words: Fuel cell, SOFC; modeling, hydrogen, oxygen, static, dynamic, energy, optimization.

ملخص

تقدم هذه الدراسة نموذجًا لخلية وقود أكسيد صلب ذات درجة حرارة عالية ، تسمى SOFC ، يتم تغذيتها بالهيدروجين النقي ، باستخدام أداة محاكاة لفهم الظواهر التي ينطوي عليها نظام الخلية. نوضح كيفية إنشاء توازن الأنواع الكيميائية ، وتلك الخاصة بالطاقات المعنية وحساب كثافة التدفق وفقًا للمعايير المختلفة.

كلمات البحث :خلية الوقود، النمذجة، الهيدروجين، الأكسجين، ستاتيكية، ديناميكية، الطاقة , والتحسين.

INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

Une pile est définie comme un système qui permet de convertir l'énergie chimique d'une réaction directement en énergie électrique.

Le terme « pile à combustible » précise que la réaction s'effectue de manière continue tant que le combustible, pouvant être de nature variée, est fourni. La réaction la plus fréquemment utilisée est celle entre l'hydrogène et l'oxygène, écologiquement intéressante puisqu'elle ne produit que de l'eau. Cette réaction est exactement l'inverse de celle de l'électrolyse de l'eau où l'énergie électrique permet de dissocier la molécule d'eau en hydrogène et oxygène et qui fut réalisée pour la première fois au début du XIXème siècle.

Différents types de pile à combustible existent. Les plus développées, dont la commercialisation a déjà commencé, sont les piles avec un électrolyte en polymère conducteur protonique appelées PEM pour « Polymer Electrolyte Membrane » et les piles avec un électrolyte céramique conducteur d'ion oxygène appelées SOFC pour « Solid Oxyde Fuel Cell ».

Les piles à combustible à oxyde solide (SOFC) semblent pouvoir prendre une place importante au sein de la grande famille des piles à combustible vu leurs rendements élevés (le rendement électrique pouvant dépasser 50%) et leur capacité à co-générer de l'électricité et de la chaleur qui est dû à leur haute température de fonctionnement.

Nous abordons à travers cette étude la modélisation d'une pile SOFC au moyen d'un outil de simulation pour comprendre les phénomènes mise en jeu au sein du système de la pile et calculer la densité du flux en fonction des différents paramètres.

Le travail présenté ici est découpé en 4 parties. Le premier chapitre établira des généralités sur les piles à combustible avec une attention particulière portée au piles SOFC.

Le deuxième chapitre présentera la modélisation des piles à oxydes solides

Le troisième chapitre sera consacré à notre étude, une présentation générale est donnée sur le simulateur, ou on va simuler les trois modèles chimiques, électrique et thermique dans ce derni7er.

Notre étude est terminée par une brève présentation de l'ensemble des travaux dans la conclusion qui seront exposés dans les chapitres suivants

CHAPITRE I
GENERALITE SUR
LES PILES A COMBUSTIBLE

Chapitre I : Généralité sur les piles à combustible

I.1. Introduction

Une pile à combustible est un dispositif permettant la conversion directe en énergie électrique, de l'énergie libre d'une réaction chimique d'oxyde- réduction. Cette conversion se faisant sans dégradation de l'énergie sous forme de chaleurs [4].

Dans son principe, une pile à combustible ne diffère des piles électriques ou des batteries habituelles que par le mode de stockage du combustible et du comburant (fig. I.1). Ceux-ci ne sont plus emmagasines dans le générateur, mais proviennent de l'extérieur de la pile une pile au zinc, par exemple, doit être jetée lorsque le combustible est épuisé (pille primaire) et une batterie (pile secondaire) doit être rechargée pour que les réactifs soient régénérés. Dans une pile à combustible il suffit de remplir le réservoir de combustibles et de l'alimenter en air pour continuer à obtenir du courant électrique.

La construction d'un modèle dépend de l'utilisation à laquelle il est destiné : un modèle peut servir à concevoir, comprendre, prévoir ou commander. Il peut s'appuyer sur des "lois physiques (modèle de connaissance) ou sur des données collectées expérimentalement (modèle de représentation). Si le but est de comprendre et de prévoir le comportement d'un système, on aura recours à un modèle de connaissance, celui-ci présentant un domaine de validité plus étendu que celui d'un modèle de représentation.

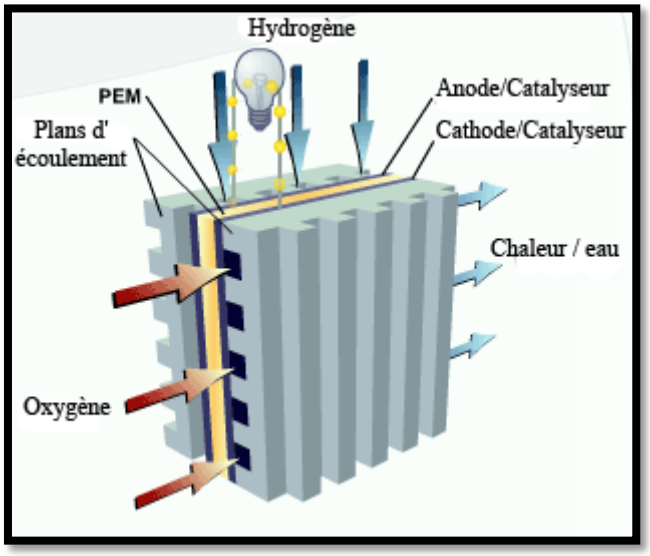


Figure I.1: pile à combustible

I.2. Historique des piles à combustible

L'effet physico-chimique à l'origine des piles à combustible a été découvert en 1838 parle professeur Christian Friedrich Schönbein qui a observé un courant électrique dû à la combinaison d'hydrogène et d'oxygène. La première pile à combustible fut présentée par William GROVE en 1839 sous l'expérience suivante : une cellule hydrogène-oxygène (figure I.1) constituée d'électrodes de platine et d'un électrolyte acide (acide sulfurique).

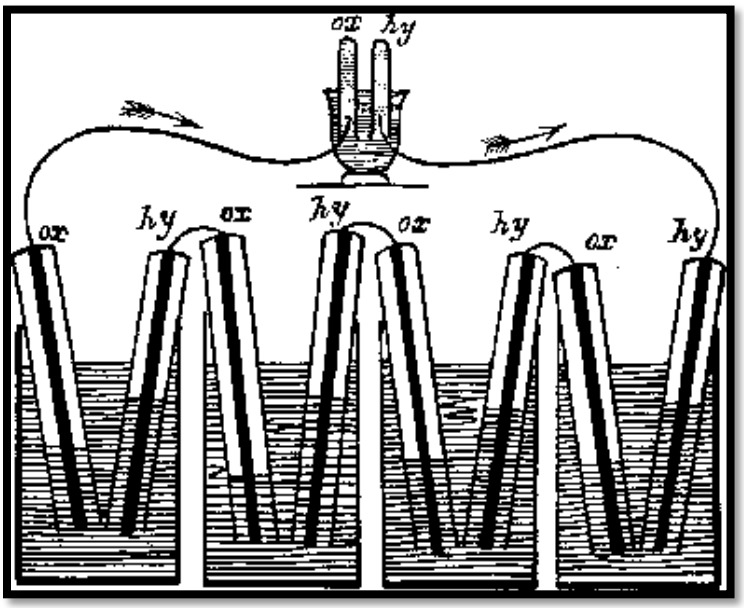


Figure I.2: Expérience deSir W. Groveen1839

Après quelques améliorations apportées à cette expérience, celle-ci tombe presque dans l'oubli au profit des machines thermiques, des accumulateurs et des piles électriques en vogue à cette période-là Cinquante ansplustard, en1889, Ludwig MOND et Charles Langer apportent des perfectionnements notamment avec l'introduction de catalyseurs (platine) oud 'électrolytes pouvant être contenus dans des matrices poreuses en plâtre et en amiante. Ils baptisent cette technologie pile à combustible.

Wilhelm Ostwald dit en 1884 « la pile à combustible est une invention plus importante pour l'humanité que la machine à vapeur et enverra bientôt le générateur Siemens dans les musées ». Malheureusement, à cause de la grande quantité de pétrole disponible et de l'invention du moteur à combustible, les piles à combustible furent délaissées jusqu'au milieu du 20^{éme} siècle. Les piles à combustible réapparurent alors dans le programme spatial américain Apollo [4]

Ce n'est que dans les années 1990 que les recherches reprennent, notamment dans le domaine automobile. En 1999 les recherches vont être en courgées (et financées) grâce à la création d'un réseau national de recherche technologique « pile à combustible » elles sont poursuivies à l'heure actuelle par l'intermédiaire de projets financés par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) ou d'autres organismes publics comme L'ADEM [8].

I.3. Structure d'une pile à combustible

Une pile à combustible se compose d'un électrolyte (corps ou un compose permettant le passage d ion mais pas celui d'électrons) pris en sandwich entre deux électrodes poreuses (Figure I.3). Ces électrodes poreuses permettant le passage des deux gaz (hydrogène et oxygène). Le courant produit est recueilli aux électrodes et alimente une charge (moteur électriques, éclairage, instruments...etc.

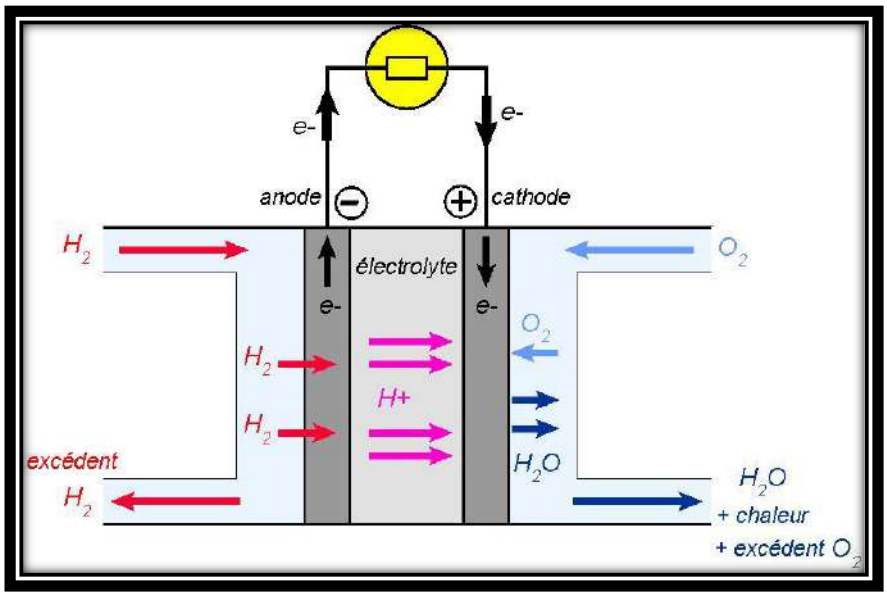


Figure I.3: Structure de pile à combustible

I.4. Différents types des piles à combustible

I.4.1. La pile à combustible à membrane électrolyte polymérique (PEMFC)

Ce type de pile a été mis au point pour les missions spatiales Gemini de la NASA dans les années 1960, mais fut ensuite vite remplacé par des AFC, faute de rendement suffisant. Cette technologie a connu des progrès énormes dans les années1980, notamment avec l'arrivée de nouvelles membranes de type Nation (fabriquées par la société Dupont de Nemours), permettant d'envisager le recours à la technologie des piles à combustible pour la

généralisation des applications [4]. La PEMFC fonctionne à une température d'environ 80°C, de façon à maintenir l'eau à l'état liquide dans la membrane. Les réactions suivantes se produisent :

A l'anode on a : $2H_2 \rightarrow 4H^+ + 4e^-$ (I.1)

A la cathode on a: $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ (I.2)

L'électrolyte est une membrane polymérique mince qui permet le passage des protons (H^+). Un catalyseur à base de platine est utilisé aux électrodes. Le monoxyde de carbone peut être absorbé sur ce catalyseur s'il n'est pas éliminé pendant le procédé de purification, d'où une diminution de l'efficacité de la pile à combustible. De nombreux centres de recherche sont à la recherche de catalyseurs plus robustes et moins chers, et d'électrolytes polymériques échangeurs d'ions plus efficaces et également moins couteux.

Les plaques bipolaires peuvent être faites à partir de feuilles de graphite, de composites de métaux à base de carbone.

I.4.2. La pile à combustible à méthanol direct (DMFC)

La DMFC (direct méthanol fuel cell) est un type de pile à combustible dérive du type PEMFC utilisant du méthanol comme carburant, le méthanol est alors directement en contact avec l'anode, à laquelle les réactions suivantes se produisent à des températures de fonctionnement ne dépassant jamais 80°C:

A anode on a: $CH_3\,OH + H_2O \rightarrow 6H^+ + 6e^- + CO_2$ (I.3)

Et à la cathode on a : $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ (I.4)

Dans une DMFC, ce sont les protons qui se déplacent de l'anode à la cathode et non les molécules de méthanol. Tout comme le cas chez la PEMFC, cette pile à combustible utilise un électrolyte polymérique échangeur d'ions, cependant ces membranes ne sont pas avantageuses pour bloquer le passage du méthanol. Le mouvement des protons dans la membrane est associé à la teneur en eau de la membrane. Le méthanol et l'eau ayant des

Propriétés comparables. A la cathode, le méthanol cause un mélange de potentiels dû à l'interférence entre les réactions d'oxydation du méthanol et de réduction de l'oxygène. Cela a pour effet une baisse des performances de la pile.

I.4.3. La pile Alcaline AFC

Les piles AFC ont l'avantage d'avoir le meilleur rendement de toutes les piles à combustible, mais elles travaillent correctement seulement en utilisant des gaz très purs ce qui est considéré comme un inconvénient majeur pour de nombreuses applications.

Utilisée depuis le début des années 1940, cette pile se trouve également à bord des

vaisseaux spatiaux habités de la NASA depuis les trente dernières années. Fonctionnant à des températures variant de 60° à 90°C, les réactions mises en jeu sont les suivantes :

A l'anode, avec un catalyseur au nickel ou au platine-palladium, on a la réaction :

$$2H_2 + 4OH^- \rightarrow 4H_2O + 4e^- \qquad \text{(I.5)}$$

Et à la cathode, avec un catalyseur à l'oxyde de nickel, à argent ou au platine-or, on a la réaction : $O_2 + 4e^- + 2H_2O \rightarrow 4OH^-$ (I.6)

Dans ce cas, l'électrolyte utilisées tune solution de KOH (généralement en concentration de 30 à 40%), qui est un électrolyte conducteur d'hydroxyde (OH^-). Comparé aux piles à électrolyte acide, cet électrolyte a l'avantage, d'accélérer la réduction de l'oxygène, ce qui en fait un système intéressant pour certaines applications spécifiques.

L'électrolyte peut réagir avec l'oxyde de carbone pour former un composé de carbonate, ce qui réduit énormément le rendement de la pile à combustible. En effet, le CO_2 contenu dans l'air réagit avec l'électrolyte dans la réaction suivante :

$$CO_2 + 2OH^- \rightarrow CO_3^{-2} + H_2O \quad \text{(I.7)}$$

Les catalyseurs sont habituellement une combinaison de nickel et d'un métal inactif, comme l'aluminium, permettant ainsi de réduire le cout global du système. Le magnésium métallique ou des composés de graphite sont utilisés pour les plaques bipolaires qui sont les connecteurs permettant de construire un assemblage en reliant plusieurs piles en série.

I.4.4. La pile à acide phosphorique (PAFC)

La pile à combustible à acide phosphorique est le système le plus avancé dans le développement et la commercialisation. Elle est principalement utilisée pour des applications stationnaires, entant que générateur électrique. Des centrales électriques de type PAFC, avec Une puissance fournie comprise entre (5et20MW). Ont éteins tallées dans le monde pour fournir de l'électricité, du chauffage et de l'eau chaude à certains villages, usines ou hôpitaux.

Les avantages des PAFC sont sa facilité de fabrication, sa stabilité thermique et chimique et la faible volatilité de l'électrolyte aux températures de fonctionnent entre (150 et 220°C). Ces facteurs ont facilité le développement commercial de ce type de système.

Les réactions qui se produisent dans une PAFC sont les mêmes que dans températures variant de (150 à220°C).

anode: $2H_2 \rightarrow 4H^+ + 4e^-$ (I.8)

Cathode: $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ (I.9)

Comme dans le cas des PEMFCs, cette pile utilise des électrodes de carbone, avec un catalyseur à base de platine, qui permettent la diffusion des gaz. Les plaques bipolaires sont deux plaques poreuses séparées par une mince feuille de graphite pour former un substrat côtelé dans lequel l'électrolyte peut être stocké.

I.4.5. La pile à carbonate fondus (MCFC)

Le développement des piles à combustible à carbonate fondus à débuter dans le milieu du vingtième siècle. Les systèmes à base de piles MCFC peuvent atteindre des rendements supérieurs à 50%, voire supérieurs à 70% lorsqu'ils sont combinés à d'autres générateurs. De plus les MCFC peuvent utiliser une large gamme de carburant, et ne sont pas sensibles à la contamination par CO ou CO_2 comme c'est le cas des piles à basses températures.

A l'anode, on a la réaction suivante :

$$2H_2 + CO_3^{-2} \rightarrow 2H_2O + 2CO_2 + 4e^- \quad \text{(I.10)}$$

Au niveau de la cathode : $O_2 + 2CO_2 + 4e^- \rightarrow 2CO_3^{-2}$ (I.11)

L'électrolyte est fait d'un mélange de carbonates de métaux alcalins retenus par une matrice céramique d'oxyde d'aluminium et de lithium ($LiAlO_2$). Les plaques bipolaires sont faites d'acier inoxydable recouvert de nickel du côté de l'anode. Le choix des matériaux et Extrêmement important, en raison de la nature hautement corrosive de l'électrolyte et de la température de fonctionnement très élevée.

I.4.6. La pile à oxyde solide (SOFC)

Le principe de fonctionnement des SOFC est basé sur le mécanisme suivant : l'oxygène est dissocié à la cathode en O^{2-} , puis l'anion migre à travers l'électrolyte conducteur ionique à haute température et va se combiner à l'anode avec l'hydrogène, ou le monoxyde de carbone, Pour former de l'eau et libérer de sélecterons.

Les réactions mises en jeu sont les suivantes :

Anode: $2H_2 + 2O^{-2} \rightarrow 2H_2O + 4e^-$ (I.12)

Cathode: $O_2 + 4e^- \rightarrow 2O^{-2}$ (I.13)

La caractéristique principale des SOFC réside donc dans leur température de fonctionnement (600 à 1000°C) nécessaire à l'obtention d'une conductivité ionique suffisante

de l'électrolyte céramique. Cette température présente un double avantage. Elle permet d'abord l'utilisation directe d'hydrocarbures, qui pourront être facilement reformés se passant de catalyseur à base de métaux nobles. Elle produit d'autre part une chaleur élevée facilement exploitable en cogénération, le rendement pouvant atteindre ainsi 80%. Mais elle présente également un inconvénient, la mise en température est longue et complique tout utilisation à cycles courts et répétitifs (comme dans le cas de transport).

Pour ces raisons, la technologie se prête particulièrement bien à la production d'électricité décentralisée et à la cogénération (domaines couvrant des puissances allant de (1KW à quelques dizaines de 2MW). Grâce à son fort rendement et sa capacité potentielle à fonctionner directement avec des hydrocarbures liquides, elle trouvera également un débouché dans la propulsion navale.

La mise au point de ce type de pile, de par sa haute température de fonctionnement et la résolution des problèmes thermo mécaniques détenue de matériaux est assez complexe.

Une des particularités de la SOFC et son électrolyte solide, habituellement du zirconium (Z_{r2}) dopé d'une mole de 8 à 10% d'ytterbium (Y^{3+}), lequel joue le rôle de conducteur pour l'anion oxygène(O^{2-}). Les SOFC $_S$ peuvent être de conceptions planes, monolithique et tubulaires, et utiliser de l'acier inoxydable, de l'acier au sténitique, des matériaux céramiques selon les températures de fonctionnement et l'électrolyte désiré.

On compte actuellement six types de piles à combustible qui se différencient selon la nature de leur électrolyte et le niveau de leur température de fonctionnement, leur architecture et les domaines d'application dans lesquels chaque type peut être utilisé. Les différents types de piles sont rappelés dans le tableau (I-1)

	Electrolyte	**Température de fonctionnement**	**Domaine D'application**
AFC **Alcaline Fuel Cell Pile à Combustible alcaline**	Hydroxyde De Potassium	60°C à90°C	Transport
DMFC **Direct méthanol Fuel Cell** **Pile à combustible au méthanol direct**	Membrane polymère	60°C à120°C	Portable
PEMFC **Proton Exchange Membrane Fuel Cell Pile à combustible à membrane**	Membrane polymère	60°C à100°C	Portable Stationnaire Transport
PAFC **Phosphorique Acide Fuel Cell** **Pile à combustible à acide phosphorique**	Acide phosphorique	150°C à220°C	Stationnaire
MCFC **Molt en Carbonate Fuel Cell** **Pile à combustible à carbonate fondu**	Carbonate Métaux alcalins	650°C	Stationnaire
SOFC **Solid Oxide Fuel Cell** **Pile à combustible à oxyde solide**	Céramique	600°C à1000°C	Stationnaire Transport

Tableau I.1: Différents types de la pile à combustible.

I.5 Principe de fonctionnement :

Le principe de fonctionnement de la pile à combustible est décrit comme l'inverse de l'électrolyse de l'eau. En effet, il s'agit d'une combustion électro chimique contrôlée d'hydrogène et d'oxygène, avec production simultanée d'électricité, d'eau et de chaleur, selon une réaction chimique globale : $2H_2 + O_2 \rightarrow 2H_2O$ (I.14)

Oxidation (anode) $2H_2 \rightarrow 4H^+ + 4e^-$ (I.15)

Reduction (cathode) $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ (I.16)

Un réservoir fournit en continu l'anode et la cathode en combustible : dans le cas d'une pile à hydrogène, l'anode reçoit de l'hydrogène et la cathode de l'oxygène, autrement dit de l'air. L'anode provoque l'oxydation du combustible et la libération d'électrons, contraints par l'électrolyte chargé en ions de passer par un circuit externe. Ce circuit externe offre donc un courant électrique en continu.

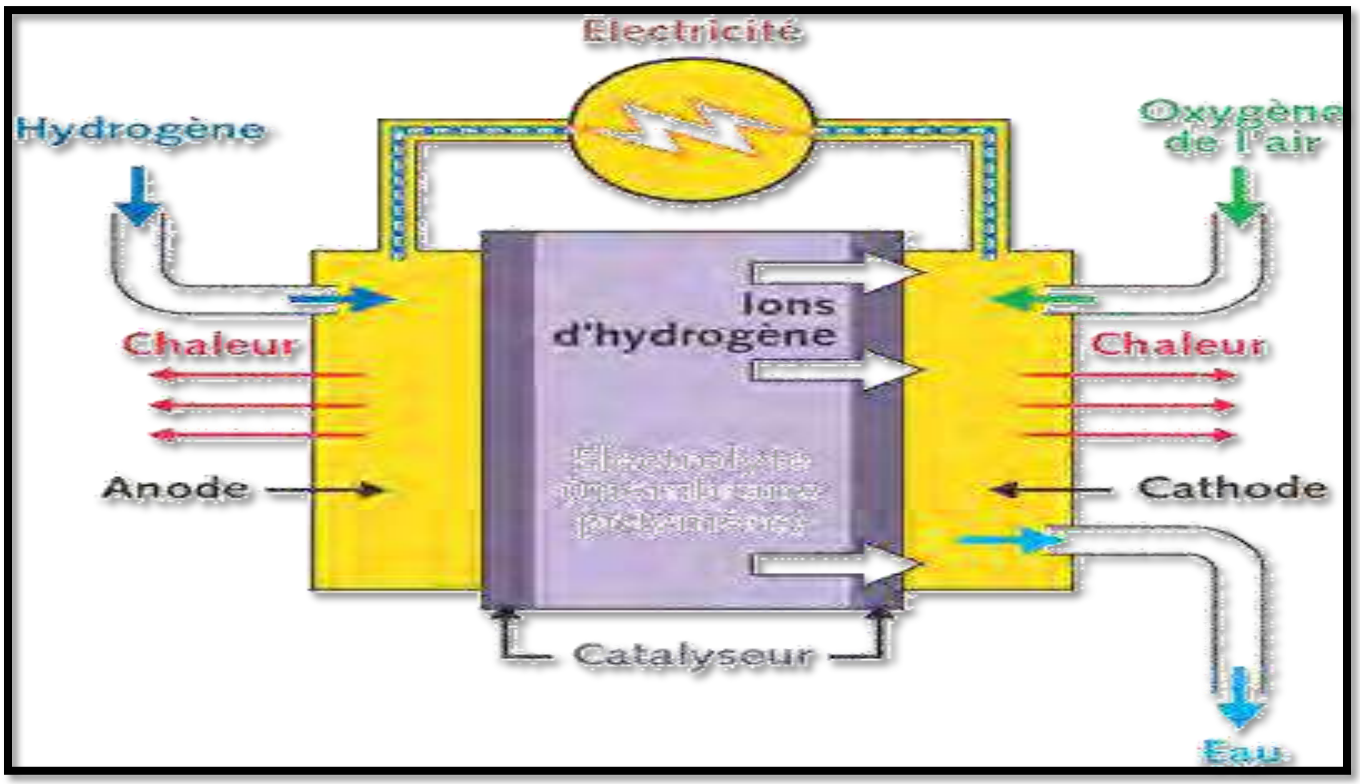


Figure1.4: principe de fonctionnement d'une pile à combustible

I.6 Les avantages et les inconvénients de la pile à combustible :

I.6.1 Les avantages

Les piles à combustibles sont souvent présentées comme la solution du futur dans les domaines de production d'énergie électrique, de l'automobile. Cet attrait est justifié par leurs nombreux avantages :

- De hauts rendements énergétiques même à charge partielle.
- De faible émissions sonores.
- Peu démissions (elles dépendent cependant du combustible utilise).
- Elles sont de construction modulaire.
- Diverses températures de fonctionnement (PEMFC).
- Pas de parties rotatives.

I.6.2 Les inconvénients

Si les piles sont si intéressantes, pour quoi ne les trouve-t-on pas sur le marché ? En fait, il reste de nombreux points faibles qui sont à régler :

- Le cout.
- Le poids et le volume.
- La durée de vie.
- La gestion thermique du module.
- Le carburant et la mise en place des normes de sécurité liées à son emploi.

I.7 Conclusion

Dans le présent chapitre, nous avons décrit le principe général de la pile à combustible et ses avantages par rapport à d'autres moyens de production d'électricité.

La transformation d'énergie chimique en énergie électrique et thermique se fait, selon le type de pile, par des réactions différentes. Après une présentation des six types de piles actuellement existants, la pile de type SOFC a été choisi pour notre étude.

Malgré les nombreux avantages qu'elles présentent, il reste encore quelques obstacles pour leur mise rapide sur le marché et leur utilisation parle grand public. Parmi ces inconvénients, la durée de vie et le coût de ces systèmes qui freinent encore leur commercialisation.

CHAPITRE II
MODELISATION D'UNE PILE A COMBUSTIBLE SOFC

CHAPITRE II : MODELISATION D'UNE PILE A COMBUSTIBLE SOFC

II.1. Introduction

Le but de ce chapitre est de présenter le modèle adopté pour rendre compte des phénomènes physiques au sein de la pile. La première partie du chapitre est dédiée aux principes de modélisation appliqués concernant les domaines chimique, thermique et électrique. La deuxième Les modélisations chimique et thermique de la pile à combustible sont basées, sur leur analogie formelle avec le domaine électrique.

La température est similaire à la tension et le flux de chaleur est similaire au courant. Deux sources de chaleur au sein de la cellule sont considérées : les sources de chaleur endothermiques ou exothermiques produites par les réactions chimiques et les sources de chaleur d'origine ohmique. Par ailleurs, la pression est similaire à la tension et la partie concerne l'application de la modélisation à la pile SOFC.

L'application de cette analogie offre la possibilité de représenter des lois physiques au sein d'un système avec des circuits électriques. L'utilisation d'une telle représentation permet l'utilisation de différentes techniques du domaine électrique : mise en série ou en parallèle des modèles chimiques et thermiques, réalisation des régulations de grandeurs chimiques ou thermiques à l'aide des méthodes utilisées dans l'automatique (ex : compensation des pôles), facilité et flexibilité d'intégration de modèles développés dans un modèle global (couplage de pile ou pile associée au convertisseur) [9].

La modélisation électrique traduit les phénomènes électrochimiques de chaque pile. Le modèle électrique de la SOFC est basé sur la tension réversible de Nernst et les différentes chutes de tension.

II.2 Application à la modélisation de la SOFC

II.2.1 Introduction

Le modèle général de la pile SOFC est composé de trois sous-modèles : thermique, chimique et électrique. La figure ci-dessous montre l'interaction des différents modèles.

Le modèle électrique sert à calculer la tension de la pile. Il est basé sur l'équation de Nernst et le calcul des différentes surtensions. Basé sur une analogie électrique chimique, le modèle chimique sert à calculer les débits de gaz dans l'anode et la cathode et les pressions partielles des gaz au niveau des électrodes en rendant compte des pertes de charges dans les couches de diffusion. Le modèle thermique s'appuie sur une analogie électrique. Seule une

cellule SOFC a été modélisée et on considère que le comportement thermique d'une cellule est similaire à celle d'un stack

Les températures calculées (anode cathode, électrolyte…) sont introduites comme entrée des modèles fluidique et électrique. La deuxième étape consiste à calculer les débits et les pressions partielles dont les constantes de temps sont plus rapides. Enfin la tension de la pile est calculée par une expression quasi-statique [10].

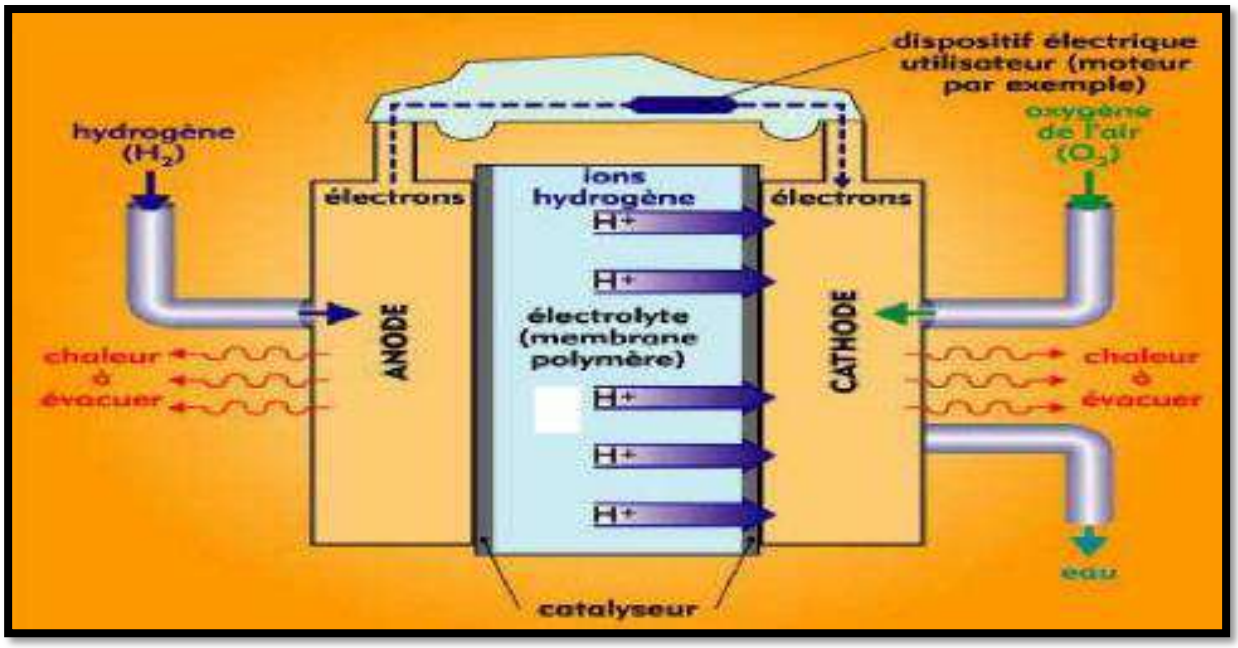


Figure II-1 :Schéma global de la modélisation de la pile SOFC

II.2.2 Modèles des piles SOFC

II.2.2.1 Modèle chimique de la SOFC

$$P_{H_2}^{canal} = \frac{P_{H_2}^{en} + P_{H_2}^{S}}{2} \qquad (II.1)$$

$$P_{H_2O}^{canal} = \frac{P_{H_2O}^{en} + P_{H_2O}^{S}}{2} \qquad (II.2)$$

$$P_{O_2}^{canal} = \frac{P_{O_2}^{en} + P_{O_2}^{s}}{2} \qquad (II.3)$$

$P_{H_2}^{canal}$: La pression partielle de l'hydrogène qui correspond au canal d'anode.

$P_{H_2O}^{canal}$: La pression partielle de l'eau se trouvant au canal d'anode.

$P_{O_2}^{canal}$: La pression partielle de l'oxygène correspondant au canal de la cathode.

$P_{H_2}^{en}$: La pression d'entrée de l'hydrogène.

$P_{H_2}^{s}$: La pression de sortie de l'hydrogène.

$P_{H_2O}^{en}$: La pression d'entrée de l'eau.

$P_{H_2O}^{s}$: La pression de sortie de l'eau.

$P_{O_2}^{en}$: La pression d'entrée d'oxygène.

$P_{O_2}^{s}$: La pression de sortie d'oxygène.

Les pressions partielles effectives de H_2 et O_2 aux emplacements réels de la réaction seront plus faibles que celles dans les canaux d'écoulement de gaz dus à la diffusion massique. En revanche, la pression de la vapeur partielle aux emplacements de la réaction est plus grande que celle dans le canal d'écoulement d'anode. Dans le but de calculer la tension de sortie de la pile, les pressions partielles effectives de H_2, de H_2O et de O_2 aux emplacements des réactions doivent être déterminés. Dans un mélange de gaz se composant de l'espèce de N, la diffusion du composant i par les électrodes poreuses peut être décrite par la formule de Maxwell [10].

$$\nabla x_i = \frac{RT}{P} \sum_{j=1}^{N} \frac{x_i N_j - x_j N_i}{D_{i,j}} \qquad \text{(II.4)}$$

Où X_i *(Xj)* = fraction molaire des espèces i(j).

Di, j = diffusivité binaire efficace de la paire de i-j (m^2 /s).

Ni (Nj) = flux superficiel du gaz d'espèce. *P* = pression globale du mélange du gaz (Pa).

R = constante des gaz parfaits : 8.3143J/ (mol. K). *T* = température du gaz.

Dans le canal d'anode, le jet de gaz est un mélange de H_2 et de H_2O. Dans le procédé unidimensionnel de transport le long de l'axe de x, représenté sur le schéma ci-dessous, la diffusion de peut-être simplifiée comme suit :

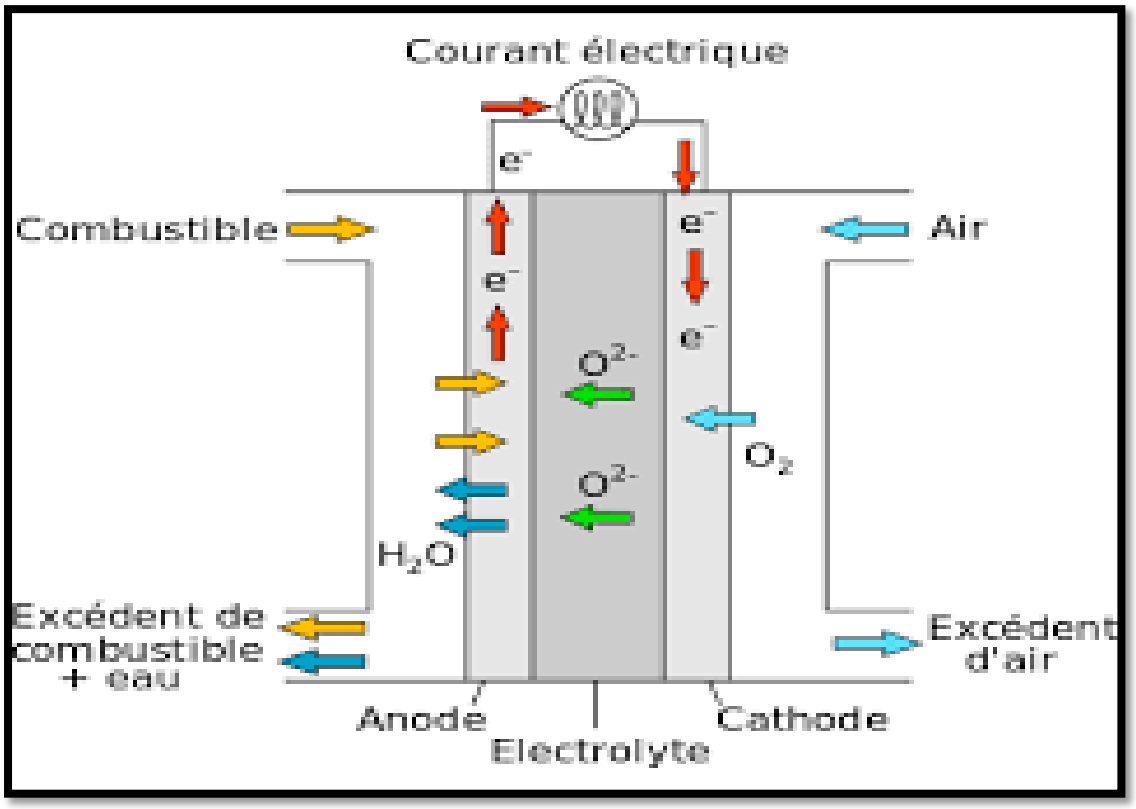


Figure II-2 : Diagramme schématique d'une pile SOFC

$$\frac{dx_{H_2}}{dx} = \frac{RT}{P_a^{canal}}\left(\frac{x_{H_2}.N_{H_2O} - x_{H_2O}.N_{H_2}}{D_{H_2,H_2O}}\right) \quad \text{(II.5)}$$

Le flux molaire de et de peut être déterminé par la loi de Faraday.

$$N_{H_2} = -N_{H_2O} = \frac{i_{den}}{2F} \quad \text{(II.6)}$$

Où :

Iden : La densité du courant [A / m^2].

F : Constante de Faraday (96487 C/mol).

On note : $x_{H_2} + x_{H_2O} = 1$, alors l'équation ci-dessus s'écrira comme suit :

$$\frac{dp_{H_2}}{dx} = -\frac{RT}{D_{H_2,H_2O}}\frac{i_{den}}{2F} \quad \text{(II.7)}$$

Dans le canal de la cathode, l'oxydant est l'air qui se compose de O2 et de N2 qui est

$x_{O_2} + x_{N_2} \approx 1$

Appliquant le même procédé comme ci-dessus, l'équation l'unidimensionnelle de diffusion de Stefan-Maxwell pour O2 peut être exprimée comme suit :

$$\frac{dx_{O_2}}{dx} = \frac{RT}{P_C^{canal}}\left(\frac{x_{O_2}.N_{N_2} - x_{N_2}.N_{O_2}}{D_{O_2,N_2}}\right) \quad \text{(II.8)}$$

Puisque l'azote ne participe pas à la réaction chimique, le flux net molaire d'azote normal sur la surface de la cathode peut être égal à zéro :

$$N_{N_2} = 0 \quad \text{(II.9)}$$

Le flux molaire de O_2 est déterminé par la loi de Faraday :

$$N_{O_2} = \frac{i_{den}}{4F} \quad \text{(II.10)}$$

L'équation (11) peut s'écrire comme suit :

$$\frac{dx_{O_2}}{dx} = \frac{RTi_{den}}{AFP_C^{canal}D_{O_2,N_2}}\left(x_{O_2} - 1\right) \quad \text{(II.11)}$$

Semblable à l'analyse pour l'anode, la pression partielle efficace de l'oxygène à l'emplacement de la réaction peut être trouvée comme suit :

$$P_{O_2}^{*} = P_C^{canal} - \left(P_C^{canal} - P_{O_2}^{canal}\right)exp\left(\frac{RTi_{den}l_c}{4FP_C^{canal}D_{O_2,N_2}}\right) \quad \text{(II.12)}$$

$P_{H_2}^{*}$, $P_{H_2O}^{*}$ et $P_{O_2}^{*}$, calculées dans les équations (9), (10) et (15) seront utilisées dans l'équation de Nernst pour déterminer la tension de sortie de la pile. Les équations de l'équilibre de la matière qui seront également utilisées pour déterminer la tension de sortie de la pile, seront développées**.**

II.2.2.2. Modèle thermique

Le profil de coupe et le transfert thermique à l'intérieur d'un SOFC tubulaire est représenté dans la figure II-3. L'avantage de cette structure tubulaire est qu'elle élimine les problèmes de joint entre les cellules depuis l'appui. Le tube de chaque cellule est fermé à une extrémité. L'air alimente à travers un tube central d'air (AST) et forcé de retourner à

l'intérieur de la cellule (surface de cathode) dont l'extrémité est ouverte. L'écoulement du gaz de carburant passe à l'extérieur de la cellule (surface d'anode) et dans la direction parallèle de l'air.

L'analyse thermique pour reformation du carburant et la chambre de combustion ne sont pas incluses dans ce modèle. Des échanges thermiques entre les cellules ne sont pas également considérés dans ce modèle en supposant que des différences de températures entre les cellules adjacentes peuvent être négligées [10]. Le transport de chaleur à l'intérieur de la cellule de carburant se produit principalement au moyen de rayonnement, convection et écoulement de la masse.

II.2.2.3 Modèle électrique

La réaction globale dans la pile SOFC est :$2H_2 + O_2 = 2H_2O_{(g)}$

Où l'indice (g) signifie que : **H_2O** est sous forme gazeuse

L'équation de Nernst : sert à calculer la tension réversible **E_{cell}**

Elle est appliquée pour déterminer la tension aux bornes de la pile

Pour une cellule de la pile :

$$E_{cell} = E_{0,cell} + \frac{RT}{4F}\ln\left[\frac{P_{H_2}^{canal}.P_{O_2}^{canal}}{P_{H_2O}^{canal}}\right] = E_{0,cell} + \frac{RT}{2F}\ln\left[\frac{P_{H_2}^{canal}.\sqrt{P_{O_2}^{canal}}}{P_{H_2O}^{canal}}\right] \quad (II.13)$$

Pour N_0 Cellules :

$$E_{cell} = N_0\left(E_{0,cell} + \frac{RT}{2F}\ln\left[\frac{P_{H_2}^{canal}.\sqrt{P_{O_2}^{canal}}}{P_{H_2O}^{canal}}\right]\right) \quad (II.14)$$

Avec :

$$E_{0,cell} = E_{0,cell}^{0} - K_E T - 298$$

E_{cell} : Potentiel réversible de chaque cellule.

$E_{0,cell}$: Le potentiel de référence qui est une fonction de la température.

$E_{0,cell}^{0}$: Potentiel de référence standard à l'état standard.

Cependant quand la pile est sous la charge, sa tension de sortie est inférieure à $\mathbf{E_{cell}}$ et cela est dû à la perte par activation, à la chute de tension ohmique dûe à la résistance et aux pertes par concentration

$$V_{cell} = E_{cell} - V_{act,cell} - V_{ohm,cell} - V_{conc,cell} \quad \text{(II.15)}$$

Avec :$V_{ohm,cell} = rI$

$E_{cell} = V_0$

V_{cell} : Est la tension produite d'une cellule.

$V_{act,cell}$: La perte de tension due à l'activation.

$V_{conc,cell}$: La perte de tension due à la concentration.

r : La résistance électrique.

I : Le courant de charge.

La tension de sortie peut aussi s'écrire comme suit :

$$V_s = N_{cell}V_{cell} = E - V_{act} - V_{ohm} - V_{conc} \quad \text{(II.16)}$$

II.3 calculs des chutes de tension

Pour calculer la tension de sortie, il faut d'abord calculer les trois chutes de tension si dessus :

II.3.1 Chute de tension due à l'activation

La perte de tension est provoquée par une barrière d'énergie d'activation qui doit être surmontée avant que la réaction chimique ne se produise. Elle est due à la lenteur de la réaction chimique à la surface de l'électrode

II.3.2 Chute de tension ohmique

La résistance ohmique d'une pile SOFC consiste principalement à la résistance de l'électrolyte, des électrodes et de l'intercommunication entre les cellules du carburant. Dans ce modèle seule les pertes ohmiques d'électrolyte et d'intercommunication sont incluses tandis que la résistance des électrodes est négligée.

II.3.3 Chute de tension par concentration

Durant le processus de la réaction, les gradients de concentration peuvent être formés dus à la diffusion massique des canaux d'écoulement aux emplacements de la réaction (surface de catalyseur).

II.4 Caractéristique de la pile SOFC

Le régime statique correspond à une demande de puissance constante aux bornes de la pile avec des paramètres de fonctionnement fixes (température, humidité et pression). En d'autres termes, lorsque la pile alimente une charge constante ou dont la dynamique de variation est lente lorsque les paramètres de fonctionnement sont maintenus constants, on parle de points de fonctionnement.

En ce qui concerne le courant, il demeure constant car, la demande de puissance représentée par la charge électrique est constante pour chaque point de fonctionnement.

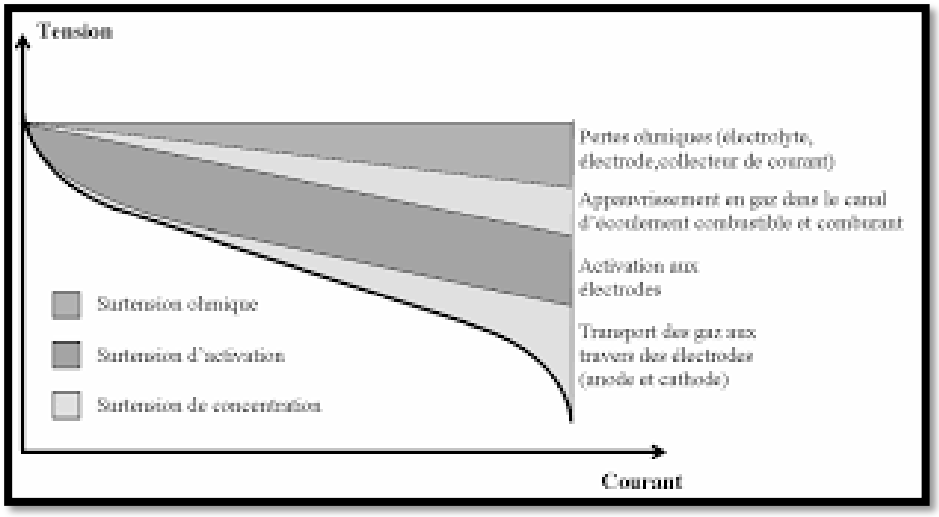


Figure II-3 : Evolution de la tension de sortie ,du rendement et de la puissance en régime

Les chutes de tension permettent de couper la courbe de polarisation en trois zones principales.

- La première zone représente la chute de tension due à l'activation. Cette perte de tension est donnée par l'équation (II-17).
- La deuxième zone représente la chute de tension ohmique causée par les résistances électriques des composants de la cellule. Elle est donnée par l'équation (II-18).
- La troisième zone correspond à la chute de tension par concentration résultant de la limitation de la diffusion des protons à travers la membrane. Elle donnée par l'équation (II-16).

II.5 Effet de remplissage à double couche :

Dans une pile SOFC, les deux électrodes sont séparées par l'électrolyte et deux couches de frontière sont formées, par exemple couche d'anode-électrolyte et couche d'électrolyte-cathode. Ces couches peuvent être chargées par l'effet de polarisation, connu

sous le nom de l'effet de remplissage de double couche électrochimique pendant l'opération normale de la pile. Les couches peuvent stocker l'énergie électrique et se comporter comme un super condensateur. Le modèle pour SOFC considérant cet effet peut être représenté par le circuit Equivalent suivant

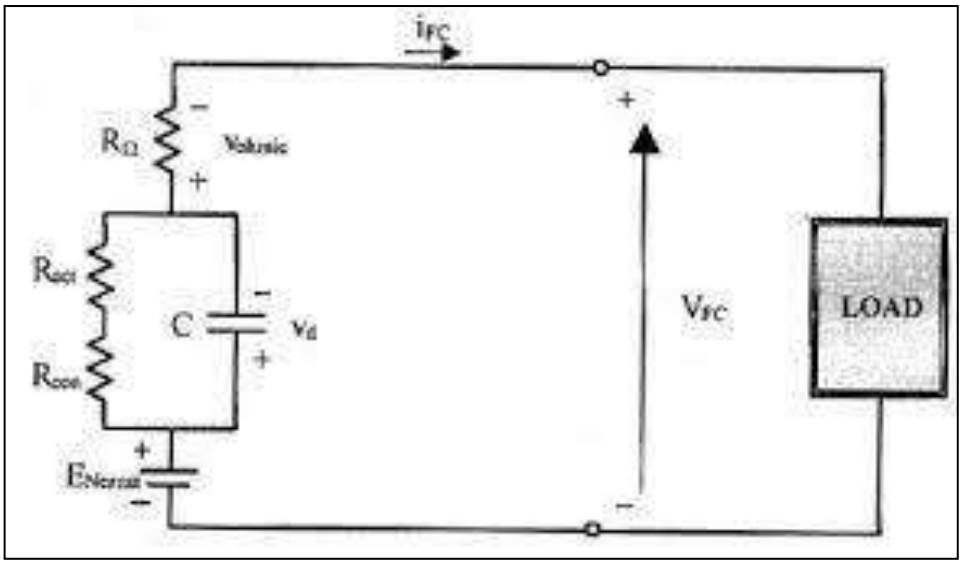


Figure II-4 : Circuit équivalent de l'effet de remplissage à double couche à l'intérieure d'une pile SOFC

Dans le circuit ci-dessus :

$R_{ohm,cell}$, $R_{act,cell}$, $R_{conc,cell}$ sont respectivement la résistance de la chute de tension ohmique, de chute de tension d'activation et de chute de tension de concentration, qui sont déterminées par les équations précédentes.

C : est la capacité équivalente de l'effet de remplissage à double circuit. Puisque les électrodes d'une SOFC sont poreuses, la valeur de C est grande et peut être de l'ordre de plusieurs Farads. La tension à travers C'est :

$$V_{c,cell} = \left(i - C\frac{dV_{c,cell}}{dt}\right)\left(K_{act,cell} + K_{conc,cell}\right) \quad \text{(II.20)}$$

L'effet de remplissage de double-couche est intégré dans la modélisation, en utilisant Vc , cell au lieu de Vact1 et Vconc , cell pour calculer Vcell. La tension de sortie de la pile peut à présent s'écrire comme suit :

$$V_{cell} = E_{cell} - V_{c,cell} - V_{act0,cell} - V_{ohm,cell} \quad \text{(II.21)}$$

L'équation ci-dessus peut être employée pour calculer la tension de sortie Vs d'une pile SOFC.

II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, une modélisation par analogie entre les domaines : chimique, thermique et électrique a été étudiée. Après démonstration les équations mathématiques des différents domaines sont établies. La modélisation électrique traduit les phénomènes électrochimiques de la pile. Le modèle électrique de la SOFC est basé sur la tension réversible de Nernst et les différentes chutes de tensions.

CHAPITRE III
SIMULATION
DANS THERMOPTIM

III.1 Introduction

Cette partie de notre étude présente un modèle de *pile à combustible* à oxyde solide à haute température, dite *SOFC*, alimentée en hydrogène pur, en utilisant un modèle très simple à deux paramètres. Nous montrons comment établir le bilan des espèces et celui des énergies mises en jeu.

Notre modèle sera progressivement affiné, d'abord par la prise en compte de l'équation de polarisation de la pile, puis en introduisant un refroidissement par de l'eau.

Nous verrons comment modifier les modèles établis précédemment pour remplacer l'hydrogène par un combustible comme le méthane.

III.2 Présentation de Thermoptim

III.2.1 Le logiciel Thermoptim :

Le progiciel Thermoptim fournit un environnement de modélisation intégrant de manière profondément interconnectée un éditeur de schémas / écran synoptique (figure 1), des diagrammes interactifs (figure 2), des fonctions de simulation et une méthode d'optimisation. Son objectif est double **:** faciliter et sécuriser la modélisation des technologies de conversion de l'énergie**.**

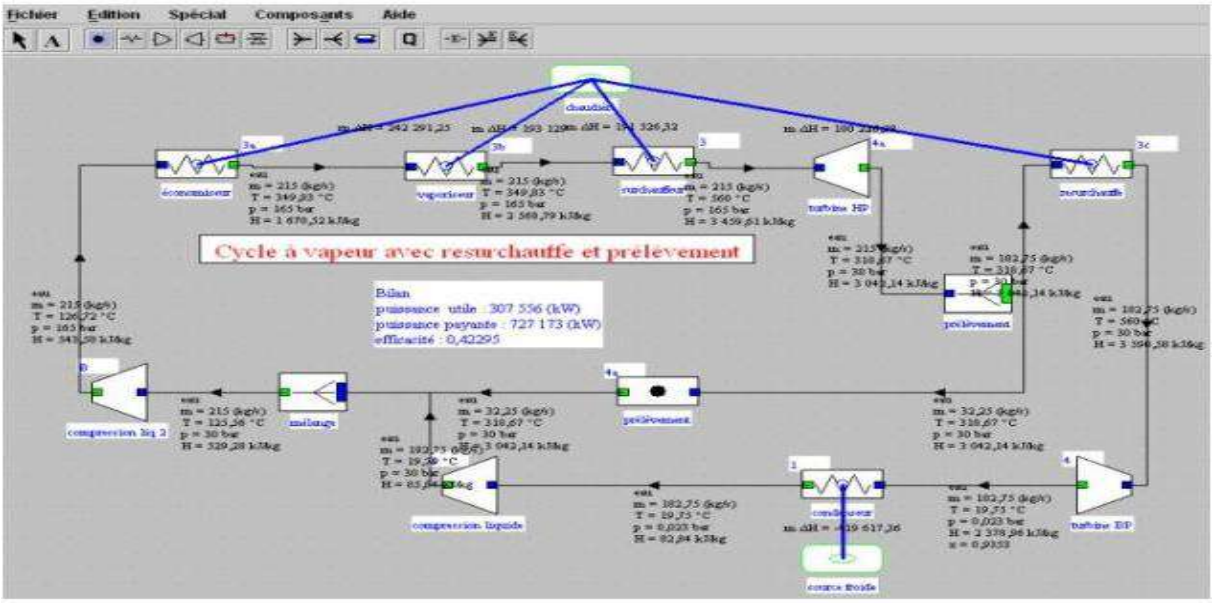


Figure 1 : Synoptique d'un cycle à vapeur

III.2.2 Fonctionnalités de base du simulateur

Thermoptim permet de calculer automatiquement l'état complet (température, pression, volume massique, enthalpie, énergie interne, entropie, exergie) de différents fluides, qui peuvent être des gaz idéaux ou des vapeurs condensables. Ces fluides peuvent subir diverses transformations, comme les suivantes incluses dans le noyau commun :

- Des compressions et des détentes, en système ouvert ou fermé. Elles peuvent être adiabatiques ou polys tropiques, et sont caractérisées par leur rendement isentropique ou poly tropique ;
- Des combustions**,** elles aussi en système ouvert ou fermé, à pression imposée, volume imposé ou température constante. Le combustible peut être introduit dans la chambre de combustion séparément du comburant, ou bien prémélangé. La dissociation du dioxyde de carbone peut être prise en compte ;
- Des laminages isenthalpiques **;**
- Des échanges de chaleur entre fluides, le progiciel pouvant calculer le produit UA du coefficient d'échange thermique par la surface de l'échangeur, pour des configurations à contre-courant, co-courant, à courants croisés ou du type (p-n).

III.3 Modélisation d'une PAC SOFC Dans Thermoptim

Une pile à combustible présente la particularité d'être traversé par deux flux séparés qui échangent des ions des protons par l'intermédiaire d'un milieu imperméable pour les autres espèces chimiques.

Elle se comporte donc comme un quadripôle recevant deux flux dans l'entrée et deux

Autres à la sortie. Ceci pose une petite difficulté pour réaliser un modèle dans thermoptim ,

étant donné que les seuls composés disponible soit des transfos soit des nœuds. La solution est de former le quadripôle en associant un mélangeur en entrée et un diviseur en sortie, les deux étant relié par un transfo qui joue un rôle purement passif.

Pour que le modèle soit bien cohérent , on synchronise les calculs effectués par les deux nœuds plus précisément le diviseur de sortie prend le control du mélangeur dans le rôle se limite a effectué une mise a jour des variables de couplages associées aux flux d'entré .

La structure du modèle donc celle est présenté sur la figure 02.

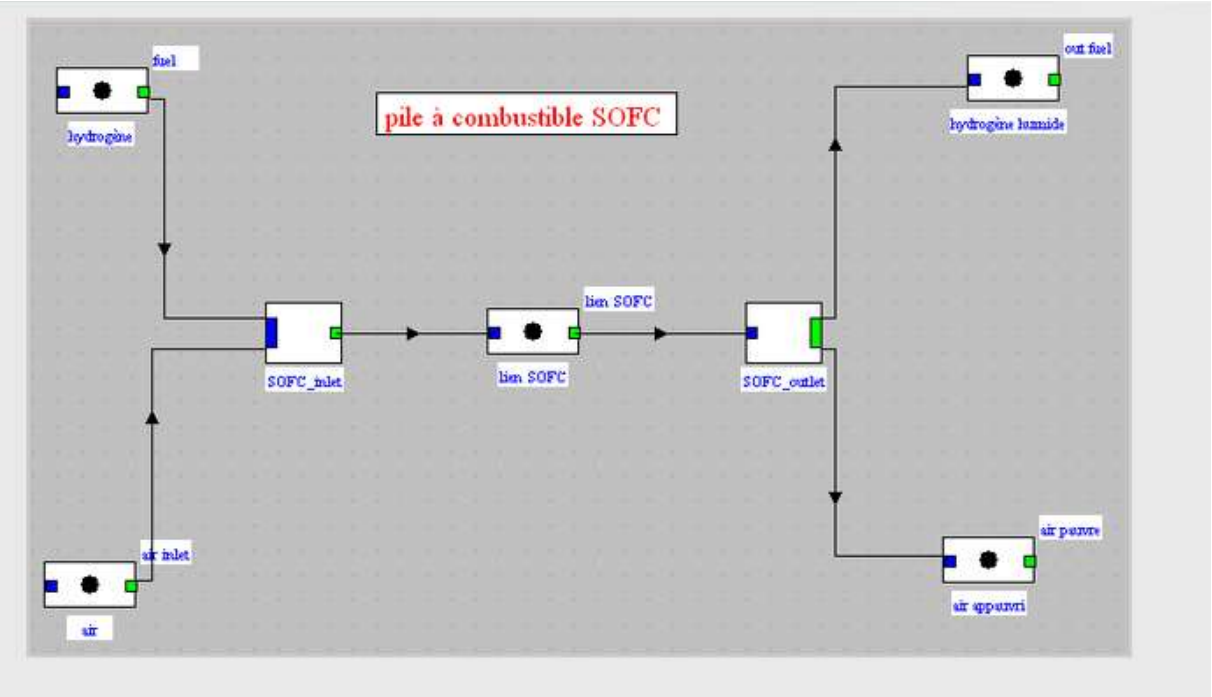


Figure 02. Structure de notre modèle de la PAC SOFC sur *Thermoptim.*

Pour modéliser une telle pile, plusieurs modèles de complexité croissante peuvent être réalisés. IL ya 5 modèles intégré dans le logiciel *Thermoptim* de la pile à combustibles SOFC :

- ✓ ***Premier modèle simple*** : on suppose d'une part que le combustible est de l'hydrogène pur H2, et d'autre part que sont connus le taux d'utilisation de l'hydrogène tau et son rendement énergétique epsilon
- ✓ ***Second modèle*** *:* on suppose que le taux d'utilisation de l'hydrogène tau et son rendement énergétique epsilon sont déterminés à partir d'un modèle électrique
- ✓ ***Troisième modèle*** : on suppose que la pile à combustible est refroidie par de l'eau
- ✓ ***Quatrième modèle*** *:* on considère que l'hydrogène est remplacé par un mélange de méthane CH4 et d'eau en quantité suffisante pour assurer la conversion totale du méthane
- ✓ ***Cinquième modèle*** : l'eau d'humidification puisse être fournie par recyclage d'une fraction des gaz en sortie d'anode.
- ✓ ***Sixième modèle*** : le méthane CH4 fait l'objet d'un reformage en trois étapes .

Nous retenons à travers cette étude que les trois premiers modèles.

III.3.1 Premier modèle :

Le premier modèle que nous développerons est particulièrement simple : on suppose que le taux d'utilisation de l'hydrogène τ et le rendement énergétique ε sont connus

Du côté de l'anode, seule la fraction τ est transformée dans la pile, le reste ressortant. Typiquement, τ = 0,5. La réaction donnant les espèces en sortie s'écrit globalement :

Pour la partie utilisée : $\boldsymbol{\tau(H_2 + 1/2\ O_2) \rightarrow \tau H_2O}$ **(III .1)**

$$\boldsymbol{\tau \Delta H0 = -241\ 820\ \tau\ Kj / kmol}$$

Pour la partie non utilisée $\boldsymbol{(1-\tau)\ H_2}$ **(III.2)**

Au total, on a donc en sortie d'anode **:** $\boldsymbol{(1-\tau)\ H_2 + \tau\ H_2O}$ **(III.3)**

$\tau\Delta$H0 Représente l'énergie théorique mise en jeu par la conversion de la partie utilisée. Une fraction ε de cette énergie est directement convertie en électricité, et (1 - ε) est transformée en chaleur.

Par ailleurs de l'oxygène est prélevé sur l'air comburant du côté de la cathode. λ Représentant le flux d'air entrant, on a :

Air entrant : $\boldsymbol{\lambda(O_2 + 3{,}76\ N_2)}$ **(III.4)**

Air appauvri sortant : $\boldsymbol{(\lambda-\tau/2)\ O_2 + 3{,}76\ \lambda\ N_2}$ **(III.5)**

Le modèle que l'on peut retenir est alors le suivant :

1) la composition des espèces est donnée par la résolution des équations ci-dessus : on détermine les débits molaires d'hydrogène et d'air en entrée, ce qui fournit la valeur de λ , dont on déduit les débits molaires en sortie, les valeurs de τ et de ε étant lues à l'écran ;
2) la chaleur libérée par la fraction τ (1 - ε) du combustible sert à fournir l'énergie nécessaire à l'échauffement des gaz.

L'enthalpie libérée est égale à $\dot{m_{mo}}\tau\Delta H_0$. Elle se répartit entre de l'électricité $\dot{m}_{mol}\varepsilon\tau\Delta H_0$, et de la chaleur pour l'échauffement des gaz $\dot{m}_{mol}\tau(1-\varepsilon)\Delta H_0$, $\dot{m}_{mol}$étant le débit molaire d'hydrogène.

Dans Thermoptim, la pile est comme on l'a dit représentée par un mélangeur externe connecté à un diviseur externe, les calculs étant effectués par ce dernier. Les classes s'appellent SOFCH2 inlet et SOFCH 2outlet.

L'écran du composant pile SOFC est donné figure 3. Les intitulés des données d'entrée du modèle sont affichés en bleu, et on a supposé que les gaz en entrée de pile étaient à la température de 500 °C.

Il s'agit d'une pile de technologie cylindrique du type de celle développée par Westinghouse, correspondant à un système de 100 *kWe*, pour laquelle $\tau = 0{,}48$ et $\varepsilon = 0{,}44$

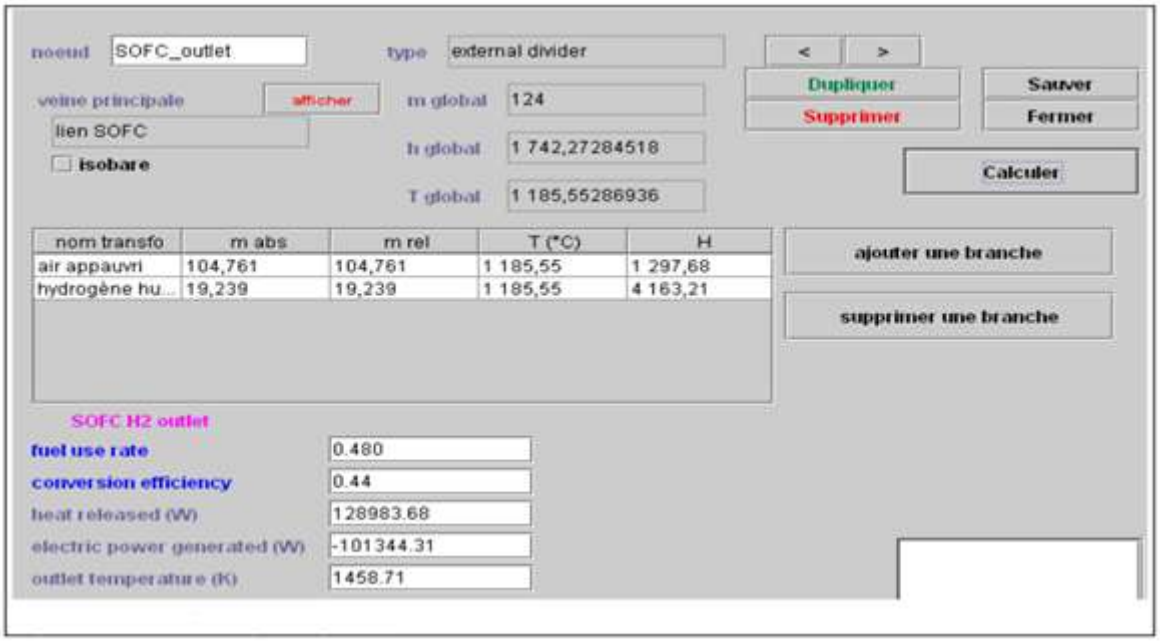


Figure 03. Ecran du composant pile SOFC

III.3.1.1 Résultats du modèle simple

Avec les paramétrages ci-dessus (4 g/s d'hydrogène et 120 g/s d'air en entrée de la pile, à 1 bar et 500 °C), les compositions des gaz que l'on obtient sont les suivantes :

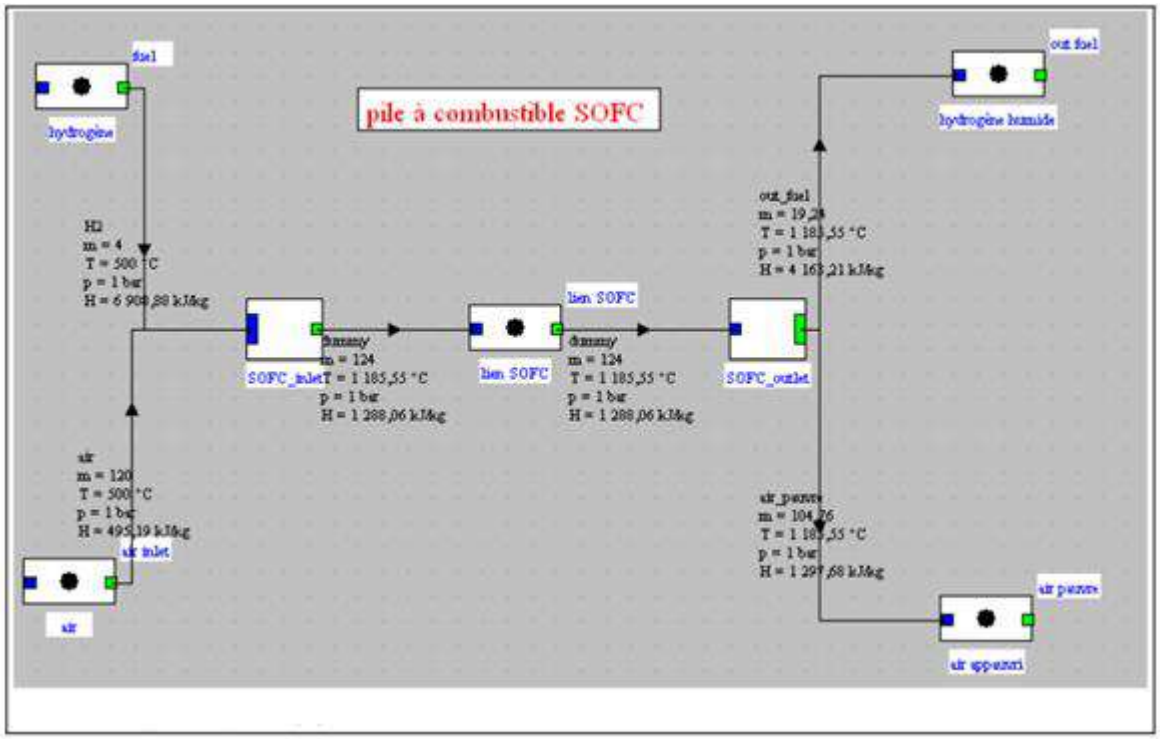


Figure 04 : Ecran du composant pile SOFC

nom du composant	fraction molaire	fraction massique
N2	0,781	0,7555302
Ar	0,009	0,01241636
O2	0,21	0,2320534

Figure 05 : Air en entrée de la pile

nom du composant	fraction molaire	fraction massique
H2	0,48	0,09362063
H2O	0,52	0,9063794

Figure 06 : Hydrogène humidifé en sortie, débit 19.24 g/s, PCI : 11230 *Kj/Kg*

nom du composant	fraction molaire	fraction massique
N2	0,8824047	0,8654283
Ar	0,01016856	0,01422242
O2	0,1074267	0,1203493

Figure 07 : Air appauvri en O_2, débit 104,76 *g/s*

Avec ce modèle, diverses activités pédagogiques peuvent être proposées :

- Tout d'abord, modifier les valeurs du débit d'air entrant et de τ et ε, pour voir comment évoluent les performances de la pile

- Insérer la pile dans un système plus complexe associant une turbine à gaz,
- Etudier comment le modèle est bâti, et éventuellement l'affiner en ajoutant par exemple un modèle électrique permettant de calculer τ et ε en fonction de l'intensité demandée

- Modifier le modèle pour considérer le cas où la pile est refroidie par un fluide externe (ajout d'un thermocoupleur)

- Modifier le modèle pour que la pile accepte un combustible autre que l'hydrogène pur (par exemple du méthane).

III.3.2 Modèle de pile à combustible SOFC à l'hydrogène pur avec module électrique.

Dans ce second modèle particulièrement simple, on suppose que le taux d'utilisation de l'hydrogène τ et son rendement énergétique ε ont déterminés à partir d'un modèle électrique.

III.3.2.1 Modèle électrique retenu

Pour calculer la tension de cellule *Vcell* connaissant l'intensité et la surface active, divers modèles ont été proposés. Nous retiendrons celui qui a été développé au Centre Energétique et Procédés de l'Ecole des Mines de Paris. Son équation est :

$$V_{cell}(J) = E + \frac{b}{\ln(J/J_d) - 2} + \left(\frac{b}{4 J_d} - \Delta\right) J \qquad \text{(III.6)}$$

Ou: **J=I /A** est l'intensité de courant (intensité divisée par la surface active A), en **A/cm^2**

E, Jd, b et ***Δ*** sont quatre paramètres dépendant a priori de la température de la cellule et de la pression en hydrogène. Ils peuvent en première approximation être considérés constants, mais l'influence de la température et de la pression partielle en *H2* sur chaque paramètre peut aussi être prise en compte si nécessaire.

Connaissant *Vcell*, il est possible de calculer simplement la puissance de la cellule :

$$P_{ELEC} = V_{CELL} I N_{CELL}$$

Le taux d'utilisation de l'hydrogène est supposé proportionnel à la densité de courant J, ce qui correspond en première approximation à ce qui se passe en pratique : la fraction d'hydrogène consommée est nulle en circuit ouvert physiquement, et croît lorsque l'intensité débitée augmente. On a retenu la loi suivante :

$$\tau = 1,2\, J$$

Les nouveaux paramètres du modèle sont : le nombre de cellules Ncell, l'intensité de courant demandée I, et la surface active d'une cellule A. Le modèle calcule τ et ε, ainsi que la tension délivrée V.

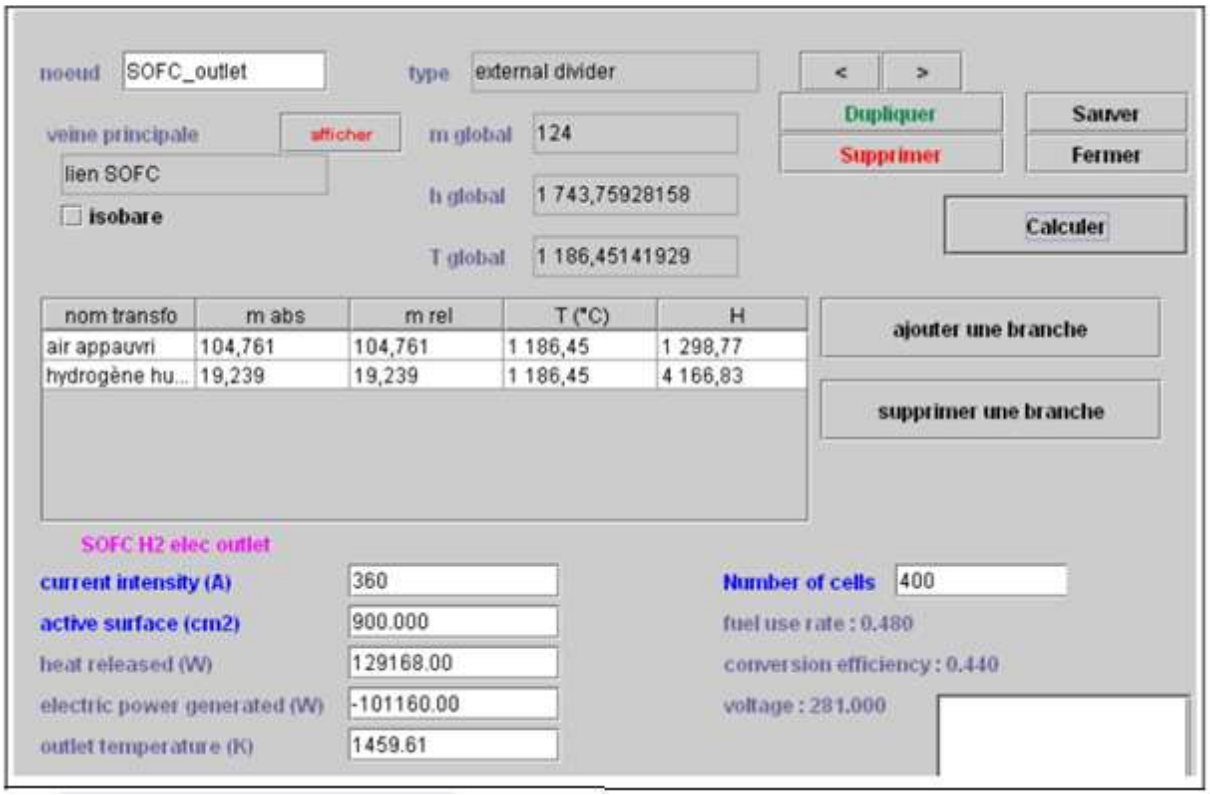


Figure 08. Ecran du composant pile SOFC *, 400 Cellules.*

L'écran du composant pile SOFC est donné figure 1, les intitulés des données d'entrée du modèle étant affichés en bleu, et on a supposé que les gaz en entrée de pile étaient à la température de 500 °C.

Il s'agit d'une pile de 400 cellules correspondant à un système de 100 kWe **,** chaque cellule ayant un diamètre de 19 mm et une longueur de 1,5 m, soit une surface de 900 cm2 , conduisant à une intensité de 360 mA avec une densité de courant de 400 mA/cm2 .

III.3.3. Modèle de pile à combustible SOFC refroidie :

Dans ce troisième modèle, on suppose que la pile à combustible est refroidie par de l'eau. Ce modèle est une extension de celui avec prise en compte de l'équation électrique, et on suppose que la pile à combustible est refroidie par de l'eau à 40 bars, dont la température passe de 200 °C (liquide), à 450 °C (vapeur).

III.3.3.1. Modèle thermique retenu.

Le refroidissement de la pile est modélisé par un thermo coupleur connecté sur le diviseur de sortie. Le mécanisme des thermo coupleurs complète celui des échangeurs de chaleur en permettant à des composants autres que des transfos "échange" de se connecter à une ou plusieurs transfos "échange" pour représenter un couplage thermique. Il n'englobe pas celui des échangeurs : deux transfos "échange" ne peuvent pas être connectées par un thermo coupleur.

Un tel mécanisme présente un grand intérêt, car il permet de représenter de nombreux couplages thermiques qui ne constituent pas pour autant un échange de chaleur classique, comme par exemple le refroidissement des parois de la chambre de combustion d'un moteur alternatif, une compression refroidie, et surtout des apports ou des extractions de chaleur au niveau de composants externes multifonctionnels comme la pile à combustible.

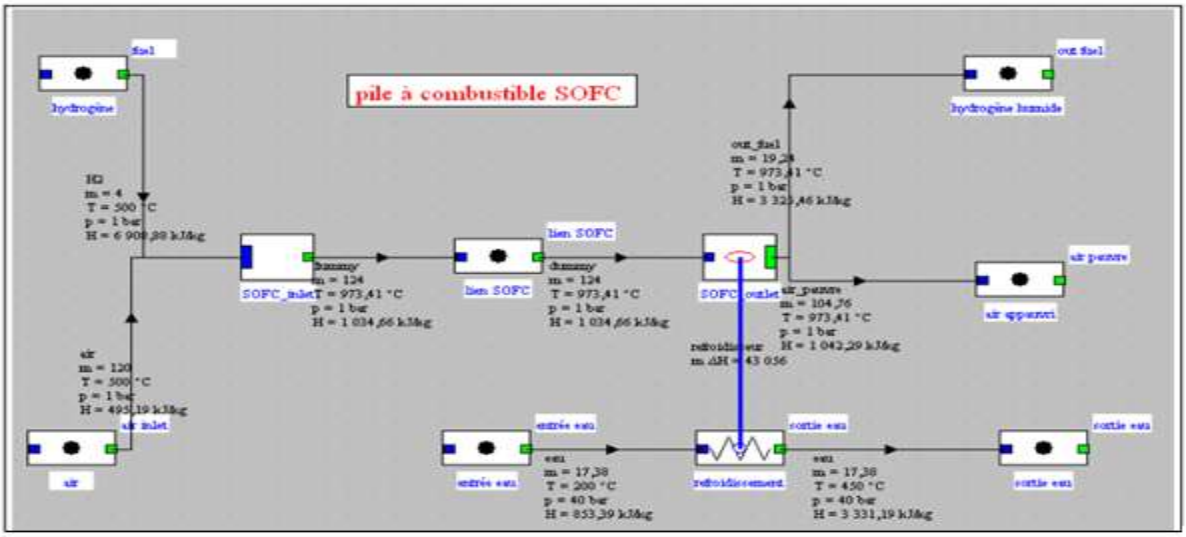


Figure 09 : Ecran de l'éditeur de schémas

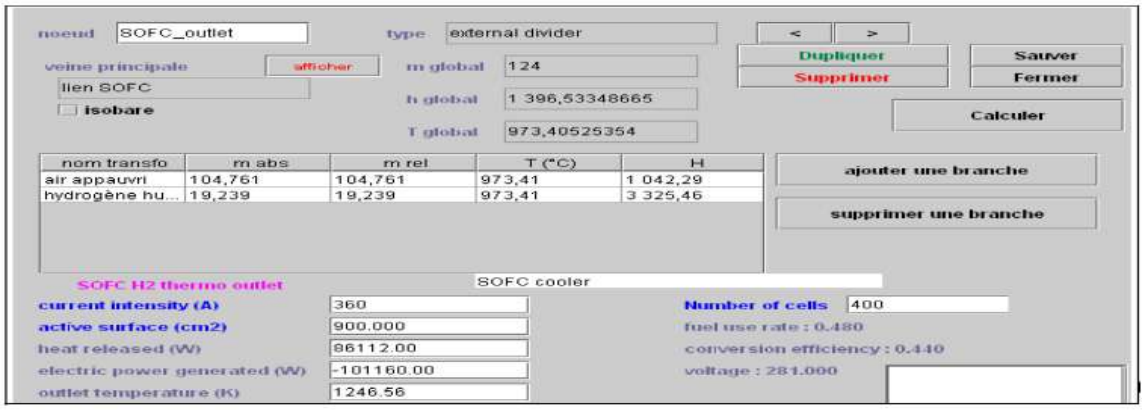


Figure 10. Ecran du composant pile SOFC

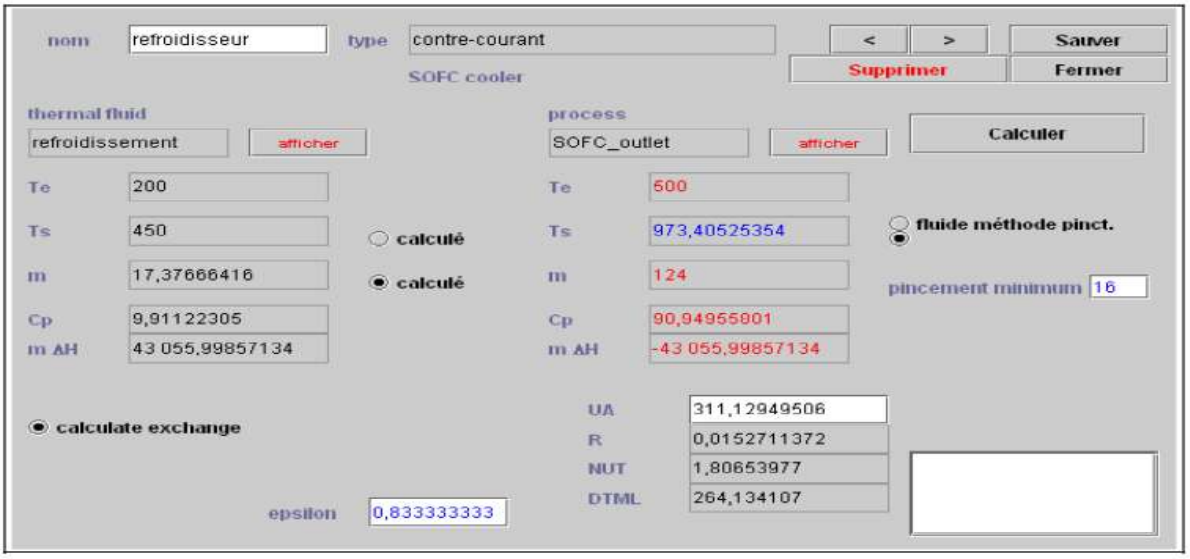


Figure 11. Ecran du thermo coupleur

Les figures 9 à 11 montrent les modifications apportées au modèle. Avec les hypothèses retenues, le thermo coupleur permet de porter 17,4 g/s d'eau à 40 bars et 200 °C à 450 °C.

Nous supposerons dans ce modèle qu'un tiers de la chaleur dégagée dans la pile est récupère par la vapeur de refroidissement, le reste servant à échauffer les gaz qui alimentent la pile.

III.4. CONCLUSION

Chaque modèle de la pile à combustible SOFC a été étudié de manière individuelle avant l'étude de pile complète. La gestion thermique est cruciale pour un fonctionnement amélioré d'un système de pile à combustible à oxyde solide.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Les travaux présentés dans ce mémoire consistent à l'étude et à la modélisation d'une pile à combustible de type SOFC.

Dans la première partie on s'est intéressé aux piles à combustible, leur histoire, leur principe de fonctionnement. On a abordé les différents types de piles à combustibles Combustible, leurs avantages et leurs inconvénients.

La deuxième partie concerne l'application de la modélisation à la pile SOFC. Elle est dédiée aux principes de modélisation appliqués concernant les domaines chimique Thermique et électrique. Le but de ce chapitre est de présenter le modèle adopté pour rendre compte tous les phénomènes physiques au sein de la pile, en passant en revue les différentes Équations mathématiques permettant une bonne compréhension des phénomènes qui se Déroulent dans la pile à combustible.

Dans la troisième partie on a étudié les trois modèles intégrés dans le simulateur thermoptim , dans le premier modèle, on a modifier les valeurs du débit d'air entrant et de τ et ε, pour voir comment évoluent les performances de la pile .L'enthalpie libérée, se répartit entre de l'électricité et de la chaleur .

Les densités de courant que l'on peut obtenir (en A/m2) varient en fonction du type de pile, de sa température de fonctionnement, de la stœchiométrie de l'alimentation en gaz réactifs...A l'heure actuelle, on estime qu'une valeur de 0,5 A/cm2 est une densité importante, mais certaines piles de petite taille atteignent les 2 A/cm2.

Dans une pile à combustible à oxyde solide l'énergie du combustible lors de sa conversion se fractionne en chaleur avec un nombre d'irréversibilités liées aux pertes d'activation, aux pertes de transfert de masse, et aux pertes ohmiques due à des résistances aux transferts d'ions et d'électrons.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] B.BULMER et A MIRAOUI «20 questions sur la pile à combustibles »

Edition Technip.

[2] M. BOUDELLAL «la pile à combustible » l'hydrogène et ses applications

2^{e}Edition.

[3] A.HADDAD, «Modélisation dynamique non linéaire de la pile à combustible du typePEM:Applicationàlarégulationdel'humiditédanslamembraneélectrolyte». Thèsededoctoratdel'UniversitédeTECHNOLOGIEdeBelfortMontbéliard,2009.

[4] J.LACHAISE,«Etudedesstratégiesetdesstructuresdecommandepourlepilotagedessystèmesénergétiques à pile à combustible (PAC)destinées à la traction». Thèse de doctorat de l'institut national POLYTECHNIQUE de Toulouse,2004.

[5] F.CHABERT,« Elaboration par extrusion de membrane polymère pour piles à combustible ».Thèse de doctorat de l'institut national POLYTECHNIQUE de Grenoble,2004.

[6] C. DUMAS,« Catalyse électro-microbienne dans les piles à combustible ».Thèse de Doctorat de l'institut national POLYTECHNIQUE de Toulouse, 2007.

[7] ELH.AGLZIM,«Caractérisationparspectroscopied'impédancedel'impédancecomplexed'unepileàcombustibleencharge».Thèsededoctorat del'UniversitéHenriPoincare-Nancy1,2009.

[8] K. KORDESCH et G. SIMADER « Fuel Cells and Their Applications, ed VCH, Fuel Cell Handbook» ($5^{ième}$ edition) EG&G services, Parson, Inc. Science Applications ,International Corporation (CDROM).1996.

[9] M.CHNANI,«ModélisationMacroscopiquedePilesPEFCetSOFCpourl'étudedeleurcouplage» .Thèsededoctoratdel'UniversitédeTechnologiede Belfort Montbéliardetdel'UniversitédeFranche-Comté,2008.

[10] C.WANG,« Modeling and Control of Hybrid Wind/Photovoltaic/Fuel Cell Distributed Generation Systems ». A Dissertation Submitted in Partial Fulfillment of the Requirement for the Degree of Doctor of Philosophy in Engineering, Montana State University ,Bozeman, Montana, July2006.

[10] Yau-Pin Chyou, Tsang-Dong Chung, Jong-Sheng Chen, Ri-Fong Shie ; Integrated thermal engineering analyses with heat transfer at periphery of planar solid oxide fuel cell ; Journal of Power Sources 139 (2005) 126–140

[11] Y. Inui, A. Urata, N. Ito, T. Nakajima, T. Tanaka ; Performance simulation of planar SOFC using mixed hydrogen and carbon monoxide gases as fuel ; Energy Conversion and Management 47 (2006) 1738–1747

[12] A. Chaisantikulwat, C. Diaz-Goano, E.S. Meadows, Dynamic modelling and control of planaranode-supported solid oxide fuel cell, Computers and Chemical Engineering 32 (2008) 2365–2381

[13] Sadik Kakaça, Anchasa Pramuanjaroenkijb, Xiang Yang Zhoub, Areviewof numerical modeling of solid oxide fuel cells, International Journal of Hydrogen Energy 32 (2007) 761-786.

[14] Yunzhen Yang, Guilan Wang, Haiou Zhang, Weisheng Xia ; computational analysis of thermo-fluid and electrochemical characteristics of MOLB-type SOFC stacks ; Journal of Power Sources 173 (2007) 233–239

[15] Thinh X. Ho, Pawel Kosinski, Alex C. Hoffmann, Arild Vik ; Numerical analysis of a planar anode-supported SOFC with composite electrodes ; International journal of hydrogen energy 34(2009)3488–3499

[16] M.A. Khaleel , Z. Lin, P. Singh, W. Surdoval, D. Collin ; A finite element analysis modeling tool for solid oxide fuel cell development: coupled electrochemistry,thermal and flow analysis in MARC ; Journal of Power Sources 130 (2004) 136–148

[17] Guilan Wang, Yunzhen Yang, Haiou Zhang, Weisheng Xia ; 3-D model of thermo-fluid and electrochemical for planar SOFC ; Journal of Power Sources 167 (2007) 398–405

[18] Chen-li Sun, Hsien-Chih Ou ; Numerical characterization of a microscale solid-oxide fuel cell ; Journal of Power Sources 185 (2008) 363–373

[19] Yuzhang Wang, Fumihiko Yoshiba, Takao Watanabe, Shilie Weng, Numerical analysis of electrochemical characteristics and heat/species transport for planar porous-electrodesupported SOFC, Journal of Power Sources 170 (2007) 101–110

[20] Xiongwen Zhang, Guojun Li , Jun Li, Zhenping Feng, Numerical study on electric characteristics of solid oxide fuel cells, Energy Conversion and Management 48 (2007) 977–989. [21] Igor Zinovik, Dimos Poulikakos ; Modeling the temperature field in the reforming anode of a button-shaped solid oxide fuel cell ; Electrochimica Acta 54 (2009) 6234–6243

[22] R.S. Gemmen, W.A. Rogers, M.T. Prinkey, Application of a Computational Fluid Dynamics Code to Fuel Cells—Integrated SOFC FuelCell and Post Oxidizer ;Morgantown, WV 26507