

12)

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

22) Date de dépôt : 18.02.02.

30) Priorité :

43) Date de mise à la disposition du public de la demande : 22.08.03 Bulletin 03/34.

56) Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du présent fascicule*

60) Références à d'autres documents nationaux apparentés :

71) Demandeur(s) : *RENAULT Société anonyme* — FR.

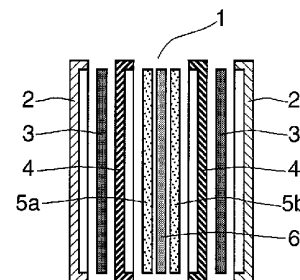
72) Inventeur(s) : ROUVEYRE LUC et HEURTAUX FABIEN.

73) Titulaire(s) :

74) Mandataire(s) : CASALONGA ET JOSSE.

54) PILE A COMBUSTIBLE A PUISSANCE RENFORCEE ET SON PROCEDE DE FABRICATION ET UTILISATION POUR LA TRACTION ELECTRIQUE D'UN VEHICULE.

57) L'invention concerne une pile à combustible comprenant une ou plusieurs cellules élémentaires 1, chaque cellule élémentaire 1 comprenant un ensemble formé par une anode 5a, une cathode 5b et un électrolyte 6 situé entre l'anode 5a et la cathode 5b, l'ensemble formé par l'anode 5a, l'électrolyte 6 et la cathode 5b étant placé entre deux plaques bipolaires 2, caractérisée en ce qu'au moins certaines cellules élémentaires 1 comportent un matériau à changement de phase 8 dont la température de changement de phase est proche de la température maximale de fonctionnement admissible de la pile à combustible.



**Pile à combustible à puissance renforcée et son procédé de fabrication et utilisation pour la traction électrique d'un véhicule**

5

La présente invention concerne une pile à combustible à puissance renforcée, et concerne plus particulièrement une pile à combustible de type PEM (proton exchange membrane).

10 La pile à combustible apparaît de plus en plus comme le convertisseur d'énergie le plus propre et le plus efficace pour convertir l'énergie chimique en une énergie directement utilisable sous forme électrique et thermique.

15 Son principe de fonctionnement est simple : il s'agit d'une combustion électrochimique et contrôlée d'hydrogène et d'oxygène, avec production simultanée d'électricité, d'eau et de chaleur, selon la réaction chimique :  $H_2 + 1/2 O_2 \rightarrow H_2O$ . Cette réaction s'opère au sein d'une structure essentiellement composée de deux électrodes, l'anode et la cathode, séparées par un électrolyte : c'est la réaction inverse de l'électrolyse de l'eau.

20 De nombreuses piles à combustible sont constituées d'un empilement de cellules électrochimiques, chacune comprenant deux électrodes, dont une anode et une cathode, auxquelles sont apportés continûment un comburant et un combustible, qui restent séparées par une membrane échangeuse d'ions faisant office d'électrolyte. La membrane échangeuse d'ions peut être formée d'un électrolyte solide polymère et sépare le compartiment de l'anode, où se produit l'oxydation du combustible, tel que l'hydrogène, du compartiment de la cathode, où le comburant, tel que l'oxygène de l'air, est réduit.

30 Chaque cellule d'un empilement d'une pile à combustible est ainsi constituée d'un ensemble central comprenant la membrane, prise en sandwich entre les deux électrodes, cet ensemble étant lui-même

placé entre deux flasques, appelées plaques bipolaires. Ces dernières ont plusieurs fonctions.

5 La première de ces fonctions est d'amener au contact de l'ensemble réunissant la membrane et les électrodes, d'un côté le carburant, par exemple de l'hydrogène, et de l'autre côté le comburant, par exemple l'oxygène de l'air. Pour ce faire, un canal de distribution est prévu sur toute la face des plaques polaires en contact avec la membrane. Chaque canal possède une entrée par laquelle pénètre le comburant ou le carburant, par exemple sous la forme gazeuse sèche 10 ou humide, et une sortie par laquelle sont évacués les gaz neutres, l'eau générée par la réaction d'oxydoréduction dans le côté air et l'humidité résiduelle de l'hydrogène de son côté. Bien entendu, les deux circuits doivent être parfaitement étanches l'un par rapport à l'autre et chacun vis-à-vis de l'extérieur.

15 La deuxième fonction des plaques bipolaires est de collecter les électrons produits par la réaction d'oxydoréduction.

La troisième fonction de ces plaques bipolaires est d'assurer l'évacuation des calories produites conjointement avec les électrons lors de la réaction d'oxydoréduction.

20 En outre, les plaques bipolaires assurent la tenue mécanique de l'ensemble électrodes-membrane.

Un des problèmes liés au fonctionnement de la pile à combustible est que celle-ci dégage une quantité d'énergie importante sous forme thermique. Il est ainsi nécessaire de refroidir la pile à 25 combustible pour éviter une dégradation de certains de ses composants, tel que la membrane, en raison d'une température interne trop élevée.

Il est connu de refroidir la pile à combustible à l'aide d'un liquide ou d'un gaz réfrigérant, tel que décrit dans le brevet US 30 n°4,599,282. Toutefois, les piles à combustibles de type classique présentent l'inconvénient de mal résister à de brusques variations de températures.

La présente invention propose une pile à combustible remédiant à ces inconvénients.

En particulier, la présente invention propose une pile à combustible qui puisse supporter des phases transitoires durant lesquelles la puissance exigée est importante, comme par exemple une phase d'accélération ou de dépassement dans le cas d'un véhicule utilisant une pile à combustible.

L'invention a également pour objet l'utilisation de cette pile à combustible pour la traction électrique d'un véhicule automobile.

La pile à combustible selon l'invention comprend une ou plusieurs cellules élémentaires, chaque cellule élémentaire comprenant un ensemble formé par une anode, une cathode et un électrolyte situé entre l'anode et la cathode, l'ensemble formé par l'anode, l'électrolyte et la cathode étant placé entre deux plaques bipolaires. En outre, au moins certaines cellules élémentaires comportent un matériau à changement de phase dont la température de changement de phase est proche de la température maximale de fonctionnement admissible de la pile à combustible.

Par « proche », on entend que l'écart entre les deux températures est inférieur à 20°C, et de préférence à 15°C.

De préférence, le matériau à changement de phase est disposé à l'intérieur d'un ou plusieurs logements pratiqués dans au moins une plaque bipolaire.

L'ensemble formé par les cellules électrochimiques peut être placé entre deux plaques terminales permettant le serrage des cellules. De la même façon que pour les plaques bipolaires, le matériau à changement de phase peut être disposé à l'intérieur d'un ou plusieurs logements pratiqués dans au moins une plaque terminale.

Les logements sont par exemple les canaux de distribution décrits plus haut.

En cas d'échauffement excessif de la plaque bipolaire, le matériau à changement de phase, dans le cas d'un changement de phase solide-liquide, peut passer de l'état solide à l'état liquide. Le surplus de puissance thermique, qui ne peut être évacué par le circuit de refroidissement interne à la pile à combustible, est absorbé par l'enthalpie de fusion du matériau.

Lors d'une période transitoire, la charge couplée à la pile peut avoir une demande importante de puissance, comme par exemple lors d'une phase d'accélération ou de dépassement dans le cas d'un véhicule utilisant une pile à combustible. Cette puissance exigée peut être supérieure à la puissance électrique nominale de la pile à combustible et provoquer un échauffement excessif de la plaque bipolaire.

Le surplus de puissance thermique ne peut être évacué par le circuit de refroidissement interne à la pile à combustible.

Grâce à la présence du matériau à changement de phase, la pile à combustible peut supporter sans dommage ce surplus de puissance thermique.

En effet, durant la période de passage de l'état solide à l'état liquide du matériau inséré dans les plaques bipolaires, l'excès de la puissance dissipée thermiquement est absorbé par la chaleur latente de fusion du matériau.

Ainsi, la durée de fonctionnement en surplus de puissance dépendra de la quantité de matériau inséré dans les plaques bipolaires. L'homme du métier, en fonction des cycles de fonctionnement et de la durée de la surcharge, pourra ainsi déterminer la quantité de matériau à incorporer dans les plaques.

Cette capacité de la pile à combustible à absorber le surplus de puissance thermique permet d'avoir une puissance « tampon » disponible, sans la présence de batteries tampon, ou avec des batteries tampon de taille réduite.

En outre, cette capacité permet de diminuer les échauffements locaux de la membrane, appelés points chauds, ce qui entraîne un accroissement de la durée de vie de la pile à combustible.

De préférence, le matériau à changement de phase est susceptible de passer de l'état solide à l'état liquide ; de préférence il est également susceptible de passer de l'état liquide à l'état solide.

Il est à noter que le passage de l'état liquide à l'état solide se fait automatiquement, par conduction thermique avec les plaques de refroidissement.

Parmi les matériaux susceptible de passer de l'état solide à l'état liquide, on peut notamment citer l'alliage de Wood, les matériaux organiques à faible point de fusion comme par exemple la cire.

5 De préférence, l'électrolyte de la pile à combustible est une membrane échangeuse d'ions. On peut utiliser par exemple des membranes en polymère perfluoré sulfuré.

10 La pile à combustible selon l'invention peut comprendre plusieurs cellules élémentaires. Elle peut notamment être constitué par un empilement de cellules électrochimiques adjacentes. Dans ce cas, la pile à combustible comprenant  $n$  plaques bipolaires,  $n$  étant un entier naturel supérieur ou égal à 2, la pile à combustible comprend  $(n-1)$  cellules électrochimiques adjacentes, de sorte que la première et la  $n$ ème plaque bipolaire appartiennent respectivement à la première et la  $n$ ème cellule électrochimique, et que les autres plaques bipolaires sont communes à deux cellules électrochimiques adjacentes.

15 L'une au moins des plaques bipolaires peut être parcourue par un fluide caloporteur. L'utilisation d'un fluide caloporteur est destinée à faciliter l'évacuation de la puissance thermique dissipée par la réaction électrochimique. Les plaques bipolaires parcourues par un fluide caloporteur sont appelées plaques de refroidissement.

20 Le matériau à changement de phase peut notamment être disposé dans des canaux pratiqués dans l'épaisseur de la plaque bipolaire.

25 Les plaques bipolaires et/ou terminales peuvent être réalisées en carbone.

Le carbone est de préférence sous forme graphite.

30 Le matériau à changement de phase peut notamment être disposé dans des canaux pratiqués dans l'épaisseur de la plaque bipolaire.

Selon une variante de l'invention, le matériau à changement de phase peut être disposé dans un espace clos aménagé entre deux flancs de la plaque bipolaire.

Les plaques bipolaires et/ou terminales peuvent comprendre du métal. Elles peuvent notamment être constituées par des flancs en tôle ondulée, emboutis et assemblés, par exemple par soudage, sertissage ou collage.

5            Selon une autre variante de l'invention, les flancs sont des profilés obtenus par extrusion. De préférence, les plaques bipolaires et/ou terminales sont des plaques d'aluminium extrudées.

10           Selon une autre variante de l'invention, la plaque bipolaire est moulée à l'aide d'un insert. Les flancs sont réalisés à partir d'un polymère comprenant du graphite ou un matériau conducteur de l'électricité. Ce type de matériau permet une obtention de la plaque par moulage ou par injection. Ainsi, l'incorporation du matériau à changement de phase peut se faire à l'aide d'un insert qui est fixé dans un moule préalablement à l'injection ou au moulage.

15           L'invention a également pour objet l'utilisation d'une pile à combustible décrite ci-dessus pour la traction électrique d'un véhicule automobile.

20           D'autres avantages et caractéristiques de l'invention apparaîtront à l'examen de la description détaillée de différents modes de mise en œuvre nullement limitatifs de la pile à combustible selon l'invention et illustrés par les figures 1 à 5 sur lesquelles :

- la figure 1 illustre schématiquement une cellule élémentaire d'une pile à combustible,
- la figure 2 illustre schématiquement une plaque bipolaire selon un premier mode de réalisation de l'invention,
- 25           - la figure 3 illustre la plaque bipolaire de la figure 2, vue de dessus,
- la figure 4 illustre schématiquement une plaque bipolaire selon un deuxième mode de réalisation de l'invention,
- la figure 5 illustre schématiquement une plaque bipolaire selon un
- 30           troisième mode de réalisation de l'invention.

La figure 1 montre schématiquement une cellule élémentaire 1 d'une pile à combustible. La cellule 1 comprend deux plaques bipolaires 2 encadrant la cellule 1. A l'intérieur de la cellule 1 se trouve un électrolyte 6 entouré par une anode 5a et une cathode 5b, deux joints 4 et deux collecteurs de courant 3.

L'électrolyte 6 est de préférence une membrane échangeuse d'ions. On peut utiliser par exemple des membranes en polymère perfluoré sulfuré.

La figure 2 montre schématiquement une plaque bipolaire selon un premier mode de réalisation de l'invention.

Dans ce mode de réalisation, la plaque bipolaire 2 est réalisée en carbone ou en graphite usiné. Un matériau à changement de phase 8 est incorporé dans des canaux 7 de la plaque bipolaire 2. Les canaux 7 où est inséré le matériau à changement de phase 8 sont réalisés par perçage ou par toute autre méthode d'usinage. La section des canaux 7 est quelconque, par exemple de forme circulaire. On peut également envisager d'autres sections, par exemple de forme carrée, triangulaire ou rectangulaire.

La figure 3, où les éléments identiques portent les mêmes références, illustre la plaque bipolaire de la figure 2, vue de dessus. Une seule rangée de canaux 7 est représentée, mais la plaque bipolaire 2 peut comporter plusieurs rangées de canaux 7, disposées par exemple en quinconce ou alignées.

Dans un deuxième mode de réalisation illustré schématiquement sur la figure 4, la plaque bipolaire 2 est constituée de deux flancs 2a et 2b en tôle métallique. La tôle métallique peut être ondulée en zig-zag ou en arrondis. Les deux flancs 2a et 2b sont maintenus à une certaine distance l'un de l'autre. Le matériau à changement de phase 8 est ensuite inséré dans l'espace situé entre les deux flancs 2a et 2b, puis les deux flancs 2a et 2b sont assemblés à leur extrémité par un soudage 9, afin d'éviter que le matériau 8 ne s'échappe durant le changement de phase. On peut également

envisager un assemblage par sertissage ou collage. La forme des flancs 2a et 2b est généralement étudiée pour permettre la circulation des fluides réactant et de refroidissement.

5 Dans un troisième mode de réalisation illustré schématiquement sur la figure 5, la plaque bipolaire 2 est fabriquée à partir de profilés 2a et 2b. Les profilés 2a et 2b sont obtenus par extrusion, par exemple à partir d'une plaque d'aluminium, et peuvent être notamment en forme de créneau. La surface des profilés 2a et 2b est en outre généralement recouverte par un traitement de surface. Le matériau à 10 changement de phase 8 est ensuite inséré dans l'un des deux profilés 2a et 2b ou dans les deux. La plaque bipolaire 2 est achevée par mise en contact et soudage des deux profilés 2a et 2b.

## REVENDEICATIONS

- 5           1. Pile à combustible comprenant une ou plusieurs cellules  
élémentaires (1), chaque cellule élémentaire (1) comprenant un  
ensemble formé par une anode (5a), une cathode (5b) et un électrolyte  
(6) situé entre l'anode (5a) et la cathode (5b), l'ensemble formé par  
10 l'anode (5a), l'électrolyte (6) et la cathode (5b) étant placé entre deux  
plaques bipolaires (2), caractérisée en ce qu'au moins certaines  
cellules élémentaires (1) comportent un matériau à changement de  
phase (8) dont la température de changement de phase est proche de la  
température maximale de fonctionnement admissible de la pile à  
combustible.
- 15           2. Pile à combustible selon la revendication 1, caractérisée en  
ce que l'écart entre la température de changement de phase et la  
température maximale de fonctionnement admissible de la pile à  
combustible est inférieur à 20°C, et de préférence à 15°C.
- 20           3. Pile à combustible selon la revendication 1 ou 2, caractérisée  
en ce que le matériau à changement de phase (8) est disposé à  
l'intérieur d'un ou plusieurs logements pratiqués dans au moins une  
plaque bipolaire (2) ou plaque terminale.
- 25           4. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, caractérisée en ce que le matériau à changement de phase  
(8) est susceptible de passer de l'état solide à l'état liquide et de l'état  
liquide à l'état solide.
- 30           5. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, caractérisée en ce que le matériau à changement de phase  
(8) est disposé dans des canaux (7) pratiqués dans l'épaisseur de la  
plaque bipolaire (2).
6. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, caractérisée en ce que la plaque bipolaire (2) est moulée à  
l'aide d'un insert.

7. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que le matériau à changement de phase (8) est disposé dans un espace clos aménagé entre deux flancs (2a) et (2b) de la plaque bipolaire (2).

5           8. Pile à combustible selon la revendication 7, caractérisée en ce que les flancs (2a) et (2b), en tôle ondulée, sont emboutis et assemblés.

10           9. Pile à combustible selon la revendication 7 ou 8, caractérisée en ce que les flancs (2a) et (2b) sont des profilés obtenus par extrusion.

10           10. Utilisation pour la traction électrique d'un véhicule automobile d'une pile à combustible selon l'une quelconque des revendications 1 à 9.

FIG.1

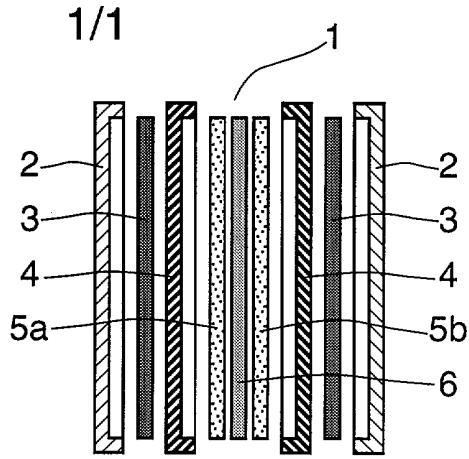


FIG.2

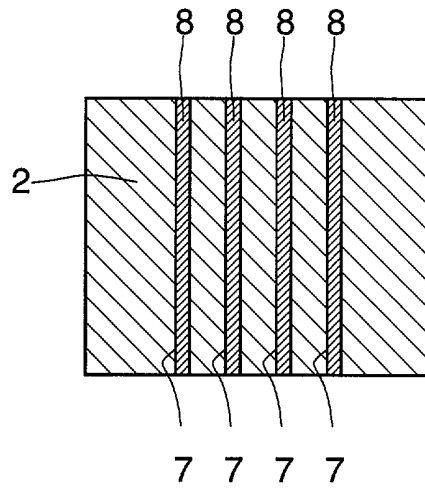


FIG.3

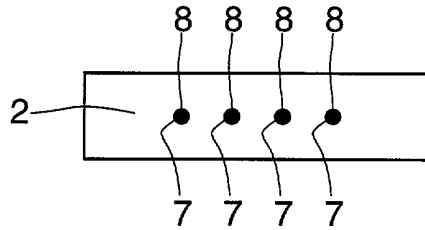


FIG.4

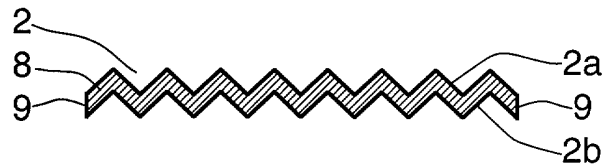
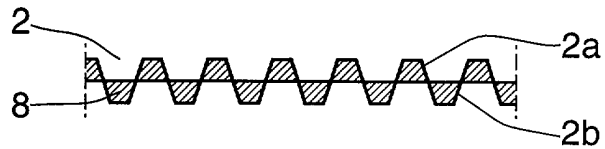


FIG.5



**RAPPORT DE RECHERCHE  
PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	DE 198 38 652 A (ZAE BAYERN BAYERISCHES ZENTRUM) 9 mars 2000 (2000-03-09) * colonne 1, ligne 44 - colonne 2, ligne 9 * * revendications 1-22 *	1,2,4,10	H01M8/04 B60L11/18
X	WO 01 65626 A (ILLINOIS TECHNOLOGY INST) 7 septembre 2001 (2001-09-07) * page 3, ligne 1 - ligne 30 * * page 5, ligne 8 - ligne 20 * * page 6, ligne 6 - ligne 23 * * page 9, ligne 9 - ligne 15 *	1,2,4,10	
X	US 6 200 698 B1 (CARLSTROM JR CHARLES M) 13 mars 2001 (2001-03-13) * colonne 2, ligne 39 - ligne 55 *	1,3,5,7	
A	GB 2 289 976 A (ROVER GROUP) 6 décembre 1995 (1995-12-06) * page 2, ligne 1 - ligne 11 * * page 5, ligne 9 - page 6, ligne 7 * * page 8, ligne 3 - page 9, ligne 2 *	1,2,4,10	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (Int.CL.7)
A	WO 97 50139 A (DU PONT) 31 décembre 1997 (1997-12-31) * page 3, ligne 9 - ligne 15 * * page 3, ligne 24 - ligne 25 * * page 4, ligne 19 - ligne 22 *	1,6	H01M
A	WO 01 48852 A (UNIV CALIFORNIA) 5 juillet 2001 (2001-07-05) * page 4, ligne 24 - page 5, ligne 2 * * revendications 1-14 *	1,8,9	
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
18 novembre 2002		Gamez, A	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS			
<p>X : particulièrement pertinent à lui seul  Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un  autre document de la même catégorie  A : arrière-plan technologique  O : divulgation non-écrite  P : document intercalaire</p>			
<p>T : théorie ou principe à la base de l'invention  E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure  à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date  de dépôt ou qu'à une date postérieure.  D : cité dans la demande  L : cité pour d'autres raisons</p>			
<p>&amp; : membre de la même famille, document correspondant</p>			

1

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE  
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 0202032 FA 614433**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.  
Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du 18-11-2002  
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
DE 19838652	A	09-03-2000	DE 19838652 A1	09-03-2000
WO 0165626	A	07-09-2001	US 6468689 B1 AU 4186101 A WO 0165626 A2	22-10-2002 12-09-2001 07-09-2001
US 6200698	B1	13-03-2001	AUCUN	
GB 2289976	A	06-12-1995	AUCUN	
WO 9750139	A	31-12-1997	CA 2259196 A1 EP 0909465 A1 JP 10074527 A WO 9750139 A1	31-12-1997 21-04-1999 17-03-1998 31-12-1997
WO 0148852	A	05-07-2001	AU 2052101 A WO 0148852 A1	09-07-2001 05-07-2001