



HAL
open science

Contribution à l'expérimentation de générateurs à piles à combustible de type PEM pour les systèmes de transport

Denis Candusso

► **To cite this version:**

Denis Candusso. Contribution à l'expérimentation de générateurs à piles à combustible de type PEM pour les systèmes de transport. Energie électrique. École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2013. tel-00802373

HAL Id: tel-00802373

<https://theses.hal.science/tel-00802373v1>

Submitted on 19 Mar 2013

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.



Mémoire pour l'obtention
de l'Habilitation à Diriger des Recherches (HDR)
délivrée par l'École Normale Supérieure de Cachan

**Contribution à l'expérimentation
de générateurs à piles à combustible de type PEM
pour les systèmes de transport**

Spécialité : Génie Electrique

Par

Denis Candusso

IFSTTAR LTN

Soutenance à l'ENS Cachan le 30/01/2013

Composition du jury :

Bernard Multon - Professeur, ENS Cachan (président)

Stéphan Astier - Professeur, INP Toulouse (rapporteur)

Bernard Davat - Professeur, INP Lorraine (rapporteur)

Jean-Michel Vinassa - Professeur, Institut Polytechnique de Bordeaux (rapporteur)

Willy Charon - Professeur, UTBM (examineur)

Daniel Hissel - Professeur, UFC (examineur)

Florent Petit - Directeur CNRT Inéva, Belfort (invité)

Pierre Varenne - Directeur, Centre de R. & Tech. Michelin, Givisiez - Suisse (invité)

Gérard Coquery - Directeur de recherche IFSTTAR LTN Versailles Satory (garant)

Zoubir Khatir - Directeur de recherche IFSTTAR LTN Versailles Satory (garant)

Remerciements

J'exprime des remerciements respectueux aux membres du jury de cette HDR :

à M. Bernard Multon, Professeur à l'ENS de Cachan, site de Ker Lann et chercheur au laboratoire SATIE, pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury,

à M. Stéphan Astier, Professeur à l'Institut National Polytechnique de Toulouse et chercheur au laboratoire LAPLACE, à M. Bernard Davat, Professeur à l'Institut National Polytechnique de Lorraine et chercheur au laboratoire GREEN de Nancy, ainsi qu'à M. Jean-Michel Vinassa, Professeur à l'Institut Polytechnique de Bordeaux et chercheur à l'IMS, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire, pour l'intérêt qu'ils y ont porté lors de leurs lectures attentives et pour leurs remarques constructives,

à M. Willy Charon, Professeur à l'Université de Technologie Belfort Montbéliard et chercheur au laboratoire IRTES – M3M, à M. Daniel Hissel, Professeur à l'Université de Franche-Comté, chercheur au laboratoire FEMTO-ST pour avoir aimablement accepté de prendre part au jury en tant qu'examineurs et collègues de travail sur la plateforme de Belfort dédiée aux recherches sur les systèmes à pile à combustible,

à M. Gérard Coquery, Directeur de recherche à l'IFSTTAR Laboratoire des Technologies Nouvelles, pour m'avoir accueilli au sein de son unité en 2003 et m'avoir ainsi donné la possibilité (avec M. Jean-Marie Kauffmann, alors Professeur au L2ES) de continuer à travailler sur la thématique de recherche que j'avais choisie, dans un cadre remarquable,

à M. Zoubir Khatir, Directeur de recherche à l'IFSTTAR LTN, qui a accepté d'être garant de ce travail et pour les conseils qu'il m'a apportés lors de la préparation de ce mémoire,

à M. Florent Petit, Directeur du CNRT Inéva de Belfort, à M. Pierre Varenne, Directeur du Centre de Recherche et Technique Michelin de Givisiez en Suisse pour avoir accepté de participer au jury et pour leurs avis pertinents.

J'adresse mes remerciements sincères à mes collègues du LTN et à l'ensemble des personnels de l'Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux (IFSTTAR), l'EPST issu de la fusion en 2011 de l'Institut National de Recherche sur les Transports et leur Sécurité (INRETS) et du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (LCPC).

J'adresse également un grand merci à tous mes collègues de l'UFC, de l'UTBM, du CNRS et du CEA, rencontrés à Belfort. Je remercie vivement toutes celles et ceux avec lesquels j'ai eu et j'ai encore beaucoup de plaisir à travailler, à échanger lors de projets, de thèses de doctorat et de stages très fructueux. Ce mémoire s'appuyant en bonne partie sur des travaux à base d'expériences et d'essais, je souhaite exprimer une reconnaissance particulière et forte à mes collègues expérimentateurs : notamment à M. Fabien Harel de l'IFSTTAR LTE, M. Xavier François de l'UTBM, Mme Sylvie Bégot de l'UFC, M. Laurent Girardot du CNRS, M. Philippe Lesage de l'UTBM. J'adresse aussi un « grazie speciale » à mon « homologue » versillais de la pile à combustible, M. Alexandre De Bernardinis.

Un merci, également associé d'excellents souvenirs, à mes collègues grenoblois avec lesquels j'avais travaillé à l'INPG. J'ai une pensée amicale particulière et pleine de gratitude pour Mme Elisabeth Rullière qui a assuré le suivi de mes travaux de DEA puis de doctorat.

Merci aussi à toutes les personnes avec lesquelles j'ai eu l'opportunité d'échanger un jour à Grenoble, à Belfort ou ailleurs autour de travaux sur la pile à combustible.

Je fais une grosse bise à mon épouse et à mes enfants, à mes parents et à ma famille.

Introduction générale

Ce document a été rédigé en vue d'obtenir l'Habilitation à Diriger des Recherches (HDR), spécialité Génie Electrique, délivrée par l'Ecole Doctorale Sciences Pratiques (EDSP) de l'Ecole Normale Supérieure de Cachan.

L'EDSP est l'école doctorale de rattachement du Laboratoire des Technologies Nouvelles (LTN) de l'IFSTTAR, dirigé par Gérard Coquery et Zoubir Khatir, et eux-mêmes habilités à diriger des recherches au sein de cette école. Par ailleurs, mon inscription en HDR s'est faite dans un contexte de rapprochement entre les laboratoires LTN et SATIE qui se traduira peut-être, si tout se passe bien, par la création d'une future UMR regroupant les deux entités.

Le document proposé est consacré à l'expérimentation de piles à combustible (PAC) de type PEM (à membranes échangeuses de protons ou à membranes polymères) destinées à trouver des applications (embarquées) dans les systèmes de transport.

Il s'appuie pour l'essentiel sur les résultats :

- d'une activité de recherche initiée en stage de DEA à l'INPG en 1998 au Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble (LEG, actuel G2ELAB) avec des travaux de modélisation et de simulation qui portaient sur le véhicule électrique multi-source (batteries – supercondensateurs),
- d'une activité qui s'est poursuivie au LEG en thèse de doctorat à l'INPG d'octobre 1999 à novembre 2002, sous la direction d'Elisabeth Rullière et Jean-Paul Yonnet, puis en tant qu'ATER (avec des travaux sur l'hybridation du groupe électrogène à PAC pour l'alimentation d'un véhicule électrique, et en bénéficiant d'une collaboration avec le CEA de Grenoble),
- d'activités menées sur les générateurs PAC à partir d'avril 2003 en tant que chargé de recherche à l'INRETS (devenu IFSTTAR en 2011) au LTN avec une localisation sur la plateforme systèmes à pile à combustible de Belfort (d'abord dans le cadre du L2ES, puis dans celui de FC LAB à partir de 2006 et en profitant d'échanges constants avec des personnels de l'UFC, de l'UTBM, du CNRS et du CEA).

Le document rédigé est donc à la fois le résultat d'un travail personnel qui demande à être poursuivi et le fruit de travaux menés avec de fortes collaborations (en particulier sur le plan expérimental) des différentes équipes de recherche et personnels rencontrés au LEG, à l'INRETS, à l'IFSTTAR et sur la plateforme de Belfort. Il reflète aussi bien sûr l'engagement d'administrations, de collectivités à Grenoble, en Ile de France et à Belfort, le soutien de nombreux partenaires dans le cadre de projets franc-comtois, français et européens.

Le rapport comprend 7 chapitres.

Le premier chapitre (pages 3 à 44) donne d'abord un aperçu des principales problématiques liées aux transports et à l'énergie. Dans le contexte des solutions envisageables pour assurer les mobilités futures, il tente au fond de porter sur ces thèmes une forme de regard à la fois IFSTTAR et belfortain, assez qualitatif mais transverse, et de montrer la pertinence de recherches finalisées sur les PAC et l'hydrogène. Pour mieux comprendre la genèse de ce chapitre, il est peut-être utile d'indiquer que le texte a été rédigé en grande partie en 2010 alors que les PAC et l'hydrogène suscitaient des interrogations fortes à l'INRETS et en France d'une manière plus générale. Le budget alloué à la recherche y était revenu à un niveau faible ; l'implication des industriels concernés semblait devoir demeurer ténue.

Le deuxième chapitre (pages 45 à 74) est consacré à une présentation technique et scientifique générale des générateurs PAC de type PEM. Des informations essentielles sont données sur la constitution d'un « stack », l'empilement de cellules composées elles-mêmes de différents éléments : membrane, électrodes, couches de diffusion et plaques bipolaires. L'accent est cependant surtout mis dans ce chapitre sur les aspects les plus « système » du générateur PAC. Pour montrer leur importance, les principes de fonctionnement des circuits et sous-systèmes comburant, combustible, caloporteur et électrique sont décrits de manière relativement détaillée.

Introduction générale

Le troisième chapitre (pages 75 à 108) aborde le concept de l'hybridation du système PAC par des organes de stockage tampon de l'énergie (batteries et supercondensateurs). Ce chapitre s'appuie en grande partie sur mes travaux de thèse. Il présente des exemples de sources hybrides à PAC avec leurs stratégies de gestion de l'énergie correspondantes. Il se conclue en indiquant que des travaux ont plus récemment été ré-entrepris sur ce sujet dans le contexte de nouveaux projets de démonstration et de déploiement des technologies PAC et hydrogène.

Le quatrième chapitre (pages 109 à 150) offre une description de moyens permettant d'expérimenter des PAC de type PEM aux puissances significatives pour les applications véhicule (description basée sur l'environnement de la plateforme de Belfort avec ses bancs d'essais) et une présentation de techniques de caractérisations adaptées (ex : suivi de point de fonctionnement, courbes de polarisation, spectroscopie d'impédance électrochimique, voltamétries linéaire et cyclique, mesures de densité de courant). Des techniques d'analyses expérimentales de piles PEM sont aussi recensées (avec des outils comme l'ACP, des modélisations par analogie fluide – électrique...).

Le cinquième chapitre (pages 151 à 176) correspond à une synthèse de travaux menés sur la conception et la modélisation de l'expérience dans le champ des PAC. Il fait référence aux travaux de thèse de Bouchra Wahdame sur l'analyse et l'optimisation du fonctionnement des PAC par la méthode des plans d'expériences. Différents outils issus de cette méthode (graphes des effets, analyse de la variance, plans fractionnaires, plans produits, surfaces de réponse, etc.) sont mis en œuvre à différentes fins : la caractérisation et la modélisation d'éléments de PAC, l'optimisation du fonctionnement d'une pile et l'étude d'essais d'endurance.

Le sixième chapitre (pages 177 à 216) indique quelles expérimentations spécifiques à l'application véhicule peuvent être menées et comment il est possible de dupliquer en laboratoire les conditions d'essais de l'environnement transport (solicitations en dynamiques de courant, contraintes climatiques et vibratoires). Ce chapitre met en avant le potentiel original de la plateforme expérimentale de Belfort dans le contexte de recherches finalisées IFSTTAR et à travers des essais réalisés dans le cadre de différents projets L2ES – FC LAB, français et européens.

Le septième chapitre (pages 217 à 264) porte plus spécifiquement sur les aspects majeurs de la durée de vie et de la fiabilité des systèmes PAC, avec en corollaire à ces préoccupations les nécessaires actions de diagnostic. Le texte s'appuie à la fois sur des travaux dans le domaine du vieillissement des PAC initiés dans le cadre des activités de recherche du L2ES, et sur les travaux de thèse plus récents de Sébastien Wasterlain, de Nadia Steiner et de Raïssa Onanena.

Des pistes pour des travaux de recherche futurs sont proposées dans les différentes parties du document.

I	L'hydrogène et les PAC pour les systèmes de transport.....	5
I.1	Problématiques actuelles et générales.....	5
I.1.1	Dans le domaine des transports.....	5
I.1.2	Liées à l'énergie dans le domaine des transports.....	5
I.2	Une multiplicité de solutions pour une « mobilité 2.0 » ?	6
I.3	Quelle place pour les NTE dans la recherche sur les transports ?	8
I.3.1	Une recherche sur les NTE à l'IFSTTAR. Pour quoi faire ?	8
-	La question des paris sur l'avenir	8
-	Une synergie à trouver dans les types d'application	8
-	La recherche technologique et ses difficultés au quotidien	9
I.3.2	Des recherches à l'IFSTTAR en vue de « l'après-pétrole »	9
I.3.3	Nouveaux combustibles et nouveaux moteurs, nouvelles méthodes de conception et de construction, électrification du véhicule	10
I.3.4	L'électrification des véhicules : une longue histoire	10
I.3.5	Les enjeux actuels dans le domaine du génie électrique.....	11
I.4	Le problème majeur du stockage de l'énergie sous forme électrique	12
I.4.1	De nouvelles générations de batteries pour les véhicules électriques et hybrides...	12
I.4.2	Les supercondensateurs	13
I.4.3	Les générateurs multi-sources	13
I.5	L'option hydrogène et PAC.....	14
I.5.1	Quelques données sur l'hydrogène.....	14
I.5.2	La production de l'hydrogène	15
I.5.3	Le stockage de l'hydrogène	16
I.5.4	Le transport et la distribution de l'hydrogène	17
I.5.5	Modes d'utilisation actuels et futurs de l'hydrogène.....	17
-	Générateur PAC versus moteur à combustion à hydrogène	18
I.5.6	Acceptabilité de l'hydrogène. Normes et aspects réglementaires.....	18
I.5.7	Le vecteur énergétique hydrogène, aux côtés de l'électricité ? La controverse	20
I.5.8	Les véhicules prototypes à PAC : de la trottinette à l'avion de ligne	21
-	Démonstrateur technologique Peugeot 307 CC FiSyPAC	22

Chapitre I

- Bus Mercedes Citaro hybride issu du projet Hyfleet CUTE	22
I.5.9 Brève perspective historique des technologies de l'hydrogène	22
- Un choix de quelques dates	23
- Petit focus sur les recherches menées en France durant les années 60-70	24
I.5.10 Cahiers des charges des applications transport et bref état de l'art de la technologie PAC de type PEM.....	25
- Rappel des contraintes transport.....	25
- Etat de l'art	26
- A propos du platine.....	27
- Des progrès importants ont été réalisés ces dernières années.....	27
I.5.11 Organisation de la recherche sur l'hydrogène et les PAC.....	28
- Feuilles de route et analyses technico-économiques du déploiement des filières PAC et hydrogène.....	28
- Programmes de recherche et premiers déploiements commerciaux à l'international	29
- La recherche en France.....	31
- Un premier exemple d'introduction de véhicules à PAC en France.....	32
I.5.12 Recherches de l'IFSTTAR sur les générateurs PAC embarqués.....	32
- L'IFSTTAR sur la plateforme systèmes PAC de Belfort	32
- Une recherche sur les systèmes PAC avec une forte composante expérimentale.....	33
I.6 Conclusions et perspectives	34
I.7 Références	36

I L'hydrogène et les PAC pour les systèmes de transport

De nombreux écrits peuvent maintenant être consultés sur le thème des transports, de l'énergie et des technologies de l'hydrogène. A titre d'exemple, on pourra citer le rapport de synthèse Hincio de 2010 réalisé pour l'ADEME [Hincio 2010] qui, avant de livrer des propositions pour une feuille de route hydrogène et PAC en France, décrit les caractéristiques principales des technologies de l'hydrogène et fournit des éléments essentiels de cadrage. S'il n'est donc pas évident d'apporter sur ces sujets de réelles nouveautés en termes de connaissance, vis-à-vis d'une littérature de plus en plus abondante, il semble cependant important d'une part de restituer le contexte dans lequel ont été et sont menées les recherches sur les générateurs PAC à l'INRETS puis à l'IFSTTAR, et d'autre part d'essayer de montrer la complexité des enjeux à l'intersection des domaines des Nouvelles Technologies de l'Energie (NTE) et du transport, en tentant de porter « un regard IFSTTAR ».

I.1 Problématiques actuelles et générales

« Nous savons transporter efficacement trois personnes sur 340 000 km, mais pas 340 000 personnes sur 3 km ». Cette petite phrase en forme de boutade prêtée à un président américain donne un bon aperçu de la complexité des problématiques liées aux systèmes de transport destinés à un service collectif de masse.

I.1.1 Dans le domaine des transports

Le transport est une activité humaine indispensable à la vitalité sociale, économique et culturelle d'un pays. L'essor des systèmes de transport vient réduire le temps et élargir l'espace ; il contribue à la multiplication des échanges et à la création de richesses [INRETS vision stratégique 2020]. Si les systèmes de transports et leurs développements participent à l'aménagement du territoire et à une mobilité accrue, ils sont aussi potentiellement créateurs de nuisances (locales et globales) pour l'environnement et la personne. Les transports ne peuvent donc être appréhendés que dans un contexte aux dimensions multiples et imbriquées : sociale, économique, technologique et environnementale (un contexte qui peut d'ailleurs être mis en rapport avec le choix institutionnel fait par la France : « Si l'énergie, l'écologie, les transports, l'urbanisme, l'aménagement du territoire ont longtemps été confiés à des administrations distinctes, qui ont chacune leur histoire, ces sujets sont aujourd'hui abordés au sein d'un même ministère » [Site internet MEEDDM 2010]). Au final, la demande de mobilité actuelle s'exprime à travers le besoin de moyens de transport sûrs, efficaces et durables (économiques et respectueux de l'environnement), accessibles (financièrement, en terme de coût et disponibles à l'usage), et confortables.

I.1.2 Liées à l'énergie dans le domaine des transports

Le développement des transports est très étroitement lié à la problématique de l'énergie qui, elle aussi, revêt de multiples facettes : politique, économique, environnementale et sociale. A ce titre, la loi de programme fixant les orientations de la politique énergétique française peut être évoquée [Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005]. Elle vise à contribuer à l'indépendance énergétique nationale et à garantir la sécurité d'approvisionnement, à assurer un prix compétitif de l'énergie, à préserver la santé humaine et l'environnement, en particulier en luttant contre l'aggravation de l'effet de serre, à garantir la cohésion sociale et territoriale en assurant l'accès de tous à l'énergie.

La forte préoccupation de notre société vis-à-vis des problèmes liés aux transports et à l'énergie peut aujourd'hui s'expliquer principalement par plusieurs phénomènes différents mais pratiquement concomitants [ANNEXE I.1.2].

Chapitre I

- Le premier est une tendance durable au renchérissement progressif des énergies fossiles, des matières premières [Syrota 2008] [Le Monde Dossier Pétrole 2008] [Ravagni HyPAC 2008] [Millet HyForum 2008] [PREDIT 4 Programme 2009].
- Le second phénomène qui vient expliquer l'importance grandissante accordée aux problématiques transport et énergie est la prise de conscience généralisée de l'incidence de la pollution et du réchauffement climatique [GIEC] [Le Grenelle Environnement 2007] [Plan SET 2007] [Groupe 1 Rapport de synthèse du Grenelle 2007] [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007] [Syrota 2008].
- Au-delà des problèmes d'approvisionnement énergétique et de pollution, les grandes villes doivent aussi faire face à de sévères problèmes de congestion des réseaux de transport.
- Une autre raison de poids vient expliquer la forte attention portée aux secteurs des transports et de l'énergie. Il s'agit du maintien de l'emploi (en France et dans ses régions) dans un contexte de mondialisation et de concurrence économique accrue [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007] [Syrota 2008] [PREDIT 4 Programme 2009] [PREDIT 4 Programme 2009] [Plan SET 2007].

On notera que la sensibilisation à l'avènement d'une ère nouvelle, où l'énergie est durablement plus rare et plus chère, et la prise de conscience du réchauffement global peuvent engendrer au sein de la société (et parmi les chercheurs !) des visions politiques différentes, allant de ce que l'on qualifie parfois de « capitalisme vert » à l'idée de la « décroissance ». Avec une ligne de marquage (diffuse) qui réside peut-être notamment dans le crédit à accorder au potentiel de développement des NTE, sur des durées qui peuvent finalement paraître courtes pour mettre en place de nouveaux systèmes de transports et faire émerger de nouvelles mobilités. On y reviendra.

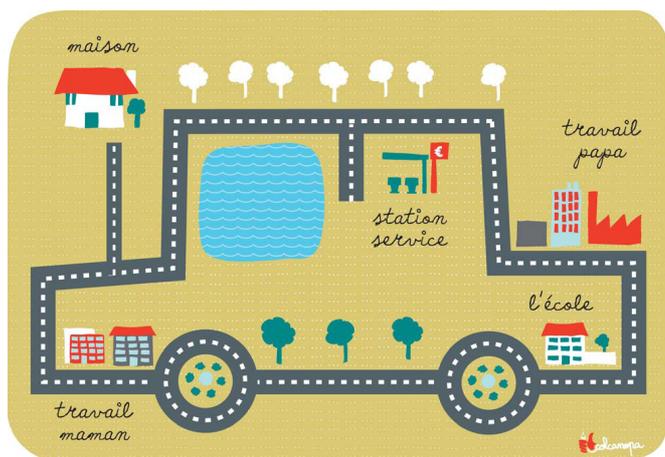


Figure I.1 : Transports ; le quotidien de beaucoup... [Le Monde Dossier Pétrole 2008].

I.2 Une multiplicité de solutions pour une « mobilité 2.0 » ?

Les systèmes de transport représentent d'importants enjeux sociaux aussi bien en matière de qualité de vie, d'environnement que d'énergie. **La problématique de la mobilité et des systèmes de transport en est rendue très complexe. Elle doit donc être nécessairement analysée au regard de ses trois composantes : sociale, économique et environnementale.** Pour un institut de recherche sur les transports tel que l'IFSTTAR (INRETS), pris dans sa globalité, les travaux à mener ne consistent pas seulement à étudier des « briques » élémentaires composant les systèmes de transport. Il faut encore que les personnels de l'institut puissent chercher à intégrer ces « briques » dans la complexité de ces systèmes et notamment comprendre comment l'homme – dans sa dualité « biologique » et « sociétale » – interagit avec les systèmes de transport, qu'il les choisisse ou qu'il les subisse [Q INRETS 2006 - 2009] [CR préparation du Q 2009-2013]. Dans la mise au point de solutions et de politiques de réduction des impacts environnementaux, les problématiques technologiques et énergétiques doivent être prises en compte, tout comme les aspects organisationnels et les déterminants socio-économiques de la mobilité des personnes et des biens. L'institut considère en effet

Chapitre I

par exemple que les seules avancées technologiques ne permettront pas d'atteindre l'objectif d'une réduction d'un facteur 4 des émissions des GES à l'horizon 2050 : il faudra ainsi nécessairement induire aussi un changement des comportements, notamment en ce qui concerne la consommation d'énergie fossile. Dans la perspective d'aboutir à une réduction des GES émis par les transports, d'autres leviers et pistes de réflexions peuvent être évoqués, en particulier :

- la maîtrise de la mobilité versus l'environnement [Baccaïni Déplacements Insee 2007],
- les instruments réglementaires (normes, valeurs limites) et économiques (tarification, fiscalité),
- les critères d'évaluation des politiques de mobilité envisagées, avec des questions sous-jacentes bien difficiles, du type : comment correctement évaluer aujourd'hui le coût des impacts de l'effet de serre ?
- les technologies plus propres et économes (leurs performances environnementales).

Sur le site internet du ministère de l'écologie, de l'énergie, du développement durable et de la mer, on peut aussi lire que répondre à la demande de mobilité tout en minimisant les incidences sur l'environnement suppose un certain nombre d'orientations [Site internet MEEDDM 2010] :

« - favoriser le report modal, c'est-à-dire le recours à des modes de transports plus « doux » pour l'environnement que la route : la mer, le train, les fleuves sont des alternatives intéressantes dans un certain nombre de cas (transport de masse sur de longues distances par exemple) ; 60 % des ressources de l'agence de financement des infrastructures de transport de France sont mobilisées au profit de projets non routiers ;

- développer l'intermodalité, c'est-à-dire la connexion organisée entre plusieurs modes de transport (ferroviaire et fluvial notamment) pour offrir des alternatives efficaces au fret routier ;
- créer des offres de transport plus durables donc plus compétitifs : améliorer les transports collectifs, favoriser le co-voiturage, l'usage du vélo pour limiter l'utilisation de la voiture individuelle ;
- intégrer les transports dans une vision globale de l'aménagement du territoire : les questions d'urbanisme et d'habitat doivent être analysées à l'aune des problématiques de déplacements dans les agglomérations, des dessertes des métropoles et des centres économiques. » [Gouédard 2007] [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007].



Figure I.2 : Image d'une nouvelle mobilité [Axe 56 2010], illustration Colcanopa.

On peut d'ailleurs constater qu'à travers les orientations premières du Grenelle de l'environnement de 2007, ce sont d'abord des solutions que l'on peut qualifier d'éprouvées et de disponibles d'un point de vue technologique (vélo, ferroviaire) qui ont été mises en avant dans un contexte de réorganisation de la mobilité (inter-modalité par exemple). Si l'intérêt et le besoin d'une recherche dans le domaine des nouvelles technologies ne sont pas niés, les orientations « réalistes » retenues peuvent trancher avec un certain discours général ambiant, souvent plein d'enthousiasme pour les nouvelles technologies et qui accorde une place de choix à l'automobile électrique et hybride de masse dans ses réponses à la mobilité de demain (on aura ainsi pu entendre plus tard, en 2010, sur le salon du Mondial de l'Automobile, que « le véhicule électrique, c'est le plus beau bébé du Grenelle de l'environnement ! »). Si la vision d'un véhicule électrique et hybride diffusé à grande échelle peut susciter aujourd'hui un engouement fort dans la société, celle-ci fait aussi douter... [ANNEXE I.2] [Maupu 2006].

Le débat autour des NTE et des transports est en fait déjà ancien. Très complexe, il met en cause des enjeux forts dans la société, de nombreux intérêts dans les domaines industriels, universitaires et de la recherche, qui politisent la technique. Dans [Callon 1979], publié en 1979 dans la Revue française de Science politique, Michel Callon donne sa vision de la manière dont ont été organisées les recherches en France autour de la PAC et du véhicule électrique dans les années 1960-1970. « L'histoire des recherches entreprises autour du projet de véhicule électrique montre que l'Etat est comme impuissant devant les enjeux et les intérêts qui s'affrontent cette occasion. Incapable de décoder les controverses techniques pour faire apparaître les enjeux politiques qu'elles expriment et dissimulent, l'Etat n'est pas plus en mesure d'exprimer techniquement des orientations politiques. Quant aux acteurs qui produisent cette politisation de la technique, ils se situent en dehors du système politique traditionnel, occupent le terrain, imposent leurs formes de raisonnement, leurs critères d'évaluation et leur formulation des problèmes. Ils annexent l'Etat, tendant à lui dénier toute spécificité et ne voyant en lui qu'un ensemble de ressources particulières. Face à une innovation comme le véhicule électrique, l'Etat est politiquement velléitaire parce que techniquement dominé. »

I.3 Quelle place pour les NTE dans la recherche sur les transports ?

I.3.1 Une recherche sur les NTE à l'IFSTTAR. Pour quoi faire ?

- La question des paris sur l'avenir

La raréfaction des ressources fossiles dans un contexte de changement climatique risque de modifier sensiblement le coût de l'énergie et, par-là même, les habitudes de consommation, à moins que se produise une révolution, technique par exemple, en ce domaine. Mais cette perspective est-elle plausible ? Des ruptures scientifiques et techniques suffisamment importantes peuvent-elles intervenir dans les années à venir, et engendrer des améliorations ou de nouvelles voies en termes de production et de conversion de l'énergie ? Quand bien même la question de l'adaptation à un nouveau contexte énergétique reste d'actualité, on ne peut pas exclure non plus d'emblée la mise au point de nouveaux matériaux et procédés, le succès d'innovations aux caractères exploratoires forts, l'émergence de nouvelles technologies susceptibles de modifier significativement (voire radicalement) la donne ; d'où l'indispensable effort à maintenir en matière de recherche [Papon Futuribles 2008]. S'il ne semble guère possible de répondre simplement et précisément sur les modalités et les dates d'introduction de ruptures technologiques (des nouvelles batteries et PAC par exemple), on peut peut-être avancer de manière prudente que l'impact des NTE a tendance à être surévalué sur le court terme, et minimisé sur le long terme. Le soutien à la recherche sur une technologie comme celle de la PAC (une NTE pas si nouvelle) doit s'effectuer de manière certainement dosée, mais elle doit aussi s'inscrire sur la durée et éviter de trop donner lieu / traduire des « cycles » enthousiasmes / désenchantements parmi les chercheurs et dans la société.

- Une synergie à trouver dans les types d'application

Le développement d'une technologie ne doit pas non plus être associé de manière trop systématique à un cadre applicatif unique et à un seul secteur industriel. Ainsi, les résultats qui peuvent être obtenus dans le développement de nouvelles générations de batteries, de PAC grâce à des moyens consentis par les constructeurs automobiles peuvent aussi avoir des applications dans le domaine des transports en commun. A notre avis, ces derniers n'échappent d'ailleurs pas aux problématiques de l'énergie et la PAC par exemple pourrait, par un effet de synergie, permettre un jour d'apporter des réponses dans ce domaine. Un générateur PAC est un convertisseur d'énergie qui peut à priori être embarqué dans toutes sortes de véhicules. La technologie des piles souffre à l'heure actuelle d'un manque évident de maturité technique et économique, peu propice à son déploiement dans le secteur de l'industrie automobile. Du fait de ses coûts encore importants et des problèmes liés à l'approvisionnement, à la distribution de l'hydrogène, ce sont encore souvent les transports urbains collectifs et leurs véhicules (bus, flottes captives) qui font figure de futurs premiers candidats potentiels pour le développement de la filière hydrogène.

- La recherche technologique et ses difficultés au quotidien

Dans le domaine de la R& D, une certaine « perte de foi » observée parfois à l'égard des NTE s'explique peut-être aussi par la difficulté à mener des entreprises, à réaliser des travaux dans ce domaine, en particulier quand des expérimentations (souvent lourdes) sont nécessaires et les moyens (et/ou la motivation) insuffisants. Le retard de l'industrie française dans un domaine comme celui des véhicules hybrides n'est sans doute pas détaché de certaines contingences nationales. On peut ainsi avoir le sentiment que les industriels français, dont les constructeurs automobiles, n'ont jusqu'à présent pas investi autant de moyens que certains autres, et de considérer notamment qu'un « virage » a été mal négocié en France dans les secteurs de l'électronique et de l'informatique. Pour faire court : l'électronique, c'est surtout japonais. Du coup, les véhicules hybrides aussi.

Les solutions et les technologies envisageables à un moment donné sont par ailleurs multiples ; aucune d'entre elles ne s'impose a priori ; toutes sont également problématiques et génératrices d'incertitude [Callon 1979]. Aucune solution technologique ne semblant pouvoir préempter les autres dans le contexte considéré, il devient de ce fait impératif d'évaluer le **potentiel de déploiement des nouvelles technologies, en particulier celui des groupes électrogènes embarqués et des chaînes de traction innovantes**. L'IFSTTAR, un institut de recherche à vocation non commerciale, doit poursuivre des recherches dans le domaine, ne serait-ce que pour être en mesure d'émettre un avis critique, original, objectif et fondé sur le potentiel réel des technologies étudiées, en vue notamment d'informer les tutelles. Pour argumenter plus encore en faveur d'une recherche sur des objets comme les PAC, on peut aussi estimer que le rôle de la recherche publique consiste en particulier à donner une chance à des technologies qui ne bénéficieraient pas de fortes attentions dans un secteur industriel confronté à une rentabilité sur le court et moyen terme. **Et la meilleure voie pour accéder à une connaissance des potentialités des nouvelles technologies est sans doute encore de travailler à leur développement afin d'être au plus près des problèmes qui se posent.**

I.3.2 Des recherches à l'IFSTTAR en vue de « l'après-pétrole »

Si l'IFSTTAR n'a pas pour vocation principale le développement de technologies (c'est essentiellement l'affaire des industriels), il lui faut cependant contribuer à préparer l'introduction dans les systèmes de transport des technologies en émergence en coopérant avec les industriels et les opérateurs de transport. L'IFSTTAR tâche d'intégrer totalement et globalement la préoccupation de la réduction de la consommation de pétrole dans l'ensemble des problématiques de transport, tant du côté de l'offre (consommation énergétique) que de la demande (organisation de la mobilité). L'IFSTTAR tâche ainsi :

- **de maîtriser les technologies, qu'elles assurent la continuité du progrès ou préparent une rupture** ; (travaux sur l'électro-mobilité ; développement et évaluation des chaînes de traction hybrides sur toute la gamme des moyens de transport : fiabilité des composants, transmissions innovantes, optimisation de la gestion et du stockage de l'énergie ; développement d'une bibliothèque de composants, de modèles de véhicules et de cycles réels de fonctionnement ; intégration des PAC dans les transports, etc.) ;

- **d'établir des scénarios d'émission des GES** à partir du bilan des travaux menés dans le cadre du projet européen ARTEMIS, en exploitant la base de données des caractéristiques d'émissions observées de GES sur les routes (urbain, périurbain, rase campagne, autoroute), et les modèles de trafic ; élargir la connaissance par l'évaluation des émissions des poids lourds ; établir ces scénarios d'émissions de GES pour les chaînes productives et logistiques de marchandises, ainsi que pour les chaînes de transport de passagers multimodales et pour différents types de déplacements (domicile-travail, loisirs, tourisme, ...) ;

- **d'étudier la manière de sensibiliser et d'infléchir le comportement humain pour obtenir la réduction de la consommation de pétrole** : études des représentations sociales attachées à la voiture, et identification des actions publiques permettant de les modifier ; intégration des préoccupations de santé publique ; influence de nouveaux services liés aux technologies d'information et de communication actuelles ; influence des prix et des politiques de tarification.

I.3.3 Nouveaux combustibles et nouveaux moteurs, nouvelles méthodes de conception et de construction, électrification du véhicule

[ANNEXE I.3.3]

Dans le domaine des transports, 95 % des besoins en combustible sont couverts par le pétrole.

Ce qui implique qu'il faudra nécessairement une période de transition assez longue avant de pouvoir changer d'assise énergétique au profit d'autres combustibles, d'autres énergies qui seraient renouvelables et moins polluantes [Galley Gatignol 2001].

Un carburant est un combustible qui alimente un moteur thermique et qui, comme son nom l'indique, contient du carbone (dans le cas de l'hydrogène, on ne devrait donc parler que de combustible). Les carburants peuvent être classés de différentes manières : suivant leur forme (liquide ou gazeuse), ou suivant leur origine (fossile ou générés à partir de la biomasse) par exemple [Syrota 2008] [Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005] [Tissot CR Géosciences 2008] [ADEME biocarburants 2010]. Un moteur thermique est quant à lui chargé de transformer l'énergie chimique du combustible en énergie mécanique. Aujourd'hui, il semble clair que **le moteur à combustion interne n'a pas encore atteint ses limites de développement** [Syrota 2008]. Au-delà de la motorisation, **des progrès généraux de conception et de construction sont enregistrés** et bénéficient au véhicule thermique comme à tout autre type de véhicule : aérodynamisme, allègement des structures, utilisation de matériaux innovants, roulements à très faible friction, pneumatiques à faible coefficient de frottement, assistance électronique à l'éco-conduite...

Dans les applications de transport pour lesquelles l'électricité n'est pas l'énergie disponible pour la consommation finale (transport terrestre, aéronautique et maritime), un nombre croissant d'équipements électriques sont installés pour réaliser des fonctions nouvelles, de confort en particulier, ou en remplacement d'autres solutions technologiques. Des actionneurs hydrauliques et/ou pneumatiques sont ainsi remplacés par des actionneurs électriques. Cette démarche du « plus électrique » (ex : avion plus électrique...) apporte un gain de la masse embarquée et donc une réduction significative de la consommation d'énergie primaire [SEEDS Prospective 2009] [HDR Zoubir]. Dans l'automobile, **l'électricité est progressivement introduite dans la chaîne de traction**, de plus en plus hybridée (« stop & start », récupération d'énergie de freinage, contribution à la motricité), avec comme avantage de ne requérir aucune infrastructure nouvelle. En attendant l'avènement sur le marché du véhicule hybride rechargeable (« plug-in »), le véhicule hybride, qui peut s'assimiler à un véhicule thermique à complément électrique, apparaît comme une étape intermédiaire intéressante. Le véhicule hybride rechargeable présenterait un intérêt encore plus tangible si le carburant utilisé par le moteur thermique émettait peu de CO₂ (avec l'emploi de biocarburants de deuxième génération par exemple). Selon [Syrota 2008], le véhicule hybride rechargeable, qui cumule les avantages du thermique et de l'électricité sans en avoir les inconvénients les plus importants, a toutes les chances d'être le véhicule d'avenir.

Une étude récente (novembre 2010), réalisée par le cabinet MacKinsey [MacKinsey - EU Coalition 2010] pour le compte de 27 grands industriels européens, dresse un état prospectif des différents types de traction pour l'automobile jusqu'en 2050 : motorisations thermiques, hybrides, électriques à batterie et à PAC. Cette étude est basée sur des données industrielles propriétaires et donne des estimations sur l'évolution attendue du coût de la technologie, des investissements nécessaires et des places respectives envisageables pour ces différentes familles de motorisations. D'une manière générale, les auteurs indiquent que **les types de motorisations, de chaînes de traction des automobiles présenteront une hétérogénéité plus grande qu'aujourd'hui**. Le document indique aussi que le véhicule électrique à PAC apparaît comme le plus coûteux à court terme, mais qu'il peut être très compétitif à plus longue échéance.

I.3.4 L'électrification des véhicules : une longue histoire

Un nombre croissant de documents retrace l'histoire du véhicule électrique [Larroque Griset 2006] [Boursin 2012] [Le Patrimoine de la SNCF 1999] [Picard 1884] [Bourdeau Thèse 1999] [Fruchart 2009] [Syrota 2008] [AMTUIR] [Koschinski 2002] [Callon 1979] [SEEDS Prospective 2009] [Ravet 2009]. On suggèrera seulement ici qu'une mise en perspective historique permet d'identifier certains

mécanismes freinant la diffusion d'une technologie dans la société, de comprendre les déterminants de l'évolution passée du système de transport et est utile pour mieux penser les futurs systèmes de transport (pour poursuivre cette démarche plus en profondeur, le travail devrait alors être réalisé par des historiens). **Dans les différentes perspectives historiques liées au véhicule électrique, apparaît bien l'importance du vecteur énergétique et du mode de stockage d'énergie (décrit en termes de disponibilité, de masse et de volume) qui conditionne en bonne partie l'émergence et le développement de nouveaux systèmes de transports [ANNEXE I.3.4].** A noter que le cas spécifique de l'hydrogène et des PAC sera abordé d'un point de vue historique un peu plus loin dans le **Chapitre**.

I.3.5 Les enjeux actuels dans le domaine du génie électrique

En France, l'énergie électrique utile est consommée à 2,8 % dans les transports (12 TWh) [SEEDS Prospective 2009]. Par ailleurs, les transports consomment 60 % du pétrole mondial et seulement 3 % de l'électricité. **Une plus grande place accordée à l'électricité dans les transports pourrait donc contribuer à sortir du « tout pétrole » et à réduire les émissions de CO₂. De ce fait, le génie électrique apparaît comme un domaine clé en matière de R & D pour améliorer l'efficacité énergétique dans les systèmes de transport.** Le document de prospective du GDR CNRS SEEDS présente un panorama détaillé des recherches à envisager [SEEDS Prospective 2009].

Dans le secteur de l'automobile, les travaux de recherche doivent notamment concerner :

- l'amélioration de l'efficacité énergétique des composants embarqués, qui passe par l'amélioration des propriétés fonctionnelles des matériaux utilisés (pour réduire les pertes), la conception de dispositifs de conversion à haut rendement (électroniques de puissance et actionneurs) [Khatir HDR 2005],
- l'intégration et la fiabilisation des actionneurs, des convertisseurs électroniques, et des systèmes « mécatroniques » en vue d'une industrialisation à grande échelle dans le cas de l'application automobile [Khatir HDR 2005],
- l'amélioration de l'efficacité énergétique dans la chaîne énergétique avec en particulier le contrôle coordonné génération-stockage-charge qui est un point clef de l'efficacité énergétique des systèmes de transport,
- l'optimisation globale du système énergétique et des architectures (électriques ou multi-énergies) au niveau du véhicule, avec en particulier, le contrôle et la gestion optimale d'énergie, l'analyse des cycles de vie (écobilan), la sûreté de fonctionnement et la maîtrise des nuisances.

Dans le domaine de la traction ferroviaire extra-urbaine, l'usage de l'électricité est déjà bien généralisé, que ce soit par la mise en œuvre de générateurs diesels-électriques ou par l'utilisation de réseaux d'alimentation alternatifs ou continus (stations électriques, caténaies...). Les enjeux essentiels résident alors dans l'augmentation de la puissance volumique d'une part et dans l'amélioration de la fiabilité d'autre part. L'augmentation de la puissance massique permet soit d'améliorer les performances à encombrement donné, soit de dégager de l'espace pour améliorer les possibilités d'exploitation des rames (plancher plat par exemple ou bien encore, plus grande interopérabilité des locomotives). L'augmentation de la fiabilité doit quant à elle permettre d'améliorer la qualité de service. La traction thermique (diesel), encore jugée trop bruyante et polluante, concerne toujours une part importante du réseau ferré. On constate actuellement une tendance à l'hybridation du diesel par des organes de stockage électrochimiques ou électromécaniques. La SNCF, en menant des recherches sur la locomotive LHYDIE (Locomotive Hybride de Démonstration et d'Investigation en Energétique, projet ANR Predit PLATHEE) manifeste sa volonté d'accompagner cette mutation.

Finalement, dans l'aéronautique et la construction navale, l'usage d'actionneurs électriques à la place d'actionneurs thermiques, hydraulique et/ou pneumatiques tend aussi à se généraliser. Des projets relatifs à l'avion ou au navire « plus électrique » permettent, à l'échelle européenne, de développer des solutions utilisant le vecteur électricité, que ce soit pour des raisons de maîtrise de masse, de meilleure gestion de l'énergie ou encore de fiabilité accrue. Bien évidemment, de nombreuses recherches restent encore à mener dans ces secteurs [SEEDS Prospective 2009].

Si des travaux restent donc évidemment à mener au niveau de la conversion de l'énergie (moteurs électriques, électroniques de puissance), il est un domaine précis du génie électrique où beaucoup reste à faire, c'est celui du stockage. Car, les difficultés inhérentes au stockage de l'électricité (considérations de coût, de densité de l'énergie stockée, de durée de vie et de recyclabilité) risquent de limiter encore un temps le véhicule autonome entièrement électrique à des flottes captives ou à un usage urbain.

I.4 Le problème majeur du stockage de l'énergie sous forme électrique

L'électricité est un vecteur énergétique certes très pratique mais dont l'inconvénient essentiel est d'être difficilement stockable [Schwarz 2005]. On peut stocker de l'électricité en transformant l'énergie électrique en une autre forme d'énergie, qui peut être emmagasinée puis récupérée. Les barrages hydrauliques stockent ainsi l'énergie potentielle de l'eau qui est ensuite utilisée en fonction des besoins. L'énergie électrique peut être accumulée par différents autres moyens et sous différentes formes : électrostatique (condensateurs), électrodynamique (circuits bobinés), magnétique et mécanique (volants d'inertie), électrochimique (batteries) [Multon M2R Stockage 2007] [Multon Ruer ECRIN 2003]. Compte tenu des limites des techniques de stockage direct de l'électricité, le mot accumulateur utilisé en électrotechnique désigne principalement les dispositifs électrochimiques, fonctionnant grâce aux réactions électrochimiques de leurs électrodes, et qui assurent la conversion de l'énergie chimique en énergie électrique. Ces dernières années, la diffusion des appareils électroniques « nomades » (baladeurs, ordinateurs et téléphones portables, caméscopes...) a été rendue possible grâce aux progrès des accumulateurs électrochimiques. D'autres secteurs de l'économie expriment à leur tour un besoin accru de sources d'énergie performantes, que ce soit dans les domaines des transports ou du stationnaire (besoins de dispositifs de stockage pour assurer une meilleure qualité de l'énergie et une continuité d'approvisionnement, un découplage entre la production et la demande, une décentralisation de la production d'énergie) [Multon M2R Stockage 2007]. Les possibilités de développement des technologies de stockage de l'électricité restent très importantes et représentent assurément un enjeu capital au niveau mondial [Galley Gatignol 2001].

I.4.1 De nouvelles générations de batteries pour les véhicules électriques et hybrides

Par rapport aux accumulateurs électrochimiques plus classiques (plomb et nickel / cadmium), les nouvelles familles de batteries (nickel /métal hydrure et lithium) apparaissent aujourd'hui plus en mesure de répondre efficacement aux cahiers des charges des véhicules hybrides et électriques [Schwarz 2005]. Elles présentent en effet des énergies spécifiques plus favorables ainsi que des puissances massiques importantes. Par rapport aux batteries au plomb, les accumulateurs au lithium présentent en outre l'avantage de rendre plus facilement prévisible la défaillance de la batterie. Les batteries Nickel /Métal Hydrure ont déjà largement fait leurs preuves dans les véhicules hybrides (en particulier dans ceux du constructeur Toyota). Les batteries Lithium ion sont quant à elles apparues récemment (en 1992) et ont bénéficié d'un développement fortement tiré par le marché des applications électroniques nomades. Elles commencent à être introduites dans certains véhicules hybrides (chez Mercedes, BMW, PSA par exemple). Par ailleurs, des couples électrochimiques alternatifs aux batteries lithium ion à base de cobalt font actuellement l'objet d'intenses recherches : lithium polymère, lithium fer phosphate, lithium air... [Robert Alzieu 2005] [Tarascon 2008].

Les objectifs longs termes du programme américain de recherche sur les batteries (USABC) pour le véhicule électrique sont les suivants : une énergie spécifique de 200 Wh/kg, une densité d'énergie de 300 Wh/l, une puissance spécifique de 400 W/kg, une durée de vie de 10 ans. Ces objectifs ambitieux, s'ils étaient atteints à des coûts raisonnables, offriraient alors aux véhicules électriques un important potentiel de pénétration dans le parc de véhicules conventionnels.

La disponibilité des ressources en lithium apparaît aujourd'hui comme un autre point important à prendre en considération [Kempf 2008]. En fait, si le lithium est très abondant dans la nature, il

n'existe en concentration permettant une exploitation économique qu'en un nombre limité d'endroits : une zone de lacs salés fossiles dans les pays andins (Bolivie, Chili, Argentine), des lacs salés au Tibet, des mines en Australie, en Russie et aux Etats-Unis. De ce fait, la carte du lithium pourrait d'ailleurs dessiner une géopolitique nouvelle. Une autre difficulté : les batteries pour véhicules électriques requièrent une purification du carbonate de lithium à 99.5 %, ce qui exige une qualité de finition industrielle que peu de firmes semblent maîtriser. Par ailleurs, les procédés de fabrication des batteries doivent être améliorés pour être plus respectueux de l'environnement et notamment plus économes en énergie. La fabrication actuelle d'une batterie lithium-ion de 1 kWh consomme 287 kWh et émet 80 kg de CO₂ [Guyard 2011].

Sur un plan technico-économique, les batteries lithium ion apparaissent aujourd'hui plus matures que les systèmes PAC et elles semblent présenter une plus grande commodité d'emploi. Cependant, les deux types de générateurs électrochimiques donnent lieu à des similitudes dans les problématiques et dans les types de recherches à mener : nécessaires baisses des coûts (facteur 5 à 10 pour les PAC, 2 à 4 pour les batteries), augmentation des durées de vie (plusieurs milliers d'heures de fonctionnement), densités d'énergie plus élevées (passer de 100-150 km à 250-300 km d'autonomie pour 100 kg d'accumulateurs), cycles de vie et procédés de fabrications optimisés.

I.4.2 Les supercondensateurs

Une autre technologie est envisagée pour les applications transport, celle des supercondensateurs. Un supercondensateur est un condensateur de technologie particulière permettant d'obtenir des densités de puissance et d'énergie intermédiaires entre celles des batteries et des condensateurs électrolytiques classiques [Raël HDR 2005]. En plus de leur positionnement particulier sur un diagramme de Ragone [Gualous 2007], ces composants apparaissent particulièrement aptes au cyclage charge / décharge [Coquery ESSCAP 2004]. La majorité des supercondensateurs commercialisés ont un fonctionnement basé sur le principe de la double couche électrochimique, d'où le sigle anglosaxon EDLC pour « Electrochemical Double Layer Capacitor ». Les supercondensateurs sont constitués de deux électrodes poreuses, généralement en charbon actif et imprégnées d'électrolyte, qui sont séparées par une membrane isolante et poreuse (pour assurer la conduction ionique). La couche double électrique se développe sur chaque interface électrode-électrolyte, de sorte que l'on peut voir schématiquement un supercondensateur comme l'association série de deux condensateurs, l'un à l'électrode positive et l'autre à l'électrode négative. Dans le domaine du véhicule, les supercondensateurs sont surtout vus comme des composants qui permettent la récupération de l'énergie au freinage et sa restitution sous forme de pics de puissance. Associés à des batteries, ils peuvent prendre en compte des dynamiques de charge importantes, des transitoires et venir soulager ainsi les batteries en limitant leur vieillissement [Trigui 2009]. Utilisés en combinaison avec une gestion de l'énergie adaptée dans une chaîne de traction électrique ou hybride, ils peuvent aussi permettre des gains des rendements conduisant à des autonomies accrues au niveau du véhicule (jusqu'à environ 10%, sur des profils de mission urbains) [Candusso DEA 1998].

I.4.3 Les générateurs multi-sources

Même si le roadster Tesla a battu un record d'autonomie en 2009 lors du « Global Green Challenge » (500 km sans recharge externe, mais avec un conducteur qui a vraisemblablement adopté une conduite très économique), les véhicules électriques à batteries (éventuellement supplées par des supercondensateurs) risquent d'avoir encore des autonomies limitées et des temps de charge longs qui restreindront leurs utilisations à de petits parcours (200 km maximum ?) et aux agglomérations urbaines. Des nouveaux dispositifs de recharge rapide électrique, d'interchangeabilité mécanique des batteries (cf. la solution proposée par la société Betterplace [Ravet 2009]) pourront améliorer les choses. Néanmoins, l'hybridation apparaît comme une solution sérieuse dès lors que l'on souhaite avoir un véhicule polyvalent (ce besoin restant à évaluer...). Si l'hybridation peut être réalisée par un groupe motopropulseur thermique adapté, elle peut être aussi envisagée en considérant un système PAC, alimenté en hydrogène (Chapitre III). Nous verrons aussi qu'une PAC peut être considérée comme une forme particulière de batterie avec des réactifs et des produits qui ne sont pas stockés dans l'élément électrochimique mais apportés et évacués en continu.

I.5 L'option hydrogène et PAC

Des informations sur l'hydrogène (données physiques, production, stockage, transport et distribution) peuvent être trouvées dans un nombre croissant de documents ; des données nombreuses et précises sont notamment accessibles sur le site internet de l'AFH2 [AFH2 2012], dans [Clefs du CEA n°50-51 2005] et [Fruchart 2009]. Un rappel des principales caractéristiques de l'hydrogène est proposé ci-dessous. L'objectif étant principalement ici de mieux faire comprendre la complexité, les enjeux d'une utilisation de l'hydrogène en tant que vecteur énergétique pour des applications de transport de masse. En effet, si on peut légitimement penser que son utilisation notamment dans des PAC pourrait fournir une énergie plus propre et durable, de nombreux défis technologiques, socio-économiques demeurent et les choix des modes de production, de stockage et de distribution de l'hydrogène conditionneront probablement le développement et la diffusion de la technologie PAC [Galley Gatignol 2001].

I.5.1 Quelques données sur l'hydrogène

En 1875 dans « L'île mystérieuse », Jules Verne, par personnage interposé (Cyrus Smith), présente l'hydrogène comme le combustible de l'avenir. L'élément hydrogène (l'atome) est présent dans de nombreux carburants et il est associé dans ces derniers à d'autres atomes, à celui du carbone notamment. On pourrait donc trouver une sorte de « sens de l'histoire » dans la chronologie liée à l'utilisation des différents carburants au cours des âges (bois d'abord, charbon ensuite, puis pétrole et gaz naturel), et se projeter dans l'avenir en situant idéalement le gaz hydrogène (ou dihydrogène) en bout de chaîne dans une perspective de décarbonisation progressive du combustible.

Au-delà de ces considérations et visions un peu théoriques, il faut reconnaître que le gaz hydrogène a des propriétés physico-chimiques qui peuvent le faire apparaître comme un combustible et un vecteur énergétique très attrayants [AFH2 2012] [Clefs du CEA n°50-51 2005]. Le dihydrogène est par exemple la molécule la plus énergétique. Sa densité d'énergie massique (environ 120 MJ/kg soit 1 kg H₂ = 33.33 kWh avec H₂O produite sous forme gazeuse. Environ 142 MJ/kg avec H₂O produit sous forme liquide [Fruchart 2009]) est élevée comparée à celles de l'essence (45 MJ/kg) et du gaz naturel (50 MJ/kg). C'est aussi un combustible non toxique dont la combustion ne rejette que de l'eau et éventuellement un peu d'oxydes d'azote, si celle-ci se produit avec de l'air à haute température. Le dihydrogène n'a cependant pas que des atouts. Sa densité d'énergie volumique (8 MJ/l sous 700 bar) est ainsi plus faible que celle de l'essence. Un litre d'essence équivalant, sur le plan énergétique, à 4.6 litres d'hydrogène comprimé à 700 bars. Par rapport au gaz naturel, la densité énergétique volumique de l'hydrogène est moins favorable au stockage sous forme gazeuse (facteur 4 à 200 bars par exemple). Le dihydrogène a aussi pour inconvénient d'avoir une très faible énergie d'ignition ou énergie minimale d'inflammation (0.02 mJ) ; elle est 10 fois inférieure à celle d'hydrocarbures classiques. Ses zones d'inflammabilité (4 – 75 % vol) et d'explosibilité dans l'air (13 – 65 %), plus larges d'un facteur 5 par rapport à celles du gaz naturel, peuvent poser des problèmes dans des conditions particulières (milieu confiné). Cependant, comme il est plus léger que l'air et que son coefficient de diffusion est très élevé (0.6 l cm²/s dans l'air, c'est à dire 4 fois celui du gaz naturel), le dihydrogène a un mouvement ascendant beaucoup plus rapide que la plupart des gaz. En milieu ouvert, la zone d'inflammabilité est donc difficilement atteinte ; l'absence d'accumulation de gaz réduit les risques. Le dihydrogène est un gaz incolore et inodore. En cas d'inflammation, la flamme d'hydrogène est bleutée, quasiment invisible dans la lumière du jour. Aucune particule n'étant émise lors de la combustion, la chaleur reste confinée au niveau de la flamme dont la température est très élevée (2700 °C avec l'oxygène). Des dispositifs spécifiques de détection sont commercialisés ; il s'agit de capteurs de flamme optiques combinant infrarouge et ultraviolet, associés à des capteurs thermo-vélocimétriques détectant des élévations de température.

Dans le langage courant et dans la suite de ce document, dès lors qu'il n'y aura pas d'ambiguïté avec l'élément chimique du même nom, le dihydrogène sera désigné par « hydrogène ».

I.5.2 La production de l'hydrogène

Si l'élément hydrogène (l'atome) est le plus abondant de l'univers (75% en masse et 92% en nombre d'atomes ; il est présent en grande quantité dans les étoiles et les planètes gazeuses), le dihydrogène (la forme moléculaire de l'élément hydrogène) n'est présent dans l'air que sous forme de traces (0.5 ppmv). Le dihydrogène ne constitue donc pas une ressource ni une énergie primaire, et pour pouvoir être utilisé dans l'industrie, dans le cadre d'activités humaines, le dihydrogène doit donc être produit. Actuellement, 96 % de l'hydrogène produit et consommé dans le monde proviennent du reformage du gaz naturel. C'est actuellement la solution la plus économique et celle offrant le meilleur rendement énergétique. Le reformage d'hydrocarbures ainsi que la gazéification du charbon engendrent cependant des émissions de CO₂ [Auprêtre 2000]. En vue d'une production de masse d'hydrogène et pour rendre ces modes de production plus compatibles avec les contraintes environnementales liées à l'effet de serre, il est envisagé de leur y adjoindre des unités de capture et de séquestration du CO₂.

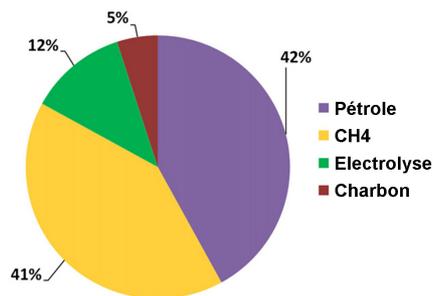


Figure I.3 : Sources d'hydrogène en Europe en 2006 (total de 8.7 MMt) [Le Duigou IJHE 2011].

L'hydrogène peut aussi être produit par électrolyse de l'eau [Clefs du CEA n°50-51 2005]. C'est la voie la plus intéressante en terme de gaz à effet de serre sous réserve que l'électricité nécessaire à l'électrolyse soit elle-même produite à partir de sources d'énergie électrique elles-mêmes non émettrices (ou faiblement émettrices) de gaz à effet de serre (énergie nucléaire, photovoltaïque, éolienne, hydroélectrique, géothermique). Cette voie de l'électrolyse est aussi plus onéreuse et conduit à un rendement plus faible que la solution du reformage. Elle est actuellement mise en œuvre sur des marchés de niche visant à assurer la production d'hydrogène très pur. L'électrolyse fait appel à l'étape supplémentaire de la production d'électricité, et se traduit donc à nouveau par un recours au vecteur énergétique électricité, celle-ci n'étant cependant pas stockée mais convertie. On peut bien évidemment se demander alors s'il n'est pas plus simple, plus efficace, moins polluant et plus économique de simplement utiliser les énergies disponibles le plus directement possible, sous une forme électrique bien commode (par exemple dans des véhicules électriques à batteries), plutôt que de les convertir en hydrogène avec les pertes et les difficultés que cela peut représenter. En fait, les scénarios à envisager dépendront en grande partie du degré de maturité technico-économique respectif des deux voies pouvant assurer des stockages à grande échelle avec des logistiques adaptées : batteries d'une part et technologies de l'hydrogène d'autre part. Les aspects « logistique » (déplacements, acheminement de batteries versus transport, distribution d'hydrogène) joueront probablement un rôle important dans les décisions à prendre. Bien sûr, il sera aussi envisageable de combiner les deux approches en stockant l'énergie sous les deux formes, d'où peut-être l'intérêt du véhicule électrique rechargeable (« plug-in ») à source hybride batteries - PAC.

Dans le cas de la production et du stockage d'hydrogène réalisés à partir d'énergie renouvelables intermittentes telles que les énergies éolienne et solaire couplées à des procédés d'électrolyse se pose le problème de la disponibilité et de la suffisance de ces types d'énergie (à déterminer en fonction des scénarios d'utilisation de l'hydrogène). Dans l'hypothèse d'une production à partir d'énergie nucléaire apparaissent les problématiques liées à cette filière (telle que la gestion des déchets, ou bien encore la question de savoir si elle peut contribuer de manière suffisante au niveau mondial à la réduction des GES dans des délais jugés suffisants). La voie de l'électrolyse a des avantages qui peuvent être trouvés dans l'obtention de meilleures stabilités des réseaux de distribution électriques, par un découplage dans le temps entre consommation et production non concomitantes d'électricité via le renouvelable éolien ou solaire. Une meilleure stabilité des réseaux de distribution électrique pourrait aussi être assurée en faisant fonctionner les grosses centrales la nuit pendant les heures creuses actuelles.

D'autres voies font l'objet de recherches. Une autre famille de procédés nucléaires fait ainsi appel à la chaleur produite par des réacteurs à haute température fournissant des calories vers 900°C pour alimenter des réactions thermochimiques et endothermiques de craquage de l'eau. L'utilisation de la biomasse et des déchets est également envisagée pour produire l'hydrogène, soit directement par photobiochimie (enzymes hydrogénases), soit indirectement par production intermédiaire de méthane ou d'alcool. La production d'hydrogène à partir d'urée (dont la molécule contient quatre atomes d'hydrogène, qui sont moins fortement fixés à elle que les atomes d'hydrogène ne le sont à l'eau) fait aussi l'objet de recherches (Université de l'Ohio, Université Heriot-Watt d'Edimbourg).

Le rendement de production varie beaucoup selon l'énergie employée. Ainsi, pour produire 1 kWh d'hydrogène utilisable, il faut 3.3 kWh d'énergie hydraulique, 8 kWh d'énergie nucléaire et 20 kWh d'énergie solaire. A l'heure actuelle, selon Total, produire une tonne équivalent pétrole (tep) d'hydrogène, nette de gaz à effet de serre, revient à un coût de 370 à 1 225 € suivant les procédés employés [Total 2007]. Sur le marché international, l'essence est cotée environ 350 €/tep et peut atteindre 1 000 €/tep à la pompe dans certains pays en fonction des taxes.

Les procédés de production de l'hydrogène varient donc en termes de complexité, de pureté et de coût de l'hydrogène obtenu. Les choix des filières de production seront faits en fonction de facteurs politiques, technico-économiques. L'hydrogène, comme l'électricité, peut dans le principe être produit dans bien différentes régions du monde, à partir d'un « bouquet » d'énergies primaires, et via des systèmes de production et de distribution qui peuvent aller du tout centralisé au tout décentralisé, adaptés à chaque cas. Des « mixes » énergétiques appropriés, qu'ils soient faits au niveau des énergies primaires ou des vecteurs d'énergie, seront définis en fonction des différentes zones géographiques. Le passage d'une économie basée sur le pétrole et l'électricité à une économie davantage basée sur l'hydrogène et l'électricité aurait sans aucun doute des répercussions géopolitiques significatives. En France, c'est peut-être la production d'hydrogène « fatal » issu par exemple du processus de fabrication du chlore (environ 50000 t par an) qui jouera un rôle déterminant, déclencheur dans la phase initiale de déploiement de la filière PAC et hydrogène.

I.5.3 Le stockage de l'hydrogène

Le stockage d'hydrogène est un verrou technique et scientifique pour le développement des technologies de l'hydrogène. Mais des progrès récents offrent cependant des solutions attractives pour nombre d'applications, y compris automobile (cf. projet européen STORHY : <http://www.storhy.net/>). Le stockage de l'hydrogène peut être mis en œuvre de différentes manières : selon les masses et les volumes mis en jeu, selon la durée, les coûts et les impératifs de sûreté de fonctionnement à considérer [Clefs du CEA n°50-51 2005] [Fruchart 2009] [De Bernardinis HyRail].

Quand les quantités mises en jeu ne dépassent pas quelques kg ou dizaines de kg, la solution la plus répandue est le stockage sous forme gazeuse dans un réservoir fixe ou transportable. L'hydrogène, très peu dense, doit nécessairement être comprimé à des pressions importantes pour être transportable dans un volume raisonnable. Le stockage et la distribution d'hydrogène sous pression sont réalisés de manière standard depuis de nombreuses années au moyen de bouteilles ou assemblages de bouteilles cylindriques en acier (« cadres ») remplies d'hydrogène à la pression de 20 MPa (200 bars). L'inconvénient de ce mode de stockage est l'encombrement (seulement 14 kg/m³ à 200 bars et 21°C contre 100 kg/m³ pour le méthane) et le poids qui résultent de l'utilisation d'aciers à bas niveaux de contraintes pour éviter les problèmes de fragilisation par l'hydrogène [AFH2 2012]. Dans le cas des réservoirs composites pour véhicule (dotés d'enveloppes métalliques ou polymériques, dits de type III ou IV), le stockage s'effectue sous une pression comprise entre 350 et 700 bars (des valeurs pratiquement devenues des standards aujourd'hui). Parmi les fabricants de réservoirs « haute pression » pour le secteur automobile, on peut citer : Dynetek (Canada) et Quantum Technologies (USA). Deux exemples de véhicule embarquant des réservoirs sous pression seront présentés au [paragraphe I.4.8](#). A noter que l'énergie dépensée pour la compression du gaz à 700 bars représente environ 10 % de l'énergie du combustible (5% à 350 bars) [Clefs du CEA n°50-51 2005].

L'hydrogène peut aussi être liquéfié (stockage cryogénique). Du fait de sa faible densité (70.8 kg/m³ soit 70 l pour 5 kg), ce type de stockage peut paraître séduisant mais la température très basse nécessaire (20 K soit -253 °C) nécessite une isolation thermique onéreuse et conduit à des pertes comprises entre 0.1 % et 3 % par jour selon la taille du réservoir. C'est sous sa forme liquide que la

densité énergétique de l'hydrogène par unité de volume est la plus élevée mais la liquéfaction utilise environ 35 % de sa propre énergie et coûte environ 4 fois plus cher que le stockage de l'hydrogène comprimé [L'actualité chimique n°12 2001] [Total 2007]. Le stockage liquide s'impose indiscutablement quand le besoin se chiffre en tonnes (stations-service, spatial) [AFH2 2012].

L'hydrogène peut aussi être absorbé ou adsorbé (c'est-à-dire fixé en surface) dans des matériaux ad hoc : des hydrures métalliques ou complexes (cf. produits de la société McPhy Energy [McPhy Energy], travaux de l'institut Louis Néel à Grenoble [Fruchart 2009]) La société MaHyTec localisée à Dole dans le Jura [MaHyTec] conçoit et, fabrique des réservoirs d'hydrogène à stockage solide. La technologie développée repose sur l'utilisation d'hydrures et exploite leurs propriétés à désorber de l'hydrogène à basse pression (pressions de remplissage jusqu'à 50 bar ; pression de sortie inférieure à 6 bar) et à température ambiante (10 - 60°C). Ces caractéristiques physiques confèrent aux hydrures un avantage intrinsèque en termes de sécurité, de sûreté de fonctionnement.

L'hydrogène peut également être transformé en un produit hydrogéné (alcool par exemple).

I.5.4 Le transport et la distribution de l'hydrogène

Extrêmement volatil, l'hydrogène peut être transporté de quatre façons : par pipeline, en bouteilles ou en réservoir tubulaire, sous pression, ou enfin sous forme liquide (transport cryogénique).

Sa distribution sous forme gazeuse peut s'effectuer soit au moyen de conduites spécifiques (sous des hautes pressions supérieures à 100 bars), soit à travers le réseau de gaz naturel (cas de la ville de Kiev), avec en fin de parcours une séparation du mélange hydrogène / gaz naturel (« hythane ») par membranes. Le transport de l'hydrogène s'effectue sans problème depuis 70 ans par gazoduc et son utilisation s'effectue déjà à grande échelle (5 millions de tonnes par an dans le monde). En Europe, 55 milliards de m³ sont produits annuellement pour assouvir essentiellement les besoins de l'industrie chimique (production d'ammoniac, de méthanol et pétrochimie) [L'actualité chimique n°12 2001]. A l'heure actuelle, la production est centralisée, avec une utilisation sur site ou un transport par pipeline ou par route [Total 2007]. L'hydrogène est déjà transporté par voie routière sous forme gazeuse (grâce à des camions citerne ou transportant des bouteilles) ou liquide (camions à réservoirs cryogéniques pouvant transporter jusqu'à 3.5 t d'hydrogène liquide pour un poids total de 40 t) [AFH2 2012].

Néanmoins, dans une perspective d'utilisation de ce gaz pour les transports, l'objectif serait de parvenir à délocaliser suffisamment les procédés de reformage et d'électrolyse de façon à pouvoir alimenter des flottes de véhicules à hydrogène. Ce modèle pourrait permettre un gain en termes de coûts au niveau des maillons stockage et transport de la chaîne de valeur.

Les contraintes physiques associées à la logistique d'une distribution étendue (via des stations services pour véhicules) et le coût élevé qui en résulte constituent une barrière à l'utilisation plus généralisée de l'hydrogène. Les coûts d'infrastructure se chiffreront à terme en milliards de dollars tandis que le coût d'une station-service est actuellement compris entre 1,2 et 3 millions de dollars [Total 2007].

A titre d'exemple, les autoroutes de l'hydrogène suivantes sont prévues :

- en Californie (50 à 100 stations-service en 2010 et 50 M\$ de dépenses publiques)
- au Canada (7 stations-service en 2010 et 9 M\$ de dépenses publiques)
- en Norvège (7 stations-service en 2008 et 3,5 M\$ de dépenses publiques).

Dans une présentation [Lucchese Lancement HYPAC 2008], Paul Lucchese indique que le coût de l'hydrogène à la pompe est encore trop cher (prix estimé : 3 à 6 €/kg HT pour 100 km à comparer à celui de l'essence compris entre 3 et 4 € pour 100 km HT) et encore peu disponible pour le public (environ 150 stations hydrogène dans le monde pour 13 000 stations classiques en France).

Au-delà des technologies même de stockage et de distribution de l'hydrogène, se pose la question de la connectique ou de l'interfaçage, fait de transferts et de remplissages, entre le site de production, le site de stockage, le réseau et l'utilisateur.

I.5.5 Modes d'utilisation actuels et futurs de l'hydrogène

Le dihydrogène est utilisé en quantités importantes par certaines filières industrielles (industrie chimique et pétrochimique. Principalement: synthèse de l'ammoniac, raffinage et désulfuration des hydrocarbures, synthèse du méthanol, fabrication d'acide chlorhydrique). Il est également présent dans bien d'autres domaines : soudure, industrie du verre, fabrication de semi-conducteurs, dans l'industrie

alimentaire (additif E949, hydrogénation des graisses et des huiles), dans les installations nucléaires (deutérium, tritium), pour la propulsion des fusées. L'hydrogène peut être utilisé comme traceur. Il sert aussi la recherche dans le domaine de la supraconductivité. Dans le domaine du génie électrique, il est mis en œuvre pour assurer le refroidissement des machines électriques de très fortes puissances, comme celles construites par Alstom à Belfort et destinées à équiper des centrales électriques [Gabion 2009]. La consommation mondiale de dihydrogène est aujourd'hui évaluée à environ 50 millions de tonnes par an. Ce chiffre tend déjà à faire considérer l'hydrogène comme un produit industriel usuel. Mais dans l'hypothèse d'un passage de « l'hydrogène chimique » à « l'hydrogène énergétique », la demande et la production d'hydrogène vont réellement atteindre de toutes autres proportions.

Actuellement, l'hydrogène n'est vraiment utilisé comme vecteur énergétique que dans les applications spatiales. Pourtant, l'hydrogène pourrait être appelé à jouer un rôle beaucoup plus important dans le futur, en complémentarité avec l'électricité qui, on l'a vu, présente l'inconvénient d'être encore difficilement stockable au sein des dispositifs embarqués. L'hydrogène pourrait servir aussi bien comme combustible dans des véhicules, soit en combustion directe dans des moteurs thermiques, soit pour alimenter une PAC associée à une chaîne de traction électrique. Notons qu'il existe déjà aujourd'hui dans le monde quelques 600 prototypes de véhicules fonctionnant à l'hydrogène et 120 stations-service capables de les approvisionner [Total 2007]. Par ailleurs, selon le Département à l'Energie américain (DoE), 75 000 PAC avaient été livrées dans le monde début 2010.

- Générateur PAC versus moteur à combustion à hydrogène

On peut parfois se poser la question de l'intérêt d'utiliser une chaîne de traction électrique composée d'un moteur électrique, de convertisseurs électroniques et d'une PAC alimentée en hydrogène à la place d'un seul moteur à combustion interne utilisant ce même combustible. En termes de rendement, la solution PAC peut apparaître légèrement supérieure. De plus, l'étage intermédiaire électrique d'une chaîne de traction à PAC permet la récupération d'énergie au freinage et il peut aussi être utilisé pour l'alimentation des organes auxiliaires et de l'équipement embarqué (dans une chaîne de traction thermique classique, une partie de l'énergie du moteur thermique est transformée en électricité, ce qui génère aussi des pertes). Par ailleurs, la solution PAC apparaît bien plus avantageuse en ce qui concerne les émissions locales d'oxydes d'azote (NOx), potentiellement nocives pour la santé.

I.5.6 Acceptabilité de l'hydrogène. Normes et aspects réglementaires

Outre les problématiques technico-économiques liées à la filière hydrogène, se posent également la question de la perception par le public des risques associés à l'hydrogène (<http://h2incidents.org/>) et celle des contraintes réglementaires liées en particulier à la circulation des véhicules hydrogène [Rosyid IJHE 2007]. La question de la sûreté est la clé de l'acceptation de l'hydrogène par les pouvoirs publics et la société. Les risques liés à l'utilisation de l'hydrogène sont évalués par différents organismes (en France : l'INERIS, le CEA par exemple) et à travers différents projets [Clefs du CEA n°50-51 2005]. Des travaux visant une pré-normalisation dans le secteur des technologies hydrogène ont d'abord vu le jour, notamment au niveau européen (FUERO, FCTESTNET) [FUERO 2003] [FCTESTNET]. Des processus de normalisation sont maintenant en cours pour accompagner le développement des technologies de l'hydrogène, en intégrant les aspects sécurité et maîtrise des risques, en apportant des gages de confiance aux industriels et aux futurs utilisateurs, en facilitant l'intégration de ces technologies dans la société, en favorisant l'innovation et le progrès. Les travaux de normalisation bénéficient de structures dédiées. Au niveau international, les travaux sont conduits par le comité technique ISO/TC 197 « Technologies de l'hydrogène ». En France, ils sont conduits par la commission de normalisation AFNOR « Technologies de l'hydrogène » [Solbes AFNOR 2009].

Quelques exemples de normes ISO et NF relatives à l'hydrogène et aux véhicules routiers PAC

- ISO 23273-1:2006 Véhicules routiers alimentés par pile à combustible -- Spécifications de sécurité -- Partie 1: Sécurité fonctionnelle du véhicule (en anglais).
- ISO 23273-2:2006 Véhicules routiers alimentés par pile à combustible -- Spécifications de sécurité -- Partie 2: Protection contre les dangers de l'hydrogène pour les véhicules utilisant de l'hydrogène comprimé (en anglais).

Chapitre I

- ISO 23273-3:2006 Véhicules routiers alimentés par pile à combustible -- Spécifications de sécurité -- Partie 3: Protection des personnes contre les décharges électriques (en anglais).
- ISO/TR 15916:2004 Considérations fondamentales pour la sécurité des systèmes à l'hydrogène (en français).
- NF EN 62282-2 : Technologie des piles à combustible - Partie 2 : Modules à piles à combustible. Datant de 2005 (avec des corrections en 2007) -- Traite des exigences de sécurité à prendre en compte lors de la conception de la pile, des essais à mettre en œuvre pour tester la pile et de la manière de les mener. Il y est notamment question d'essais de fuites de gaz, de pression des gaz, de surcharge électrique, de variation de la stœchiométrie des réactifs, de variation de température (cycle gel/dégel, panne du système de refroidissement).

L'hydrogène peut encore souffrir auprès du grand public d'une réputation qui n'est pas très bonne. C'est qu'un accident comme celui du Hindenburg a pu marquer les esprits pour longtemps. Néanmoins, ces dernières années, les médias de masse ont aussi communiqué assez largement sur l'hydrogène utilisé dans les prototypes de véhicules, ce qui a sans doute contribué à rehausser son image en le faisant passer, parfois peut-être un peu trop vite d'ailleurs, comme un combustible vert. Des études scientifiques (ex : projet AIDHY auquel est associé Alpheia) visant à déterminer le degré d'acceptabilité sociale de l'hydrogène, de ses technologies sont en cours. Il s'agit aussi de déterminer dans quelle mesure les utilisateurs potentiels sont prêts à prendre en charge des coûts supplémentaires liés à l'utilisation de ces technologies futures (ex : prix du ticket de bus). [Tanya O'Garra Energy Policy 2007] [Heinz IJHE 2008].

En 2009, en France, il demeurait encore difficile de faire rouler un véhicule hydrogène sur la voie publique (une solution consiste à doter le véhicule d'une plaque d'immatriculation étrangère). Pourtant, ce sont les actions de démonstration qui peuvent aider à fixer le cadre technique et réglementaire de l'utilisation de l'hydrogène dans les transports. Un texte portant sur l'homologation des véhicules à hydrogène [Texte EU Homologation véhicules H2 2008] a été adopté par le Parlement européen en 2008. Selon le communiqué de presse relatif au texte, « cette législation vise à assurer le bon fonctionnement du marché européen de ces voitures et à fournir un cadre aux fabricants qui développent déjà des véhicules de ce type. Le règlement permettra aussi de promouvoir les véhicules à hydrogène dans les villes européennes et de protéger leur environnement. En cas de violation des exigences, les fabricants seront passibles de sanctions. ». Le texte adopté souligne en outre que les petits véhicules novateurs, désignés comme étant des véhicules de catégorie L par la législation communautaire en matière d'homologation, sont considérés comme des pionniers pour l'adoption de l'hydrogène comme carburant. En France, le groupe nommé « Réglementat'Hy'on » de la plateforme nationale HyPaC a travaillé sur les aspects réglementaires de l'hydrogène énergie et des PAC. Un livrable intitulé « pourquoi une réglementation adaptée à l'hydrogène-énergie » et paru en octobre 2010 est disponible [Réglementat'Hy'on 2010].

En 2011 et 2012, le FC LAB (UTBM M3M, INEVA, IFSTTAR) de Belfort a contribué au projet F-City H2 (projet coordonné par l'Institut Pierre Vernier et labellisé par le pôle Véhicule du Futur) en menant des analyses détaillées de sûreté de fonctionnement sur le « module énergie » PAC - batterie équipant la chaîne de traction du véhicule. L'un des résultats les plus tangibles de ces travaux constitue une première nationale : l'homologation en France le 15/12/2011 d'un véhicule F-CITY H2, conformément au règlement européen CE 79/2009 (Cf. figure ci-après).



Ministère de l'Intérieur		Numéro d'ordre du certificat 10039353234	
Certificat Provisoire d'Immatriculation Autorisé, pendant sa période de validité, la circulation du véhicule sur le territoire national dans l'attente, le cas échéant, du certificat d'immatriculation (Article R.322-3 du code de la route).			
(A) Numéro d'immatriculation BZ-102-BZ	(D) Date du CPI 15/12/2011	(B) Date de 1ère immatriculation 15/12/2011	
(H) PERIODE DE VALIDITE du 15/12/2011 au 14/01/2012 INCLUS			
attribuée à (C 1) FAM AUTOMOBILES			
553720231 115 ALLÉE HUGONROT 25400 ETUPES			
(O 1) Marque FAM AUTOMOBILES	(O 2) Type variante version AG0000	(O 2.1) Code individuel d'identification du type (incluant le régime ton CE) F-CITYH2	(O 3) Dénomination commerciale F-CITYH2
(E) Numéro d'identification du véhicule MS2AGC0000A000001	(F 1) Masse en charge maximale techniquement admissible (en kg) 1140	(F 1.1) Masse en charge maximale admissible du véhicule en service sans être immatriculé (en kg) 1140	(F 3) Masse en charge maximale admissible de l'ensemble en service dans l'état membre concerné (en kg) 1140
(P 1) Catégorie (en cm ³) 765	(U 1) Poids à vide national 690	(V) Catégorie (en cm ³) CE L7e	(I 1) Genre national QM
(U 2) Catégorie (en cm ³) Q1,0M H	(U 3) Catégorie (désignation nationale) 690	(V) Numéro de réception par type (si disponible) 0000	(P 8) Puissance administrative nationale 0
(P 2) Catégorie (en cm ³) 01,0M H	(P 2) Puissance (de maximale (en kW)) 0	(P 3) Type de certificat H2	(P 8) Puissance administrative nationale 0
(I 2) Région d'immatriculation en France ou territoire possédant un statut particulier 2	(I 3) Nombre de places assises y compris celle du conducteur 2	(S 2) Niveau sonore (à l'extérieur du véhicule) 2	(I 1) Niveau sonore (à l'intérieur (A)) 0
(U 2) Véhicule (en m ³) 2	(V 1) CO2 (en g/km) 0	(V 1) Classe environnementale 0	(X 1) Date de visite technique
(I 3) (U 4) Remarques spécifiques			
Pour le ministre de l'intérieur et par délégation, La sous-directrice de la circulation et de la sécurité routières <i>A. Lebrun</i> Anne Lebrun			
Le CPI ne permet pas la réimmatriculation du véhicule en France ou à l'étranger The PRC does not allow re-registration of the vehicle in France or abroad			

Figure I.4 : Le véhicule F-City H2 à PAC et batterie (développé notamment par FAM, Michelin et EVE System) et son certificat d'immatriculation français obtenu le 15 décembre 2011.

Photographie prise à Belfort en novembre 2011. On y voit le véhicule F-City H2 ainsi que la station de recharge en hydrogène sur la plateforme PAC de Belfort.

I.5.7 Le vecteur énergétique hydrogène, aux côtés de l'électricité ? La controverse

Les potentialités offertes par l'hydrogène en termes de développement sociétal et économique durable ont fait naître le concept d'« économie hydrogène » qui est utilisé pour évoquer une hypothétique future société dans laquelle le dihydrogène servirait de vecteur d'énergie, notamment pour les applications mobiles et stationnaires réparties [Rifkin 2002] [Bento Thèse 2010] [Agator 2008] [Boucher 2006]. Et si toutes les technologies de l'hydrogène (dont les PAC) ne sont pas encore matures sur un plan technico-économique, on pense qu'elles ont des marges de progrès importantes par rapport aux filières plus conventionnelles (incluant les moteurs thermiques) qui bénéficient d'attentions plus fortes et d'optimisations depuis des décennies.

Cependant, malgré des techniques prometteuses, de nombreuses barrières subsistent pour assurer à l'hydrogène énergie un développement à grande échelle, parmi lesquelles l'infrastructure de production et de distribution, le stockage embarqué. Bon nombre d'analystes dans le domaine de l'énergie, y compris des spécialistes de l'hydrogène et des PAC [Bossel EPEFC 2005], apportent de fortes réserves (motivées) à la thèse de l'« économie hydrogène ». Certains sont catégoriques [Syrota 2008] : « Les véhicules à gaz (essentiellement GNV et hydrogène) ne paraissent pas offrir des perspectives pertinentes en France » « (Il faut) donner la priorité aux thématiques qui contribuent à l'amélioration des véhicules thermiques et à l'introduction de l'électricité (en premier lieu hybride rechargeable) et supprimer l'intervention publique dans des domaines sans grand avenir (air comprimé, hydrogène, gaz naturel...) ». On a vu aussi que, dans le domaine de la recherche sur les transports, les solutions technologiques mises en avant en général n'avaient pas toujours la cote auprès des chercheurs. Les technologies de l'hydrogène cristallisent même en fait bien des débats sur l'énergie et les générateurs à PAC sont susceptibles d'apparaître comme l'usine à gaz par excellence, voire comme l'archétype de la « technologie-illusion ». A l'occasion de conférences, on entend aussi régulièrement de bons mots : « La PAC est une solution d'avenir et qui le restera » ou « La PAC, ça fait dix ans qu'on nous dit que c'est pour dans dix ans ! », mais encore « Les PAC... Il n'y a guère que ceux qui organisent des conférences sur le sujet qui gagnent de l'argent ». Et on peut lire aussi des

choses amusantes : « La voiture propre, ça n'existe pas ! (...). Quant à la PAC, elle rejette de la vapeur d'eau, soit le plus gros gaz à effet de serre ! ».

Dans ce contexte, on peut estimer comme Thierry Alleau que certaines réflexions et réponses « relèvent autant d'un optimisme excessif que d'un pessimisme exagéré » [Alleau Facteur 4 2007]. Le contenu de son document présente l'intérêt potentiel de l'hydrogène au sein d'un futur panel énergétique pour atteindre les objectifs en termes d'émissions de GES. Il s'agit d'une approche quantitative des conditions nécessaires pour atteindre le facteur 4 en 2050 (un raccourci pour « la réduction d'un facteur 4 des émissions annuelles de gaz à effet de serre, en 2050 »), en France, établie sur la base de certaines hypothèses. (...) Selon cette étude, il est possible d'atteindre le facteur 4 en 2050 en France, par exemple sous les conditions suivantes : atteindre le chiffre de 30% dans les économies d'énergie, augmenter de 10% la production d'énergie d'origine nucléaire, multiplier par un facteur proche de 3 la part des renouvelables, transformer (reformage, gazéification) 22,4 MTep/an de combustibles fossiles en hydrogène. Cette transformation implique nécessairement une opération de séquestration, au niveau de 75 Mt de CO₂ par an.

On trouve aussi un nombre de plus en plus grand de communications sur des études scientifiques (socio-technico-économiques) portant sur l'intérêt d'un développement d'une filière hydrogène dans tel ou tel pays, en particulier dans les revues Elsevier « International Journal of Hydrogen Energy » et « Energy Policy » : Canada, Pakistan, Taïwan, Royaume-Uni, Italie, Portugal, Nouvelle-Zélande, Corée [Ji-Yong Lee IJHE 2009]. Les conclusions sont souvent assez mesurées [Doll Energy Policy 2008] [Keles IJHE 2008]. Certaines beaucoup moins [Page Energy Policy 2009].

Face à toutes les interrogations, l'intitulé "Learning by doing" de l'article écrit par Malte Schwoon [Schwoon 2008] peut évoquer une voie de travail pour la recherche dans le domaine des systèmes PAC, une voie faite nécessairement d'une succession d'expérimentations et d'itérations.

I.5.8 Les véhicules prototypes à PAC : de la trottinette à l'avion de ligne

Avec leur efficacité énergétique élevée, les PAC sont généralement considérées comme le convertisseur d'énergie chimique - électrique à privilégier dans le cadre des filières de l'hydrogène énergétique, en particulier pour les applications transport. La réalisation de véhicules démonstrateurs à PAC constitue une étape importante dans le processus qui va de la recherche en laboratoire au développement, à l'industrialisation et au déploiement des technologies. Les opérations de démonstration permettent d'expérimenter, d'optimiser des technologies innovantes en conditions réelles d'usage et à des échelles plus représentatives des réalités industrielles. La réalisation d'un démonstrateur, vu comme une plateforme expérimentale roulante, avec ses phases de validation peuvent renvoyer à des recherches plus amont, sur les composants, les matériaux... [AMI ADEME démonstrateurs 2009]. Toutes sortes de prototypes et démonstrateurs ont été pourvus de PAC : des trottinettes à des avions ou des navires en passant par des motos, des voitures bien sûr, des bus, des locomotives, des véhicules spéciaux (ex : véhicules de voirie, camions bennes), etc. Les générateurs PAC semblent déjà (presque ?) pouvoir prétendre répondre aux exigences de certains marchés de niche industriels mettant en œuvre des véhicules spécifiques (moyennant sans doute quelques aides, une fiscalité adaptée...). On pourra ainsi évoquer celui des chariots élévateurs, souvent cité en exemple, avec des entreprises aux Etats-Unis et au Canada notamment qui, pour accéder à des objectifs de rentabilité plus élevés, commencent à substituer des flottes d'engins à PAC aux plus traditionnels véhicules de manutention équipés de batteries au plomb [Chariots à PAC 2009].

Les automobiles et les bus demeurent cependant les véhicules les plus emblématiques de l'application des PAC pour les transports. Les ordres de grandeur des niveaux de puissance requis pour les deux types de véhicules sont assez différents : en général de 20 à 80 kW pour les autos (en fonction de la puissance visée et du degré d'hybridation de la PAC par des batteries ou des supercondensateurs, cf Chapitre III), de 80 à 200 kW environ pour les bus. Des synergies dans les développements technologiques peuvent néanmoins être trouvées entre les deux types de véhicules grâce au concept de générateurs multi-stacks (Chapitre III). A titre d'exemple, un certain nombre de caractéristiques principales sont données ci-dessous pour deux véhicules différents.

- Démonstrateur technologique Peugeot 307 CC FiSyPAC

Ce véhicule électrique a été réalisé à partir d'une Peugeot 307 Coupé Cabriolet. Issu du projet ANR FiSyPAC (Fiabilisation Système Pile A Combustible) et présenté en 2009, il est mû par une machine électrique synchrone à aimants permanents (puissance de 70 kW- 95 ch environ pour un couple de 180 Nm). Il tire son énergie d'accumulateurs lithium ion (capacité de 13 kWh – rechargeables sur prise secteur 220V en 5 heures) et d'un générateur PAC (pile de technologie PSA/CEA GENEPAC de 23 kW) utilisé en prolongateur d'autonomie des batteries. La PAC, ou plutôt les PAC embarquées, sont de type PEM (à membranes polymères) et alimentées en hydrogène. Celui-ci est stocké dans un réservoir (4,2 kg d'hydrogène à une pression de 700 bars). Avec un environ 1 kg d'hydrogène, la voiture peut rouler une centaine de km. Grâce à son architecture de type « Range Extender », ce véhicule électrique dispose d'un rayon d'action de 500 km environ (75 km sur la batterie seule).



Figure I.5 : Photographie de la Peugeot 307 CC FiSyPAC.

- Bus Mercedes Citaro hybride issu du projet Hyfleet CUTE

Ce bus électrique Mercedes tire lui aussi son énergie de batteries Lithium ion (capacité de 27 kWh, puissance de 250 kW, masse de 330 kg) et d'un groupe électrogène à PAC de type PEM (constitué en fait de 2 systèmes PAC délivrant ensemble une puissance de 120 - 140 kW ; la tension comprise entre 250 et 450 V), utilisé en prolongateur d'autonomie. Les piles sont alimentées en hydrogène stocké dans 7 réservoirs (volume de 205 litres chacun ; 35 kg d'hydrogène à 350 bars). La consommation du bus est de 10 - 14 kg d'hydrogène aux 100 km. Le bus peut ainsi couvrir une distance de 250 km environ. Les roues situées à l'arrière du véhicule sont entraînées par 2 moteurs-roues (puissance unitaire de 80 kW).



Figure I.6 : Bus Mercedes hybride Citaro à PAC (systèmes PAC et réservoirs hydrogène).

I.5.9 Brève perspective historique des technologies de l'hydrogène

Des informations détaillées peuvent maintenant être trouvées dans les ouvrages de plus en plus nombreux consacrés à l'hydrogène et aux PAC [AFH2 2012] [Boursin 2012] [Andújar 2009]. Le site internet <http://www.h2mobility.org/> peut être consulté ; il répertorie de nombreux véhicules à hydrogène à partir de 1807. Des références d'ouvrage sont aussi disponibles dans l'article intitulé « Chronologie des technologies de l'hydrogène » de l'encyclopédie libre Wikipédia. Les techniques de l'hydrogène et les PAC ont déjà derrière elles une longue histoire et l'historique proposé se limitera ici à quelques dates qui sont communément considérées comme importantes. Une évocation plus subjective d'autres faits, peut-être un peu moins marquants mais plus étroitement en rapport avec nos activités actuelles, sera également proposée. Enfin, le choix sera fait de mentionner plus précisément quelques travaux menés en France entre 1960 et 2000 car cette période, finalement plutôt riche de recherches, reste sans doute assez méconnue des jeunes personnels travaillant aujourd'hui sur les

Chapitre I

PAC. Elle mériterait sans doute que l'on s'y intéresse davantage, ne serait-ce que pour mieux interroger la question des programmes de recherche sur les PAC et l'hydrogène en France.

- Un choix de quelques dates

1783 : Le Français Antoine Lavoisier baptise hydrogène l'« air inflammable », identifié en 1766 par le physicien et chimiste britannique Henry Cavendish, du grec hydro qui signifie eau et genes, né de (littéralement donc : né de l'eau).

1784 : Meunier et Lavoisier mettent au point la préparation de l'hydrogène.

1802 : Sir Henry David énonce le principe de l'électrolyse inverse, il met en évidence la possibilité de produire de l'électricité à partir de la réaction chimique entre l'oxygène et l'hydrogène.

1804 - 1807 : Le Suisse François Isaac de Rivaz construit le premier moteur à combustion interne alimenté par un mélange hydrogène-oxygène (<http://www.h2mobility.org/>). François Isaac de Rivaz semble partager avec l'Hollandais Christian Huygens et le Français Philippe Le Bon le mérite d'avoir inventé le moteur à explosion.

1838 - 1839 : Le Suisse Christian Friedrich Schönbein, professeur à l'Université de Bâle (non loin de Belfort !), découvre l'effet PAC. Il publie ses résultats en janvier 1839 dans « The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine ».

1839 - 1845 : L'Anglais William Robert Grove mentionne en février 1839 dans la même revue que Schönbein la possibilité de produire un courant électrique en faisant réagir de l'hydrogène et de l'oxygène. Il réalise entre 1843 et 1845 la première PAC (qu'il baptise la « gas voltaic battery »).

1955 - 1958 : Willard Thomas Grubb (employé chez General Electric - GE) utilise une membrane d'échange ionique en polystyrène sulfonisé comme électrolyte dans une PAC. Leonard Niedrach (chimiste chez GE) conçoit un moyen de déposer du platine sur cette membrane de PAC.

1959 : Francis Thomas Bacon réalise la Bacon Cell, la première PAC hydrogène-air de 5 kW pour l'alimentation d'un poste de soudure à l'arc.

1960 - 1970 : Les PAC font l'objet de nombreux travaux dans les années 60 et 70, qui aboutissent aux applications spatiales telles que l'alimentation en énergie électrique des capsules Gemini (pile PEM – à Membrane Echangeuse de Protons, membrane en polystyrène sulfoné), Apollo (pile alcaline Pratt & Whitney) et de la navette spatiale [Miachon Thèse 1995].

La société Allis-Chalmers construit le premier chariot élévateur à PAC en 1960.

Période de recherches sur l'hydrogène et les PAC en France. Travaux d'universitaires, de l'IFP, de la société Alst(h)om. Cf paragraphe ci-dessous.

1970 : John Bockris, Lawrence W. Jones utilisent l'expression « économie hydrogène ».

Au début des années 70, avec la mise au point de membranes polymères solides échangeuses de protons (Nafion), par Dupont de Nemours, la technologie des piles PEM connaît un développement important. Un contrat avec le département canadien de la défense pour la propulsion d'un sous-marin de poche est à l'origine des recherches sur les PAC effectuées dans les années 80 par la société Ballard, aujourd'hui leader dans le domaine de la pile PEM. Les travaux réalisés sur les matériaux mis en œuvre dans les piles ont ensuite donné lieu à des réalisations plus compactes et ont alors permis d'envisager des applications potentielles, dans le domaine des transports notamment.

1990 - 2010 : Recherches sur l'hydrogène et les générateurs à PAC menées en France notamment par le CEA (équipes de Thierry Alleau, Pierre Baurens...), par Areva (Hélion), par des équipes universitaires soutenues par le réseau PACo, l'ANR... Les colloques scientifiques sur les PAC se multiplient. Des petites unités de production d'électricité et de chaleur à partir d'une PAC sont implantées un peu partout dans le monde. Les grands constructeurs automobiles ont désormais tous présenté un ou plusieurs démonstrateurs prototypes.

2011 : Les PAC ont gagné en maturité d'un point de vue technico-économique. On en trouve par exemple dans des camping-cars, navires de plaisance haut de gamme (petites piles méthanol de quelques centaines de W). Dans le domaine de l'automobile, plusieurs grands constructeurs (Daimler, Honda, Toyota) lancent des séries probatoires destinées notamment à recueillir le retour d'expérience d'utilisateurs. Toyota, Daimler, Hyundai affirment se préparer à l'introduction commerciale de leurs véhicules à l'horizon 2015. En France, des programmes de démonstration et de déploiement soutenus notamment par l'ADEME (Appel à Manifestation d'Intérêt sur l'hydrogène et les piles à combustible de 2011), par des collectivités territoriales sont imaginés pour aider les technologies de l'hydrogène à franchir la « vallée de la mort » qui les sépare d'une diffusion publique réelle.

- Petit focus sur les recherches menées en France durant les années 60-70

Il apparaît intéressant de rappeler que les PAC ont déjà suscité un intérêt fort dans les milieux français de la recherche pendant les années 60 (la période évoquée et analysée par Michel Callon dans [Callon 1979]). Des universitaires français, essentiellement dans le domaine de l'électrochimie et de la catalyse, des instituts français comme l'Institut Français du Pétrole (IFP) ont mené à cette époque des travaux d'une envergure certaine comme en attestent certaines publications [Prigent 1972] [Depris 2007] [Bréelle 1981] [Balaceanu 1974]. Une recherche sur internet permet aussi d'accéder à des fichiers vidéos datant de cette époque, tels que cette archive de l'INA qui correspond à un reportage télévisé diffusé apparemment au journal de 13h le 3 avril 1968 [INA]. Ce document, fait référence aux activités de recherche PAC menées par Alst(h)om au sein d'un laboratoire localisé à Massy en région parisienne. Ce document apparaît en définitive très surprenant car il remet en lumière l'importance des moyens d'essais mis en œuvre durant ces années par l'industriel, importance qu'un jeune chercheur ne mesure probablement pas assez. Cette vidéo est remarquable à plus d'un titre sur un plan technique car elle contient des images relativement précises des multiples bancs d'essai et de caractérisation, des composants de PAC, des solutions technologiques adoptées, des images des procédés de pré-industrialisation de ces composants... Elle peut contribuer à remettre au jour des solutions technologiques qui, peut-être tombées dans l'oubli, apparaissent d'une grande actualité, comme ces organes auxiliaires apparemment logés dans les plaques terminales des PAC... Un tel document, s'il peut être source d'étonnements, d'intérêts pour un jeune chercheur travaillant sur la PAC dans le domaine de la technologie, peut aussi servir d'argument à la critique, aux dubitatifs, et aux futurologues qui renvoient les PAC au même avenir que celui de « l'aérotrain » de Bertin, des trains à moteur linéaire et sustentation magnétique, eux aussi déjà expérimentés dans les années 60... Mais il est vrai, qu'à première vue, quand on compare les images de ce laboratoire de Massy [Boursin 2012] et celles issues d'une plateforme de recherche actuelle comme celle de Belfort, les progrès réalisés entre cette époque et celle d'aujourd'hui peuvent ne pas forcément apparaître comme vraiment flagrants... En fait, une recherche plus fouillée permettant de retrouver par exemple des indications sur le comportement réel et les performances des PAC de cette époque (courbes courant – tension par exemple, durées de vie, chargements des électrodes en catalyseur noble...) puis une comparaison avec des données issues de technologies actuelles permettrait cependant à coup sûr de bien mettre en évidence le chemin parcouru et les progrès significatifs accomplis depuis cette époque. Considérons par exemple l'évolution de la puissance massique des PAC. En 1978, les piles expérimentées par l'IFP donnent lieu à des chiffres de 70 W/kg [Auto Journal 1978] [Kartelec]. Aujourd'hui, les puissances massiques sont de l'ordre du kW/kg.

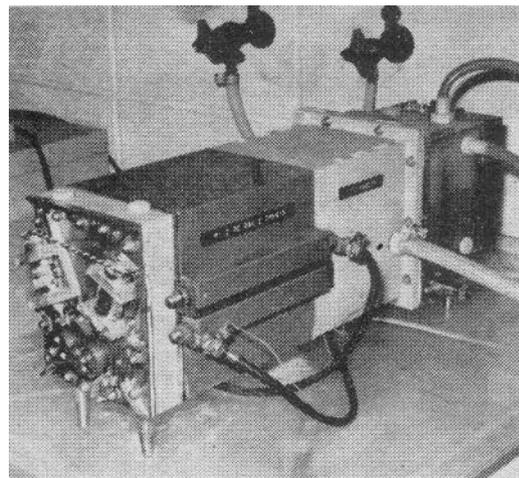
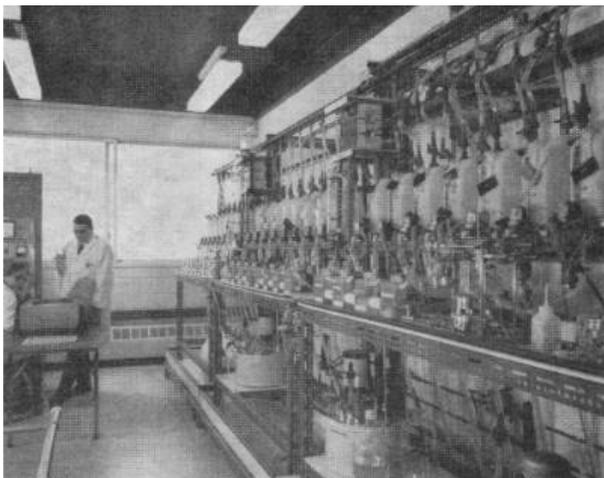


Figure I.7 : Bancs PAC et PAC expérimentées par Alsthom Massy dans les années 60 [Boursin 2012].

Au-delà de son intérêt technique évident, le film issu des archives de l'INA interroge aussi sans doute la manière dont sont organisés et menés les programmes et les travaux de recherche sur la PAC, mais peut-être aussi sur d'autres « vieilles » NTE (telles que les batteries) sujettes à des cycles enthousiasmes / désenchantements, éventuellement concomitants aux engouements / rejets exprimés

vis-à-vis du véhicule électrique. De façon corollaire, une question peut être posée : comment la recherche de la rupture technologique, forcément nécessaire, doit-elle aussi s'articuler avec la recherche incrémentale, la recherche à long terme, le « learning by doing » [Schwoon 2008]? La vidéo interroge en outre certainement la façon dont peuvent être transmises les connaissances entre les générations de chercheurs correspondant à ces différents cycles d'intérêt / désintérêt. Le document présente donc aussi un intérêt fort d'un point de vue historique et sociologique. Il met implicitement en exergue l'importance du facteur temps dans le développement technologique, importance à mettre en regard d'une certaine urgence exprimée par la société au niveau de ses besoins (on entend ainsi parler très souvent de l'urgence climatique). Il renvoie à un certain antagonisme, un certain décalage entre d'une part les solutions technologiques disponibles à un moment donné et les demandes actuelles, les finalités pressantes en termes d'énergie et de mobilité qui s'expriment notamment à travers le besoin de moyens de transport sûrs, efficaces et durables, accessibles et confortables.

I.5.10 Cahiers des charges des applications transport et bref état de l'art de la technologie PAC de type PEM

Les difficultés technico-économiques liées à la production d'hydrogène, à son stockage et à sa distribution ont déjà été mentionnées. Si les systèmes PAC peuvent être considérés comme une brique essentielle des futures chaînes énergétiques faisant intervenir l'hydrogène, ces générateurs, confrontés à l'environnement transport, souffrent aussi de problèmes technico-économiques non résolus.

- Rappel des contraintes transport

Commençons tout d'abord par évoquer **les impératifs de sécurité et le respect des réglementations**. Ils prévalent dans les phases d'expérimentation (dans ce cadre, l'APAVE par exemple sensibilise et dispense des formations) et plus encore pour la commercialisation de générateurs PAC qui nécessitent la mise en place d'un contexte réglementaire adapté (exemple : le récent règlement européen CE 79/2009 concernant la réception par type de véhicules à moteur fonctionnant à l'hydrogène), la démonstration au public des avantages et des dangers induits par les technologies de l'hydrogène, ainsi que les conditions de la maîtrise des risques (ex : mises en œuvre de matériels ATEX). En matière de sécurité, la normalisation joue également un rôle important. Les produits développés et utilisés doivent répondre à des normes et quant celles-ci ne sont pas encore complètement définies, des échanges peuvent être engagés avec des comités internationaux (ISO/TC197 technologies de l'hydrogène et IEC/TC105 piles à combustible). Des travaux sont en cours en France pour développer des moyens de test des technologies hydrogène en vue d'homologations et de certifications.

Après avoir brièvement commencé par évoquer les aspects sécurité et réglementation liés aux transports, nous pouvons indiquer que les niveaux de puissance à atteindre (et donc de courant et de tension) varient en fonction de l'application véhicule visée : quelques kW pour une APU alimentant les auxiliaires d'un véhicule (à propulsion thermique), de 20 à 80 kW pour une automobile électrique (la valeur dépend de la puissance des batteries embarquées), au moins une cinquantaine de kW pour un bus électrique. Des valeurs de **densités de puissance** supérieures à 1.6 W/cm² sont visées pour les PAC destinées à la traction de véhicules. Par ailleurs, une **température de fonctionnement** des piles idéalement supérieure à 100°C est généralement recherchée d'une part pour faciliter l'échange de chaleur entre la PAC et l'air ambiant, et d'autre part pour rendre la PAC moins vulnérable aux polluants.

Au niveau technique, l'environnement transport se distingue en particulier par des contraintes particulièrement fortes en termes de **fiabilité** et de **durée de vie** en fonctionnement avec du cyclage électrique, thermique, fluide pour les générateurs électrogènes (objectif minimal : 5000 h pour l'automobile, soit environ 250000 km, davantage pour les transports en commun. Bus : environ 25000 h. On se rapproche des objectifs liés au stationnaire : 40000 h de fonctionnement). Et dans un milieu (air ambiant, combustible, liquide de refroidissement) au sein duquel peut être présent un certain nombre d'éléments agissant comme des contaminants pour le générateur PAC (CO par exemple). L'**environnement climatique** peut s'avérer également sévère (température ambiante maximale (+50°C). Température ambiante minimale : -20°C, voire en deçà : -40°C pour les applications terrestres. Bien moins encore pour les applications aéronautiques (-70°C)). Le cas particulier des démarrages à froid peut s'avérer particulièrement problématique à traiter. L'**environnement**

mécanique (vibrations) est à prendre en considération, en particulier pour la sûreté. En termes de **coûts**, si l'automobile fait souvent figure de graal, les objectifs à atteindre peuvent sembler très bas, de l'ordre de 50 €/kW [Lucchese Lancement HYPAC 2008], 30 \$/kWh [Total 2007]. Dans le cas des applications transport en commun (type bus), le seuil est plutôt évalué à 200 €/kW. En termes de coûts, la contrainte est moins forte pour les applications stationnaires (400 €/kW environ).

- Etat de l'art

On considère généralement que les problèmes liés à l'utilisation de l'hydrogène dans les PAC sont maîtrisés. Il n'en demeure pas moins que certains points méritent encore des investigations (exemple : comportements des PAC en fin de vie encore à évaluer, coûts de la sûreté (capteurs, procédures de diagnostic ad-hoc)). La sécurité des générateurs PAC n'a semble-t-il pas été démontrée dans les espaces confinés (elle n'est du moins pas au niveau des groupes thermiques classiques). Si l'intégration des systèmes PAC peut maintenant être considérée comme réussie (compacité, masse. >1.5 kW/l et 1.5 kW/kg pour un stack destiné à une automobile), les nombreux démonstrateurs automobiles pouvant en témoigner, le **stockage embarqué de l'hydrogène** demeure encore volumineux et des progrès peuvent encore être faits à ce niveau (pour atteindre les 600 - 800 km d'autonomie requis pour une automobile). L'autonomie des démonstrateurs avec le plein d'hydrogène, réalisé en quelques minutes, est souvent plus proche de 400 km. Des valeurs supérieures peuvent être trouvées (780 km - Toyota).

Généralement, les systèmes PAC sont essentiellement encore jugés trop onéreux, pas assez fiables et durants pour satisfaire aux cahiers des charges transports. En fait, il serait sans doute plus précis de dire qu'il n'existe pas de systèmes PAC répondant aux contraintes du triptyque coûts - fiabilité / durée de vie - performance (à appréhender dans un sens global, en prenant en compte des critères de rendement, de compacité et de légèreté, de sûreté).

Pour ce qui est de la durée de vie : si des durées excédant les 5000 h peuvent être atteintes (par exemple par les constructeurs de membranes) sur des objets de faibles dimensions (monocellules de PAC), les stacks (empilements complets aux niveaux de puissance significatifs pour les applications transport) ont des durée de vie de l'ordre de 2100 h environ (soit environ 100 000 km), le chiffre variant bien sûr de manière conséquente en fonction des contraintes appliquées (caractéristiques des profils de mission). Les impacts des environnements climatiques et mécaniques sur la durée de vie sont encore mal quantifiés.

Les coûts des systèmes PAC actuels (2009) peuvent être évalués à 5 - 10 k€/kW. Ces chiffres ne font cependant pas référence à des produits destinés à une commercialisation de masse. D'autres chiffres sont évoqués dans cette hypothèse : 100 - 130 €/kW pour les technologies de systèmes PAC destinées à l'automobile (à 100 000 unités/an) (400 €/kW pour les PAC destinées aux applications stationnaires) [Lucchese Lancement HYPAC 2008]. Les coûts du générateur PAC sont à imputer à la PAC (stack) mais aussi aux auxiliaires, les organes nécessaires à son fonctionnement (permettant le conditionnement des fluides et des énergies).

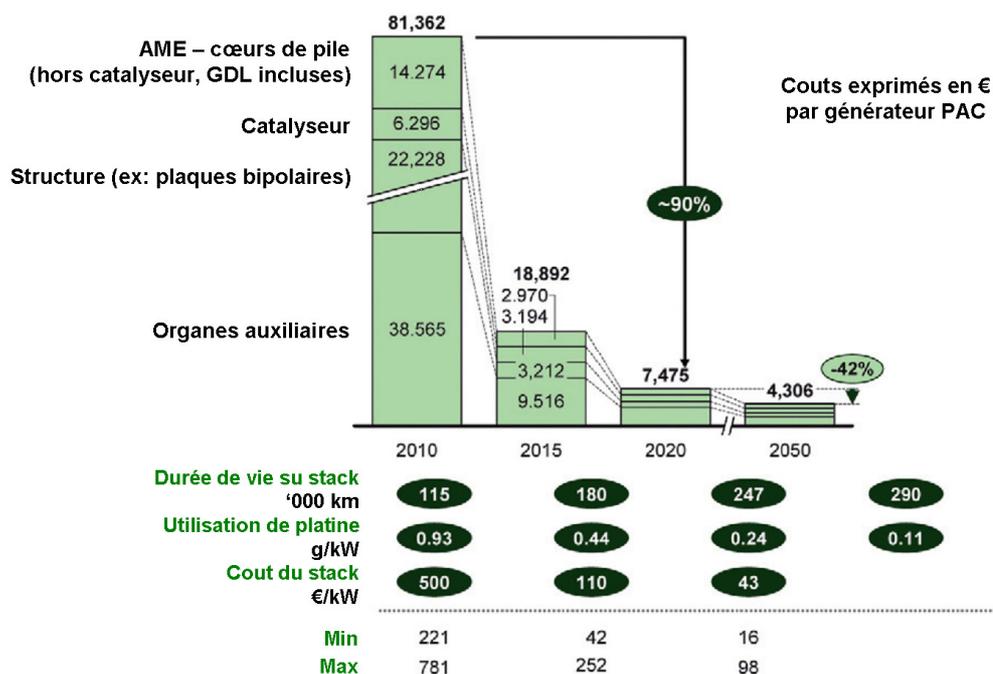


Figure I.8 : Evolution des coûts des générateurs PAC pour automobile selon les hypothèses et l'étude réalisées par le cabinet MacKinsey en 2010 [MacKinsey - EU Coalition 2010].

- A propos du platine

L'utilisation du catalyseur platine est très souvent présentée comme le verrou technologique majeur lié aux PAC de type PEM. Il faut actuellement environ 1g de platine pour une puissance de 1 kW, soit une cinquantaine de grammes pour un petit groupe électrogène d'automobile citadine (20 fois moins qu'au début des années 1990). A comparer avec les 2 à 5 g utilisés aujourd'hui dans un pot catalytique. Cours du platine au 07/10/2008 : 1g à 23 €. On comprend que les charges en platine utilisées actuellement dans les électrodes PEM ne satisfont pas encore au critère de coût drastique d'un marché de masse tel que celui de l'automobile (environ 35 € du kW en 2008). Pour ce type d'application, le platine demeure encore un problème. Pour autant, la part imputable à l'utilisation de ce catalyseur dans le coût de revient total d'un groupe électrogène PAC commercialisé en 2008 par la société HELION (Areva) de quelques dizaines de kW (soit du type utilisé dans le projet ANR SPACT 80) n'est que de 3% (chiffre communiqué par HELION au GDR PACTE 2008 à Grenoble). Ce qui montre bien que les recherches dans le domaine des PAC doivent aussi être menées sur les aspects système et intégration. Il n'en demeure pas moins que l'**approvisionnement en matériaux** (on peut penser au platine notamment) et le **cycle de vie** des générateurs PAC sont des points importants à prendre en considération. Le platine des PAC, à l'instar du Lithium pour les batteries, a des réserves limitées (réserves mondiales estimées à 36000 t en 2005) [Morin 2009]. De manière un peu similaire à ce qui est proposé pour les batteries, des solutions de leasing sont évoquées. Le platine des PAC serait alors loué à l'utilisateur.

- Des progrès importants ont été réalisés ces dernières années

Il est important d'insister sur le fait que des progrès très significatifs ont été réalisés ces dernières années sur la technologie des systèmes PAC. Depuis 2000, la quantité de platine utilisée dans les électrodes de PAC de type PEM a été divisée par 10 [Lucchese Progrès réalisés 2008]. Des **réductions de coûts** très importantes au niveau des plaques bipolaires distribuant les gaz dans les PAC ont été rendues possibles par le **développement de procédés d'industrialisation à grande échelle** (emboutissage de plaques métalliques) [Clefs du CEA n°50-51 2005]. Les épaisseurs des membranes ont été divisées par trois, améliorant ainsi la conductivité des électrolytes, et les durées de vie des membranes montées dans monocellules de PAC atteignent les 5000 h et même davantage. Le stockage des gaz est réalisé de plus en plus couramment à 350 bars. Des avancées au niveau du système (intégration du stack PAC dans son environnement, auxiliaires) ont également été enregistrées.

En France, si en 2000 l'acquisition d'une PAC ou d'un système PAC par un laboratoire de recherche travaillant dans le domaine des SPI (génie électrique par exemple) s'avérait particulièrement difficile (car peu d'objets disponibles à l'achat), dix ans plus tard, la chose est devenue bien plus facilement envisageable, y compris au niveau des IUT, des écoles d'ingénieurs... Des gammes de produits sont disponibles allant du « presque jouet » [Heliocentris] au banc de test pédagogique / didactique [Bahia]. D'un produit très rare de laboratoire (travaillant sur les matériaux, les procédés), les systèmes PAC ont progressivement conquis les laboratoires de recherche orientés systèmes (laboratoires de génie électrique), puis les salles de Travaux Pratiques dans les universités.

I.5.11 Organisation de la recherche sur l'hydrogène et les PAC

- Feuilles de route et analyses technico-économiques du déploiement des filières PAC et hydrogène

Les feuilles de route (« roadmaps ») correspondent à des outils analytiques mis en œuvre dans le management de la recherche pour établir des thématiques prioritaires de R&D et faire des arbitrages.

On peut tout d'abord s'interroger sur la manière d'établir une feuille de route et de penser une dynamique d'émergence de la filière PAC et hydrogène. Dans sa présentation, Michel Gioria des Services de programmation de la recherche à l'ADEME présente une démarche méthodologique destinée à établir des feuilles de route technologiques [Gioria 2008].

Différentes projections (« roadmaps ») et analyses technico-économiques du déploiement des filières PAC et hydrogène sont proposées :

- sur les sites internet des industriels constructeurs de PAC [Bouchard 2008],
- par les agences de recherche, l'ADEME [Hinicio 2010], les services de l'Etat tels que la DRAST [Larrue 2005] et par ceux de l'Union Européenne, via la plateforme « Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking » (FCH-JU). La feuille de route européenne est contenue dans le « Multi-Annual Implementation Plan » (MAIP, version finale mai 2009), basé sur les documents « Hydrogen and Fuel Cells – A Vision for our Future » (2003), « Strategic Research Agenda » (2005), la Stratégie de Déploiement (2005) et l'Implémentation Plan (2006) de la « Hydrogen and Fuel Cells Technology Platform » du 6ème PCRD.

- des organismes et laboratoires de recherche [Lucchese Lancement HYPAC 2008] [Ahluwalia JPS 2008] [Keles IJHE 2008], des grandes écoles [Dufoix 2004]. Les feuilles de route sont aussi élaborées dans le cadre de projets spécifiques tels que le projet européen HyWays [HyWays] qui vise à proposer une stratégie de développement des applications commerciales de l'hydrogène d'ici 2030-2050.

Dans le rapport Hinicio de 2010 commandé par l'ADEME [Hinicio 2010], les réalités possibles de la filière hydrogène dans la France de 2050 sont compartimentées en 4 visions contrastées, établies grâce à l'identification de deux paramètres clés :

- la production : centralisée versus décentralisée,
- les usages : concentrés versus diffus,

et représentées sous la forme du diagramme de synthèse présenté ci-après. Les détails des visions (hypothèses, conséquences) peuvent être consultés à partir de [Hinicio 2010].

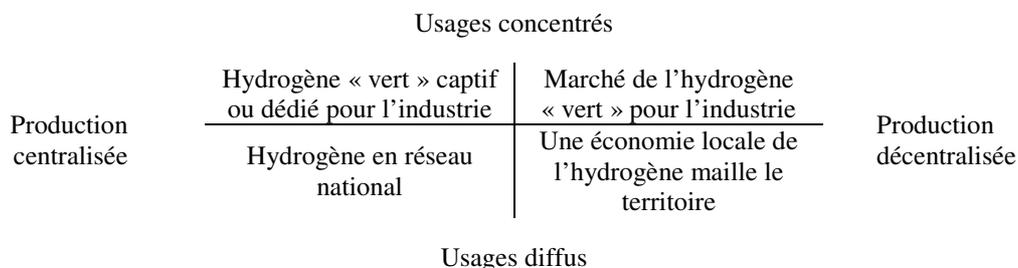


Figure I.9 : Quatre visions possibles de la filière hydrogène française en 2050 [Hinicio 2010].

- Programmes de recherche et premiers déploiements commerciaux à l'international

A l'échelle internationale existent des réseaux et des institutions visant la promotion de l'hydrogène et de ses technologies. L'Agence Internationale de l'Energie, via son International Partnership for the Hydrogen Economy (IPHE), estime l'effort de recherche mondial dans ce domaine pour l'année 2006 à 1 G€ d'investissement public et 3.5 G€ d'investissement privés [IPHE].

Les états très actifs en termes de recherche ont bien sûr des programmes dédiés [BEUZIT PIE CNRS 2009] et ils se traduisent très souvent par de premières introductions commerciales.

Les **Etats-Unis** ont lancé en 2003 l'« Hydrogen Fuel Initiative » appelée à mobiliser \$1,2 milliards sur 5 ans. En 2010, la proposition du Secrétaire à l'Energie de réduire substantiellement le budget à 64 M\$ (en raison du retard pris dans le développement de l'infrastructure) n'a pas été suivie par le Congrès, qui a rétabli le financement à 174 M\$. Le programme du Département à l'Energie (DoE, <http://www.hydrogen.energy.gov>) américain implique des partenariats industriels tels que FreedomCAR et Fuel Partnership regroupant le U.S. Council for Automotive Research (Ford, General Motors Corporation, Chrysler LLC), les compagnies pétrolières (BP America, Chevron, ConocoPhillips, ExxonMobil et Shell) et les énergéticiens (Southern California Edison et DTE Energy). Côté production d'hydrogène par électrolyse à haute température, ce programme est lié au programme nucléaire avec l'INL (Idaho National Laboratory et le MIT comme acteurs principaux.

On peut aussi indiquer qu'en 2010, plus de 1000 chariots élévateurs et engins de manutention à PAC, plus de 600 générateurs électriques à PAC pour des applications télécom avaient été installés ou commandés par des industriels [The Business Case for Fuel Cells 2010].

Le **Japon** a été un des premiers pays à mettre en place une coordination des efforts de recherche au niveau académique et industriel dans le domaine de l'hydrogène et des PAC et une feuille de route pour les applications stationnaire et transport. Ces deux domaines impliquent les PEMFC avec une forte recherche en interne chez les constructeurs automobiles Toyota, Nissan et Honda, ainsi que dans les centres tels que le The Polymer Electrolyte Fuel Cell Cutting-Edge Research Center (FC-Cubic), centre de recherche né à l'initiative du Ministère de l'Economie, du Commerce et de l'Industrie et NEDO (Industrial Technology Development Organisation). NEDO développe un programme sur le développement de la technologie PEMFC et finance divers projets tel que le projet Nanomaterials for High Performance Fuel Cells for Transport Applications (Université de Yamanashi). A noter que le Japon comptait en 2010 déjà plus de 5000 installations stationnaires de cogénération à PAC, ce qui lui permet de bénéficier potentiellement d'un retour d'expérience très significatif.

L'**Europe** n'est pas en reste. Dans le document présentant le « Plan stratégique européen pour les technologies énergétiques (plan SET) », figure une liste de 7 items relatifs aux « principaux défis technologiques à relever par l'UE au cours des 10 prochaines années pour atteindre les objectifs de 2020 » [Plan SET 2007]. L'un des 7 défis technologiques est le suivant : « lancer sur le marché grand public des appareils et des systèmes de conversion énergétique et d'utilisation finale plus efficaces dans le secteur de la construction, les transports et l'industrie, comme la polygénération et les piles à combustible ». Parmi une liste de 7 items relatifs aux « principaux défis technologiques à relever par l'UE au cours des 10 prochaines années pour réaliser la vision de 2050 » : le plan indique qu'il faut « développer les technologies et créer les conditions permettant à l'industrie de commercialiser des véhicules équipés de piles à combustible à l'hydrogène ».

Au niveau européen, les ambitions sont donc fortes et les différents programmes cadres successifs (PCRD) ont donné lieu à une augmentation croissante des ressources allouées aux recherches sur l'hydrogène et les PAC : 8 M€ pour le 2ème PCRD (1986-1990), 145 M€ pour PCRD5 (1999-2002) et pour PCRD6 environ 320 M€, financement ne prenant pas en compte la contribution industrielle. Actuellement, pour le PCRD7, l'essentiel des financements des projets est réalisé dans le cadre d'une Joint Technology Initiative (JTI) au travers de la plateforme FCH-JU. Dans ce nouveau contexte, qui témoigne de la reconnaissance d'une forme de maturité atteinte par les technologies PAC et hydrogène, la Commission Européenne contribuera au programme à hauteur de 470 M€ tandis que 470 M€ proviendront du secteur privé. La plateforme est structurée en quatre domaines d'application : transport et infrastructure, production d'hydrogène et distribution, stationnaire et co-génération, marchés précoces. La répartition sera environ respectivement 144-162 M€, 45-54 M€, 154-167 M€ et 54-63

Chapitre I

M€ sur l'ensemble de la période 2008-2013. Les applications sont ouvertes aux technologies PEMFC, MCFC et SOFC [Ravagni HyPAC 2008] [Millet HyForum 2008].

Au niveau de l'Union européenne, des états membres tels l'**Allemagne** [Bonhoff 2008], le **Royaume Uni** et le **Danemark** ont mis en place des programmes nationaux de recherche sur les PAC. Le plus important d'entre eux étant le programme allemand "Fuel Cell Technology Innovation" (ou NIP – National Innovation Program), avec un financement de 500 M€ jusqu'en 2015 pour la recherche, le développement et les démonstrations, niveau équivalent à la participation de l'Europe dans la FCH-JU. Par ailleurs, le programme allemand consacre un tiers des financements au développement des SOFC pour les applications stationnaires en co-génération.

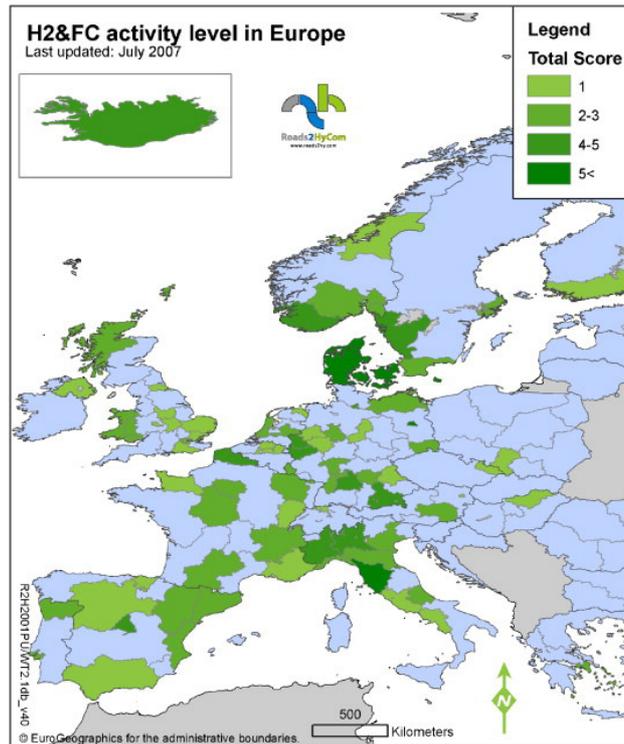


Figure I.10 : « Niveaux des activités » menées en 2007 autour de l'hydrogène et des PAC en Europe.
Source : <http://www.roads2hy.com/>.

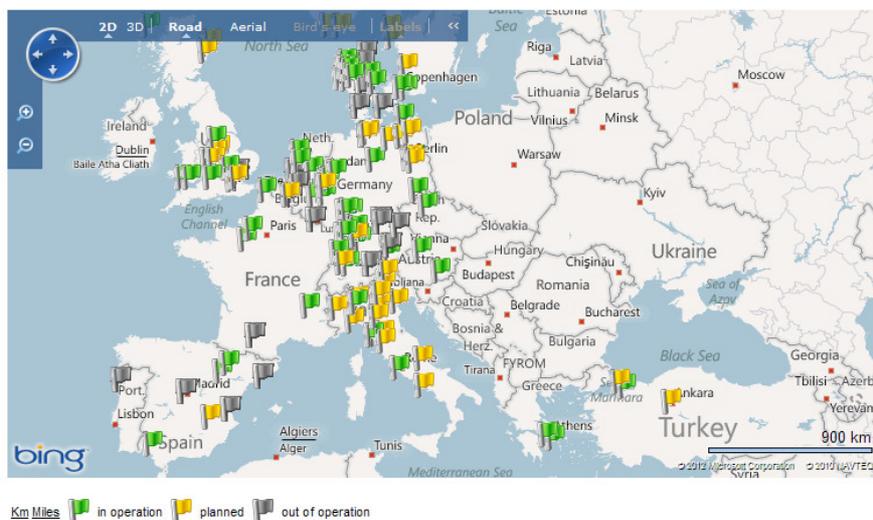


Figure I.11 : Implantation de stations services hydrogène en Europe (<http://www.h2stations.org/>).

- La recherche en France

Les recherches à mener sur l'hydrogène et les PAC s'inscrivent dans un cadre lié à la Stratégie nationale de recherche et d'innovation [SNRI 2009]. La Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005 de programme fixant les orientations de la politique énergétique (NOR: ECOX0400059L) Version consolidée au 06 août 2009 souligne l'importance de la thématique PAC et hydrogène [Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005] :

« ... Par ailleurs, l'Etat appuie l'utilisation des véhicules hybrides ou électriques et la recherche sur l'utilisation de la pile à combustible et de l'hydrogène....

- l'exploitation du potentiel de nouveaux vecteurs de rupture comme l'hydrogène, pour lequel doivent être mis au point ou améliorés, d'une part, des procédés de production comme l'électrolyse, le reformage d'hydrocarbures, la gazéification de la biomasse, la décomposition photo-électrochimique de l'eau ou des cycles physico-chimiques utilisant la chaleur délivrée par des nouveaux réacteurs nucléaires à haute température et, d'autre part, des technologies de stockage, de transport et d'utilisation, notamment avec les piles à combustible, les moteurs et les turbines ;

- l'approfondissement de la recherche sur le stockage de l'énergie pour limiter les inconvénients liés à l'intermittence des énergies renouvelables et optimiser le fonctionnement de la filière nucléaire.

Pour rassembler les compétences, coordonner les efforts et favoriser les recherches concernant l'hydrogène et les composés hydrogénés, il est confié au ministère chargé de l'énergie, avec le concours de l'Institut français du pétrole, du Commissariat à l'énergie atomique et du Centre national de la recherche scientifique notamment, une mission spécifique sur ce sujet, conduisant à la publication d'un rapport annuel. »

Depuis 2009, l'**Agence Nationale de la Recherche (ANR)** a mis en place le programme H-PAC (2009-2011), qui fait lui-même suite aux programmes PAN-H (2005-2008) et PACo (1999-2005). Ces programmes comme tous les programmes de l'ANR fonctionnent sur le principe de réponses à des appels à projets (AAP). De 2005 à 2008, le montant global du financement a été de l'ordre de 84 M€ sur l'ensemble des technologies hydrogène, PEMFC et SOFC. Au total sur les 179 projets déposés pour une demande d'aide de 248 M€, 59 ont été financés en 2005, 2006, 2007, à hauteur de 72 M€, soit en moyenne 1,2 M€ par projet. La part dédiée aux recherches sur les PEMFC représentent environ 9,3 M€ en 2005, 6,8 M€ en 2006, 1,2 M€ en 2007 et 3,7 M€ en 2008. Les projets associent généralement les acteurs industriels de la filière tels que Axane, Air Liquide, PCA, Helion et des PME Paxitech, N-GHY, CETH..., des instituts de recherche, les laboratoires du CEA, du CNRS et des universités. Dans ce contexte, plusieurs technologies de PAC ont été développées par le CEA et PSA (GENEPAC), par Helion - AREVA, par Axane - Air Liquide notamment.

En 2005, les PEMFC ont représenté 55 % des financements ANR PAN-H, les SOFC et PCFC 12 %, la production d'hydrogène par électrolyse 11 %. En 2006, la production d'hydrogène est montée à 26 % alors que les SOFC ne figuraient plus dans l'AAP. En 2007 et 2008, le programme PAN-H a vu son montant divisé par 3, les SOFC et PCFC ne figuraient toujours pas tandis que la production d'hydrogène par électrolyse continuait de progresser. En 2009, malgré un niveau de financement très bas, les SOFC et PCFC réapparaissent pour la co-génération stationnaire [Programmation ANR 2009].

L'**ADEME** soutient depuis 1999 des projets sur le thème général des PAC et a participé en janvier 2009 avec l'Association Française de l'Hydrogène (AFH2) à la création de la Plateforme Française HyPac destinée à promouvoir les actions sur l'hydrogène et les PAC. Pour l'ADEME, l'accès au marché des NTE passe par la pénétration de niches favorisant l'apprentissage [AMI ADEME démonstrateurs 2009].

OSEO doit financer à hauteur de 67 M€ le programme H2E coordonné par Air Liquide. L'investissement global est de 200 M€. Le programme regroupe autour d'Air Liquide des industriels tels qu'Axane, Helion, Alfa Laval Vicarb, Imphy Alloys, Raigi, Alphaplast ainsi que des organismes ou instituts : CEA, INERIS, IPREM et des laboratoires du CNRS.

Les laboratoires du **CNRS et d'autres EPST** (dont l'IFSTTAR) ayant une activité dans le domaine des PAC sont à présent structurés au sein du GDR 3339 PACS, créé le 1^{er} janvier 2010 pour une durée de 4 ans. Des industriels (CEA, EDF...) participent également à ce GDR. Composé de plus de 150 personnes, il est structuré en 3 axes : PACEM (Piles A Combustible à Electrolyte Membrane), SOC (Solid Oxide Cells) et systèmes.

- Un premier exemple d'introduction de véhicules à PAC en France

C'est en effet une station hydrogène de dernière génération, développée et installée par Air Liquide, qui a permis d'effectuer le jeudi 5 janvier 2012, les premiers remplissages de deux chariots élévateurs à hydrogène de la plate-forme logistique européenne d'Air Liquide Welding de Vatry, Marne - France. Le début de l'année 2012 a vu le déploiement en France sur le site de la plateforme aéroportuaire de Vatry des premiers chariots élévateurs équipés de PAC. Cet événement intervient après un accord trouvé entre Plug Power et Axane -Air Liquide Hydrogen Energy. Au-delà de la réduction des émissions de CO₂ de près de 60% offerte par le Blue Hydrogen d'Air Liquide par rapport à la base du mix électrique Européen à 300 g de CO₂/kWh, les plateformes logistique ainsi équipées de solutions à hydrogène peuvent apporter, grâce à des points de ravitaillement multiples et des pleins rapides, un gain de productivité de l'ordre de 10 % (par rapport aux chariots électriques à batteries).



Figure I.12 : Remplissage en hydrogène d'un chariot élévateur à PAC sur la plateforme de Vatry (51). Source : Air Liquide.

I.5.12 Recherches de l'IFSTTAR sur les générateurs PAC embarqués

Depuis 2000, l'INRETS devenu IFSTTAR mène des recherches sur le générateur embarqué à PAC et celles-ci font l'objet d'un partenariat important avec la plateforme d'essais de PAC de Belfort. Ces activités sont bien sûr étroitement liées aux contextes actuels, nationaux et internationaux, du véhicule propre et de la réduction des émissions de gaz à effet de serre. Ces sujets constituant des préoccupations de premier ordre pour l'Institut. L'IFSTTAR se doit d'apporter des réponses sur ces thématiques, dans le champ de la technologie, en particulier par **l'évaluation du potentiel de développement des groupes électrogènes embarqués pour chaînes de traction innovantes et la contribution aux recherches sur ces systèmes**. Les résultats des travaux permettent de constituer des bases de données utiles par exemple à des actions de pré-normalisation et normalisation et pour informer les tutelles (Ministères, Régions, Europe...). L'IFSTTAR partage son expérience et confronte son approche avec celles des chercheurs issus d'autres unités de recherche et aux disciplines scientifiques différentes (environnement, urbanisme, économie, sociologie, psychologie...) en s'impliquant notamment au sein de structures de recherche transverse à l'IFSTTAR, les « GERI » *Effet de serre et transport, Véhicule Electrique et Innovations dans les Transports urbains guidés et régionaux*.

- L'IFSTTAR sur la plateforme systèmes PAC de Belfort

L'implication de l'INRETS dans la thématique PAC résulte à l'origine d'une volonté politique de créer à Belfort un centre de recherche dédié à cette technologie, et de la demande du Ministère faite à l'INRETS en 1999 de contribuer à la création de ce centre en impliquant des personnels sur le site. Avec la livraison de la plateforme d'essais de Belfort en 2002 puis la création de FC LAB en 2006, des moyens et des compétences ont été progressivement regroupés de manière à proposer une force de recherche nationale à visibilité européenne capable de contribuer à l'amélioration de la connaissance des systèmes PAC utilisés dans les applications liées aux transports. L'IFSTTAR bénéficie maintenant sur la plateforme de Belfort d'un cadre de recherche très multidisciplinaire et d'un instrument public d'importance possédant peu d'équivalents en Europe. L'implication de l'IFSTTAR est motivée par les besoins d'expérimenter sur des objets aux puissances significatives, de reproduire en laboratoire les conditions d'usage liées à l'environnement transport (dynamiques de courant de charge liées aux profils de mission véhicule, températures négatives, vibrations, polluants atmosphériques...),

d'évaluer les durées de vie, d'accéder à la compréhension des modes de défaillance des systèmes PAC, dans un environnement sécurité maîtrisé.

Les recherches menées par l'IFSTTAR sur la plateforme de Belfort s'articulent autour de trois thématiques principales :

- la **durée de vie**, la **fiabilité** et le **diagnostic** du générateur pile,
- les **auxiliaires** pour systèmes PAC, utiles aux conditionnements des fluides et des énergies (compresseurs, humidificateurs, systèmes de refroidissement, convertisseurs électroniques),
- la **gestion de l'énergie** et l'**architecture système**.

Les recherches de l'institut se font essentiellement à travers des projets partenariaux aujourd'hui financés très majoritairement par les pouvoirs publics (ANR ou UE).

- Une recherche sur les systèmes PAC avec une forte composante expérimentale

Actuellement, les activités de recherches menées par l'IFSTTAR portent essentiellement :

- sur **l'expérimentation et l'intégration des systèmes PAC dans l'environnement transport** (caractérisation et amélioration des performances de systèmes PAC avec un focus particulier sur les aspects endurance, fiabilité et diagnostic) ; ces activités sont réalisées sur la plateforme de Belfort,
- sur **l'interface électrique PAC - convertisseur électronique et la maîtrise des contraintes en puissance de la mission transport** (avec notamment la prise en compte des aspects fonctionnement en modes dégradés et tolérance aux pannes du système PAC) ; ces travaux sont menés dans le cadre du laboratoire commun SPEELAB – Sud Paris Energie Electrique (CNAM, ENS Cachan, IFSTTAR, Paris Sud, Supélec, Université Pierre et Marie Curie).

Les travaux de recherche IFSTTAR se caractérisent par une approche expérimentale forte, justifiée par la nécessaire caractérisation des performances des piles existantes aux puissances significatives pour les applications transport, par l'évaluation de leurs durées de vie et de leurs modes de défaillance sous les contraintes réelles des applications embarquées. La démarche scientifique adoptée mêle étroitement **expérimentation, analyse des phénomènes, modélisation de l'expérience et modélisation physique**.

Tous ces travaux peuvent au final venir enrichir des outils logiciels de synthèse développés par l'IFSTTAR [TRIGUI VEHLIB 2004] permettant l'évaluation des systèmes de transport incluant des générateurs à PAC.

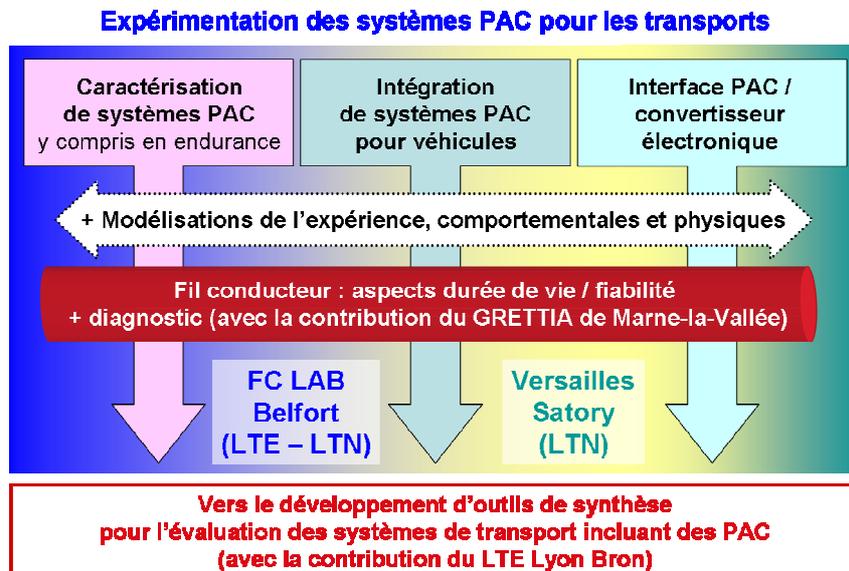


Figure I.13 : L'organisation de la recherche sur les systèmes PAC à l'IFSTTAR [Candusso ATEC ITS 2009].

Les actions de recherche IFSTTAR sont menées dans des cadres contractuels via des supports financiers régionaux (DRIRE Franche-Comté), nationaux (ANR) et européens, mais aussi à travers des actions à caractère exploratoire et grâce à des implications dans la formation par et à la recherche

(dans le cadre des cursus proposés aux étudiants par les universités de Belfort, UFC et UTBM, de l'ENS Cachan et de l'université d'Orsay).

I.6 Conclusions et perspectives

Notre société fait simultanément face à des problématiques environnementales importantes et à la question de l'indépendance énergétique inhérente à la croissance de la demande mondiale en énergie. Dans le secteur des transports, elle ressent la nécessité de mobilités alternatives, exprime le besoin de chaînes énergétiques plus efficaces et tente de s'affranchir progressivement des énergies fossiles, du pétrole en particulier. Des innovations permettant de renforcer une offre déjà existante (ex : amélioration des moteurs thermiques) sont nécessaires, bonnes à prendre bien sûr, mais elles ne seront peut-être pas suffisantes au regard des enjeux évoqués. Il semble par ailleurs que, dans le domaine de la technologie, aucune solution dite « de rupture » n'ait aujourd'hui atteint un stade suffisant de maturité technologique, industrielle et commerciale nous permettant de passer à un nouveau « paradigme énergétique ». Devant un champ des possibles aussi ouvert, certains pays comme l'Allemagne affichent une attitude très volontariste dans leur effort pour développer tout un panel de nouvelles filières et technologies de l'énergie. D'autres sont amenés à faire des choix plus ciblés et à privilégier davantage certaines filières.

Pour certains, l'« hydrogène énergie » fait assurément figure de candidat potentiel pour succéder au pétrole dans les transports et ils appellent donc de leurs vœux l'avènement d'une « économie hydrogène ». D'autres plus mesurés considèrent que l'hydrogène pourra prendre une place plus grande dans le domaine de l'énergie, aux côtés de l'électricité. Dans un champ tellement arborescent à la fois en termes de procédés technologiques possibles et de voies applicatives envisageables, l'hydrogène (en tant que vecteur d'énergie flexible) et les PAC (des convertisseurs d'énergie à haut rendement) apparaissent au moins comme deux maillons capables d'accroître la durabilité (au sens du développement durable, de la soutenabilité) des chaînes énergétiques dans les systèmes de transport et à même de compléter l'offre du vecteur électricité (valeur ajoutée possible de l'hydrogène en termes de chaîne logistique : stockage et transport de gaz versus gestion des parcs de batteries électriques). L'hydrogène et les PAC mis en œuvre dans des systèmes de transports aux offres innovantes permettront sans doute aussi d'adresser des besoins nouveaux (flottes de véhicule en auto-partage ?).

Dans des documents stratégiques de référence portant sur le développement de l'hydrogène et des PAC (tels que ceux élaborés par la plateforme européenne HFP (Hydrogen and Fuel cell technology Platform) et présentés notamment dans le document « Plan d'implémentation » de 2006), le développement d'un marché de masse automobile et de l'infrastructure de distribution d'hydrogène associé est décrit comme l'aboutissement de la démarche de développement économique, mais à une échéance encore assez lointaine. On pourra donc remarquer à cette occasion que, jusqu'à présent, dans le domaine de l'énergie comme dans celui des transports, le passage d'un modèle énergétique à l'autre s'est opéré sur plusieurs décennies. On pourra donc aussi se poser alors la question de savoir si la mutation qui accompagnerait le passage vers une hypothétique civilisation / économie hydrogène pourrait être analysée à l'aune des déterminants qui ont opéré les changements conduisant de l'utilisation du charbon à celle du pétrole. Et de se demander dans quelle mesure les caractéristiques physiques de l'hydrogène pourraient influencer sur la forme des futurs véhicules et modes de transport. L'importance du facteur temps observée dans le processus de développement des technologies nouvelles liées au transport et à l'énergie interroge aussi sur la façon de mener des recherches, d'établir des feuilles de route (recherche de la « rupture technologique » versus recherche incrémentale et recherche sur le long terme).

Si les PAC n'apparaissent pas destinées à être introduites en premier lieu sur le marché de masse automobile [Beuzit 2007], du fait d'un cahier des charges particulièrement exigeant (coûts, durée de vie, problématiques technico-économiques, sociétales liées à la filière hydrogène et au déploiement de ses technologies), des efforts particuliers doivent donc être portés sur le développement d'autres types d'applications, plus spécialisées, aux cahiers des charges plus favorables à une introduction précoce des technologies PAC. Ces marchés se situent majoritairement du côté des applications stationnaires (groupes d'alimentation de secours et d'alimentation de sites isolés notamment). Mais des applications transport correspondant à des marchés de niches sont aussi concernées (petites flottes captives de

véhicules de voirie, de véhicules de transport en commun, flottes de chariots élévateurs...). Ces marchés précurseurs ou précoces permettent à la fois des actions de démonstration préindustrielle, des expérimentations de systèmes de transport innovants d'un point de vue technologique mais aussi socio-économique (avec en corollaire la recherche de modèles économiques adaptés, viables permettant les premiers déploiements effectifs), une confrontation aux conditions réelles d'usage. Ces marchés favorisent une forme d'apprentissage qui doit aller cependant de pair avec des actions de recherches moins finalisées.

Pour satisfaire aux contraintes du triptyque « performance (rendement) – durée de vie / fiabilité – coût » des applications visées, les recherches sur les systèmes PAC continuent ainsi à être menées aussi bien au niveau des matériaux et de leurs cycles de vie (ex : catalyseur des électrodes, membranes des électrolytes) que des procédés d'industrialisation des composants du stack (ex : plaques bipolaires distribuant les réactifs réalisées par emboutissage pour la très grande série) et de l'optimisation globale du système (stack et auxiliaires).

Les activités menées sur les générateurs PAC par l'IFSTTAR font l'objet d'un partenariat important avec la plateforme expérimentale de Belfort et mes travaux sont menés dans ce cadre autour de la durée de vie, de la fiabilité et de l'intégration des PAC dans les systèmes applicatifs. L'implication de l'IFSTTAR à Belfort est principalement liée au besoin d'**expérimenter sur des objets possédant des niveaux de puissance significatifs pour les applications véhicule**, et l'objectif final est d'accéder au retour d'expérience technologique et fonctionnelle des PAC dans le domaine des transports. Les travaux de recherche menés au laboratoire se caractérisent par **une approche expérimentale forte, justifiée par la nécessaire caractérisation des performances des piles existantes, par l'évaluation de leurs durées de vie et de leurs modes de défaillance sous les contraintes réelles des applications embarquées**. La démarche scientifique adoptée mêle étroitement expérimentation, analyse des phénomènes, modélisation de l'expérience et modélisation physique. Les PAC et les technologies de l'hydrogène accédant progressivement à des degrés de maturité de plus en plus grands (que l'on peut qualifier de « préindustriels »), l'IFSTTAR a aussi l'intention de s'engager dans des actions de recherche visant le déploiement et l'évaluation in-situ de filières, de systèmes de transport innovants (voire de « Smart Energy Grid » à l'échelle d'un éco-quartier, d'« écosystèmes ») sur différents territoires, alsaciens et franc-comtois notamment.

Chapitre I

I.7 Références

[ADEME biocarburants 2010]	ADEME. Analyses de Cycle de Vie appliquées aux biocarburants de première génération consommés en France. Février 2010. 236 pages.
[AFH2 2012]	Site internet de l'Association Française de l'Hydrogène - AFH2 (2012) : http://www.afh2.org/f/index.php P. Malbrunot (AFH2). Historique de l'hydrogène. Mémento de l'Hydrogène. Fiche 1.1. http://www.afh2.org/uploads/memento/Fiche%201.1%20-%20historique.pdf
[Agator 2008]	Jean-Marc Agator, Jacques Chéron, Christian Ngô, Guillaume Trap. Hydrogène, énergie de demain? Omni Science, ECRIN. Mai 2008, 110 pages.
[Ahluwalia JPS 2008]	R. K. Ahluwalia, X. Wang (Argonne National Laboratory - USA). Fuel cell systems for transportation: Status and trends. Journal of Power Sources 177 (2008) p167-176.
[Alleau Facteur 4 2007]	Thierry Alleau (Association Française de l'Hydrogène - AFH2). Le facteur 4. Commentaires sur la faisabilité en France. 27 avril 2007 – Version 2.5. 8 pages. http://www.afh2.org/uploads/actualite/Facteur%204%20V%202.5.doc
[AMI ADEME démonstrateurs 2009]	ADEME. Appel à manifestation d'intérêt (AMI) démonstrateurs de recherche en Nouvelles Technologies de l'Energie (NTE). Véhicules routiers à faibles émissions de gaz à effet de serre. Edition de mars 2009. 20 pages.
[AMTUIR]	AMTUIR - Musée des Transports Urbains. 1 rue Gabriel de Mortillet - 77 500 Chelles – France. 2012. http://www.amtuur.org/03_htu_generale/htu_2_1870_1890/htu_2.htm
[Andújar 2009]	J.M. Andújar, F. Segura. Fuel cells: History and updating. A walk along two centuries. Renewable and Sustainable Energy Reviews. Volume 13, n°9. Décembre 2009. Pages 2309-2322.
[Auprêtre 2000]	F. Auprêtre, C. Descorme, D. Duprez. (LACOO - Université de Poitiers). Le vaporeformage catalytique : un vieux procédé pour une solution nouvelle. Colloque Piles à combustible et Interfaces pour les transports. 9 et 10 novembre 2000 à Belfort.
[Auto Journal 1978]	La pile à combustible, l'auto de demain. L'Auto Journal. 15/06/1978.
[Axe 56 2010]	Revue Axe de l'INRETS. N°56. Juin – juillet 2010. Page 6/12.
[Baccaïni Déplacements Insee 2007]	Brigitte Baccaïni, François Sémécurbe, Gwenaëlle Thomas. Les déplacements domicile-travail amplifiés par la périurbanisation. Collection Insee Première de l'Insee. N° 1129. Mars 2007.
[Bahia]	BAHIA, kit pédagogique "pile à combustible" de la société HELION, filiale d'AREVA. http://www.helion-hydrogen.com/images/Bahia-DescriptifTechnique.pdf
[Balaceanu 1974]	J. C. Balaceanu. L'hydrogène. Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 29 (1974). N°3. Pages 291-304. DOI: 10.2516/ogst:1974013.
[Bento Thèse 2010]	Nuno Bento. La transition vers une économie de l'hydrogène : infrastructures et changement technique. Thèse de Doctorat es Sciences Economiques. Université de Grenoble – LEPII. Soutenue le 12 mars 2010. 423 pages. http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00463857/en/

Chapitre I

[Beretta 2010]	Joseph Beretta (PSA Peugeot-Citroën). Les véhicules "décarbonnés". Conférence CNAM-SIA-LMP-ENSPM. 2010. Diaporama de 77 planches. http://sti.cnam.fr/turbomachines-moteurs/publications/
[Beuzit 2007]	Pierre Beuzit. Hydrogène, l'avenir de la voiture? Editions l'Archipel. Octobre 2007.
[Beuzit PIE CNRS 2009]	Pierre Beuzit, Gérald Pourcelly, Deborah Jones, Jean Claude Grenier, Michel Latroche, François Ropital, Florence Lefebvre-Joud, Loïc Antoine, Ludmila Fauthier, Philippe Mulard. Document de travail de l'Atelier « Piles A Combustible et Hydrogène ». Colloque annuel du Programme Interdisciplinaire Energie du CNRS. Nantes, 16 – 18 Novembre 2009. 21 pages.
[Bonhoff 2008]	Klaus Bonhoff (Nationale Organisation Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie). Hydrogen and Transportation. Future Energy Systems. Présentation faite à la journée HyPaC du 12/11/2008. http://www.afh2.org/uploads/actualite/11H00%20BONHOFFHydrogen%20and%20Transportation%20080117_KB.pdf
[Bossel EPEFC 2005]	Ulf Bossel. On the Way to a Sustainable Energy Future. 3rd European Polymer Electrolyte Fuel Cell Forum (EPEFC). Juillet 2005. Lucerne, Suisse. Présentation de 32 planches.
[Bouchard 2008]	Patrick Bouchard. Les systèmes énergétiques du futur : la place de l'hydrogène. Présentation de 13 planches. Journée ANR - AFH2 - 23 janvier 2008. http://www.afh2.org/uploads/actualite/bouchardjournee%20du%2023.01.08.pdf
[Boucher 2006]	Stephen Boucher. La Révolution de l'Hydrogène: vers une énergie propre et performante? Editions Le Félin/Echéances, Paris. 2006. 158 pages.
[Bourdeau Thèse 1999]	Béatrice Bourdeau. Évolution du parc automobile français entre 1970 et 2020. Projet de Thèse de Doctorat et Ingénierie de l'Environnement. Université de Savoie – Chambéry. Labo. de Chimie et Ingénierie de l'Environnement. 513 pages. 1999. http://www.inrets.fr/ur/lte/publications/publications-pdf/Joumard/these_Bourdeau.pdf
[Boursin 2012]	Site internet de Philippe Boursin (2012) : http://philippe.boursin.perso.sfr.fr/pgve.htm http://philippe.boursin.perso.sfr.fr/velec/pile.htm http://philippe.boursin.perso.sfr.fr/velec/pile2.htm
[Bréelle 1981]	Y. Bréelle, J. Cheron, P. Degobert, E. Goldenberg and A. Grehier. Institut Français du Pétrole. Fuel Cells. Review of Research. Outlook. Les piles à combustible. Bilan des travaux de recherches. Perspectives. Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol. 36 (1981). N°4. Pages 485-503. DOI: 10.2516/ogst:1981030.
[Callon 1979]	Michel Callon. L'État face à l'innovation technique. Le cas du véhicule électrique , Revue française de science politique, Année 1979, Volume 29 Numéro 3, p.426-447. http://www.persee.fr/web/revues/home/prescript/article/rfsp_0035-2950_1979_num_29_3_418601
[Candusso ATEC ITS 2009]	D. Candusso, F. Harel, A. De Bernardinis, P. Dupuy, G. Coquery (janvier 2010). L'INRETS expérimente et évalue des systèmes piles à combustible. Revue TEC Transport / Environnement / Circulation (ATEC – ITS France), n°204, octobre – décembre 2009. Pages 34-39, ISSN 0397-6513.

Chapitre I

[Candusso DEA 1998]	D. Candusso. Le véhicule électrique multi-sources. Rapport de DEA INPG Génie Electrique, Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble (LEG). Juin 1998.
[Chariots à PAC 2009]	Whole Foods Market to use Plug Power fuel cell power for forklifts. Fuel Cells Bulletin. Volume 2009, n°12. Décembre 2009. Page 3.
[Clefs du CEA n°50-51 2005]	L'hydrogène, les nouvelles technologies de l'énergie, Clefs CEA, n° 50-51. 2005. 157 pages : http://www.cea.fr/var/cea/publications/commande_clefs.php
[Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007]	Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement. Texte établi par la Direction Générale et la Direction Scientifique de l'INRETS, suite aux contributions des chercheurs de l'INRETS présentées lors du colloque Energie – Mobilité – Environnement du 4 octobre 2007. 20 pages.
[Coquery ESSCAP 2004]	G. Coquery, R. Lallemand, J. Kaut, A. De Monts, B. Soucaze-Guillous, J. Chabas, A. Darnault (2004). First accelerated ageing cycling test on supercapacitors for transportation applications: methodology, first results. ESSCAP'04 1st European Symposium on Supercapacitors & Applications, Belfort.
[CR préparation du Q 2009-2013]	Compte-rendu de la 3ième réunion du groupe de travail thème 1 de préparation du contrat quadriennal INRETS 2009-2013 le 18 mars 2009. 4 pages.
[De Bernardinis HyRail]	Alexandre De Bernardinis. Overview of hydrogen storage technologies for transportation and particular application for railway systems. Projet HyRAIL – Chapter for the position paper. 20 pages.
[Depris 2007]	Site internet de Daniel Depris. 2007. http://depris.cephes.free.fr/presscom/2007/003/
[Doll Energy Policy 2008]	Claus Doll, Martin Wietschel. Externalities of the transport sector and the role of hydrogen in a sustainable transport vision. Energy Policy, Volume 36, n°11. Novembre 2008. Pages 4069-4078.
[Dufoix 2004]	M. Dufoix, J-F. Mastrangelo, F. Valmage. Quelle place pour l'hydrogène dans les systèmes énergétiques. Atelier Changement Climatique 2003-2004. Rapport ENPC. 8 Mars 2004.
[FCTESTNET]	Site internet du projet européen FCTESTNET - Fuel Cell TESting and STandardisation thematic NETwork : http://ie.jrc.ec.europa.eu/fctestnet/
[Fruchart 2009]	D. Fruchart (2009). Problématiques du stockage d'énergie. Sous la direction de Yves Brunet. Chapitre 5 : Stockage de l'hydrogène. Pages 159 – 180. Traité EGEM. Editeur Hermès Lavoisier. 320 pages. ISBN 978-2-7462-2053-9.
[FUERO 2003]	Consortium FUERO avec VOLVO comme auteur principal. Specification of Tests Procedures for PEM Fuel Cell Stacks. Draft version 3. Mars 2003.
[Gabion 2009]	Mathieu Gabion, Michel Verrier, Pascal Chay. Turboalternateurs. Techniques de l'ingénieur. Référence D3530. Date de publication : 10 févr. 2009. 14 pages.
[Galley Gatignol 2001]	Robert Galley, Claude Gatignol (Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques, Assemblée Nationale n° 3216). Rapport sur les perspectives offertes par la technologie de la pile à combustible. 2001. 127 pages. http://www.assemblee-nationale.fr/11/rap-off/i3216.asp

Chapitre I

[GIEC]	Site internet du GIEC (Groupe Intergouvernemental d'experts sur l'Evolution du Climat) ou Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2012. http://www.ipcc.ch/
[Gioria 2008]	Michel Gioria (ADEME, Service de programmation de la recherche). Les Feuilles de route technologiques : définition, usages et éléments de méthode. 2008. Diaporama de 16 planches téléchargeable : http://www.afh2.org/uploads/actualite/MGioria_FDR%20Mthode.pdf
[Gouédard 2007]	Anne-Marie Gouédard, Isabelle Hildwein. Bibliographie réalisée par : DAEI/SESP/Centre de documentation de l'Aménagement et des Transports. Groupe de travail n° 1 : Lutter contre les changements climatiques et maîtriser l'énergie. Thème : Transports. 06/09/2007. 113 pages. http://www.legrenelle-environnement.gouv.fr/IMG/pdf/Biblio_Groupe_1_Theme_Transport_070907.pdf
[Groupe 1 Rapport de synthèse du Grenelle 2007]	Rapport de synthèse du Groupe 1 du Grenelle de l'Environnement. Lutter contre les changements climatiques et maîtriser l'énergie. 108 pages. 2007.
[Gualous 2007]	Hamid Gualous, Roland Gallay. Applications des supercondensateurs. Techniques de l'ingénieur. Référence D3335. Date de publication : 10 août 2007. 12 pages.
[Guyard 2011]	Christian Guyard. Vers des électrodes durables. La Recherche N°46. Décembre 2011. Pages 86-87.
[Heinz IJHE 2008]	Boris Heinz, Georg Erdmann. Dynamic effects on the acceptance of hydrogen technologies - an international comparison. International Journal of Hydrogen Energy, Volume 33, Issue 12, June 2008, Pages 3004-3008.
[Heliocentris]	Site internet de la société Heliocentris : http://www.heliocentris.com/
[Hinicio 2010]	Patrick Maio, Jean-Christophe Lanoix, Perrine Tisserand. Exercice Feuille de Route Hydrogène et Piles à Combustible. Rapport HINICIO pour l'ADEME. 4 Novembre 2010. 108 pages.
[HyWays]	Site internet du projet européen HyWays. http://www.hyways.de/
[INA]	Site internet de l'Institut National de l'Audiovisuel. http://www.dailymotion.com/video/x4zsc2_laboratoire-de-recherche-alsthom_news http://www.ina.fr/video/CAF97077144/laboratoire-de-recherche-alsthom.fr.html http://www.eco-transport.fr/histoire-voiture-electrique/
[INRETS vision stratégique 2020]	INRETS. Vision stratégique 2020. Version du 07/09/09. 18 pages.
[IPHE]	Site internet de l'IPHE (International Partnership for the Hydrogen Economy). http://www.iphe.net/index.html
[Ji-Yong Lee IJHE 2009]	Ji-Yong Lee, Moo-Sang Yu, Kyoung-Hoon Cha, Soo-Yeon Lee, Tae Won Lim, Tak Hur. A study on the environmental aspects of hydrogen pathways in Korea. International Journal of Hydrogen Energy, Volume 34, n°20. Octobre 2009. Pages 8455-8467.

Chapitre I

[Kartelec]	Histoire du véhicule électrique: 1960 – 1979. Site internet : http://www.kartelec.com/f/mob/historique2.htm
[Keles IJHE 2008]	Dogan Keles, Martin Wietschel, Dominik Möst, Otto Rentz. Market penetration of fuel cell vehicles – Analysis based on agent behaviour. International Journal of Hydrogen Energy, Volume 33, n°16. Août 2008. Pages 4444-4455.
[Keles IJHE 2008]	D. Keles et al. (Université et Fraunhofer ISI de Karlsruhe). Market penetration of fuel cell vehicles – Analysis based on agent behaviour. International Journal of Hydrogen Energy 33 (2008). Pages 4444 - 4455.
[Kempf 2008]	Hervé Kempf. Les ressources limitées de lithium pourraient freiner l'essor des voitures électriques. Le Monde. Article paru dans l'édition du 08/10/08.
[Khatir HDR 2005]	Zoubir Khatir. Méthodologies de Conception des Dispositifs Electroniques de Puissance. Rapport de synthèse pour l'Habilitation à Diriger des Recherches (HDR) en Sciences Physiques. Université Paris XI. 12 janvier 2005.
[Koschinski 2002]	Konrad Koschinski. Die Akku-Story. Batterie-Traktion. Eisenbahn Journal. Pages 10-17. Octobre 2002. B 7539 E. ISSN 0720-051 X.
[L'actualité chimique n°12 2001]	L'actualité chimique n°12 – L'hydrogène carburant de demain? – décembre 2001.
[Larroque Griset 2006]	Dominique Larroque, Pascal Griset. L'odyssée du transport électrique. Editeur : Cliomédia. Paru le 01/12/2006. ISBN : 2-909522-26-1. EAN : 9782909522265.
[Larrue 2005]	Philippe Larrue, Bastiaan de Laat, Sophie Bussillet. Stratégie PàC-Transport : Etude de la stratégie du développement de la pile à combustible dans le domaine des transports. Lettre de commande n°04MT5 040 du Ministère de l'Équipement, des Transports, de l'Aménagement du territoire, du Tourisme et de la Mer (Direction de la recherche et des affaires scientifiques et techniques - Mission transport). Rapport final 2005. 64 pages.
[Le Duigou IJHE 2011]	Alain Le Duigou, Marianne Miguet, Yves Amalric. French hydrogen markets in 2008 - Overview and future prospects. International Journal of Hydrogen Energy n°3 6 (2011) pp.8822-8830.
[Le Grenelle Environnement 2007]	Site internet du Grenelle Environnement. 2007. http://www.legrenelle-environnement.fr/
[Le Monde Dossier Pétrole 2008]	Faire face au troisième choc pétrolier. Dossier spécial pétrole. Le Monde. Jeudi 5 juin 2008, 5 pages.
[Le Patrimoine de la SNCF 1999]	Le Patrimoine de la SNCF et des chemins de fer français. Flohic Éditions. 1999. Pages. 103-110. ISBN 2-84234-069-8.
[Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005]	Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005 de programme fixant les orientations de la politique énergétique (NOR : ECOX0400059L). Journal Officiel de la République française du 14 juillet 2005. Version consolidée au 06 août 2009.

Chapitre I

[Lucchese Lancement HyPAC 2008]	Paul Lucchese (CEA). L'hydrogène et les piles à combustibles dans le monde. Programmes et Evolutions. Diaporama de 24 planches. Lancement HyPAC. 12 Novembre 2008, Paris. http://www.afh2.org/uploads/actualite/001%20lucchese.pdf
[Lucchese Progrès réalisés 2008]	Paul Lucchese (Directeur des Nouvelles Technologies de l'Energie au CEA). Activités internationales et progrès réalisés. Diaporama de 18 planches. Journée : Les systèmes énergétiques du futur : la place de l'Hydrogène. Mercredi 23 janvier 2008, Maison de la Chimie, Paris. http://www.afh2.org/uploads/actualite/lucchesecea.pdf
[MacKinsey - EU Coalition 2010]	A portfolio of power-trains for Europe: a fact-based analysis. The role of Battery Electric Vehicles, Plug-in Hybrids and Fuel Cell Electric Vehicles. NEW-IG Secrétariat. Bruxelles, Belgique. Novembre 2010. 68 pages. http://www.europeanclimate.org/documents/Power trains for Europe.pdf
[MaHyTec]	Site internet de la société MaHyTec (2012) : http://www.mahytec.com/
[Maupu 2006]	Jean-Louis Maupu. La ville creuse. Pour un urbanisme durable - Nouvel agencement des circulations et des lieux. L'harmattan. 01/07/2006. 178 pages.
[Miachon Thèse 1995]	Sylvain Miachon. Développement d'une pile à combustible hydrogène / oxygène à électrolyte polymère solide de 100 cm ² à hydratation interne. Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I. date de soutenance : 11 mai 1995. 150 pages. http://sylvainmiachon.free.fr/PDF/theseSM.pdf
[Millet HyForum 2008]	Patrice Millet (European Commission DG RTD – Value Added Materials Unit). Hydrogen and Fuel Cells in the 7th EU Framework Programme: A challenge for Materials Science. Présentation de 44 planches faite au HyForum2008. Changsha, Chine. 4-6 Août 2008.
[Morin 2009]	Hervé Morin. De l'hydrogène sans platine. Le Monde. Article publié le 5/12/2009.
[Multon M2R Stockage 2007]	Bernard Multon. Stockage de l'énergie électrique pour la production décentralisée d'électricité (connectée au réseau ou en site isolé). Diaporama de Master Recherche STS IST Paris – ENS Cachan Module C. 16 janvier 2007. 87 planches. http://e-mecatronique.bretagne.ens-cachan.fr/file.php/35/DocPedagogiques//M2R_Stockage_2007.pdf .
[Multon Ruer ECRIN 2003]	Bernard Multon, Jacques Ruer. Comment stocker l'électricité : oui, c'est indispensable, et c'est possible ! Pourquoi, où, comment. ECRIN Club Energies Alternatives. Publication en contribution au débat national sur l'énergie. Avril 2003. 29 pages. http://ecrin.asso.free.fr/pdf/energies.pdf
[Page Energy Policy 2009]	Shannon Page, Susan Krumdieck. System-level energy efficiency is the greatest barrier to development of the hydrogen economy. Energy Policy, Volume 37, n°9. Septembre 2009. Pages 3325-3335.
[Papon Futuribles 2008]	Pierre Papon. Energie : science et technique, remparts contre la pénurie ? Futuribles n° 346. Novembre 2008. Pp. 39-54. DOI: 10.1051/futur:200834639. Publié en ligne le 25 octobre 2008.
[Picard 1884]	Alfred Picard. Les chemins de fer français. J. Rothschild Éditeurs. 1884. Tome troisième. Pages 632-698.

Chapitre I

[Plan SET 2007]	Communication de la Commission au Conseil, au Parlement Européen, au Comité économique et social européen et au Comité des régions. Un plan stratégique européen pour les technologies énergétiques (plan SET). Pour un avenir moins pollué par le carbone. Bruxelles. Le 22/11/2007. 16 pages.
[PREDIT 4 Programme 2009]	PREDIT 4 (Programme de recherche et d'innovation dans les transports terrestres, à l'initiative des ministères du développement durable (MEEDDAT), de l'industrie (MinEIE) et de la recherche, (MESR), de l'ADEME, de l'ANR et de OSEO). Version pré-finale. 02/02/2009. 65 pages.
[Prigent 1972]	Michel Prigent. Principes, technologie, applications des piles à combustible. 1972. Editions TECHNIP. ISBN 2710802031, 9782710802037.
[Programmation ANR 2009]	Agence Nationale de la Recherche. Programmation 2009. 28/10/2008. 345 pages.
[Q INRETS 2006 – 2009]	Contrat quadriennal 2006-2009 établi entre l'Etat et l'INRETS. Bron, le 19 décembre 2005. 121 pages. http://www.inrets.fr/linstitut/presentation/le-contrat-quadriennal-2006-2009.html
[Raël HDR 2005]	Stéphane Raël. Composants nouveaux pour le stockage et la génération d'énergie électrique : modélisation électrique, caractérisation et mise en oeuvre. Habilitation à Diriger des Recherches, INPL, Nancy, 12 décembre 2005.
[Ravagni HyPAC 2008]	Alberto Ravagni. JTI: an innovative European Public Private approach to implement innovation. Présentation. Lancement de la plateforme HyPAC. 12/11/2008. Paris.
[Ravet 2009]	Denise Ravet. Le choix du véhicule électrique en Israël. La note de veille. Centre d'analyse stratégique. Département Recherche, Technologies, Développement durable. Avril 2009 n°132. Pages 1-7 / 11. http://www.strategie.gouv.fr/IMG/pdf/NoteVeille132.pdf
[Réglementat'Hy'on 2010]	« Réglementat'Hy'on ». Groupe de travail de la plateforme HyPAC sur les aspects réglementaires de l'hydrogène énergie et des piles à combustible. Pourquoi une réglementation adaptée à l'hydrogène énergie ? Octobre 2010. 21 pages.
[Rifkin 2002]	Jeremy Rifkin. L'économie hydrogène, Structure - Fonctionnement - Applications : après la fin du pétrole, la nouvelle révolution économique. La Découverte, 2002. ISBN 2707137839.
[Robert Alzieu 2005]	Jack Robert, Jean Alzieu. Accumulateurs - Accumulateurs au lithium. Techniques de l'ingénieur. Référence D3354. Date de publication : 10 août 2005. 15 pages.
[Rosyid IJHE 2007]	O.A. Rosyid, D. Jablonski, U. Hauptmanns. Risk analysis for the infrastructure of a hydrogen economy. International Journal of Hydrogen Energy, Volume 32, n°15. Octobre 2007. Pages 3194-3200.
[Schwarz 2005]	Virginie Schwarz. Le stockage électrochimique. Ademe. Dossier Stockage de l'Energie. Janvier-Février 2005. 7 pages. http://www.mines-energie.org/Dossiers/Stock2005_15.pdf
[Schwoon 2008]	Malte Schwoon. Learning by doing, learning spillovers and the diffusion of fuel cell vehicles. Simulation Modelling Practice and Theory. Vol. 16, n°9. Octobre 2008. Pages 1463-1476.

Chapitre I

[SEEDS Prospective 2009]	Hervé Morel, Jean-Pascal Cambronne. Document de prospective du GdR SEEDS n°2994. 31 mars 2009. 75 pages. http://www.seedsresearch.eu/ .
[Site internet MEEDDM 2010]	Site internet du Ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement durable et de la Mer (2010). http://www.developpement-durable.gouv.fr/
[SNRI 2009]	Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche. Stratégie nationale de recherche et d'innovation. Rapport général. 2009. 42 pages.
[Solbes AFNOR 2009]	Frédéric Solbes (AFNOR). Activités de normalisation. Assemblée générale de la plateforme HyPAC. 16 juin 2009. Paris. 8 transparents.
[Syrota 2008]	Jean Syrota. Coordinateur : Philippe Hirtzman (Conseil général des mines). Rapporteurs : Romain Beaume (Ecole polytechnique), Jean-Loup Loyer (Centre d'analyse stratégique), Hervé Pouliquen (Centre d'analyse stratégique), Denise Ravet (Centre d'analyse stratégique), Philippe Rossinot (Centre d'analyse stratégique). Perspectives concernant Le véhicule « grand public » d'ici 2030. 28 septembre 2008. 129 pages. http://www.lepoint2.com/sons/pdf/rapport-syrota-voiture-electrique.pdf
[Tanya O'Garra Energy Policy 2007]	Tanya O'Garra, Susana Mourato, Lisa Garrity, Patrick Schmidt, Anne Beerenwinkel, Matthias Altmann, David Hart, Cornelia Graesel, Simon Whitehouse. Is the public willing to pay for hydrogen buses? A comparative study of preferences in four cities. Energy Policy, Volume 35, n°7. Juillet 2007. Pages 3630-3642.
[Tarascon 2008]	Jean-Marie Tarascon. Stockage Electrochimique de l'Énergie: Enjeux et challenges. Présentation faite au séminaire ANR Stockage de l'Énergie, IFP –Rueil Malmaison. Janvier 2008. 39 planches.
[Texte EU Homologation véhicules H2 2008]	Titre Véhicules à moteur: homologation des véhicules fonctionnant à l'hydrogène (modif. directive 2007/46/CE). Référence du texte adopté par le Parlement européen en 2008 : COD/2007/0214. http://www.europarl.europa.eu/oeil/FindByProcnum.do?lang=fr&procnum=COD/2007/0214
[The Business Case for Fuel Cells 2010]	The Business Case for Fuel Cells. Why Top Companies are Purchasing Fuel Cells Today. Septembre 2010. http://www.fuelcells.org/BusinessCaseforFuelCells.pdf
[Tissot CR Géosciences 2008]	Bernard Tissot, Xavier Chavanne, Jean-Pierre Frangi. Le rendement énergétique de la production d'éthanol à partir de maïs (Energy yield for the production of ethanol from corn). <i>Comptes Rendus Geosciences</i> . Vol. 340, n° 5. Mai 2008. Pages 263-287.
[Total 2007]	Total. Hydrogène et piles à combustible. Novembre 2007. http://www.total.com/MEDIAS/MEDIAS_INFOS/856/FR/Hydrogene-2007.pdf?PHPSESSID=e60bb4ad051b946841d5ae536c31bf22
[Trigui 2009]	Rochdi Trigui, Bogdan Vulturescu. Des moteurs hybrides plus intelligents pour économiser l'énergie et ménager les batteries. AXES n°51. Pages 5-7. http://www.inrets.fr/fileadmin/communication/AXES/2009/Axes51.pdf
[Trigui VEHLIB 2004]	Trigui R., Jeanneret B., Badin F. (2004) Modélisation systémique de véhicules hybrides en vue de la prédiction de leurs performances énergétiques et dynamiques - Construction de la bibliothèque de modèles VEHLIB. Recherche Transports Sécurité, (83). Pages 129-150. ISSN 0761-8980.

II	Le générateur PAC embarqué ; son intégration dans le véhicule ..	47
II.1	Les principes de base	47
II.2	Les différents types de PAC	48
II.3	La pile PEM.....	49
II.3.1	Description d'une cellule	49
II.3.1.1	Les plaques distribuant les réactifs	50
II.3.1.2	Les électrodes	50
-	La zone diffusionnelle	50
-	La zone active	51
II.3.1.3	La membrane électrolytique.....	52
II.3.2	La problématique de la gestion de l'eau	53
II.3.3	Caractéristique tension – courant d'une cellule	54
II.4	Le groupe électrogène à PAC de type PEM.....	57
II.4.1	Définitions	57
II.4.2	Le circuit combustible.....	59
II.4.3	Le circuit comburant. Compression. Humidification	60
II.4.4	Le contrôle de la température de pile	63
II.4.5	La gestion globale du système.....	64
II.4.6	La gestion de l'énergie électrique.....	66
II.4.7	Rendements de la pile PEM et du système.....	68
II.3	Conclusion	70
II.4	Références	71

II Le générateur PAC embarqué ; son intégration dans le véhicule

Une description des systèmes PAC de type PEM est proposée dans ce chapitre. Des informations peuvent être trouvées à ce sujet dans des ouvrages de plus en plus nombreux, disponibles en français et en anglais, parmi lesquels : [Prigent 1997] [Clefs CEA n°50-51] [Blunier 2007] [Boudellal 2007] [Alleau 2007] [Malbrunot 2007] [Sabonnadière 2007] [Larminie 2000] [Fuel cell Handbook 2000] [Barbir 2005] [Handbook of Fuel Cells 2003]. D'autres références sont disponibles sur le site internet de l'AFH2 [AFH2]. L'accent sera mis dans ce chapitre sur les aspects les plus « systèmes » du générateur PAC et la physique de la pile ne sera abordée que dans ces aspects les plus incontournables. Des informations complémentaires seront données sur ce point dans les chapitres IV et VII abordant les techniques de caractérisation pour PAC et la problématique de la durée de vie.

II.1 Les principes de base

Une pile à combustible (PAC) permet la conversion directe de l'énergie libre d'une réaction chimique d'oxydoréduction en énergie électrique. Comme une batterie ou un accumulateur, une cellule de PAC comporte deux électrodes (Figure II.1). L'électrode négative est le siège de la réaction d'oxydation du combustible, généralement l'hydrogène. Du côté de l'électrode positive a lieu la réaction de réduction du comburant, communément l'oxygène de l'air. Dans le cas d'une pile de type PEM (à membrane polymère, échangeuse de protons), une membrane solide assure la fonction d'électrolyte et sépare les deux électrodes. Les faces des électrodes sont recouvertes par un catalyseur, en général à fort taux de platine. L'ensemble électrode négative – électrolyte – électrode positive (AME : Assemblage Membrane Electrodes, ou EME : Ensemble Membrane Electrodes) constitue le cœur de pile auquel on associe parfois les couches de diffusion. Le cœur est alimenté en réactifs par l'intermédiaire de plaques distributrices. Le carburant et le comburant sont fournis à la pile dans des conditions de pression, température, hygrométrie et pureté définies, de façon continue pour assurer la production du courant. Selon le type de pile, les réactions chimiques intermédiaires mises en jeu varient mais le principe général de fonctionnement demeure inchangé.

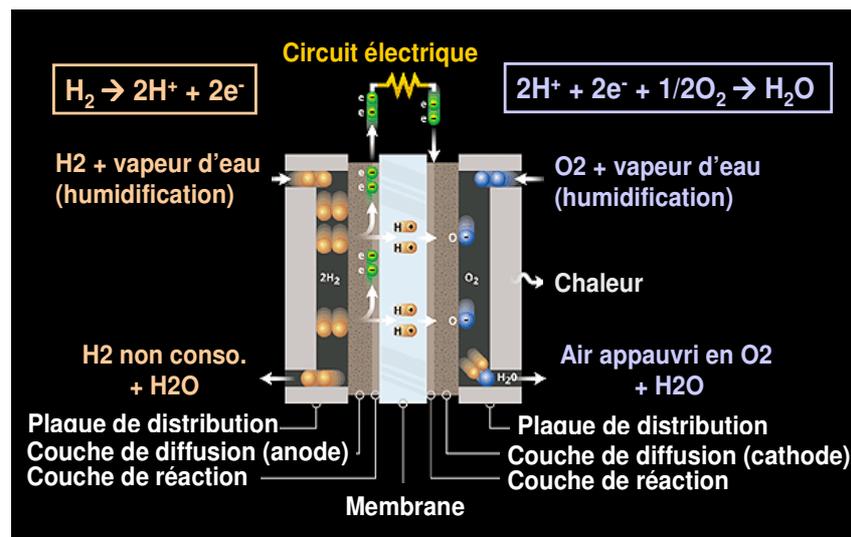


Figure II.1 : Principe de fonctionnement d'une pile à combustible PEM (source [Ballard] modifiée).

La différence de potentiel aux bornes de chaque cellule de PAC est faible ; en fonctionnement, elle est inférieure au volt. Pour la plupart des applications, il est donc nécessaire de constituer un empilement de cellules, communément appelé stack, pour disposer d'un niveau de tension suffisant.

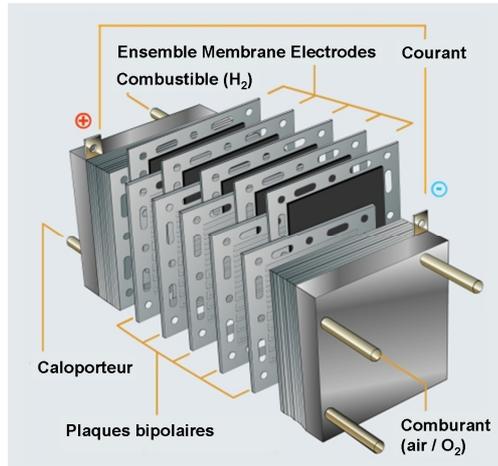


Figure II.2 :
assemblage de cellules,
communément appelé « stack »
(source : SGL Group [SGL Group],
modifiée).

Dans une PAC, les fonctions alimentation en réactifs et transformation de l'énergie chimique en énergie électrique sont clairement dissociées. Aussi l'autonomie d'une pile alimentée en air n'est-elle liée qu'à la taille du réservoir contenant le combustible. C'est là une caractéristique spécifique de la PAC par rapport à une batterie qui ne peut contenir en son sein qu'une quantité limitée de réactifs. D'ailleurs, les PAC sont caractérisées par la puissance délivrée par unité de surface d'électrode, ou bien par unité de volume ou de masse, alors que les batteries sont elles caractérisées par la quantité d'électricité volumique ou massique stockée.

II.2 Les différents types de PAC

Il existe différents types de PAC. Les piles sont généralement répertoriées et classées en fonction de la nature de l'électrolyte utilisé dans les empilements et/ou de la température de fonctionnement [Prigent 1997]. Les piles à basse température (plage de température allant jusqu'à 200°C) sont les piles à électrolyte alcalin (AFC : Alkaline Fuel Cell), les piles à membranes polymères échangeuses de protons (PEMFC : Proton Exchange Membrane Fuel Cell ou PEFC : Polymer Electrolyte Fuel Cell), les piles alimentées directement en méthanol (DMFC : Direct Methanol Fuel Cell) et les piles à acide phosphorique (PAFC : Phosphoric Acid Fuel Cell). Les piles à haute température fonctionnent quant à elles entre 600 et 1000°C ; ce sont les piles à carbonates fondus (MCFC : Molten Carbonate Fuel Cell) et les piles à oxyde solide (SOFC : Solid Oxide Fuel Cell). A noter aussi que si les générateurs PAC sont dans leur très grande majorité des systèmes non réversibles en courant, il existe des systèmes capables de jouer à la fois le rôle de PAC et d'électrolyseur. Ces piles sont connues sous le nom anglais de « regenerative fuel cells » [Burke 2003].

Chaque type de pile peut avoir des domaines privilégiés d'applications. Les piles fonctionnant à haute température ont pour avantage de ne pas (ou peu) utiliser de catalyseur noble et de pouvoir opérer directement avec des composés hydrogénés comme combustible. Les principaux inconvénients rencontrés sont liés à la technologie de leurs matériaux soumis à des températures élevées et à un temps de mise en fonctionnement long dû à la montée en température. Les piles à basse température ne sont pas soumises à ces problèmes mais elles utilisent des catalyseurs nobles (à base de platine) chers et sensibles à l'empoisonnement, notamment par le monoxyde de carbone et certains composés soufrés. Ceux-ci agissent comme des polluants et empêchent la réaction chimique de se dérouler de manière optimale. Pour des raisons principalement liées à la fiabilité et à des contraintes d'industrialisation en grande série, le concept d'électrolyte solide est le plus attractif : c'est la raison pour laquelle se dessine aujourd'hui un consensus large pour privilégier deux filières, celle des PAC à acide polymère (PEMFC) et celle des piles à oxyde solide (SOFC).

C'est la technologie PEM qui est retenue dans la plupart des programmes de recherche liés aux transports, à cause de sa température basse de fonctionnement moins difficile à gérer que la haute température des SOFC. Il faut ici souligner néanmoins le rôle et l'utilisation particulière envisagée pour les piles à combustible SOFC : en effet, la nature solide de leur électrolyte et la possibilité

Chapitre II

d'utiliser plus directement (sans reformage) des combustibles autres que l'hydrogène (méthane, gaz naturel ou autres hydrocarbures chargés en monoxyde de carbone) comme combustible leur confèrent un intérêt indéniable pour les applications transport, et ceci indépendamment des problèmes liés à la gestion thermique de ces piles haute température (typiquement 800°C).

A noter aussi que les piles de type PEM peuvent être associées à différents types d'alimentation en gaz réactifs. Elles peuvent ainsi être alimentées en hydrogène et en oxygène purs. C'est le cas par exemple des applications anaérobies (sous-marins, espace). L'utilisation d'oxygène pur peut aussi être plus facilement envisagée voire se révéler intéressante vis-à-vis d'applications aéronautiques, en particulier pour des groupes électrogènes de secours embarqués dans les avions. Cependant, pour les transports terrestres, il existe aujourd'hui un consensus quasi général autour de l'alimentation des piles PEM par de l'hydrogène et de l'air (essentiellement pour des raisons de sécurité et d'acceptabilité par le public). Parmi toutes les familles existantes de PAC, le document ne traitera que des piles PEM alimentées en hydrogène et en air. Actuellement, cette technologie PEM apparaît comme la meilleure alternative pour les applications transports car elle comporte deux avantages majeurs. Le premier provient de l'utilisation d'une membrane solide qui contrairement aux électrolytes liquides doit garder une meilleure stabilité de fonctionnement lorsque le stack est soumis à des contraintes véhicule diverses (vibrations mécaniques par exemple). Le second point fort de la technologie PEM provient de sa température de fonctionnement basse. Celle-ci permet une mise en température relativement rapide et donc, dans le cas d'une application transport, des temps de démarrage réduits. La technologie PEM concentre actuellement les plus gros efforts de recherche et développement dans le monde et en France. Ainsi, l'appel à projet PAN-H 2005 de l'Agence Nationale de la Recherche a consacré 80% de son budget à la technologie PEM, 15% aux SOFC et 5% aux piles à membrane céramique conducteur protonique.

II.3 La pile PEM

II.3.1 Description d'une cellule

La [Figure II.3](#) représente une cellule de PAC PEM dans un empilement de type monocellule. Dans un stack, les plaques terminales et les plaques collectrices de courant encadrent une répétition du motif élémentaire : plaques distribuant les réactifs et le caloporteur, AME (dont les couches diffusion) et les joints. Une description des principaux éléments constituant la cellule est faite ci-après.

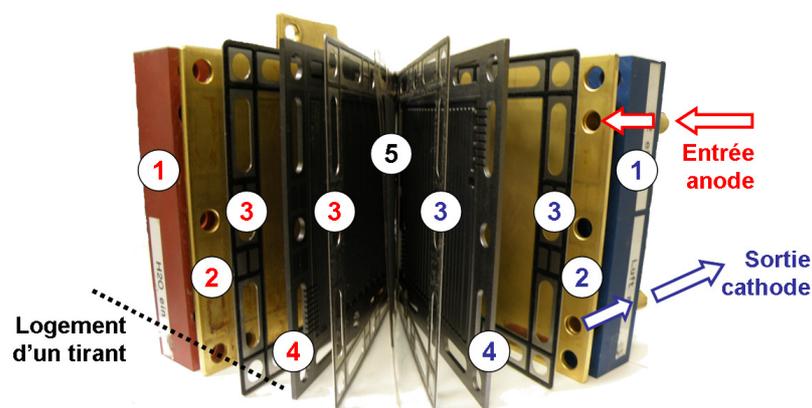


Figure II.3 : Eclaté d'une monocellule de PAC PEM (pile ZSW – UBzM, photo S. Wasterlain).

- 1 : Plaques terminales assurant le maintien de l'assemblage complet, via des tirants,
- 2 : Plaques collectrices de courant (pôles électriques plus et moins de la pile),
- 3 : Joints assurant les étanchéités entre les compartiments anode, cathode, caloporteur et vis-à-vis de l'extérieur,
- 4 : Plaque distribuant les réactifs et le fluide caloporteur,
- 5 : Assemblage Membrane Electrodes (ici avec ses couches de diffusion).

II.3.1.1 Les plaques distribuant les réactifs

Ces plaques marquent la frontière entre deux cellules de pile et ont des dimensions relativement imposantes comparativement aux autres éléments de la cellule. D'un point de vue technologique, elles garantissent, en plus de la distribution des gaz : la tenue mécanique de la pile, la séparation entre les deux réactifs et la conduction du courant électrique (conductivité électrique des plaques supérieure à 10 S/cm) [Clefs CEA n°50-51 p 56]. Une plaque distribuant les réactifs est appelée plaque bipolaire quand elle fournit simultanément à deux cellules contiguës le combustible sur une de ses surfaces et le comburant sur son autre surface (ce n'est par exemple pas le cas pour les plaques situées aux extrémités de la pile). Aux extrémités du stack, les plaques sont parfois dites monopolaires.

Les gaz sont acheminés par des canaux généralement usinés dans des plaques en graphite non poreux. Les canaux sont parfois obtenus par emboutissage de plaques métalliques ou par moulage de matériaux composites [Scholta JPS 2006] [Schunk]. Le graphite présente l'avantage d'être un très bon conducteur électronique, d'être très stable chimiquement (milieu corrosif du cœur de pile). Certaines piles ne sont pas dotées de plaques à canaux mais de mousses métalliques [Clefs CEA n°50-51]. Le métal constituant la mousse véhicule les électrons tandis que le gaz circule dans l'espace poreux (porosité supérieure à 90%). Cette solution a notamment été étudiée par le fabricant de pile italien Nuvera.

Les plaques doivent en outre évacuer efficacement les gaz non consommés et l'eau produite par la réaction. Ceci est habituellement réalisé par l'emploi d'un excès de gaz. La géométrie habituellement adoptée est une mise en parallèle de plusieurs canaux de section rectangulaire serpentant sur la surface de la plaque (Figure II.4). Le nombre de canaux, leurs dimensions, leurs dessins conditionnent fortement le transport des gaz et de l'eau dans la cellule. La conception des canaux est particulièrement importante pour assurer à la fois une répartition homogène des gaz réactifs sur toute la surface de l'électrode et minimiser les pertes de charge (c'est-à-dire les différences de pressions entre l'entrée et la sortie du stack d'une même ligne de gaz).

Les plaques peuvent contribuer également au refroidissement par des technologies différentes. Dans certains cas, des canaux intégrés dans l'épaisseur et remplis d'eau permettent une évacuation de la chaleur par échange. Dans d'autre cas, des canaux d'air, confondus ou non avec ceux qui amènent l'oxygène pour la réaction, permettent d'évacuer la chaleur grâce à un flux d'air créé par une soufflante (piles de faibles puissances).



Figure II.4 : Exemple de dessin de plaque bipolaire à canaux, côté air [Scholta JPS 2006].

II.3.1.2 Les électrodes

Les électrodes encadrent de part et d'autre la membrane électrolytique. Pour simplifier, on peut considérer que les électrodes sont constituées de deux couches : les couches diffusionnelles et actives.

- La zone diffusionnelle

Les couches de diffusion assurent l'approvisionnement de la couche active (couche de réaction) en gaz réactif généralement hydraté. Cette alimentation en gaz doit être la plus uniforme possible sur la surface de l'électrode afin d'éviter les points chauds (« hot spots ») dus au caractère exothermique de la réaction électrochimique. Les matériaux de couche de diffusion assurent la conduction électrique entre la couche active et les plaques amenant le courant. La couche de diffusion a un rôle très important dans la mesure où elle garantit, grâce au caractère hydrofuge du PTFE (polytétrafluoroéthylène) ou Téflon, une bonne évacuation de l'eau produite par la réaction, en particulier à la cathode. Une accumulation d'eau liquide augmente la résistance au transport des espèces gazeuses à travers la couche de diffusion et peut même interrompre la réaction en diminuant et limitant la concentration des gaz réactifs au niveau des sites réactifs de l'électrode : c'est le

phénomène de noyage. Enfin, les composants de la zone diffusionnelle doivent avoir une bonne inertie chimique dans ce milieu corrosif.

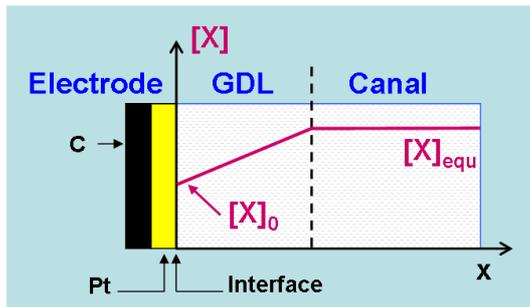


Figure II.5 : Diffusion d'une espèce réactive des canaux vers l'interface réactionnelle de l'électrode. Evolution du gradient de concentration [X] à travers la couche de diffusion (GDL).

- La zone active

La zone active des électrodes est le lieu des réactions électrochimiques. C'est une zone poreuse constituée :

- de nano-particules de catalyseur (platine ou alliage de platine), dont le rôle est de faciliter les échanges électroniques,
- de noir / feutre / papier de carbone (Vulcan ou graphite), conducteur électronique support de l'électrocatalyseur (platine),
- de polytetrafluoroéthylène (PTFE ou Téflon) qui permet de jouer sur l'hydrophobicité et la création de pores pour les gaz,
- et d'électrolyte polymère solide (Nafion) [Bultel Thèse 1997].

La couche active correspond à la zone de couplage entre les phénomènes électriques, chimiques et de transport de matière. Elle doit à la fois assurer le transport des espèces dissoutes en solution par diffusion, la migration des protons et le transfert électronique par le biais du carbone. Cette mise en présence au même point du gaz réactif, du proton, des électrons et du catalyseur s'effectue au point dit de triple contact. Ce contact triple est nécessaire à la catalyse de la réaction électrochimique. Il n'a lieu que si l'électrolyte (Nafion hydraté) recouvre le catalyseur (platine) et que le gaz diffuse à travers lui pour atteindre le site catalytique et céder ou recevoir ses électrons. Ainsi, pour que la synthèse de l'eau ait lieu à la cathode, les protons (en solution dans l'eau), l'oxygène (gaz dissous dans l'eau) et le platine (catalyseur solide) doivent simultanément être présents sur le site réactionnel au point du triple contact (gaz, électrolyte, catalyseur).

A l'heure actuelle, les catalyseurs utilisés sont des alliages de platine. La teneur en platine sur les électrodes est généralement de l'ordre de 0.2 à 0.5 mg.cm⁻². L'objectif est d'atteindre des quantités de platine inférieures à 0.1 mg.cm⁻², tout en conservant des performances acceptables en termes de tension de cellule, de stabilité des performances dans le temps. Des piles ZSW utilisées à Belfort sont pourvues d'électrodes (cœurs de pile Gore type Primea 5510) dont les charges en platine valent environ 0.4 mg.cm⁻² [Gore].

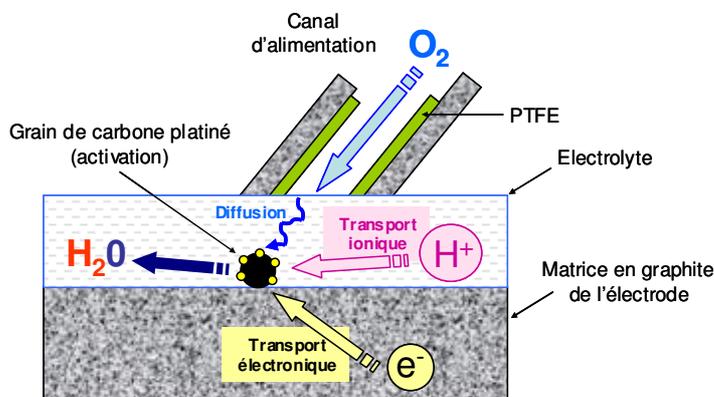


Figure II.6 : Exemple de mécanisme de catalyse autour du triple contact (côté cathode) [Gerbaux Thèse 1996].

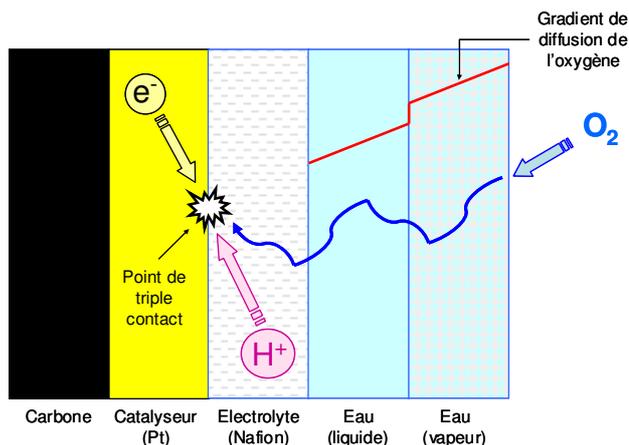


Figure II.7 : Représentation schématique du point de triple contact (côté cathode) [Van der Merwe DRU 2002].

La plaque distribuant les gaz alimente l'électrode en réactif. Celui-ci se propage dans la zone diffusionnelle de l'électrode puis dans les pores de la zone active. Le réactif entre en solution dans l'eau des pores de l'électrolyte contenu dans la zone active. Il diffuse dans la zone active jusqu'au grain de platine. Les protons et les électrons sont transportés respectivement dans l'électrolyte et dans les conducteurs électroniques (carbone platiné, feutre de carbone). La réaction se déroule à la surface du catalyseur.

La plus ou moins grande difficulté avec laquelle se réalisent les différents processus diffusionnels et réactionnels de catalyse se traduit par des surtensions (ou pertes) d'activation à la cathode et à l'anode. Les performances des cellules des piles PEM sont très fortement limitées par le mécanisme de réduction de l'oxygène à la cathode. L'utilisation du platine a pour but d'augmenter les vitesses ou cinétiques des réactions chimiques à l'interface électrolyte-catalyseur ; ces vitesses sont multipliées par 10 en présence de platine. Il en résulte un abaissement de la barrière de potentiel. La minimisation de la quantité de platine utilisé (actuellement environ 0.4 mg/cm^2 , environ 1 g de platine par kilowatt de puissance) et l'optimisation de son emploi passe par le bon choix de la taille de ses particules, par sa répartition, par la prise en compte d'effets géométriques à l'échelle locale, par la géométrie de la couche active (épaisseur, porosité) [Bultel Thèse 1997].

II.3.1.3 La membrane électrolytique

L'électrolyte se présente sous la forme solide d'une membrane d'une épaisseur de l'ordre d'une dizaine de micromètres (de 20 à 200 μm en règle générale). La membrane sert de séparateur entre les deux demi réactions chimiques d'oxydoréduction. La plupart des membranes de PAC PEM membrane est constituée d'un matériau polymère perfluoré (type Nafion). La membrane électrolytique à base de Nafion est de type acide, ce qui évite les problèmes de carbonatation rencontrés avec les piles alcalines mais rend impossible l'utilisation de catalyseurs au nickel. Des groupements sulfonates SO_3^- sont greffés sur le Nafion. Très hygroscopique, la membrane doit rester bien hydratée pour permettre le déplacement des ions H^+ associés aux groupements sulfonates SO_3^- de l'anode vers la cathode [Larminie 2000]. Les protons ne peuvent migrer (et de facto contribuer à la mise en place d'un courant électrique dans la charge) sous l'effet du champ électrique que s'ils possèdent autour d'eux un cortège d'eau de solvatation (environ 2 à 5 molécules d'eau par proton). La capacité à gonfler en absorbant d'importantes quantités d'eau est une des propriétés les plus remarquables du Nafion (les polymères Nafion peuvent absorber près de 20% de leur poids en eau). Le taux de gonflement de la membrane est représenté par la valeur caractéristique λ qui est le nombre de molécules d'eau présentes dans la membrane par site sulfonate. Cette hydratation s'accompagne d'une forte variation des dimensions de la membrane. Ainsi, dans le cas du Nafion 117, l'épaisseur de la membrane passe de $1.78 \cdot 10^{-4} \text{ m}$ (à l'état sec, λ faible) à $2.5 \cdot 10^{-4} \text{ m}$ (à l'état humide, λ grand) pour un gonflement de 20 molécules d'eau par groupement sulfonate, soit une augmentation de l'épaisseur de 40 %. La conductivité ionique d'une membrane chargée en protons H^+ est au moins multipliée par 10 lorsqu'on passe de l'état sec à l'état gonflé d'eau liquide. La figure suivante illustre cette dépendance.

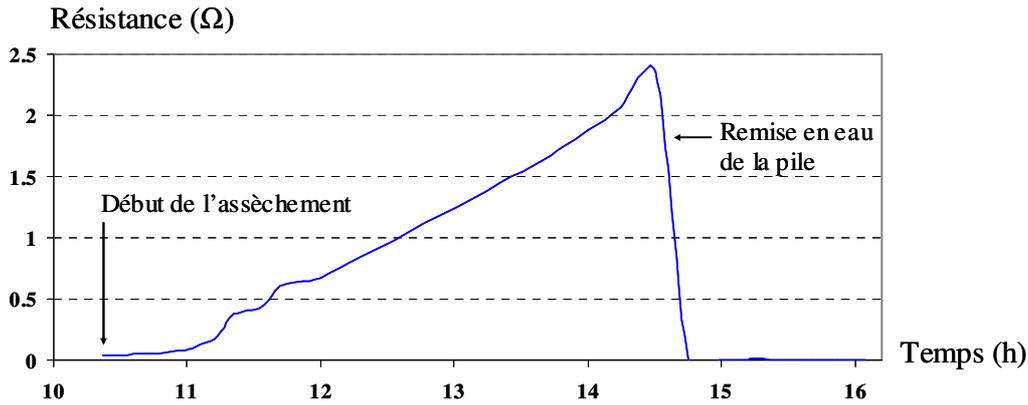


Figure II.8 : Essai d'assèchement, mesure par impédancemétrie de la résistance d'un stack de pile PEM [Pascal PFE 2000] [Pascal Rapport CEA 2000].

Lors de cet essai d'assèchement réalisé au CEA sur une pile De Nora 5 kW [Pascal PFE 2000] [Pascal Rapport CEA 2000], la résistance du stack est passée d'une valeur de 3 mΩ (membranes correctement humidifiées) à une valeur de 2.3 Ω en fin d'essai. Au cours de l'essai, qui a consisté à ne plus humidifier les réactifs en amont de la pile pendant quelques heures, la résistance du stack a donc été multipliée par 700 environ.

Comme on le voit avec l'hydratation de la membrane, la gestion de l'eau a des conséquences déterminantes sur le rendement de la pile et sur celui du système pile à combustible. Le comportement de la membrane Nafion est fortement lié à la température et à sa teneur en eau. Il est communément admis que la température de 90°C ne doit pas être dépassée pour des raisons de chute de niveau d'hydratation (et donc de transfert protonique) et de détérioration de la tenue mécanique. En effet, la raréfaction de l'eau dans la membrane induit des contraintes thermiques sources de lésions mécaniques et fait apparaître des fissures locales irréversibles, rendant celle-ci perméable aux molécules gazeuses. Depuis quelques années sont aussi apparues des piles PEM fonctionnant à des températures intermédiaires, entre 100 et 200°C, et dotées par exemple des membranes à base de polybenzimidazoles sulfonés (PBI) [BASF – ex-PEMEAS]. Ces nouvelles membranes doivent normalement permettre une meilleure tolérance au monoxyde de carbone et au sulfure d'hydrogène, rendre inutile l'humidification des réactifs en amont du stack et faciliter les échanges de chaleur entre la pile et son environnement.

Pour résumer, une membrane de PAC doit posséder les propriétés suivantes :

- être une bonne conductrice ionique, plus précisément protonique pour une PEM. La conductivité maximum est de l'ordre de 10 S.m^{-1} pour une membrane Nafion totalement hydratée proche de l'hygrométrie de 100 % à sa température de fonctionnement.
- être un bon isolant électronique,
- être imperméable aux gaz réactifs (dans le cas du Nafion, les perméabilités en gaz à 80 °C sont de $1.2 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2/(\text{s.Pa})$ pour le gaz hydrogène et de $4 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2/(\text{s.Pa})$ pour le gaz oxygène),
- avoir une bonne tenue mécanique face aux contraintes de température, de pression et d'hydratation.

II.3.2 La problématique de la gestion de l'eau

Dans une pile PEM dotée d'électrolytes de type Nafion, il donc est nécessaire de garantir un bon état d'hydratation aux membranes pour assurer de bons transferts ioniques et conserver de bonnes conductivités. Une « bonne » humidification des gaz réactifs en amont de la PAC est généralement nécessaire (Figure II.1) et par ailleurs, la température de la pile ne doit pas dépasser des limites raisonnables. Toutefois, un excès d'apport en eau via les gaz humidifiés ou une température de pile trop basse peut aussi s'avérer néfaste pour les performances de la PAC en induisant un noyage au niveau des électrodes, en raison de phénomènes locaux de condensation. L'accès du ou des gaz réactifs aux sites catalytiques peut alors être bloqué, entraînant, pour une sollicitation en courant, une

Chapitre II

chute de potentiel au niveau de la pile relativement rapide et importante. Un équilibre est donc à trouver pour éviter l'assèchement de la PAC et diminuer le risque de noyage. Dans les deux cas, le système de contrôle de la pile se charge alors en général de stopper le fonctionnement sur une détection de niveau de tension (de la pile à combustible dans son intégralité ou d'une cellule constitutive) trop bas.

A plus ou moins long terme, un mauvais contrôle de la température de pile et de l'humidification des réactifs peut avoir de sévères répercussions sur l'efficacité et de la durée de vie des PAC. Nous reviendrons sur ce point dans le [chapitre VII](#).

D'où provient plus précisément ce risque de noyage ou d'assèchement ? Il provient en réalité d'une conjonction de phénomènes, directement liés à des interactions entre le fonctionnement du cœur de pile et le fonctionnement du système PAC [[Brunet Hissel 2009](#)] :

- de l'eau se forme à la cathode par la réduction de l'oxygène, dans une quantité liée au courant fourni par la PAC ;
- lors de la migration des protons de l'anode vers la cathode, des molécules d'eau sont entraînées par les ions H^+ , ce qui conduit à un transfert d'eau. Ce phénomène est connu sous le nom d' « électro-osmose » ;
- l'apparition d'un gradient de concentration en eau aux extrémités de la membrane, conduisant généralement à une diffusion d'eau de la cathode vers l'anode ;
- de manière à prévenir un assèchement de la membrane électrolytique, en particulier aux hautes températures de fonctionnement, de l'eau est en général introduite dans les gaz réactifs (à la cathode, à l'anode, voire des deux côtés simultanément), ce qui contribue malheureusement à déplacer le point d'équilibre ;
- la température de fonctionnement de la pile, celles des gaz réactifs à leur entrée dans la pile, contribuent également à déplacer ce point d'équilibre. En effet, des phénomènes localisés d'évaporation / condensation ont lieu en cœur de pile, dépendant des conditions locales de température et de pressions.

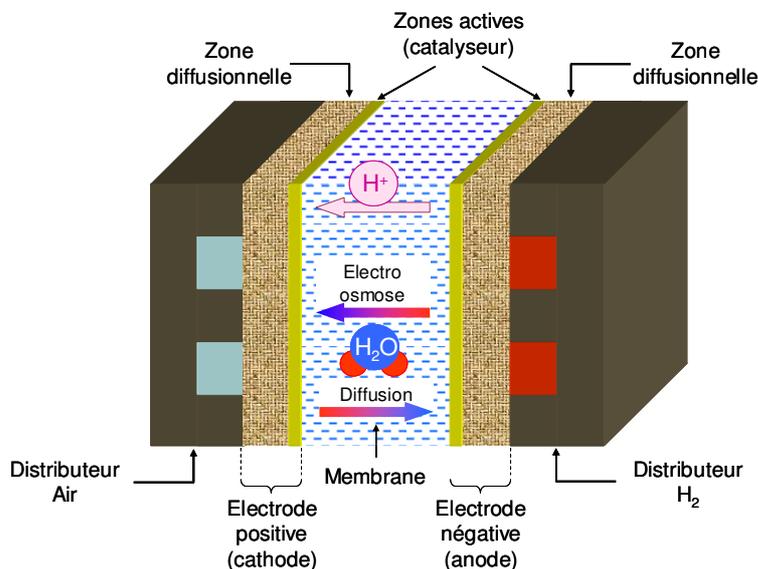


Figure II.9 : Schéma d'une cellule de pile de type PEM. Transferts d'eau.

II.3.3 Caractéristique tension – courant d'une cellule

Le travail W , ou énergie électrique, fourni par une cellule de pile correspond au déplacement des charges électriques (ions et électrons) entre les deux niveaux de potentiel de ses électrodes. Il est égal à la variation d'enthalpie libre ΔG au cours de la réaction chimique effectuée.

$$W = -\Delta G \quad (\text{II.1})$$

Chapitre II

Seule l'énergie électrique correspondant au déplacement des électrons dans le circuit extérieur de la pile est récupérable. Le travail généré par le déplacement des électrons et des ions à l'intérieur de la pile est dissipé sous forme de chaleur. Dans le cas théorique d'une réaction réversible, où les pertes internes de la cellule (irréversibilités) peuvent être négligées, le travail maximal W_{\max} que peut fournir la cellule s'écrit :

$$W_{\max} = -\Delta G = n F E_{\max} \quad (\text{II.2})$$

Avec :

F constante de Faraday (charge électrique d'une mole d'électrons = $A \times e = 96485 \text{ C}$)
n nombre d'électrons échangés dans la réaction électrochimique élémentaire ($n = 2$).
 E_{\max} tension maximale de la cellule en circuit ouvert [V]

$$\text{On a donc : } E_{\max} = -\frac{\Delta G}{nF} \quad (\text{II.3})$$

La valeur de la variation d'enthalpie libre standard ΔG dépend de la température et de la forme, liquide ou gazeuse, de l'eau obtenue. La valeur de ΔG est issue de tables. Dans les conditions dites normales ou standard de pression et de température (10^5 Pa , 298.15 K ou 25 °C), la variation d'enthalpie libre standard est de -237 kJ/mole (Pouvoir de Combustion Supérieur – PCS ; higher heating value – HHV) ou de -229 kJ/mole (Pouvoir de Combustion Inférieur – PCI ; lower heating value – LHV) de dihydrogène consommée, selon que l'eau est obtenue respectivement sous forme liquide ou gazeuse. La tension maximale de la cellule dans les deux cas est donc la suivante :

$$E_{\max \text{ état standard}} = -\frac{-237.10^3}{2 \times 96485} = 1.23 \text{ V} \quad (\text{eau liquide}) \quad (\text{II.4})$$

$$E_{\max \text{ état standard}} = -\frac{-229.10^3}{2 \times 96485} = 1.18 \text{ V} \quad (\text{eau sous forme de gaz}) \quad (\text{II.5})$$

Pour estimer le potentiel thermodynamique d'équilibre à une température T quelconque (inférieure à 100 °C), on peut utiliser la relation suivante (issue de $\Delta G = \Delta H - T\Delta S$) [Gerbaux Thèse 1996] :

$$E^0 = E_{\max \text{ état standard}} + \frac{\Delta S_{\text{état standard}}}{2F} (T - 298.15) \quad (\text{II.6})$$

$$\text{Dans les conditions standard : } \Delta S_{\text{état standard}} = -0.164 \text{ kJ}/(\text{mol K}) \quad (\text{II.7})$$

Si l'eau est obtenue sous forme liquide :

$$E^0 = 1.23 - 0.00085(T - 298.15) = 1.48 - 0.00085T \quad (\text{II.8})$$

Cette tension maximale diminue donc lorsque la température augmente.

La loi de Nernst indique que la différence de potentiel à l'équilibre dépend simultanément de la pression des gaz et de la température, suivant la loi :

Chapitre II

$$E_{\text{rev}} = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{P_{\text{H}_2}}{P_0} \sqrt{\frac{P_{\text{O}_2}}{P_0}} \right) \quad (\text{II.9})$$

Avec : $R = 8.314 \text{ [J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}]$ ou $[\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}]$ et $P_0 = 10^5 \text{ Pa}$

La tension E_{rev} correspond au potentiel thermodynamique réversible de la réaction. Quand la cellule débite un courant, la tension à ses bornes $U(I)$ est inférieure à E du fait des différentes pertes dues aux irréversibilités suivantes : surtensions d'activation à la cathode $\eta_{\text{act c}}(I)$ et à l'anode $\eta_{\text{act a}}(I)$, surtensions liées à la perméation des réactifs à travers la membrane $\eta_{\text{perméation}}(I)$, surtensions liées à la notion de potentiel mixte $\eta_{\text{pot. mixtes}}(I)$, pertes ohmiques, limitations de potentiel dues aux problèmes de diffusion et de noyage $\eta_{\text{diff et noyage}}(I)$.

On appelle surtension la différence entre le potentiel d'équilibre E^0 et le potentiel effectif U de l'électrode.

$$U(I) = E_{\text{rev}} - \left| \eta_{\text{perméation}}(I) \right| - \left| \eta_{\text{pot. mixtes}}(I) \right| - \left| \eta_{\text{act a}}(I) \right| - \left| \eta_{\text{act c}}(I) \right| - R I - \left| \eta_{\text{diff et noyage}}(I) \right| \quad (\text{II.10})$$

L'expression de la relation courant (ou densité de courant) – tension de pile se traduit par la courbe de polarisation [Larminie 2000].

Les pertes d'activation sont liées aux cinétiques des réactions électrochimiques qui se déroulent aux électrodes (caractère plus ou moins lent des réactions électrochimiques). Les pertes d'activation sont prédominantes aux faibles densités de courant. Elles sont aussi plus importantes à la cathode qu'à l'anode.

Des surtensions sont liées à la perméation de réactifs, c'est-à-dire au passage de gaz (dihydrogène par exemple) à travers la membrane. Ce type de perte se rencontre en particulier sur les PAC endommagées et/ou ayant vieilles. Il existe encore relativement peu d'informations disponibles au sujet de la surtension liée aux potentiels mixtes. Selon [Zhang JPS 2006], elle est causée par une /des réactions « parasites » entre la surface du catalyseur (platine) et le réactif (oxygène), venant réduire le nombre de sites catalytiques libres. Du fait de l'ensemble des surtensions précédentes, le potentiel à vide (OCV pour Open Current Voltage en anglais) est généralement légèrement inférieur à 1V pour les piles PEM équipées de membrane type Nafion.

Les pertes ohmiques traduisent les résistances aux transports des électrons et des protons. Les pertes relatives à la circulation des électrons sont localisées dans la partie conducteur électronique des électrodes, dans les plaques bipolaires et aux interfaces communes (résistances de contact). Les pertes relatives au transport des protons se situent dans l'électrolyte, que constitue la membrane, et dans la zone active des électrodes. Les pertes ohmiques sont principalement localisées dans la membrane. Mais, aux fortes densités de courant, ce type de pertes devient également significatif dans les électrodes et à leur jonction. C'est aux densités de courant intermédiaires (zone linéaire) que la pente de la courbe de polarisation donne un meilleur aperçu des surtensions ohmiques.

Les limitations de potentiel dues au transport de matière, c'est-à-dire à l'apport des réactifs jusqu'aux électrodes (diffusion) et au départ des produits de réaction (accumulation d'eau dans les pores des électrodes, noyage). Les problèmes de transport de matière apparaissent généralement aux plus fortes densités de courant.

La Figure II.10 donne un aperçu des performances d'une telle pile.

L'augmentation des performances des piles PEM passe surtout par la réduction des surtensions à la cathode et par la diminution de la résistance de la membrane.

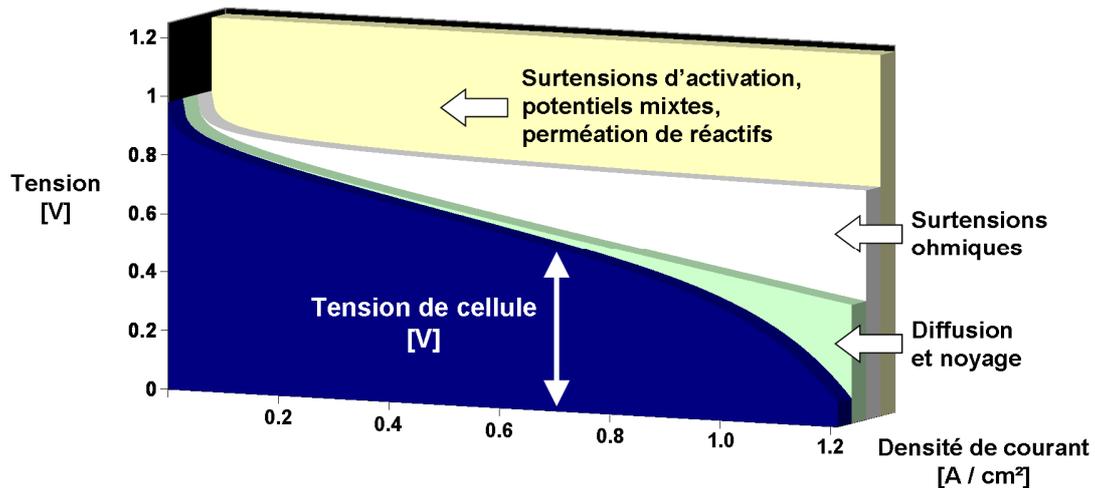


Figure II.10 : Exemple de courbe de polarisation d'une cellule de pile PEM hydrogène / air.

La courbe de polarisation constitue une image du rendement de tension. Nous verrons au [chapitre IV](#) quelles méthodes expérimentales (ex : spectrométrie d'impédance électrochimique) permettent de discriminer les différentes pertes décrites et d'identifier les types de surtensions avec leurs dynamiques respectives.

II.4 Le groupe électrogène à PAC de type PEM

II.4.1 Définitions

Le système PAC ou groupe électrogène à PAC (GE à PAC) se compose de la pile elle-même (le stack), mais aussi d'organes auxiliaires destinés à la faire fonctionner. Ces derniers assurent notamment les fonctions d'approvisionnement et de conditionnement des réactifs, l'évacuation et la valorisation des produits et de la chaleur, la conversion et l'exploitation de l'énergie électrique, la gestion et la supervision de l'ensemble du générateur. La [Figure II.11](#) nous donne un schéma simplifié d'un exemple de GE PAC et la [Figure II.12](#) fait apparaître une décomposition du GE PAC en ces principaux sous-systèmes assurant des fonctions de base.

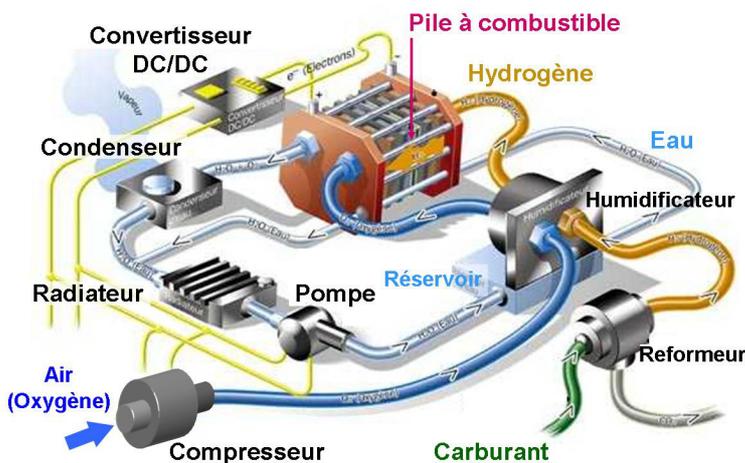


Figure II.11 : Exemple de schéma d'un groupe électrogène à PAC (source : PSA, modifiée [Candusso Thèse 2002]).

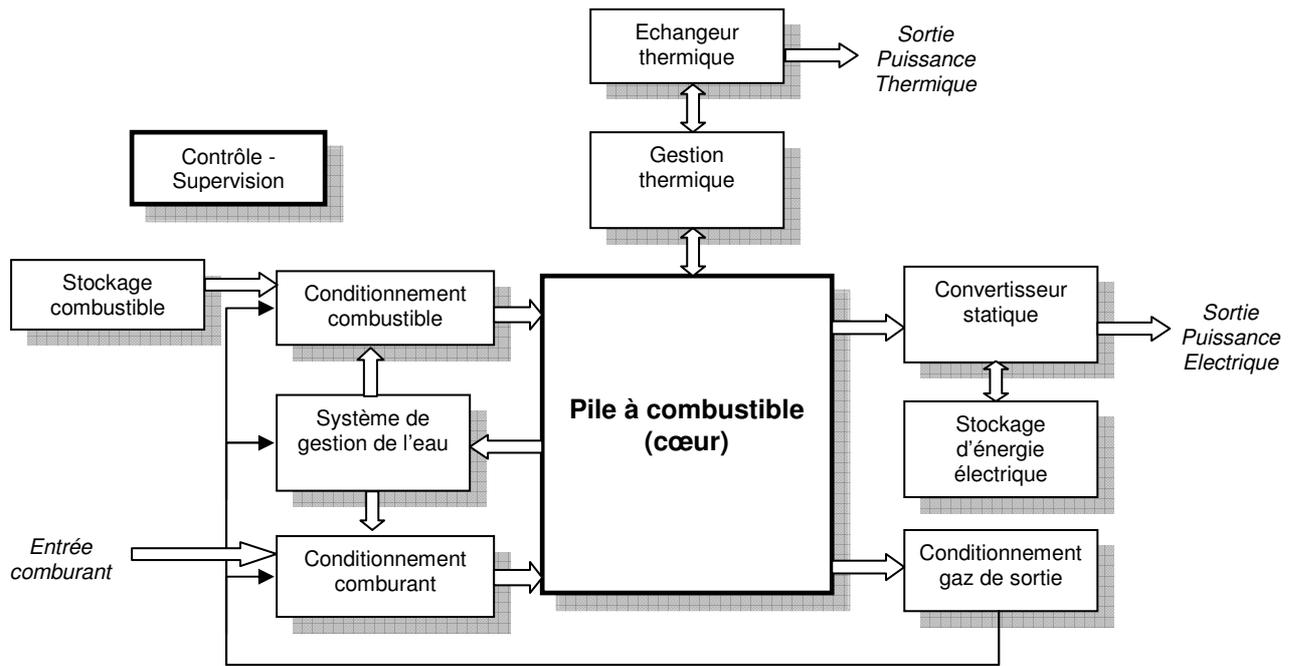


Figure II.12 : Décomposition d'un GE à PAC en sous-systèmes assurant des fonctions de base [Brunet Hissel 2009].

Il est à noter que la définition des contours du système PAC ne fait pas encore l'objet d'un consensus complet au niveau international. La SAE (Society Automobile Engineers) [SAE], l'IEC (International Electrotechnical Commission, comité technique IEC TC 105 "Technologies des Piles à Combustible") [IEC], le réseau thématique européen 5^{ème} PCRD FCTESTNET: Fuel Cell Testing and Standardisation) [FCTESTNET], l'ASME (norme ASME PTC 50-2002: « Fuel Cell Systems performance. Performance test codes ») [ASME] ont ainsi proposé différentes approches [Hissel HDR 2004] [Péra HDR 2006].

Si l'on se réfère à la Figure II.12, le combustible destiné à la PAC doit tout d'abord être produit (en particulier s'il s'agit d'un combustible hydrogène, composé le plus courant sur terre mais quasi inexistant à l'état naturel) et être stocké. Il est ensuite conditionné, en termes de pression, de température, de débit et d'hygrométrie, avant de pouvoir entrer dans le compartiment anodique de la PAC. Le comburant est conditionné de la même manière avant de pénétrer dans le compartiment cathodique. Pour chacun de ces deux circuits de gaz, on peut en outre envisager de récupérer l'eau produite en cœur de pile par la réaction électrochimique, et emmenée par les gaz de sortie de la pile à combustible, pour participer au processus d'humidification des gaz en entrée de pile. Ceci peut permettre, dans certains cas (application embarquée) et pour certains modes de fonctionnement, d'obtenir un système auto-suffisant en eau.

Par ailleurs, la réaction électrochimique se produisant en cœur de pile étant exothermique, il est nécessaire de disposer d'un circuit de refroidissement dédié, à fluide caloporteur, dès que la puissance de la pile devient significative (typiquement supérieur au kW). La régulation de ce circuit de refroidissement cherchera à maintenir la température du cœur de pile au voisinage des conditions nominales de température, spécifiées par le fournisseur de pile. Bien entendu, le contrôle de ce circuit de refroidissement devra être couplé au contrôle de l'hygrométrie des gaz entrants, les évolutions de ces deux variables étant elle-même couplées par nature.

Finalement, la mise en forme de l'énergie électrique délivrée par la PAC au moyen d'un convertisseur statique est très souvent indispensable ; l'association de la PAC (source d'énergie) à une source de puissance (de type supercondensateur ou batterie) pourra elle, être envisagée, en fonction de l'application visée. Bien entendu, le contrôle et surtout la gestion des flux d'énergies entre tous ces sous-systèmes et de leurs interactions nécessitent un organe de supervision dédié.

Une part importante des verrous à lever pour rendre la technologie PAC plus mature concerne bien sûr les éléments constituant des cœurs de pile : assemblages membrane – électrodes, couches de diffusion, plaques distributrices des réactifs. Sur ce point, des recherches très ciblées portant sur les matériaux à mettre en œuvre dans les composants demeurent encore forcément indispensables. Pour autant, compte tenu de la configuration du groupe électrogène à PAC, qui fait apparaître des échanges énergétiques et fonctionnels très importants, une approche dite système doit absolument être envisagée. La conception même de l'empilement ne peut se faire en s'affranchissant d'une réflexion sur le choix des auxiliaires à mettre en œuvre et sur les modes de contrôle du générateur. A contrario, la capacité à définir ces auxiliaires et ces lois de gestion menant à une intégration optimisée de la pile au sein du générateur suppose une bonne appréhension des incidences du comportement de ces organes périphériques sur les performances du stack. De toute évidence, la définition du système est fortement conditionnée par les contraintes spécifiques liées à l'application visée, en termes de coût, de rendement, de fiabilité et de durée de vie, de puissances massique et volumique, de capacités à effectuer des démarrages à froid... Il apparaît néanmoins que différentes alternatives technologiques demeurent généralement envisageables pour répondre à un cahier des charges donné. Il n'existe pour ainsi dire pas de générateur à PAC type, pas plus qu'il n'existe non plus d'ailleurs un seul genre de motorisation à combustion interne (on trouve ainsi des moteurs à essence, diesel, atmosphériques, à turbocompresseur...). Lors de la définition de l'architecture d'un générateur de type PAC, des compromis sont toujours à trouver entre d'une part l'obtention de performances élevées au niveau du stack par l'introduction d'auxiliaires idoines et d'autre part la consommation énergétique parasite, les surplus de masses et de volumes, la complexité que ceux-ci génèrent [Candusso TI 2007].

Dans l'optique de la démarche système préconisée plus haut mais aussi pour mettre en évidence les couplages physiques existant entre la pile et les organes auxiliaires, une décomposition simple du système PAC en plusieurs sous-systèmes assurant des fonctions de base est réalisée, en considérant trois principaux circuits et leurs organes auxiliaires de la PAC : pour le combustible, pour le comburant et pour le contrôle de la température de l'empilement.

II.4.2 Le circuit combustible.

L'hydrogène est le combustible le plus généralement utilisé par les piles PEM. Une alimentation en hydrogène pur permet l'optimisation de la quantité d'énergie embarquée : il est ainsi possible de faire réagir au moins 90 % de l'hydrogène embarqué, l'hydrogène non consommé correspondant à des purges. Différents mélanges hydrogénés (par exemple du type : hydrogène / azote / dioxyde de carbone) peuvent aussi être employés en particulier quand il s'agit de produire le combustible via un reformeur à partir d'un hydrocarbure tels que le méthane, le méthanol par exemple, voire du diesel [Chrenko Thèse 2008]. Une des limites dans l'emploi de ce type de mélanges se trouve dans leurs teneurs potentielles en composants polluants pour les cellules (soufre, monoxyde de carbone notamment).

Dans le cas de l'utilisation d'hydrogène sous forme gazeuse, que ce soit au laboratoire ou dans un véhicule, le combustible est le plus souvent stocké dans des réservoirs sous pression :

- au laboratoire, à 200 bars par exemple dans les bouteilles B50 d'Air Liquide (50 litres, 75 kg à vide + environ 0.75 kg d'hydrogène) utilisées sur la plateforme de Belfort,
- dans les véhicules, de 350 bars à 700 bars avec des réservoirs Dynetek par exemple.

En sortie de réservoir, le gaz est alors détendu, souvent en plusieurs étapes (d'abord à une dizaine de bars, puis à la pression d'utilisation au sein même de la pile, soit dans la gamme usuelle 0 - 3 bar relatifs). Le débit d'hydrogène à acheminer vers la pile doit ensuite être régulé et ce contrôle peut s'effectuer de différentes manières, en particulier suivant que la pile se trouve sur un banc d'essais et de caractérisation, ou bien dans un générateur à visée applicative, de type embarqué ou stationnaire.

Dans le cas d'un groupe électrogène destiné à des applications fonctionnelles, le nombre de capteurs et d'instruments de mesure sophistiqués doit être réduit. Dans ces conditions, le mode de fonctionnement dit bouché et avec purges est souvent préconisé. Le rapport moyen à la stoechiométrie est alors proche de un. Une seule vanne (du type tout ou rien) est mise en œuvre en aval du stack et son ouverture est

déclenchée brièvement de manière séquentielle et/ou en assurant une surveillance de la dégradation des niveaux de tensions cellules engendrée par des accumulations de produits non réactifs (eau, azote, impuretés éventuelles). Une purge est alors réalisée quand une ou plusieurs tensions atteignent un seuil bas (pouvant être fixé à 400 mV par exemple). Le mode recirculation de l'hydrogène peut aussi être adopté ; son bénéfice doit être évalué en considérant notamment, d'une part, le gain apporté à la tension de pile, d'autre part, la consommation énergétique de l'organe assurant la recirculation (pompe). Ce mode de fonctionnement n'exclut pas le besoin de recourir à des purges pour pourvoir à l'élimination des accumulations de produits non réactifs.

La plupart des piles PEM sont encore actuellement dotées de membranes à base de polymères perfluorosulfonés, de type Nafion® (société Du Pont de Nemours). Ces membranes ont une conductivité ionique qui dépend fortement de leur charge en eau, et celle-ci est particulièrement difficile à maintenir pour des températures de pile supérieures à 80 °C. Dans une PAC de type PEM, l'eau étant produite à la cathode, la zone a priori déficitaire en eau et la zone de la membrane susceptible de s'assécher est l'anode, ce qui suppose d'humidifier le combustible. Pour autant, l'humidification des réactifs à l'anode, à réaliser en amont du stack, n'est pas toujours préconisée par les constructeurs de pile (et rarement fait dans la plupart des applications embarquées ou stationnaires), l'objectif étant souvent de simplifier au maximum la configuration du circuit hydrogène et de limiter par là-même les risques et les coûts potentiels liés à l'utilisation de ce gaz. Par ailleurs, en cas d'excès d'eau, la membrane ne pourra plus absorber l'eau. L'excédant devra donc être évacué par le circuit anodique, qui est rarement en mode ouvert mais plus fréquemment en mode fermé ou en mode recyclé, afin de limiter la consommation d'hydrogène. L'évacuation par l'anode s'avère plus complexe du fait des débits moins importants qu'à la cathode. Le stack lui-même peut d'ailleurs, en interne, faire office d'humidificateur pour l'hydrogène si la pile est conçue dans ce but et si l'eau produite à la cathode est soumise dans les membranes à un gradient de diffusion vers l'anode. La diffusion de l'eau par gradient de concentration à travers la membrane permet de rééquilibrer le déficit d'eau à l'anode.

II.4.3 Le circuit comburant. Compression. Humidification

L'objectif premier de ce sous-système (ou circuit) permet d'alimenter en comburant le compartiment cathodique de la pile. Comme pour l'hydrogène, le comburant (l'oxygène pur ou l'air) peut être stocké dans des réservoirs sous pression. Mais pour les applications transport (hors sous-marins et applications spatiales nécessitant des piles anaérobies), l'alimentation se fait généralement à partir de l'air ambiant, qui est abondant et gratuit. Une telle alimentation, si elle présente un coût d'exploitation relativement faible, n'en demeure pas moins délicate. En effet, un certain nombre de « points durs » peuvent être soulignés :

- l'air ambiant doit être amené (dans des conditions compatibles avec le fonctionnement de la PAC – nous y reviendrons plus tard) jusqu'aux sites réactionnels dans le compartiment cathodique ;
- l'air ambiant est très souvent pollué par divers gaz ou particules (CO, poussières...), lesquels, s'ils se retrouvent injectés dans le cœur de la PAC, réduisent les performances et/ou la durée de vie ;
- l'air ambiant doit être « conditionné », en termes d'hygrométrie et de température, de manière à améliorer le fonctionnement de la pile (dans certains cas, il s'agit simplement de permettre le fonctionnement de la pile).

La fourniture d'air à la pile peut être assurée de différentes façons.

Pour les très faibles puissances (moins de 200W), on trouve des piles fonctionnant en mode dit « à respiration », un mode de fonctionnement très simple puisqu'il ne nécessite aucun dispositif annexe d'alimentation en air. La PAC « respire » l'air ambiant au fur et à mesure de ses besoins, liés à la demande en courant. La fourniture du courant provoque la consommation de l'oxygène présent dans les canaux d'alimentation et crée une dépression.

Pour les PAC aux niveaux de puissance supérieurs, l'alimentation en air s'effectue suivant le niveau de pression requis, au moyen d'une soufflante (jusqu'à environ 500 mbar de pression relative, le mode de fonctionnement de la pile est parfois qualifié d'atmosphérique) ou d'un compresseur (de l'ordre de 1 à quelques bars relatifs ; mode dit pressurisé préconisé pour des puissances électriques supérieures à

Chapitre II

1 kW). Le débit d'air est ensuite dirigé directement vers la pile. Les limitations liées aux performances dynamiques de la soufflante ou du compresseur doivent alors être prises en compte dans un mode de gestion de la pile impliquant des débits variables.

Le débit d'air est quant à lui fixé, d'une part, en fonction du niveau de courant électrique à atteindre, d'autre part, vis-à-vis du besoin lié à l'évacuation de l'eau liquide pouvant potentiellement se trouver dans le compartiment cathode. L'objectif final étant d'éviter tout fonctionnement en sous-stoechiométrie, même locale, pouvant occasionner une dégradation de la pile. Des pressions partielles d'oxygène satisfaisant au bon déroulement de la réaction chimique doivent être assurées au sein du stack. Pour cela, un taux de surstoechiométrie cathode proche de deux est généralement choisi. Comme pour le circuit anode, d'autres topologies fluidiques peuvent être adoptées. Les pertes de charge en aval de la pile peuvent notamment être générées par une turbine de détente, en lieu et place de la vanne de contre-pression en sortie cathode.

Il est à noter que le choix de la pression de fonctionnement a une influence sur le rendement de la conversion électrochimique, sur la consommation en énergie des organes de l'ensemble compression / détente, mais aussi sur le procédé d'humidification des réactifs. Un fonctionnement à basse pression conduit au niveau de la pile à un rendement en tension moins bon et oblige à augmenter la capacité de l'ensemble humidification / condensation. Par contre, à basse pression, le recours possible à une soufflante à la place du compresseur et l'inutilité d'une turbine entraînent une simplification du système. A contrario, un fonctionnement à haute pression permet d'obtenir de meilleurs rendements de tension pour les cellules de la pile. Il facilite aussi la gestion hydrique et thermique, en particulier en ce qui concerne l'humidification des gaz en amont du stack. L'utilisation d'une turbine en sortie cathode permet de récupérer une partie de l'énergie de compression mais augmente la complexité du système.

- Compression

Plusieurs technologies de compresseurs existent : compresseur centrifuge, compresseur à vis sèches, compresseur à vis lubrifiées, compresseur à lobes, compresseur à palettes, compresseur à pistons lubrifiés, compresseur à pistons secs, compresseur à spirale ou scroll [Blunier Thèse 2007] [Brunet Hissel 2009]. Les compresseurs les plus répandus sont les compresseurs volumétriques, dans lesquels le fluide est emprisonné dans un volume fermé que l'on réduit progressivement pour réaliser la compression. Il existe aussi des turbocompresseurs ; la compression est alors obtenue en convertissant en pression l'énergie cinétique communiquée au fluide par la vitesse de rotation d'une roue [Destoop TI 1989].

Le choix d'un compresseur d'air pour les applications PAC se fait généralement en fonction de la qualité d'air recherchée, de la pression de refoulement et des débits d'air nécessaires à la pile.

Tout d'abord, les réactions électrochimiques ayant lieu au cœur de la PAC sont incompatibles avec les particules d'huile en suspension dans l'air. En effet, les gouttelettes d'huile résiduelles dans l'air comprimé peuvent recouvrir les sites catalytiques et réduire de fait grandement les performances, et à terme, la durée de vie de la pile. Malheureusement, la majorité des compresseurs « disponibles sur étagère » sont refroidis et lubrifiés à l'huile. De facto, si l'on cherche de l'air exempt d'huile, seules les solutions non lubrifiées ou lubrifiées à l'eau conviennent (comme les turbocompresseurs, compresseurs à vis sèches, à lobes secs, à pistons secs, à spirale sèche ou à membranes). Sinon, il peut être éventuellement envisagé de fonctionner avec un déshuileur et un filtre. Les compresseurs lubrifiés à eau apparaissent comme une solution prometteuse pour les applications PAC car en plus de réduire les pertes mécaniques via la lubrification, elle permettrait d'humidifier l'air en amont de la PAC et de réduire ainsi la taille de l'humidificateur nécessaire à la pile PAC équipée de membranes type Nafion [Tekin Thèse 2004].

Par ailleurs, la quantité d'air demandée et la plage de puissance du compresseur vont impacter le choix de la technologie du compresseur. Si l'usage est très intensif, les compresseurs rotatifs et les turbocompresseurs demanderont peu d'entretien, mais le prix sera en conséquence. Pour les applications PAC, les compresseurs à haute vitesse (à partir de 10 000 tr/min et bien au-delà : 50 000 tr/min par exemple pour les technologies de la société Barber Nichols [Barber Nichols]) comme les compresseurs centrifuges, scroll ou à vis peuvent être intéressants [Zhao 2003] [Dubas Thèse 2006]. En effet, un détendeur (ou turbine) peut alors être couplé mécaniquement (et éventuellement

Chapitre II

directement) sur l'arbre du moto-compresseur et récupérer une partie de l'énergie-pressure contenue dans les gaz (appauvris en oxygène) sortant à la cathode.

Parmi les compresseurs rotatifs, les compresseurs à spirale, à vis et à membranes peuvent apparaître mieux adaptés aux systèmes PAC en termes de rendement (PAC à faible et moyenne puissances) que les compresseurs à piston ou centrifuges. En effet, ces compresseurs sont très étanches, ce qui veut dire que leurs rendements volumétriques sont plus élevés que les autres compresseurs rotatifs (à lobes, à palettes). Finalement, et surtout, ils sont également dimensionnés pour des gammes de puissances et de débits qui conviennent aux applications PAC. Actuellement, il n'existe que quelques prototypes de compresseurs spécialement conçus pour les groupes électrogènes PAC. De manière générale, ces compresseurs souffrent tous encore néanmoins d'un ou plusieurs inconvénients (rendement médiocre, niveau sonore trop élevé, durée de vie incompatible avec une application PAC...). L'étape de la compression doit donc encore faire l'objet d'évaluations et de recherches [Romani Thèse 2007].

- Humidification

Le sous-système d'humidification est avec le compresseur un composant majeur de la ligne d'alimentation en gaz d'une pile PEM type Nafion® et également le deuxième consommateur de la puissance brute de la pile dans le cas d'un système autonome de plus de 1kW. Le maintien de la charge en eau dans la membrane est indispensable à l'obtention de bonnes performances et à la durée de vie de la pile [Moratin Thèse CNAM 2003] [Dumercy Thèse 2004]. L'eau produite par la réaction peut suffire dans le cas d'applications de très faibles puissances, inférieures à la centaine de Watt (auto-humidification). Néanmoins, au-delà de cette gamme de puissance, l'humidification de l'air en amont de la pile PEM à membrane Nafion est encore incontournable pour aboutir à des durées de vie significatives. L'humidification peut être réalisée par divers procédés. Les systèmes diffèrent en fonction de l'application visée : banc d'essais et de caractérisation, application stationnaire ou embarquée (Figure II.13). En ce qui concerne les applications embarquées, nécessitant une plus grande compacité des systèmes, plusieurs types d'humidificateurs peuvent être adoptés :

- des solutions passives qui ne grèvent pas le bilan de puissance nette de la pile mais offrent un moins bon contrôle des conditions de fonctionnement : humidificateurs externes à membrane poreuse, adaptés aux piles autosuffisantes en eau, et accolés à la surface du stack pour mieux valoriser la chaleur dégagée par celui-ci,
- aux solutions plus ou moins actives, plus performantes mais un peu ou beaucoup plus gourmandes en énergie : des roues enthalpiques pour les générateurs embarqués, aux systèmes d'humidification par injection d'eau et bullage pour les systèmes stationnaires et les bancs d'essais (Chapitre IV).

L'objectif global pour un générateur embarqué étant toujours de récupérer la chaleur et l'eau produite en sortie de pile pour humidifier les gaz en amont et aboutir ainsi au niveau du système à un bilan hydrique permettant une autonomie.

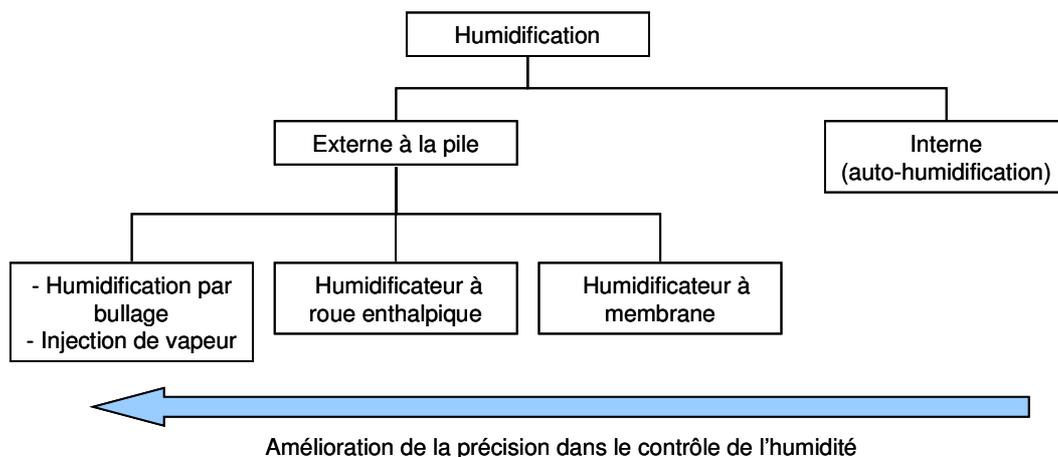


Figure II.13 : Différents types d'humidification du comburant [Candusso TI 2007].

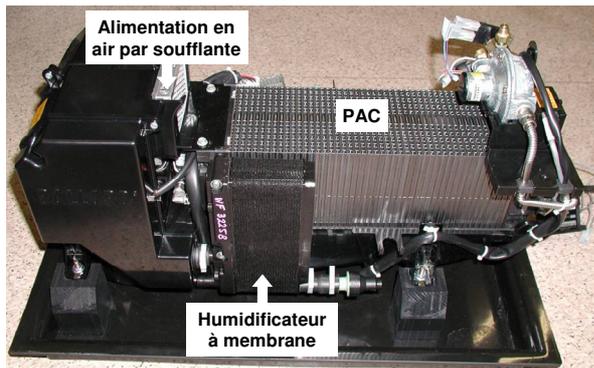


Figure II.14 : Module de puissance autonome Nexa™ de 1.2 kW doté d'un échangeur à membrane sur le circuit d'air.



Figure II.15 : Photo de roue enthalpique Humidicore™ pour PAC.

II.4.4 Le contrôle de la température de pile

Dans un générateur PAC, les sources de chaleur sont nombreuses : pertes thermiques de la réaction électrochimique, échauffement de l'air lors du travail de compression, échauffement des organes électriques tels que les moteurs de pompes et les convertisseurs, chaleur libérée par les réactions exothermiques liées au processus de reformage. A contrario, des apports de chaleur sont nécessaires à l'humidification des gaz, aux réactions endothermiques dans le cas du reformage (vapo-reformage). Dans une pile PEM, il n'est guère envisageable d'effectuer des échanges de chaleur entre les sources et les puits de chaleur : ainsi, la chaleur due à la réaction dans la pile, maintenue à une température souvent inférieure à 80 °C environ, ne permet-elle pas d'humidifier les réactifs.

Le circuit de contrôle de la température d'un système PAC destiné à une application automobile est pourtant souvent déjà complexe et peut être scindé en plusieurs sous-circuits. La stratégie de contrôle de la température des stacks est très discutée et aucune solution universelle n'a encore été trouvée. Bien que la PAC soit un générateur à haut rendement, l'énergie thermique à évacuer n'est pas négligeable. La contribution des flux des gaz à l'évacuation de la chaleur étant très faible, un système de refroidissement doit dans la plupart des cas être intégré au stack.

La température de l'empilement doit être contrôlée à un niveau et d'une manière qui dépendent de l'application visée. L'adoption d'une température élevée permet d'aboutir au niveau du stack à une diminution des surtensions d'activation et de diffusion. Néanmoins, les contraintes liées au maintien de la charge en eau des membranes à base de Nafion ne permettent guère d'envisager des températures opératoires supérieures à 80 °C. En effet, dans ces conditions, des assèchements de membranes ont alors lieu. Ils peuvent entraîner une baisse de la conductivité protonique et par là-même une diminution importante et rapide des performances de la pile. En outre, ces assèchements peuvent aussi conduire à une diminution de la durée de vie du stack. Par ailleurs, toujours dans le contexte de cette problématique liée à l'hydratation des membranes, le choix d'une température de fonctionnement haute pour le stack nécessite une augmentation de la capacité du ou des dispositifs d'humidification. La température de l'environnement avec lequel le caloporteur va devoir échanger de la chaleur est un autre élément important à prendre en considération dans le dimensionnement du système. Dans le cas d'un véhicule où la compacité est recherchée, un fonctionnement à température de pile élevée, mais néanmoins compatible avec les possibilités actuelles offertes par les membranes, permettra de mettre en œuvre des échangeurs moins volumineux. Dans le cas d'une application stationnaire, pour laquelle les contraintes de volume et de masse sont moins fortes, le choix d'une température plus basse, de l'ordre de 60 °C, est envisageable.

Le problème du mode de contrôle de la température de la pile peut être envisagé en fonction de la puissance délivrée (Figure II.16). Pour des piles offrant des puissances électriques faibles (jusqu'à environ 1 kW), un refroidissement par air (convection) peut être effectué. Des ventilateurs ou soufflantes sont alors mis en œuvre. La température de l'air sortant de la cathode peut dans ce cas faire figure de variable à contrôler. Pour des puissances supérieures, le refroidissement des piles PEM à

Chapitre II

membranes type Nafion est réalisé par un caloporteur liquide tel que de l'eau déminéralisée, ou tel qu'un mélange à base d'eau déminéralisée et de glycol. Le débit d'eau est établi au moyen d'une pompe et la valeur du débit est généralement déterminée de manière à garder une différence de température entrée / sortie inférieure à 5°C. Le contrôle de la température peut s'effectuer en considérant la température d'eau de sortie du stack comme variable à réguler, celle-ci correspondant à une image fidèle de la température moyenne de l'empilement. Dans le cas d'une application plus fonctionnelle (application embarquée ou stationnaire), la présence d'un réchauffeur n'est pas forcément nécessaire, en particulier si des démarrages à froid ne sont pas prévus. Le contrôle de la température peut alors être simplifié et ramené à un dispositif de limitation de la température, le stack assurant à lui seul la chauffe du circuit par l'énergie thermique dégagée.

Dans tous les cas, une bonne homogénéité des températures dans le stack est recherchée. Les fonctionnements générant l'apparition de points chauds, de zones sèches sur les surfaces des ensembles membrane – électrodes sont à proscrire pour ne pas aboutir à plus ou moins court terme à des perforations de membranes. L'uniformisation des températures pourrait être obtenue, par exemple, en utilisant des diffuseurs thermiques diphasiques.

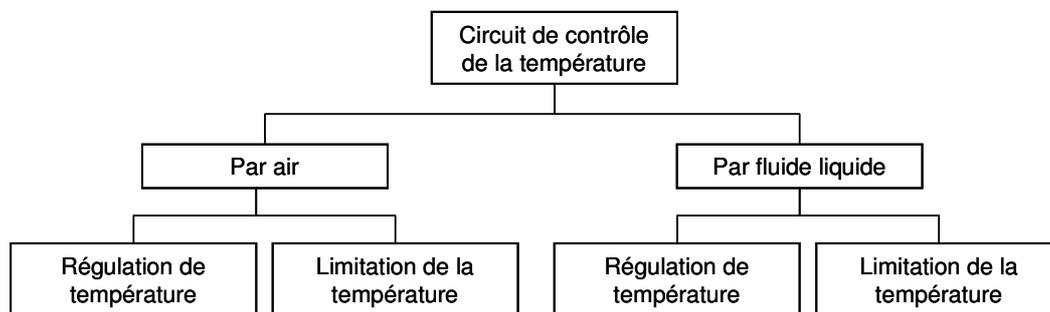


Figure II.16 : Différents types de contrôle de la température de la pile [Candusso TI 2007].

II.4.5 La gestion globale du système

Les descriptions des circuits liés au combustible, au comburant et au contrôle de la température de pile ont fait apparaître des couplages physiques et fonctionnels forts entre les différents paramètres physiques mis en jeu dans le système : notamment la température de pile, la pression des réactifs, et les taux d'humidification des gaz. Ceci explique la complexité des bancs d'essai dédiés à la caractérisation de piles qui doivent assurer la répétitivité des mesures par la maîtrise des conditions opératoires. Dans le cadre de la conception d'un générateur autonome, le nombre d'actionneurs et de capteurs sera nécessairement plus modeste pour limiter le coût et l'encombrement du système mais doit permettre un fonctionnement satisfaisant de la pile (Figure II.17).

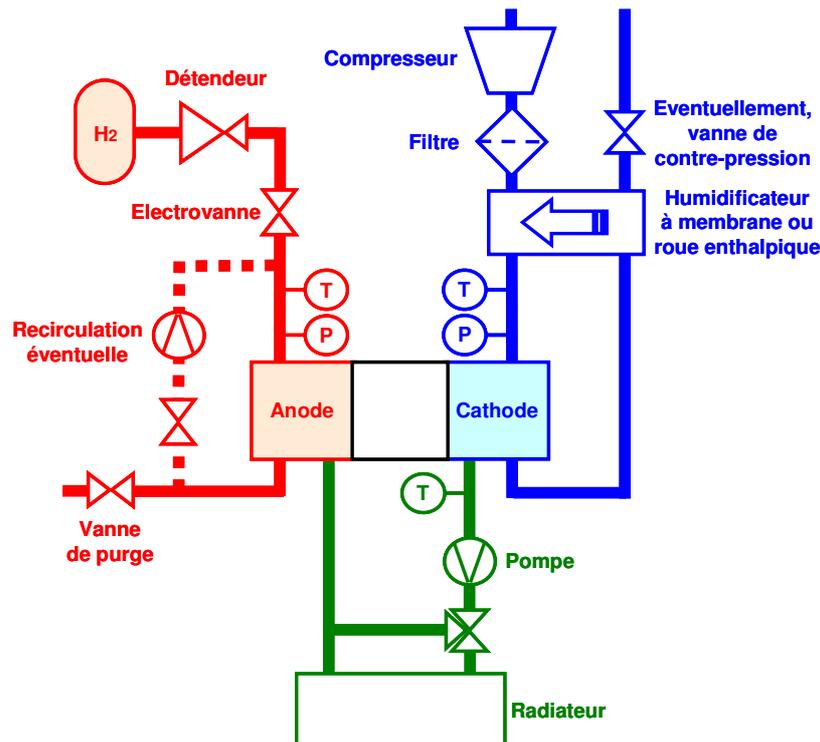


Figure II.17 : Exemple de schéma de principe d'un système PAC PEM simplifié [Candusso TI 2007].

Le dimensionnement de la pile et de ses organes auxiliaires ne peut que faire l'objet de compromis et l'optimisation globale du système passe aussi par une valorisation des produits du système, en particulier celle de la chaleur. Dans un groupe électrogène à PAC, les sources de chaleur sont nombreuses : pertes thermiques de la réaction électrochimique, échauffement de l'air lors du travail de compression, échauffement des organes électriques tels que les moteurs de pompes et les convertisseurs, éventuellement chaleur libérée par les réactions exothermiques liées au processus de reformage. A contrario, des apports de chaleur sont nécessaires à l'humidification des gaz, aux réactions endothermiques dans le cas du reformage, lors des phases de démarrage à froid. Il n'en demeure pas moins que les échanges à effectuer au sein du système entre les sources et les puits de chaleur sont peu évidents à réaliser technologiquement.

Les recherches menées sur les cœurs de pile visant notamment à atteindre des conductivités protoniques satisfaisantes à des taux d'humidification faibles doivent aussi conduire à terme à une simplification du système. Des fonctionnements à pressions élevées ne présenteront plus autant d'intérêt pour l'humidification amont des réactifs et la dépense parasite liée à la compression de l'air sera alors moindre. La possibilité de mettre en œuvre des températures de pile plus hautes (120 °C) viendra aussi faciliter l'évacuation de la chaleur mais ne permettra pas le démarrage autonome à température ambiante, impliquant donc de prévoir une phase de démarrage.

Le pilotage du système PAC ne constitue certes pas un verrou technologique majeur au même titre que la charge en platine des électrodes ou la conductivité des membranes. Pour autant, il est impératif d'aboutir à des procédures de gestions du système efficaces et sûres. Pour offrir des performances optimales en termes de rendement, de puissance et de durée de vie, le stack doit être placé dans des conditions opératoires favorables bien déterminées et, du fait des nombreux organes et paramètres à maîtriser, ces conditions précises ne sont pas atteintes facilement, en particulier quand le groupe électrogène est appelé à fournir des dynamiques de puissances significatives. Un débit mal contrôlé et c'est une membrane qui peut se déchirer. Des mesures de surveillance (ou monitoring) de grandeurs physiques idoines, associées à des procédures de sécurité et de diagnostic prédictif, un conditionnement performant de l'énergie électrique sont autant de points sur lesquels des travaux sont encore à mener.

II.4.6 La gestion de l'énergie électrique

L'énergie électrique issue du stack doit en général être conditionnée de manière à pouvoir être utilisée au niveau de l'application (groupe motopropulseur par exemple). Une PAC se caractérise en effet d'un point de vue électrique et à l'image des autres composants électrochimiques, par un niveau de tension relativement bas et des niveaux de courant significatifs. En première approche, on peut estimer ces niveaux à environ 0.6 - 0.7V par cellule et 1A/cm² aujourd'hui, dépendant bien entendu de la PAC utilisée. De plus, la tension aux bornes d'une PAC n'est pas constante et dépend de la charge appliquée. Le courant de pile doit pour cela être maîtrisé. De fait, une PAC ne peut qu'assez rarement être connectée directement à une charge. Un convertisseur statique doit l'interfacer avec son application. Il convient donc de définir des convertisseurs statiques particuliers, répondant à ces exigences, présentant des volumes et masses réduits et des rendements élevés [Lefèvre Thèse 2004]. La structure la plus commune est un convertisseur de type continu / continu (hacheur) élévateur de tension non réversible en courant (Figure II.18). Le modèle topologique ou instantané du hacheur est également donné. La fonction de commutation notée u vaut soit 0, quand l'interrupteur est commandé à l'ouverture, soit 1 quand l'interrupteur est commandé à la fermeture. Le modèle moyen du hacheur est obtenu en remplaçant la variable u par le rapport cyclique α , qui prend une valeur comprise dans l'intervalle [0 - 1]. Dans cette structure, l'inductance L est dimensionnée pour réduire les ondulations de courant appliqué à la PAC. Cette structure peut être optimisée grâce à des entrelacements. D'autres structures peuvent être utilisées (ex : convertisseur DC / DC à étage onduleur avec utilisation d'un transformateur dans la gamme du kHz) [Garnier Thèse 2006].

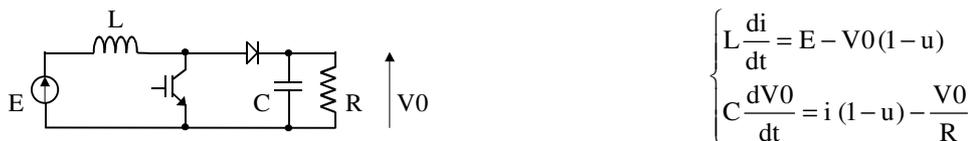


Figure II.18 : Circuit électrique du hacheur élévateur et modèle topologique ou instantané du hacheur.

Dans le cas d'un véhicule doté d'une machine électrique à courant alternatif ou d'une application stationnaire avec fourniture d'un courant alternatif, un onduleur est placé entre le bus continu et le moteur / le réseau. La Figure II.19 représente un exemple de topologie électrique assurant la connexion d'une PAC à un réseau électrique basse tension (ici, sans transformateur d'isolation). La PAC, ainsi connectée, peut être utilisée par exemple comme source d'appoint destinée à délivrer de la puissance sur un réseau faible. Elle pourrait également servir à assurer la compensation d'harmoniques présents sur le réseau, dus à une charge non linéaire. La topologie étudiée est basée sur l'association hacheur élévateur - onduleur de tension à MLI. Cette architecture électrique a été analysée par des travaux de modélisation / simulation et a fait l'objet de communications [Candusso IECON02] [Candusso GEVIQ02]. Elle présente des similitudes somme toute importante avec des topologies et des modes de contrôle-commande destinés à des applications véhicule. Dans [Candusso IECON02] [Candusso GEVIQ02], les modèles du groupe électrogène à PAC, les modèles des convertisseurs et du réseau ont été explicités. Pour la PAC, un modèle statique a été utilisé ; sa courbe de polarisation (tension de pile en fonction du courant) est calculée à partir d'une relation semi-empirique liant la densité de courant, les pressions en oxygène et hydrogène, la température du stack. Quant aux convertisseurs, les modèles topologiques et moyens ont été mis en œuvre de façon à pouvoir d'une part effectuer les réglages, observer le comportement du système durant les transitoires et en régime permanent, et d'autre part étudier les effets des perturbations hautes fréquences. Deux algorithmes (de type commande extrême, « MPPT ») ont été développés pour faire fonctionner le groupe électrogène à PAC, suivant les besoins, soit à son maximum de puissance, soit à son rendement maximum. L'onduleur triphasé est commandé grâce à deux boucles de contrôle imbriquées. La première régule le courant au moyen d'un correcteur résonnant. La seconde est basée sur un contrôle des puissances actives et réactives dans le repère de Park. Les simulations ont été réalisées avec le solveur Matlab-Simulink. Nous avons ainsi montré qu'il était particulièrement intéressant d'utiliser des correcteurs de type résonnant pour asservir les grandeurs sinusoïdales. Ce type de correcteur possède en effet un très bon comportement à la fois en asservissement et en régulation. Nous avons également montré que la

Chapitre II

présence d'un filtre, entre le réseau et l'onduleur, permet de respecter les normes relatives à la pollution harmonique.

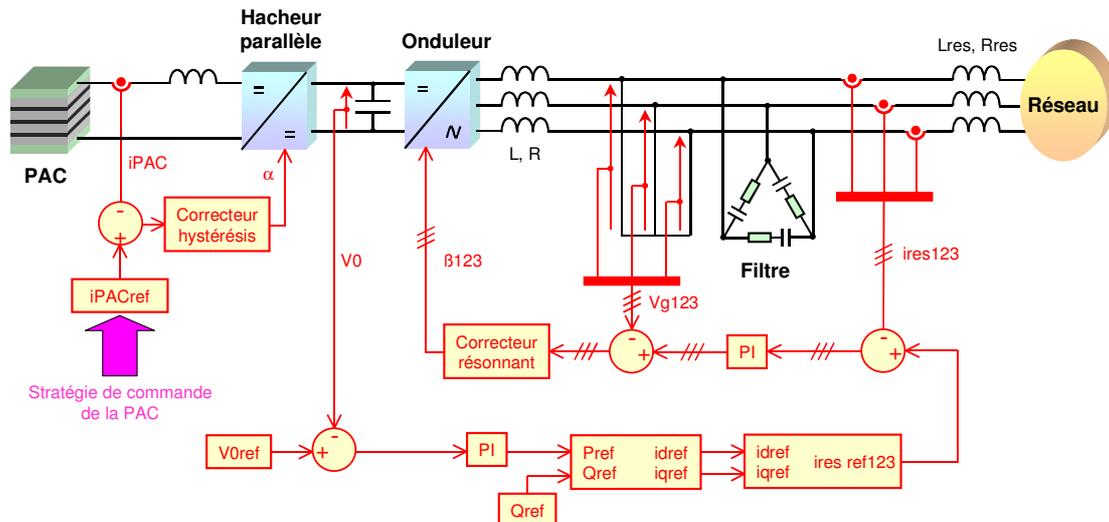


Figure II.19 : Exemple de topologie assurant la connexion d'une PAC à un réseau électrique basse tension [Candusso IECON02] [Candusso GEVIQ02] [Candusso BE PAC 2002] [Walter DEA 2001].

Dans le but de tester la topologie définie plus haut et la commande des différents convertisseurs (commandes rapprochée et éloignée), un profil de fonctionnement test est défini :

- La tension du réseau augmente de 20%,
- Les pressions d'hydrogène et d'oxygène décroissent,
- La consigne de puissance réactive donnée à l'onduleur augmente de 0 à 100kVAR.

La réponse du système aux différentes perturbations s'effectue en 0,2s environ.

La simulation a été faite ici avec un réseau triphasé idéal. D'autres simulations ont été réalisées avec un réseau impédant.

L'outil développé a par la suite servi de base au développement et à la commande d'autres topologies d'électronique de puissance, au développement de systèmes hybrides avec stockage tampon (condensateurs) [Valero Thèse].

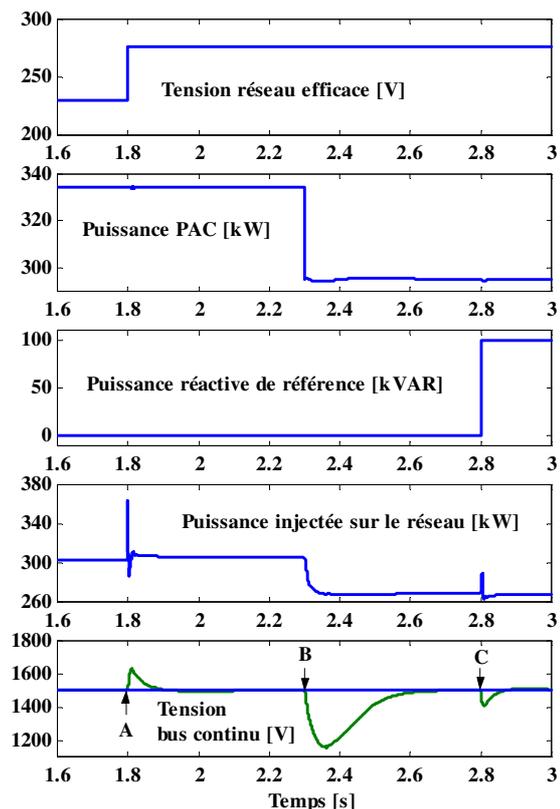


Figure II.20 : Contrôle de la tension du bus continu.

Au-delà de la mise au point d'interface électrique performantes et fiables entre la PAC et l'application, des solutions autorisant des fonctionnements en mode dégradé, voire une continuité de service au niveau du générateur PAC, doivent être imaginées en particulier pour les applications transport. L'association de PAC, via une électronique de puissance adaptée, peut apporter des solutions dans ce domaine et offrir une redondance au niveau du système global (Chapitre III).

Chapitre II

En outre, la gestion de l'énergie électrique ne se limite pas à la seule pile. Des études doivent aussi porter sur le mode de connexion des auxiliaires au(x) bus électrique(s) et sur le pilotage de l'ensemble (commandes rapprochées et stratégies de gestion plus globales des organes périphériques), voir sur d'éventuels problèmes de CEM. En somme, les perspectives de travail apparaissent particulièrement riches pour les électriciens et les automaticiens.

II.4.7 Rendements de la pile PEM et du système

La Figure II.21 illustre, pour un générateur à PAC de type PEM, les répartitions typiques des consommations énergétiques intrinsèques, liées aux différents auxiliaires. On constate premièrement que la puissance électrique nette ne représente qu'environ les 2/3 de la puissance électrique brute, disponible en sortie de la PAC. Deuxièmement, parmi les différents auxiliaires, le système de conditionnement du comburant (en général, un compresseur d'air) est le plus gourmand. Viennent ensuite le système d'humidification, le convertisseur statique et le système de refroidissement. A noter qu'ici nous avons supposé que l'hydrogène était directement disponible sous forme de gaz comprimé à l'entrée du système.

Cette illustration souligne ainsi l'importance et l'impact des différents auxiliaires de pile, tant sur le comportement dynamique de l'ensemble – nous avons déjà évoqué ce point –, que sur le rendement du système.

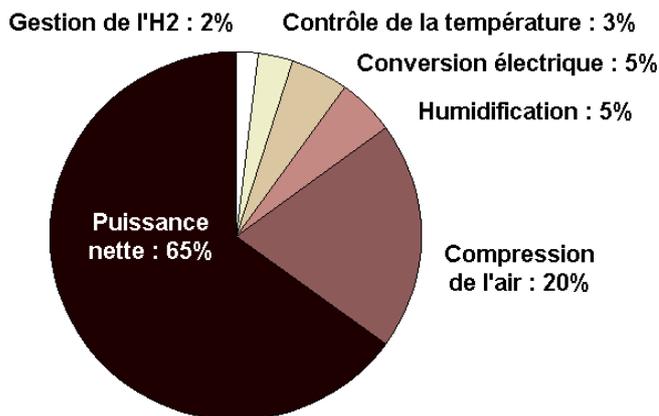


Figure II.21 : Répartition des puissances produites et consommées sur un système PAC de type PEM [Brunet Hissel 2009].

Venons-en à présent au calcul du rendement au niveau du système [Prigent 1997]. Il peut être estimé comme suit.

Le rendement énergétique d'une PAC est défini comme le rapport entre l'énergie électrique produite W_e , directement utilisable, et l'énergie thermique (ΔH) qui serait libérée par la réaction chimique effectuée.

$$\text{rendement} = \frac{W_e}{\Delta H} \quad (\text{II.11})$$

Le **rendement énergétique maximal** $\text{rdt}_{\text{rév}}$ correspond au rapport entre le travail maximal théorique fourni par une pile fonctionnant de manière réversible $W_{e_{\text{max}}}$ et la variation d'enthalpie ΔH au cours de la réaction.

à 25°C, eau obtenue sous forme liquide :

$$\text{rendement}_{\text{rév}} = \frac{W_{e_{\text{max}}}}{\Delta H} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{-237}{-285} = 83\% \quad (\text{II.12})$$

Chapitre II

à 25°C, eau obtenue sous forme gazeuse :

$$\text{rendement}_{\text{rév}} = \frac{W_{e_{\text{max}}}}{\Delta H} = \frac{\Delta G}{\Delta H} = \frac{-229}{-242} = 95\% \quad (\text{II.13})$$

Si la pile fonctionne avec une force électromotrice de 0.7V, le **rendement de tension** rendement_u sera, à 25°C et si l'eau est obtenue sous forme liquide :

$$\text{rendement}_u = \frac{0.7}{1.23} = 57\% \quad (\text{II.14})$$

La notion de **rendement faradique** (rendement_f) est parfois prise en considération pour tenir compte du fait que le nombre d'électrons effectivement obtenu par mole de combustible ou de comburant consommée n'est pas toujours conforme aux calculs théoriques. Le bilan de rendement doit donc alors être multiplié par un coefficient prenant en compte le nombre réel d'électrons obtenus (cas notamment d'une pile alimentée en méthanol). Dans le cas d'un fonctionnement idéal de pile PEM alimentée en oxygène et hydrogène, deux électrons sont obtenus par mole d'hydrogène consommée à l'anode et on a donc : $\text{rendement}_f = 1$. En fait, dans la réalité, ce rendement est inférieur à 1 du fait notamment de la perméation de réactifs (passage de dihydrogène à travers la membrane) évoquée au [Paragraphe II.3](#), de la résistance électronique non infinie de la membrane (résistance de court-circuit mesurée par voltamétrie à balayage linéaire ; cf. [Chapitre IV.3.4.1](#)). Dans le raisonnement qui suit, nous considérerons que ce rendement faradique a déjà été intégré dans les surtensions de la courbe de polarisation (Cf. [Figure II.10](#)) et donc au rendement de tension présenté plus haut.

Le **rendement de matière** rendement_m est lié au taux de combustible fourni en excès à la pile pour prévenir tout déficit éventuel en réactifs susceptible de dégrader les performances. Le rendement de matière est habituellement proche de 95%.

Le **rendement du système** $\text{rendement}_{\text{sys}}$ prend en compte l'énergie qu'il faut dépenser pour le préconditionnement des réactifs, leur compression, pour l'électronique de contrôle... Une partie de la puissance brute délivrée par la pile sert au fonctionnement des auxiliaires (compresseurs, ventilateurs, circuit de refroidissement, valves...).

$$\text{rendement}_{\text{sys}} = \frac{P_{\text{nette}}}{P_{\text{brute}}} = \frac{P_{\text{brute}} - P_{\text{aux}}}{P_{\text{brute}}} \quad (\text{II.15})$$

Le rendement global $\text{rendement}_{\text{GEàPAC}}$ d'un groupe électrogène à pile à combustible, composé de la pile elle-même et des auxiliaires nécessaires à son fonctionnement, est le produit des différents rendements énumérés ci-dessus :

$$\text{rendement}_{\text{GEàPAC}} = \text{rendement}_{\text{rév}} \times \text{rendement}_u \times \text{rendement}_m \times \text{rendement}_{\text{sys}} \quad (\text{II.16})$$

A titre d'exemple, pour une pile hydrogène – oxygène (air) :

- fonctionnant à 25°C sous 0.7 V en rejetant l'eau formée à l'état gazeux
 - ne consommant que 90 % de l'hydrogène admis pour éviter l'accumulation d'un taux trop élevé d'impuretés dans la pile
 - consommant 20 % de son énergie produite pour alimenter les auxiliaires
- le rendement électrique global du groupe électrogène serait :

$$\text{rendement}_{\text{GEàPAC}} = 0.95 \times 0.569 \times 0.9 \times 0.8 = 39\% \quad (\text{II.17})$$

Chapitre II

La Figure II.22 synthétise sous la forme de petits graphes une manière dont on peut calculer le rendement d'un groupe électrogène à PAC (GE à PAC) et fait apparaître au final la forme typique de l'expression du rendement système en fonction de la puissance nette délivrée par le générateur. Ce type de calcul et de graphe sera utilisé dans le Chapitre III consacré à l'hybridation du système PAC.

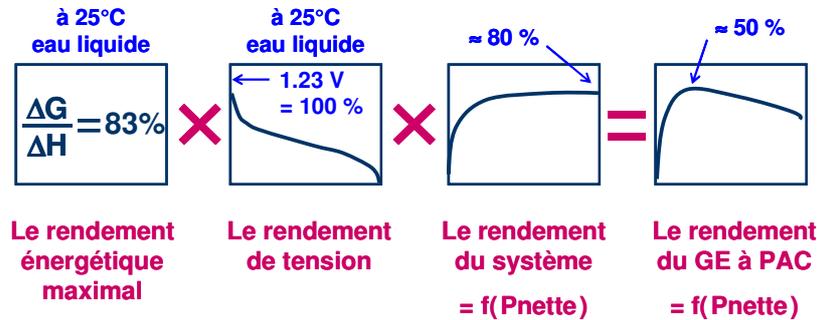


Figure II.22 : Illustration graphique du calcul du rendement d'un système PAC de type PEM [Candusso Thèse 2002, présentation].

Le calcul de la consommation (en g/s) en hydrogène et oxygène d'une cellule de PAC s'effectue à partir du courant I débité :

$$\text{consommation}_{\text{H}_2} = \frac{IM_{\text{H}_2}}{2F} \quad (\text{II.18})$$

$$\text{consommation}_{\text{O}_2} = \frac{IM_{\text{O}_2}}{4F} \quad (\text{II.19})$$

Avec : M_{H_2} : masse molaire du dihydrogène (2 g/mol)
 M_{O_2} : masse molaire du dioxygène (2×16 g/mol)

II.3 Conclusion

Des éléments essentiels permettant de mieux appréhender le principe de fonctionnement d'une PAC de type PEM ont été donnés dans ce chapitre. Une description du principe de fonctionnement d'une cellule de pile, des principaux mécanismes physiques s'y déroulant, a ainsi été proposée. L'importance des aspects système, des interactions fortes entre la pile et ses auxiliaires a été soulignée à l'occasion de la description des topologies fluidiques et des architectures électriques des générateurs PAC.

A ce stade, les groupes électrogènes PAC de type PEM peuvent apparaître comme des objets complexes, du fait notamment de l'hétérogénéité des matériaux employés au niveau des éléments composant un stack, de l'hétérogénéité des dimensions de ces éléments, à cause aussi de la présence d'une eau sous forme liquide et gazeuse, et bien difficile à gérer. Les groupes électrogènes PAC apparaissent néanmoins comme des convertisseurs d'énergie particulièrement performants en termes de rendement et très intéressants de par leur potentialité à convertir proprement une énergie chimique en énergie électrique.

Si les PAC sont intrinsèquement capables de répondre avec une excellente dynamique aux sollicitations en courant imposées par la charge, nous le verrons plus en détails dans le Chapitre IV, il n'en va malheureusement pas de même des auxiliaires nécessaires à leur fonctionnement (alimentation en hydrogène, compresseur d'air, système d'humidification, circuit de refroidissement...). Ces auxiliaires présentent, en effet, des temps de réponse sensiblement différents (de quelques millisecondes à quelques minutes), pénalisant d'autant le fonctionnement du « système pile à combustible ». De ce fait, l'hybridation d'un groupe électrogène à PAC par des éléments de stockage réversible de l'énergie tels que les batteries, les supercondensateurs apparaît incontournable.

Le chapitre suivant est consacré à cet aspect.

Chapitre II

II.4 Références

[AFH2]	Site internet de l'Association française de l'hydrogène (AFH2) : http://www.afh2.org/f/index.php
[Alleau 2007]	Thierry Alleau. L'hydrogène, énergie du futur ? ISBN 978-2-86883- 990-9. EAN 9782868839909. 216 pages. Parution le 29.11.2007. EDP Sciences. Collection Bulles de Sciences.
[ASME]	Site internet de l'American Society of Mechanical Engineers: http://www.asme.org/
[Ballard]	Site internet de la société Ballard : http://www.ballard.com/ http://www.ballard.com/About Ballard/Resources/How Fuel Cells Work.htm
[Barber Nichols]	Technologies de compresseurs / soufflantes hautes vitesses pour PAC. Site internet de la société Barber Nichols : http://www.barber-nichols.com/products/blowers_and_compressors/fuel_cell_blowers/
[Barbir 2005]	Franco Barbir. PEM Fuel Cells: Theory and Practice. Elsevier Academic Press, 2005, Burlington, MA. 456 pages.
[BASF – ex-PEMEAS]	Site internet de la société BASF commercialisant les cœurs de pile Celtec® MEAs : http://www.fuel-cell.basf.com/ca/internet/Fuel_Cell/
[Blunier 2007]	Benjamin Blunier, Abdellatif Miraoui. Piles à combustible. Principes, modélisation, applications avec exercices et problèmes corrigés. Collection : Technosup. Editeur(s) : Ellipses. Parution : 02/03/2007. 192 pages. ISBN10 : 2-7298-3107-X. ISBN13 : 978-2-7298-3107-3. EAN13 : 9782729831073.
[Blunier Thèse 2007]	Benjamin Blunier. Modélisation de moto-compresseurs en vue de la gestion de l'air dans les systèmes pile à combustible – Simulation et validation expérimentale. Thèse de l'UTBM. Belfort. 7 décembre 2007.
[Boudellal 2007]	Méziane Boudellal. La pile à combustible: structure, fonctionnement, applications. Technique et ingénierie. Série Environnement.Technique et ingénierie. Dunod, 2007. ISBN 2100501127, 9782100501120. 287 pages
[Brunet Hissel 2009]	D. Hissel, D. Candusso, M-C. Péra (2009). Problématiques du stockage d'énergie. Sous la direction d'Yves Brunet. Chapitre 7 : Piles à combustible : aspects système. Pages 205 – 227. Traité EGEM. Editeur Hermès Lavoisier. 320 pages. ISBN 978-2-7462-2053-9.
[Bultel Thèse 1997]	Yann Bultel. Modélisation des couches actives d'électrodes volumiques de piles à combustibles à membrane échangeuse de protons. Thèse de doctorat INPG – préparée au LEPMI et soutenue en 1997.
[Burke Nasa 2003]	Kenneth A. Burke (Glenn Research Center, Cleveland, Ohio). Unitized Regenerative Fuel Cell System Development. First International Energy Conversion Engineering Conference sponsored by the American Institute of Aeronautics and Astronautics. Portsmouth, Virginia, 17 – 21 Aout 2003. NASA/TM—2003-212739.
[Candusso BE PAC 2002]	Candusso. Connexion au réseau d'un système pile à combustible. Bureau d'étude, INPG-ENSIEG Option PDSE, année 2002 – 2003.

Chapitre II

[Candusso GEVIQ02]	D. Candusso, I. Valero, A. Walter, S. Bacha, E. Rullière, B. Raison. Modélisation, contrôle et simulation d'un système pile à combustible destiné à une application stationnaire. Colloque GEVIQ'2002 (Génie Electrique, Vie et Qualité) - 12 et 13 juin 2002 à Marseille.
[Candusso IECON02]	D. Candusso, A. Walter, S. Bacha, E. Rullière. Modelling, control and simulation of a fuel cell based power supply system with energy management. IEEE IECON'02 (Industrial Electronics Conference) - du 5 au 8 novembre 2002 à Séville.
[Candusso Thèse 2002]	D. Candusso. Hybridation du groupe électrogène à pile à combustible pour l'alimentation d'un véhicule électrique. Thèse de Doctorat INPG Génie Electrique, Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble, soutenue le 29 novembre 2002. 168 pages + annexes.
[Candusso TI 2007]	D. Candusso, R. Glises, D.Hissel, J-M. Kauffmann, M-C. Péra (octobre 2007). Pile à combustible PEMFC et SOFC. Description et gestion du système. Techniques de l'Ingénieur. Génie énergétique. 11 p. BE8595. Editeur T.I. 11 pages.
[Chrenko Thèse 2008]	Daniela Chrenko. Modélisation par Représentation Energétique Macroscopique et commande d'un système pile à combustible basse température, alimenté en Hydrocarbure. Thèse de l'UFC. Belfort. 25 novembre 2008.
[Clefs CEA n°50-51]	L'hydrogène, les nouvelles technologies de l'énergie, CLEFS CEA, n° 50-51, 2005, 157 pages, commande gratuite: http://www.cea.fr/le_cea/publications/clefs_cea
[Destoop TI 1989]	T. Destoop. Compresseurs volumétriques. Technique de l'Ingénieur, Tome BL2, réf. B4 220, 1989.
[Dubas Thèse 2006]	F. Dubas. Conception d'un moteur rapide à aimants permanents pour l'entraînement de compresseurs de piles à combustible. Thèse de Doctorat de l'UFC. 2006.
[Dumercy Thèse 2004]	Dumercy Laurent. Contribution à la caractérisation thermique et fluïdique d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons PEMFC. Thèse L2ES. 27 octobre 2004.
[FCTESTNET]	Site internet du projet européen FCTESTNET - Fuel Cell TEsting and STandardisation thematic NETwork : http://ie.jrc.ec.europa.eu/fctestnet/
[Fuel cell Handbook 2000]	Fuel cell handbook (fifth edition). By EG&G Services Parsons, Inc. - Science Applications International Corporation. U.S. Department of Energy - Office of Fossil Energy - National Energy Technology Laboratory, October 2000
[Garnier Thèse 2006]	James Garnier. Association en parallèle de générateurs pile à combustible PEMFC. Thèse de Doctorat de l'UTBM et de l'UFC. Belfort. Juin 2006.
[Gerbaux Thèse 1996]	Luc Gerbaux. Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène air et validation expérimentale. Thèse de doctorat INPG – préparée au CEA Grenoble et soutenue en 1996.
[Gore]	Site internet de la société Gore : http://www.gore.com/en_xx/products/electronic/fuelcells/index.html
[Handbook of Fuel Cells 2003]	W. Vielstich et al, eds., 2003, Handbook of Fuel Cells, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, Royaume-Uni.

Chapitre II

[Hissel HDR 2004]	Hissel Daniel. Modélisation, optimisation énergétique et diagnostic de systèmes pile à combustible. HDR Université de Franche-Comté. 14 décembre 2004.
[IEC]	Site internet de l'International Electrotechnical Commission : http://www.iec.ch/index.html
[Larminie 2000]	James Larminie, Andrew Dicks. Fuel Cell Systems Explained. John Wiley & Sons, Ltd – réimprimé en novembre 2000.
[Lefèvre Thèse 2004]	Guillaume Lefèvre. Conception de convertisseurs statiques pour l'utilisation de la pile à combustible. Thèse de doctorat de l'UJF. Réalisée au LEG de Grenoble. Soutenue le 26 novembre 2004. 185 pages.
[Malbrunot 2007]	Pierre Malbrunot, Pierre Malbrunot, Tapan Bose, Pierre Bénard, John Viola, Gilles de Robien. L'hydrogène: pour relever le défi énergétique du XXIe siècle. Magazine alternatives n°16, 4e trimestre 2007. Éditions : John Libbey Eurotext. 96 pages.
[Moratin Thèse CNAM 2003]	Stéphane Moratin. Conception, réalisation et modélisation d'un système permettant de contrôler la température et l'hygrométrie d'une pile à combustible de type PEMFC. Mémoire CNAM, Belfort, 2003.
[Pascal PFE 2000]	Thierry Pascal .Dispositif de mesure d'impédance d'une Pile à Combustible par spectroscopie. Stage de fin d'études du cycle ingénieur ENSIEG. Juin 2000.
[Pascal Rapport CEA 2000]	Thierry Pascal. Spectroscopie d'impédance sur une Pile à Combustible de 5 kW. Rapport de fin de contrat LEG/CEA. Octobre 2000.
[Péra HDR 2006]	Marie-Cécile Péra. Modélisation des systèmes de conversion d'énergie électrique complexes. HDR Université de Franche-Comté. 2006.
[Prigent 1997]	Michel Prigent. Les piles à combustible. Etat du développement et des recherches en cours. Janvier 1997. Ed. Technip. Publications de l'Institut Français du Pétrole. ISBN : 978-2-7108-0792-6. 64 pages.
[Romani Thèse 2007]	Nicolas Romani. Modélisation et commande du système d'alimentation en air pour le module de puissance d'un véhicule à pile à combustible avec reformeur embarqué. Thèse de doctorat. Université Paris Sud 11. 24 septembre 2007.
[Sabonnadière 2007]	Jean Claude Sabonnadière, Thierry Alleau, Pierre Baurens et al. Nouvelles technologies de l'énergie 2, Editions Hermès - Lavoisier, 2007, 290 pages (chapitres sur l'hydrogène et les piles à combustible).
[SAE]	Site internet de la Society of Automotive Engineers : http://www.sae.org/
[Scholta JPS 2006]	J. Scholta, F. Häussler, W. Zhang, L. Küppers, L. Jörissen, W. Lehnert. Development of a stack having an optimized flow field structure with low cross transport effects, Journal of Power Sources, Volume 155, Issue 1, 18 April 2006, Pages 60-65.
[Schunk]	Site internet de la société Schunk : http://www.schunk.com
[SGL Group]	Site internet de la société SGL : http://www.sglgroup.com/cms/international/products/product-groups/su/fuel-cell-components/index.html?_locale=en

Chapitre II

[Tekin Thèse 2004]	Mestan Tekin. Contribution à l'optimisation d'un générateur pile à combustible embarqué. Thèse de Doctorat de l'Université de Franche-Comté, n°82, 2004.
[Valero Thèse 2004]	Ianko Valero Exposito. Interfaçage et contrôle commande de piles à combustible pour applications stationnaires et transport. Thèse de l'Université Joseph-Fourier - Grenoble I (2004). LEG – G2ELAB.
[Van der Merwe DRU 2002]	Julian B. Van der Merwe. Proton Exchange Membrane (PEM) Fuel Cell : installation, testing and modelling. Diplôme de Recherche Universitaire – INPT ENSEEIHT LEEI – Juin 2002.
[Walter DEA 2001]	A. Walter. Modélisation de systèmes à piles à combustible. DEA INPG Génie Electrique – Grenoble. Septembre 2001.
[Zhang JPS 2006]	J. Zhang, Y. Tang, C. Song, J. Zhang, H. Wang, PEM fuel cell open circuit voltage (OCV) in the temperature range of 23 °C to 120 °C, J. Power Sources, (2006), Vol. 163, pp. 532-537.
[Zhao 2003]	Y. Zhao, L. Li, J. Shen, W. Zhang, P. Shu. Research on oil-free air scroll compressor with high speed in 30 kW fuel cell. Applied Thermal Engineering, N°23, pp.593-603, 2003.

III L'hybridation du générateur PAC.....	77
III.1 L'association de systèmes PAC.....	77
III.2 Principe général de l'hybridation	78
III.3 Un exemple de démonstrateur PAC à source hybride	80
III.4 Simulation en quasi-statique de chaine de traction	83
III.4.1 Gestion de l'énergie. Approche heuristique.....	84
III.4.1.1 Deux exemples de simulation	85
III.4.1.2 Optimisation des paramètres liés à la gestion de l'énergie.....	86
III.4.1.3 Recherche d'un taux d'hybridation favorable	87
III.4.2 Gestion de l'énergie. Minimisation de la consommation instantanée équivalente....	88
III.4.2.1 Principe	88
III.4.2.2 Etape 1 de la stratégie.....	89
III.4.2.3 Etape 2 de la stratégie.....	90
III.4.2.4 Etape 3 de la stratégie.....	91
III.4.2.5 Evolutions possibles	93
III.5 Simulation en dynamique de chaine de traction.....	93
III.5.1 Description du véhicule	93
III.5.2 Modélisation de la chaine.....	95
III.5.3 Résultats sur un profil de mission donné.....	97
III.5.4 Cas particulier du démarrage.....	101
III.6 Conclusions et perspectives	102
III.7 Références	105

III L'hybridation du générateur PAC

Dans le but de concevoir et optimiser des chaînes de traction de véhicules à PAC de façon globale, il faut aussi se poser la question de l'hybridation de la pile par un ou des dispositif(s) tampon(s) permettant le stockage intermédiaire de la puissance [Friedman 1999].

Ce chapitre a pour objectif de montrer à la fois l'intérêt et les difficultés techniques qu'il y peut y avoir à hybrider un groupe électrogène à pile à combustible (GE à PAC) : à travers différents travaux de modélisation et de simulation de chaînes de traction de véhicules légers, et par la présentation d'une réalisation expérimentale d'un petit véhicule doté d'un GE à PAC.

Nous décrivons le concept d'hybridation d'un GE à PAC par supercondensateurs ou batteries. La présentation d'un démonstrateur PAC, conçu sur la base d'un robot mobile autonome, viendra illustrer notre propos.

Ensuite, l'importance de la gestion de l'énergie, avec en corollaire le dimensionnement des différent organes au sein de la source hybride, sera mise en exergue. Deux stratégies de gestion de l'énergie seront décrites. Une simulation de chaîne de traction à source hybride sera alors proposée ; elle fait appel au modèle dynamique du GE à PAC développé par le CEA.

En préambule à l'association PAC – batteries / supercondensateurs, le couplage de piles est évoqué. Il autorise la montée en puissance et les fonctionnements en modes dégradés.

III.1 L'association de systèmes PAC

La puissance que peut délivrer un stack de PAC d'une technologie donnée est étroitement liée à deux paramètres géométriques : le nombre de cellules de l'empilement, mises en série électriquement, et la surface des MEAs. L'accroissement du niveau de puissance par l'augmentation du nombre de cellules et de leur surface n'est possible que dans certaines limites. En particulier dans le cas des applications transport. En effet, un stack long et/ou de grande surface, n'est que peu logeable au sein d'un véhicule. Par ailleurs, sa mise en œuvre peut être délicate sur le plan de la mécanique (cas des longs empilements, cf chapitre VI), du point de vue de l'homogénéité de l'alimentation en réactifs et de la maîtrise des gradients thermiques (ex : points chauds dans les cellules de grandes surfaces. Cf chapitre IV). Enfin, la mise en défaut d'une seule des cellules entraîne la mise hors service de l'ensemble du générateur PAC.

Si on ne peut peut-être pas à proprement parler d'hybridation, l'association de plusieurs stacks PAC, via une électronique de puissance adaptée, peut apporter des solutions à la fois pour assurer une montée en puissance et offrir une redondance au niveau du système global [Garnier Thèse 2006] [Lachaize Thèse 2004]. Dans ce contexte, des travaux principalement expérimentaux sont menés sur la plateforme de Belfort. L'objectif est d'étudier les possibilités offertes par l'association de stacks et par l'utilisation de dispositifs de « by-pass » (diode de puissance en anti-parallèle) permettant des fonctionnements en modes dégradés (Cf. chapitre 7). La Figure III.1 fait apparaître différentes topologies électriques permettant le couplage. On peut remarquer à ce stade que si des piles peuvent être mises en série électriquement, la mise en parallèle directe n'apparaît pas envisageable (les stacks pouvant être assimilés pour faire simple à des sources de tension). Le couplage de systèmes PAC s'effectue généralement en parallèle d'un point de vue hydraulique. Il faut aussi noter que certains organes auxiliaires peuvent éventuellement être partagés (ex : compresseur).

A titre d'exemple applicatif, le bus Mercedes-Benz Citaro hybride du projet Hyfleet Cute [Hyfleet Cute] peut être cité. Son groupe électrogène est composé de deux systèmes PAC de type PEM indépendants (technologie Ballard. $2 \times 60\text{kW}$; 2×396 cellules) issus de développements automobiles. Il faut aussi noter que des PAC de différents types peuvent aussi être couplées. Dans sa thèse [Chnani Thèse 2008] et dans le cadre du projet européen Felicitas [Felicitas], Moussa Chnani a ainsi étudié la possibilité d'associer deux piles : PEMFC et SOFC (alimentée en diesel) couplées en série au niveau des réactifs. La SOFC participant à la fourniture de puissance électrique et contribuant également au procédé de purification du combustible destiné à la PEMFC en oxydant une fraction du monoxyde de carbone.

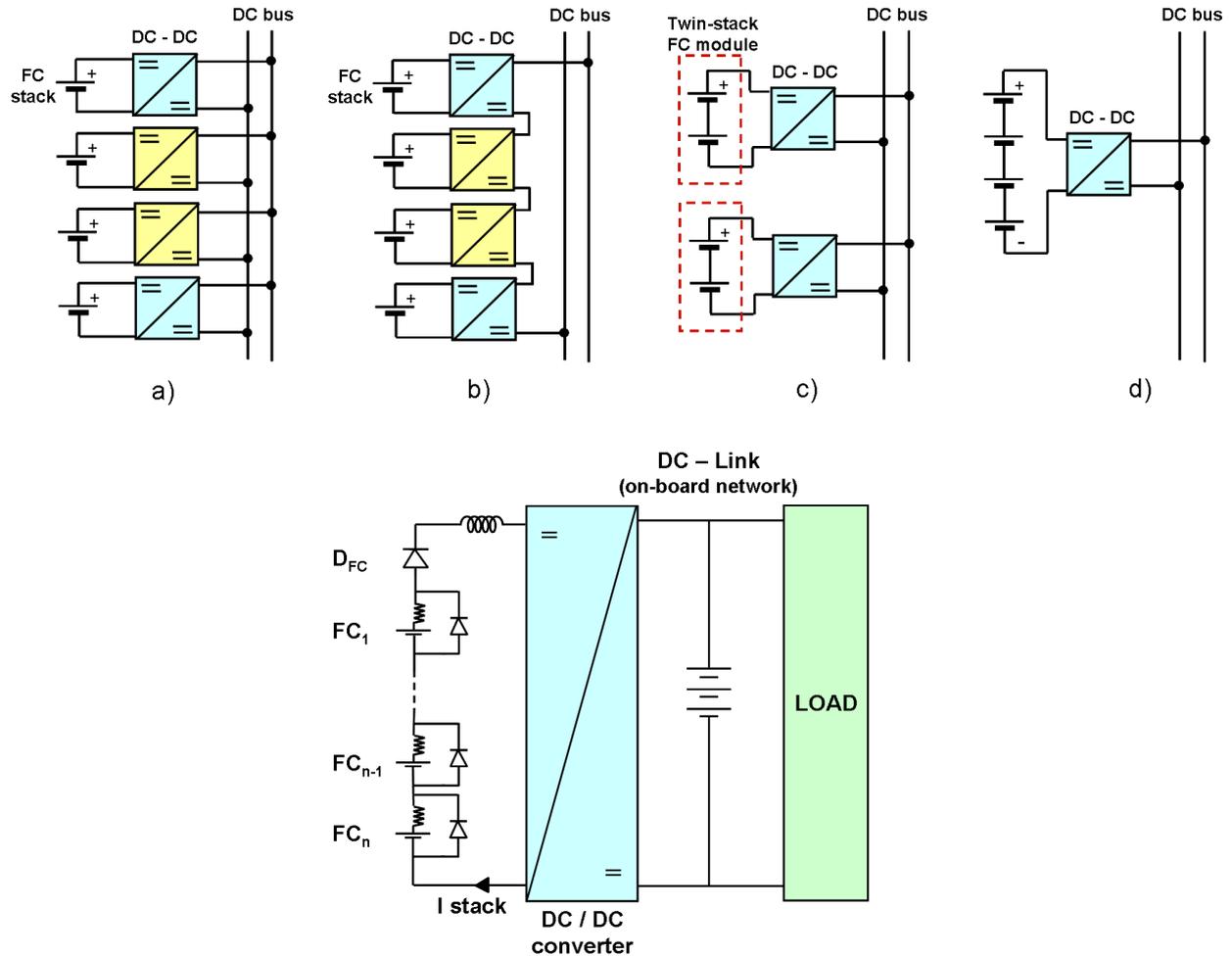


Figure III.1 : Exemples d'associations de stacks PAC [Garnier Thèse 2006] [Candusso ECM 2008].

III.2 Principe général de l'hybridation

Certains groupes électrogènes à pile à combustible (GE à PAC) doivent fournir une dynamique de puissance importante. C'est notamment le cas dans le domaine des transports. En effet, la source embarquée doit à la fois fournir une énergie suffisante pour assurer l'autonomie du véhicule ainsi qu'une puissance importante lors des phases transitoires, correspondant à une accélération ou à un franchissement de pente. La source doit donc répondre à ces deux besoins différents, tout en respectant des critères de masse et de volume acceptables. Une solution consiste à effectuer un découplage source d'énergie / source de puissance [Bruce Lin 1999]. Des composants aux caractéristiques adaptées sont alors associés à ces deux sources (GE à PAC et dispositifs tampons tels que des batteries ou des supercondensateurs [Lassègues TI 2001] [Gallay Gualous TI 2007] [Barrade VPPC 2004] [Bertrand TIE 2010]).

La figure suivante illustre le principe de fonctionnement d'une source hybride composée d'un GE à PAC et d'un banc de supercondensateurs.

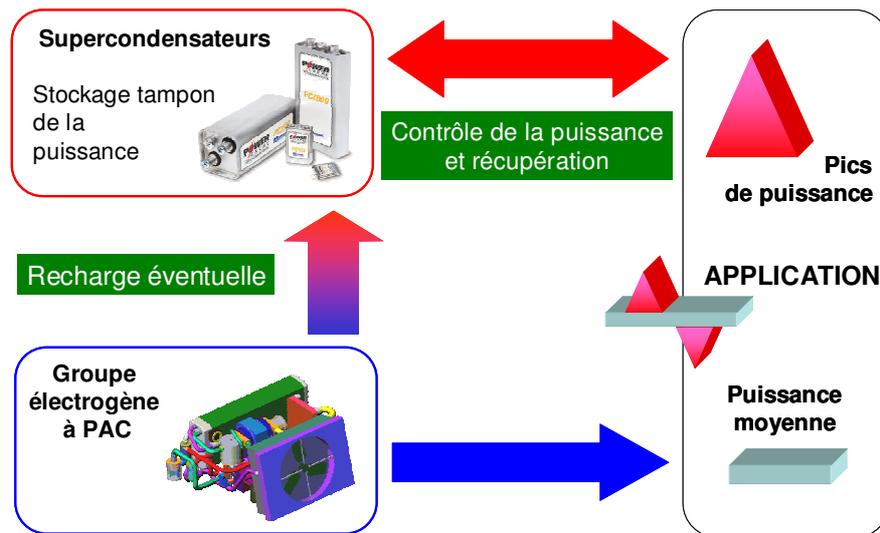


Figure III.2 : Echanges de puissance dans un véhicule à GE à PAC hybridé par des supercondensateurs [Candusso Thèse 2002].

Les deux principaux objectifs de l'hybridation sont :

- l'optimisation énergétique. Réduction de la consommation de combustible.
- l'amélioration de la durée de vie du générateur PAC hybride (cf chapitre VII).

L'hybridation du GE à PAC peut également permettre d'avoir recours à un GE plus petit et donc moins onéreux.

Ici, la PAC considérée est de type PEM (membrane échangeuse de protons). L'utilisation des supercondensateurs est particulièrement intéressante du fait que ce sont des composants qui ont une importante capacité à accepter ou à délivrer de fortes puissances dans des durées très brèves.

D'un point de vue performances, les supercondensateurs sont habituellement présentés comme des dispositifs de stockage d'énergie intermédiaires entre les accumulateurs électrochimiques (batteries) et les condensateurs diélectriques. Pour le même volume, la capacité des supercondensateurs est environ 100 fois plus élevée que celle des condensateurs diélectriques traditionnels. Ils peuvent avoir une puissance spécifique instantanée 100 fois plus élevée que celle des batteries, mais leur densité d'énergie est en contrepartie environ 20 à 50 fois plus faible. En raison de leur fonctionnement, principalement de type électrostatique (doubles couches), leur durée de vie est bien supérieure à celle des générateurs électrochimiques et elle est comparable à celle des composants passifs. Ils sont donc bien adaptés au cyclage en courant [Coquery ESSCAP'04] [El Brouji 2009]. Comme les accumulateurs électrochimiques, les supercondensateurs sont constitués de deux électrodes et d'un électrolyte, de type solide ou aqueux [Gallay Gualous TI 2007] [Hammar Thèse 2006]. En France, la société Batscap du groupe Bolloré propose des éléments de fortes capacités (5000 F sous 2.7 V) avec des prototypes pouvant même atteindre les 9000 F.

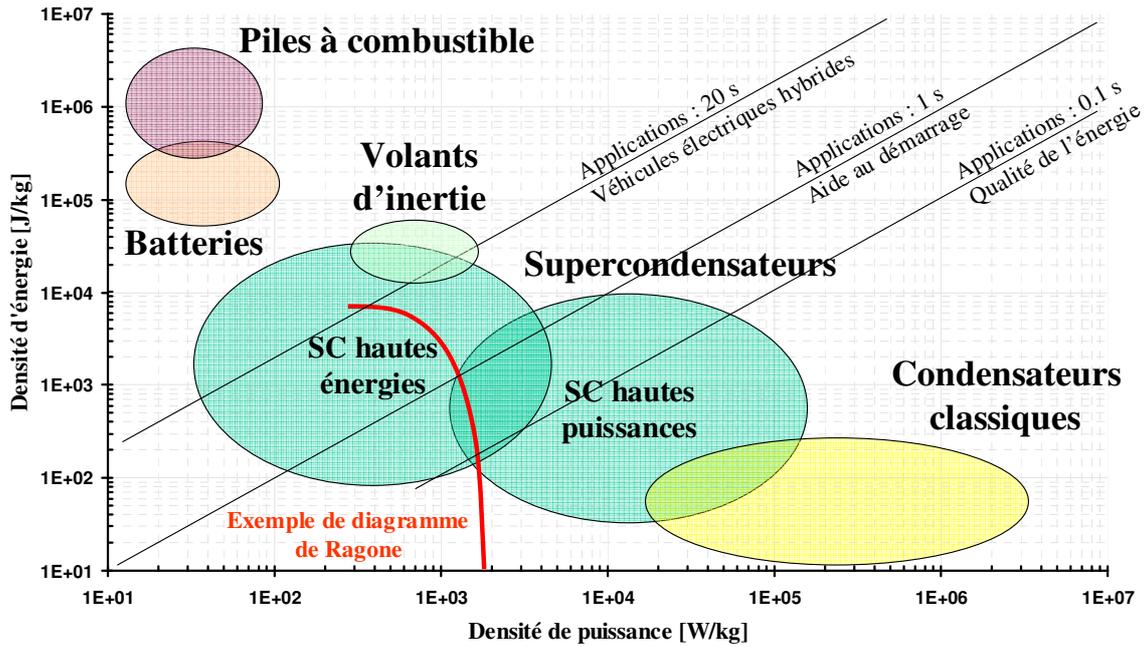


Figure III.3 : Positionnement des éléments de stockage électrochimiques d'énergie (diagramme de Ragone) [Candusso Thèse 2002].

L'association électrique entre une PAC, des batteries et / ou des supercondensateurs s'effectue par des convertisseurs électroniques adaptés [Thounthong Thèse 2005] [Gualous REE 2004]. Différentes topologies d'association peuvent être proposées. Une solution consiste à fixer le niveau du bus continu par les batteries ou les supercondensateurs. La solution la plus commune consiste à utiliser :

- un convertisseur de type continu / continu (hacheur) élévateur de tension non réversible en courant pour connecter la PAC au bus continu de la chaîne de traction (chapitre II),
- un convertisseur de type continu / continu (hacheur) élévateur de tension réversible en courant pour interfacer les supercondensateurs au bus continu.

Des solutions plus complexes utilisant par exemple des transformateurs sont envisageables pour améliorer le rendement de l'étage de conversion électrique. Néanmoins, dans l'optique d'une diffusion large de véhicules à chaînes de traction électriques, une solution globale « standard » et intégrée (topologie mettant en œuvre un ou des « bras » d'onduleurs) pourrait se dégager. Ce qui n'empêche cependant pas de réfléchir à des structures originales. On peut ainsi étudier l'association série PAC – batterie [De Bernardinis ECM 2010] (chapitre VII), en pensant à une électronique adaptée peut-être issue d'études portant sur le couplage batterie - supercondensateurs [Takehara EVS14 1996].

III.3 Un exemple de démonstrateur PAC à source hybride

Un prototype de robot mobile (Robotpac) équipé d'une source hybride PAC – batteries est présenté ici. Il illustre, à une échelle réduite, l'architecture d'un véhicule doté d'une PAC utilisée en prolongateur d'autonomie (Figure III.4). Robotpac correspond à une réalisation expérimentale permettant la validation du travail de modélisation et de simulation entrepris en commun par le CEA et par le LEG (G2ELAB aujourd'hui) [Candusso Thèse 2002] [Nachin PFE 2002] [Candusso EVS20 2003].

Robotpac est piloté grâce à une radiocommande manuelle, type joystick. Il possède deux roues motrices indépendantes à l'avant et deux roues folles à l'arrière. Cette configuration ainsi que ses dimensions réduites (400 × 400 mm² au sol) lui permettent d'évoluer aisément dans un milieu encombré et normalement peu propice aux déplacements. Le robot peut avancer, reculer, tourner et pivoter sur lui-même. La coque porteuse est réalisée en fibre polyester et supporte directement tous les équipements mécaniques et électriques : platines motorisation / réduction / transmission, batteries,

Chapitre III

palonnier des roues folles, capot et électronique de puissance. A chacune des deux roues motrices est associé un ensemble moteur – convertisseur. Les deux moteurs sont des moteurs à courant continu sans balais (DC brushless) d'une puissance de 60 W. Ils sont alimentés par des onduleurs de tension à transistors Mosfet fonctionnant en MLI (Modulation de la Largeur d'Impulsion). Leur fonctionnement s'effectue dans les quatre quadrants (moteur et frein dans les deux sens de rotation).

Dans la configuration initiale du robot, l'énergie était fournie par deux batteries au plomb 12 V – 25 Ah mises en série. Pour équiper le robot mobile d'une PAC, nous avons été amenés à modifier cette architecture électrique. L'objectif étant d'hybrider les batteries par une PAC. Les deux batteries servent à fixer une tension de bus de 24 V et la PAC vient les recharger. Un convertisseur continu - continu doit assurer l'interface entre la pile et les batteries. La nouvelle architecture électrique de la chaîne de traction est la suivante :

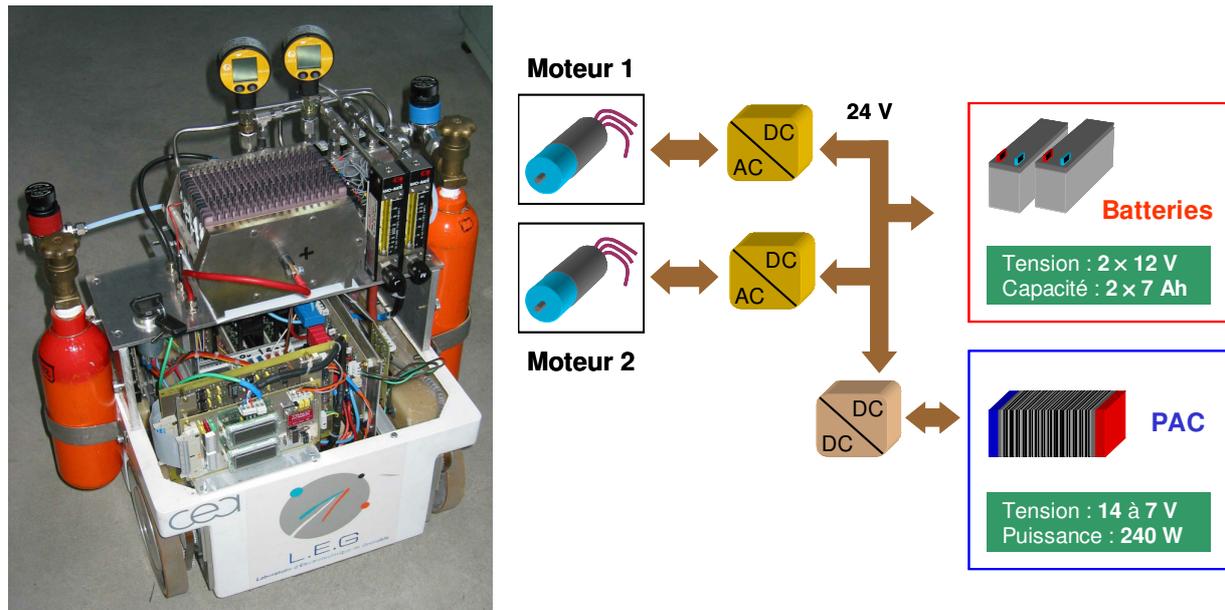


Figure III.4 : Photo du démonstrateur Robotpac et architecture électrique de la chaîne de traction.

La PAC a été conçue et réalisée par le CEA. Il s'agit d'une pile à canaux de type PEM, alimentée pour le moment en hydrogène et oxygène purs. Sa puissance brute est de 250 W environ ; elle comporte 14 cellules de surface active 60 cm². La pile est refroidie par des ailettes. La pile peut être utilisée sur une plage de tension comprise entre 14 V (à vide) et 7 V (à puissance maximale). La pile peut néanmoins débiter un courant de 40 A sous 6 V.

La fonction du convertisseur continu – continu placé entre la pile et les batteries est de permettre le contrôle de la tension du bus continu. A l'entrée du convertisseur, côté PAC, la tension peut varier entre 0 et 14 V. A la sortie du convertisseur, côté bus continu ou batteries, la tension devra avoir une valeur proche de 24 V. Le courant d'entrée du convertisseur a une valeur maximale de 40 A.

La topologie retenue pour le convertisseur continu – continu est celle du hacheur élévateur de tension (ou hacheur parallèle) (Figure III.5). Des filtres d'entrée et de sortie hautes fréquences ont été ajoutés par précaution de manière à lisser les courants dans la pile et dans les batteries (des travaux permettant de juger du bénéfice réel de ce filtrage en termes d'amélioration de la durée de vie de la PAC sont à réaliser ! Cf chapitre VII). Le transistor utilisé est de type Mosfet. La fréquence de fonctionnement choisie est de l'ordre de 40 kHz ; ce choix correspond à un compromis habituellement fait entre des valeurs conduisant d'une part à une minimisation de l'ondulation du courant d'entrée, de la taille de l'inductance et conduisant d'autre part à une augmentation des pertes en commutation dans le transistor. Une double diode Schottky a été mise en série avec la pile de façon à la protéger d'éventuels courants inverses. La technologie Schottky permet de minimiser les pertes en conduction dans la diode. Le convertisseur réalisé possède une topologie classique. Néanmoins, il n'est pas aisé de trouver dans le commerce un tel hacheur prévu pour un fonctionnement sur des plages de tensions

Chapitre III

aussi faibles et des courants relativement élevés. Un dispositif de surveillance de la tension de pile et des tensions cellules a également été mis en œuvre.

L'architecture fluide du système PAC est plutôt basique. Des débitmètres pilotables manuellement permettent d'imposer les débits de réactifs. Des vannes de contre-pression réalisent la régulation de pression. Cette architecture permet essentiellement d'alimenter la PAC avec des débits constants de réactifs, déterminés pour le courant maximal. La PAC délivre alors un courant qui permet de maintenir un certain état de charge dans les batteries, estimé ici par une surveillance de la tension à leurs bornes. Elle assure ainsi sa fonction de prolongateur d'autonomie.

Si Robotpac peut apparaître aujourd'hui comme un objet plutôt simple, par la structure fluide et la gestion de l'énergie électrique qu'il propose, il n'en était pas moins un objet original en France au début des années 2000.

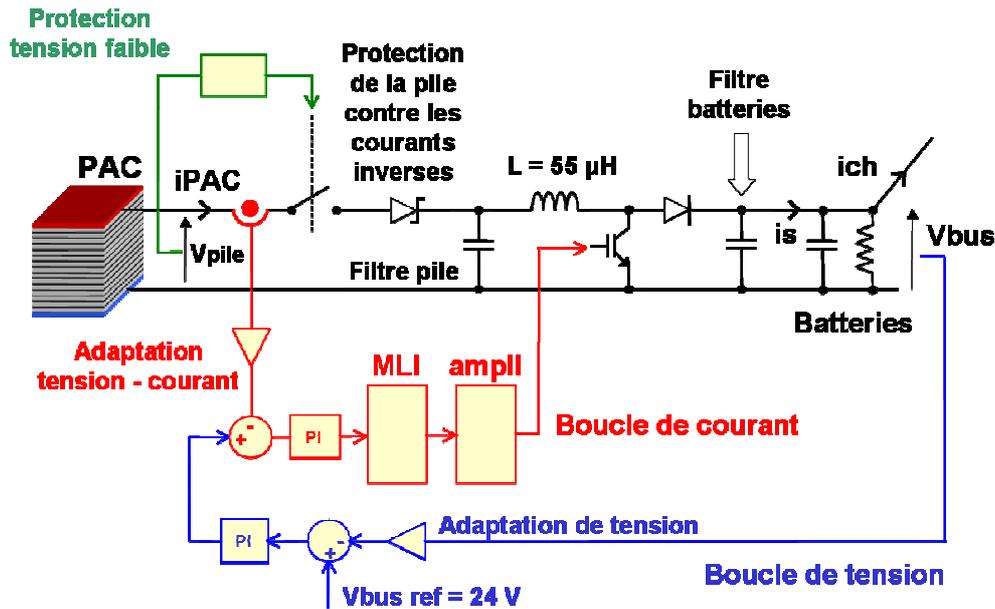


Figure III.5 : Schéma du convertisseur assurant l'interface pile – batteries.

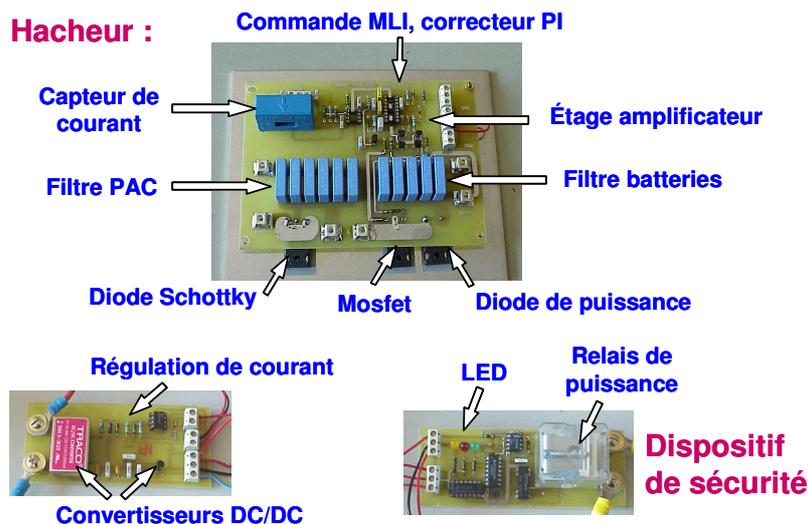


Figure III.6 : Electronique de l'interface PAC – batteries.

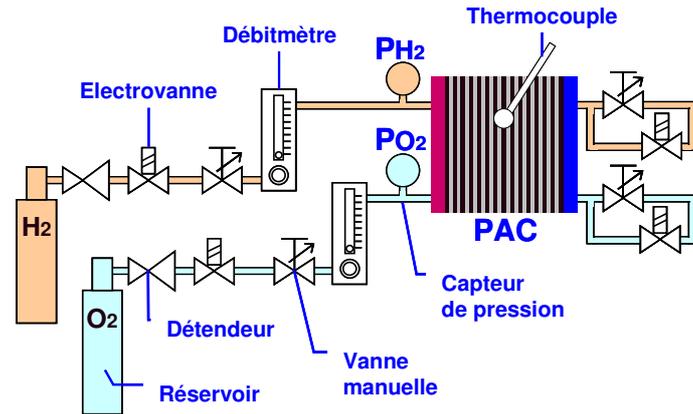


Figure III.7 : Schéma fluide du système PAC équipant Robotpac.

III.4 Simulation en quasi-statique de chaîne de traction

La gestion d'énergie constitue le cœur de la commande centralisée des véhicules électriques hybrides. Elle a en effet pour rôle de déterminer les consignes de fonctionnement à donner aux différents organes de la chaîne de traction [Beguery C'VELEC 1999]. Grâce à l'architecture hybride, le développeur de logiciel embarqué dispose d'un ou plusieurs degrés de liberté pour satisfaire la demande exprimée par le conducteur : il peut par exemple jouer sur le démarrage et l'arrêt du groupe électrogène (moteur thermique, turbine, GE à PAC), sur les points de fonctionnement des organes, sur les alternances charge - décharge du ou des éléments de stockage temporaire de l'énergie (batteries, volant d'inertie, supercondensateurs). La définition et l'optimisation des lois de gestion de l'énergie se fait tout d'abord au moyen de logiciels adaptés permettant la modélisation et la simulation de chaînes de traction. Nous pouvons ainsi montrer qu'il peut être avantageux d'hybrider un GE à PAC par des éléments de stockage temporaire de l'énergie tels que les supercondensateurs.

Dans un premier temps, nous nous intéressons à une telle association en étudiant le cas d'un petit véhicule, destiné à une utilisation urbaine et dont la masse est comprise entre 250 kg et 300 kg [Candusso Thèse 2002]. Le véhicule se compose principalement d'un châssis, d'un groupe motopropulseur (moteurs et onduleurs) et d'une source d'énergie hybride (GE à PAC et supercondensateurs). Des puissances moyenne et maximale d'environ 2 et 10 kW respectivement sont délivrées.

Véhicule pesant entre 250 kg et 300 kg
Puissances moyenne et maximale de 2 et 10 kW environ.

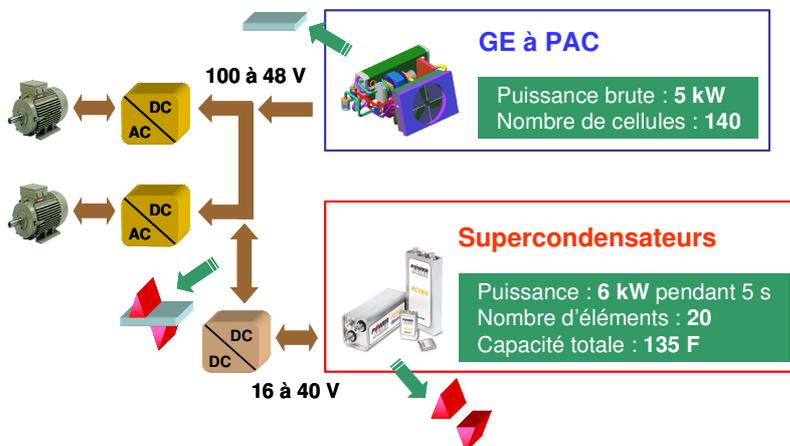


Figure III.8 : Architecture du véhicule urbain simulé.

Les stratégies développées consistent à faire fonctionner, autant que possible, le GE à PAC à charge partielle, dans une gamme de puissance correspondant à un bon rendement du système PAC (entraînant de fait une consommation moindre en hydrogène). Aux très faibles charges, la consommation des auxiliaires fait en effet baisser fortement le rendement. Un certain état de charge des supercondensateurs est également maintenu de manière à ce que le véhicule puisse, le plus souvent possible, être en mesure de soutenir une éventuelle accélération franche.

Dans les véhicules hybrides, la gestion de l'énergie peut être réalisée de multiples façons [Trigui ATEC 2009] [Paganelli Thèse 1999]. Lorsque le parcours du véhicule est connu a priori, des gestions d'énergie optimales peuvent être définies au moyen d'algorithmes basés sur la théorie des graphes [Scordia Thèse 2004] ou de la commande optimale [Delprat Thèse 2002]. Quand le parcours n'est pas connu a priori, les stratégies de commande proposées sont alors nécessairement sous-optimales et le paramétrage des algorithmes est généralement réalisé de façon empirique. Parmi les stratégies temps réel existantes, on peut citer des gestions d'énergie basées sur des règles logiques / heuristiques [Candusso FDFC2000], sur des principes de logique floue [Jeong JPS 2005], sur une analyse fréquentielle [Mestre Thèse 1997] ou temps – échelle (analyse en ondelettes) [Erdinc JPS 2009] du profil de puissance demandée à la source hybride, sur une analyse des échanges énergétiques au sein du groupe motopropulseur : Equivalent Consumption Minimization Strategy (ECMS) [Paganelli 2002] [Rodatz 2005] [Candusso EVS18 2001] [Tritschler Thèse 2010].

Deux stratégies de gestion de l'énergie issues de [Candusso Thèse 2002] sont décrites ci-après. La première est basée sur une approche heuristique du problème qui permet une synthèse de lois simples, dont les paramètres peuvent être optimisés hors-ligne sur des cycles de roulage connus. La seconde est basée sur la stratégie ECMS.

III.4.1 Gestion de l'énergie. Approche heuristique

Le logiciel ADVISOR (ADvanced VehIcule SimulatOR), développé par le NREL (National Renewable Energy Laboratory) dans le cadre d'un programme du département à l'énergie des Etats-Unis, est un logiciel dédié à l'analyse et à la simulation de la chaîne de traction de véhicules conventionnels, électriques et surtout hybrides ; il s'avère être particulièrement bien adapté à l'étude des stratégies de gestion de l'énergie [Advisor]. ADVISOR a été utilisé de façon à réaliser l'assemblage des différents modèles simplifiés et a permis d'obtenir, pour l'ensemble de la chaîne, une simulation dont la durée reste courte. L'outil réalisé, par sa modularité, permet de tester différentes architectures de la source hybride et de définir le degré d'hybridation de la source. Les modèles d'ADVISOR sont dits quasi-statiques car les résultats, issus des données collectées dans un état stable, sont corrigés de façon à prendre en compte des effets transitoires lents, comme celui relatif à l'inertie dans le cas d'un moteur. Chaque composant est placé dans un état d'équilibre pendant une durée égale au pas de calcul (une seconde). ADVISOR a été développé comme un outil destiné à l'analyse, plus qu'à la conception ou au dimensionnement. Des phénomènes dont l'échelle de temps est inférieure à la seconde, tels que les vibrations physiques, les oscillations électriques ne peuvent être pris en compte. La Figure III.9 présente le principe de la simulation ainsi que le niveau 1 du modèle de la chaîne de traction. Chacun des blocs correspond au modèle représentant un élément de la chaîne de traction. L'échange d'informations entre les blocs se fait en termes de puissances.

Chapitre III

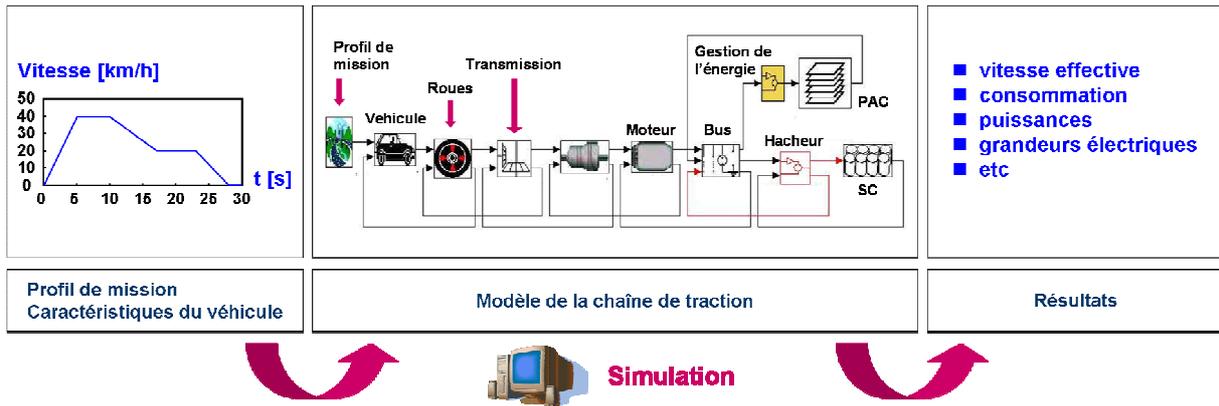


Figure III.9 : Principe de la simulation et niveau 1 du modèle de la chaîne de traction.

La stratégie de gestion de l'énergie permet de déterminer la puissance que doit délivrer le GE à PAC. La stratégie mise en œuvre consiste d'une part à faire fonctionner, autant que possible, le GE à PAC à charge partielle, dans une gamme de puissance correspondant à un bon rendement [Candusso FDFC2000]. Celle-ci est délimitée par les variables cs_min_pwr et cs_max_pwr (Figure III.10).

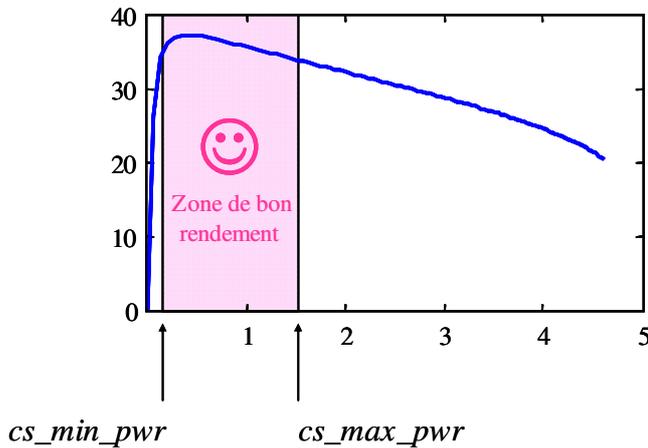


Figure III.10 :
 Courbe de rendement [%]
 du GE à PAC simulé
 en fonction
 de la puissance nette délivrée [kW].
 Exemple de choix de la zone
 privilégiée de fonctionnement.

D'autre part, on fait en sorte de maintenir un certain état de charge des supercondensateurs de manière à ce que le véhicule puisse, le plus souvent possible, être en mesure de soutenir une éventuelle accélération franche (rôle de la variable cs_charge_pwr).

Il s'agit donc de déterminer d'une part la valeur de la consigne de puissance (strictement positive) que va devoir délivrer le GE à PAC quand celui-ci sera en phase de fonctionnement. Il s'agira de déterminer d'autre part à quels moments le GE à PAC va devoir se mettre à fonctionner et devoir s'arrêter. Le choix du point de fonctionnement du GE à PAC et le choix de ses phases activité / inactivité pourraient être faits simultanément, en considérant l'arrêt du GE à PAC comme un point de fonctionnement parmi d'autres. Cependant, pour des raisons de fiabilité essentiellement, il est préférable de minimiser le nombre de démarrages et arrêts du GE. De plus, la fréquence à laquelle celui-ci passe de l'état actif à l'état inactif, ou bien de l'état inactif à l'état actif, est beaucoup plus faible que la fréquence à laquelle est fait le choix de son point de fonctionnement.

Des détails sur la logique associée à la stratégie de la gestion de l'énergie peuvent être trouvés dans la thèse [Candusso Thèse 2002].

III.4.1.1 Deux exemples de simulation

- Exemple 1.

La simulation de la figure ci-dessous est effectuée sur deux cycles urbains successifs. L'état de charge final des supercondensateurs est égal à leur état de charge initial (70 %). Les différents paramètres liés

à la stratégie de gestion de l'énergie décrite ci-dessus ont été choisis de manière à ce que le GE à PAC fonctionne à charge partielle ($200 \text{ W} < \text{PGE à PAC} < 1500 \text{ W}$). Ce choix peut faire l'objet d'une optimisation visant à réduire la consommation en hydrogène. La distance parcourue est ici de 374 m et la consommation en hydrogène de 1.5 g ($\Rightarrow 0.25 \text{ km/g}$).

- Exemple 2.

Une seconde simulation est effectuée sur un profil de mission différent (cycle 2).

L'état de charge initial des supercondensateurs n'étant que de 60 %, lors de la première accélération, le GE à PAC est contraint de fonctionner quelques secondes à pleine puissance : le rendement du GE tombe alors à 21 %. A cet instant, la tension aux bornes de l'onduleur est minimale (48 V). Par la suite, le GE à PAC se remet à fonctionner à charge partielle. Une partie de la puissance qu'il délivre sert à recharger le lot de supercondensateurs. L'état de charge de celui-ci tend vers 75 %, conformément à la stratégie de gestion de l'énergie choisie.

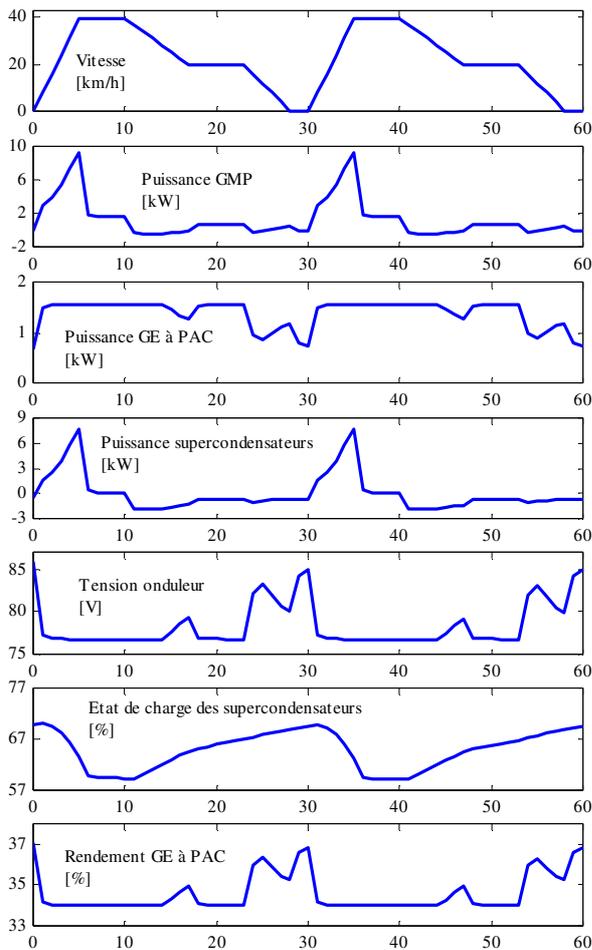


Figure III.11 : Exemple 1 de simulation réalisée.

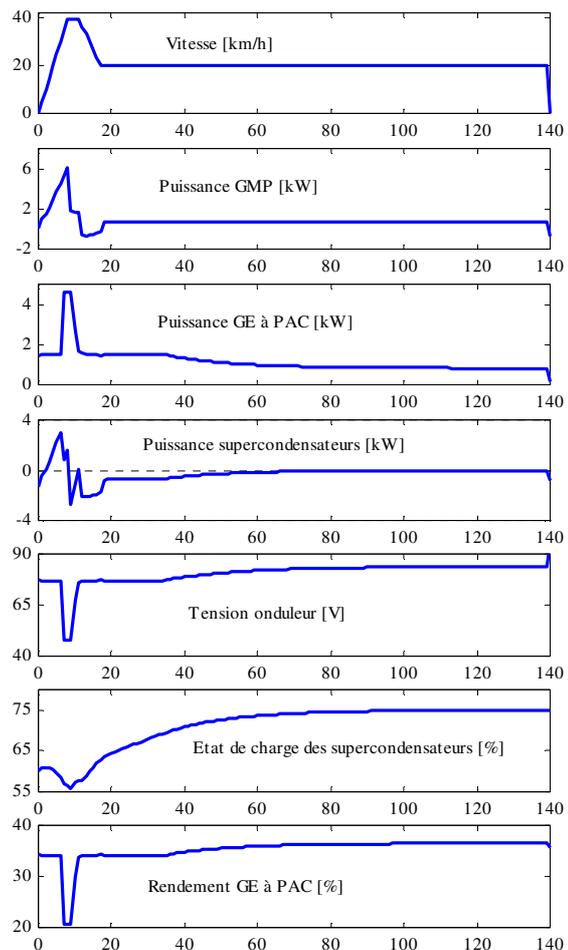


Figure III.12 : Exemple 2 de simulation réalisée.

III.4.1.2 Optimisation des paramètres liés à la gestion de l'énergie

Le choix des paramètres de contrôle cs_min_pwr , cs_max_pwr , et cs_charge_pwr peut par exemple faire l'objet d'une optimisation visant à réduire la consommation en hydrogène. ADVISOR propose une routine qui permet d'optimiser la stratégie de gestion de l'énergie, pour un profil de mission donné et en tenant compte de contraintes imposées. Les réponses de la routine peuvent être affichées sous la forme de surface. La routine utilisée ne correspond toutefois pas à un optimal et la routine ne tient pas compte de l'interaction entre toutes les variables. Il existe des routines d'optimisation plus complexes, prenant en compte un plus grand nombre de paramètres [Wipke EVS18 2001]. Certaines ne sont pas disponibles dans la version publique diffusée sur internet. Elles font notamment appel à d'autres logiciels d'optimisation (VisualDOC, iSIGHT).

Pour comparer différentes stratégies de commande et estimer les consommations auxquelles elles conduisent sur un cycle de roulage donné, on fait généralement en sorte que l'état de charge final de l'organe auxiliaire de stockage de l'énergie (batteries, supercondensateurs...) soit égal à son état de charge initial. Ce qui signifie que l'énergie ayant produit le déplacement du véhicule ne provient finalement que du carburant ; à condition toutefois que, sur le cycle, la variation d'énergie potentielle du véhicule reste nulle.

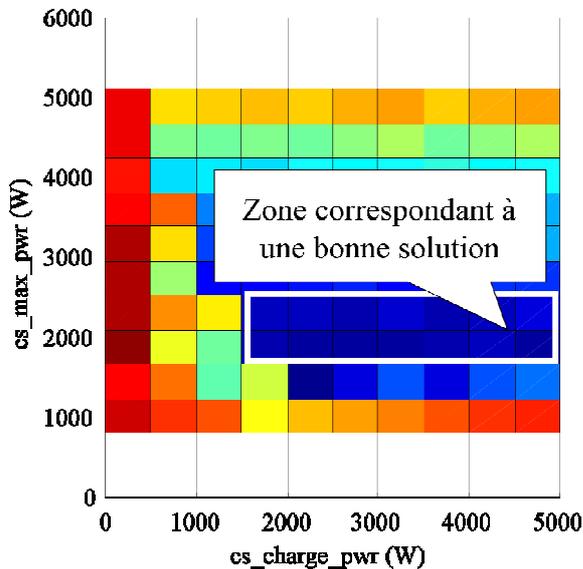


Figure III.13 : Détermination des paramètres cs_max_pwr , cs_charge_pwr .
Affichage des résultats de l'optimisation sous forme de surface.

III.4.1.3 Recherche d'un taux d'hybridation favorable

La définition de paramètres optimaux pour la gestion de l'énergie rend possible la comparaison entre véhicules ayant des taux d'hybridation différents, suivant les conditions de fonctionnement.

Nous considérons deux profils de mission différents : le Cycle 1 et le Cycle 2 (Figure III.14). Le cycle 1 est fait d'une accélération et de deux décélérations consécutives. La dynamique de puissance du GMP sur ce type de cycle est importante. Le cycle 2 est constitué d'une brève phase d'accélération suivie d'une phase plus longue où la vitesse demeure constante. La dynamique de puissance du GMP sur ce type de cycle est faible.

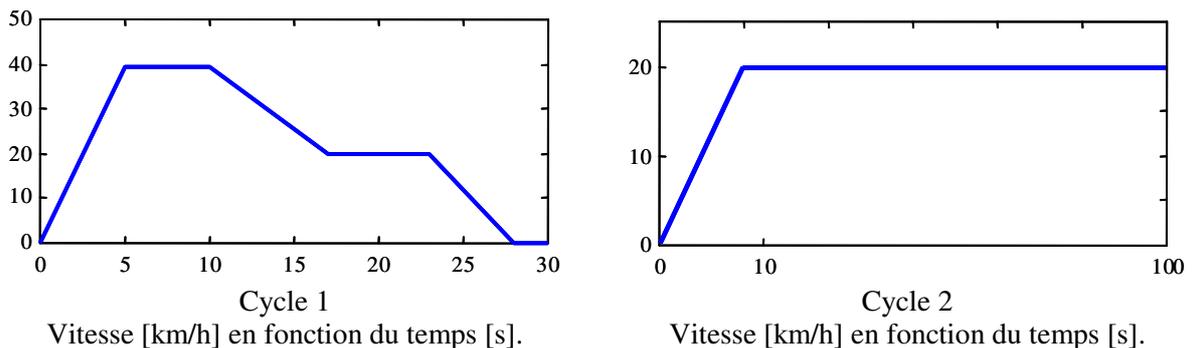


Figure III.14 : Les deux profils de mission choisis.

Nous étudions deux sources différentes [Candusso UPEC 2001]. La première (source A) est une source hybride composée d'un GE à PAC associé à un banc de supercondensateurs. La seconde (source B) est uniquement composée d'un GE à PAC. Nous faisons les hypothèses suivantes. La masse totale du véhicule est constante quelle que soit la source. Pour chaque stack de pile à combustible, on utilise des cellules qui possèdent une même courbe de polarisation. Chaque stack de pile possède un nombre et une taille de cellule différents. La puissance consommée par le compresseur est calculée à

Chapitre III

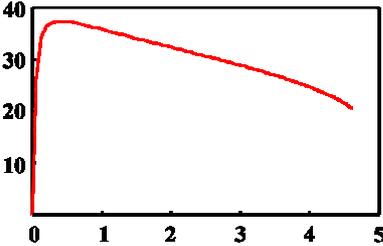
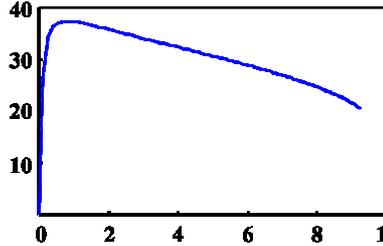
partir du courant débité par la pile (compression adiabatique et rendement du moteur électrique constant).

Les caractéristiques des deux sources sont récapitulées dans le [Tableau III.1](#).

Pour le véhicule A, une optimisation des paramètres de la stratégie de gestion de l'énergie visant à minimiser la consommation a été faite sur les deux cycles. Les résultats sont récapitulés dans le [Tableau III.1](#).

Sur le Cycle 1, le véhicule A à source hybride consomme 15 % d'hydrogène en moins que le véhicule B, alimenté par un seul GE à PAC. Par contre, sur le Cycle 2, le véhicule A a une consommation plus élevée. La consommation des véhicules dépend fortement du type de profil de mission. Un véhicule à source hybride est particulièrement intéressant quand la dynamique de puissance requise est importante. A contrario, sur un cycle de roulage où la vitesse est constante, l'hybridation ne présente pas d'intérêt ; elle peut même s'avérer pénalisante.

Tableau III.1 : Caractéristiques et performances sur cycles des deux sources.

	Source A	Source B
GE à PAC	A	B
Puissance nette maximale	4.5 kW	9 kW
Surface active par cellule	90 cm ²	180 cm ²
Nombre de cellules	140	140
Puissance consommée par les auxiliaires (hors compresseur)	40 W	80 W
Supercondensateurs	20 éléments de 2700 F	-
Rendement du GE à PAC [%] en fonction de la puissance nette [kW]		
Résultats sur le Cycle 1	Consommation : 0.77 g <i>cs_min_pwr</i> = 1 kW <i>cs_max_pwr</i> = 2.5 kW <i>cs_charge_pwr</i> = 2.5 kW	Consommation : 0.91 g
Résultats sur le Cycle 2	Consommation : 1.45 g <i>cs_min_pwr</i> = 0.3 kW <i>cs_max_pwr</i> = 1 kW <i>cs_charge_pwr</i> = 0.2 kW	Consommation : 1.36 g

III.4.2 Gestion de l'énergie.

Minimisation de la consommation instantanée équivalente

Les lois de gestion de l'énergie se basent souvent sur l'observation de quelques grandeurs (essentiellement l'état de charge du dispositif de stockage tampon de l'énergie et la puissance demandée par le GMP). Les futurs développements de ces lois passent par l'utilisation d'un nombre de plus en plus élevé de paramètres d'entrée. Les lois logiques des stratégies issues d'approches heuristiques risquent alors de devenir vite complexes à mettre en œuvre. Une stratégie adaptative multicritère constitue sans doute une bonne solution à ce problème.

III.4.2.1 Principe

Dans cet esprit, nous avons mis en œuvre une stratégie de gestion de l'énergie basée sur une minimisation instantanée de la consommation équivalente en carburant, avec maintien de l'état de charge des supercondensateurs. Elle est dérivée de stratégies appliquées aux véhicules électriques

hybrides parallèles à addition de couple - simple arbre. Avec cette stratégie, il est également possible d'obtenir un mode de fonctionnement où la PAC fournit une puissance relativement constante et où la dynamique est issue des supercondensateurs. La démarche est la suivante.

On considère un cycle de roulage, de durée n . A chaque instant $i \in \{1 \dots n\}$, une puissance P_{GMP_i} demandée au niveau du bus continu, par l'onduleur alimentant le moteur électrique de la chaîne de traction, doit donc être fournie par les deux sources : GE à PAC et supercondensateurs [Candusso EVS18 2001]. On a donc :

$$P_{GMP_i} = P_{GE \rightarrow PAC_i} + P_{supercapa_i} \quad (III.1)$$

Il s'agit de déterminer comment, à chaque instant i , peut s'effectuer la répartition de puissance entre les deux sources, en prenant bien sûr en considération toutes les limitations intervenant dans les différents organes de la source hybride (état de charge des supercondensateurs notamment). A chaque instant, le point de fonctionnement de la source hybride est défini par $P_{GE \rightarrow PAC_i}$.

L'objectif serait donc de trouver le vecteur $\{P_{GE \rightarrow PAC_1} \dots P_{GE \rightarrow PAC_n}\}$ aboutissant sur le cycle à la consommation minimale optimale de carburant D_{min_opt} . Celle-ci pouvant être exprimée par :

$$D_{min_opt} = \text{Min} (D_1 + \dots + D_n) \quad (III.2)$$

Où D_i est la consommation en hydrogène du GE à PAC à l'instant i .



Figure III.15 : Répartition de la puissance du GMP entre les supercondensateurs et le GE à PAC, à chaque instant i .

Dans la réalité, le parcours n'est pas connu a priori. Par conséquent, on passe d'un problème d'optimisation global à un problème de minimisation locale ou instantanée. La consommation minimale, mais non optimale, D_{min} sera alors donnée par :

$$D_{min} = \text{Min} (D_1) + \dots + \text{Min} (D_n) \quad (III.3)$$

A chaque pas de calcul, on procède en trois étapes :

III.4.2.2 Etape 1 de la stratégie

Une consommation instantanée totale équivalente $D_{equi_tot_i}$ est définie. Elle est la somme :

- de la consommation instantanée réelle en hydrogène du GE à PAC, D_i
- d'une consommation équivalente moyenne, $D_{equi_me_i}$.

$$D_{equi_tot_i} = D_i + D_{equi_me_i} \quad (III.4)$$

La consommation D en hydrogène du GE à PAC est calculée à partir du courant délivré par la PAC. La relation liant le courant et la puissance nette du GE à PAC étant connue, une consommation D est donc définie pour chaque puissance demandée au GE à PAC.

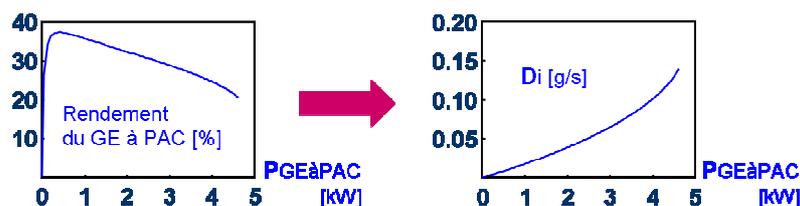


Figure III.16 : Calcul du débit réel d'hydrogène du GE à PAC [g/s] en fonction de la puissance nette [W] délivrée par le GE à PAC.

Quant à la consommation équivalente moyenne $Dequi_me$, elle est calculée comme suit.

Un point de fonctionnement moyen est d'abord choisi pour le GE à PAC. Il est caractérisé par la puissance $PGE\grave{a}PAC_{moy}$ qui peut être égale à la puissance moyenne délivrée par le GE à PAC sur un cycle de fonctionnement donné. Un rendement moyen constant de 0,9 est associé à la charge et décharge des supercondensateurs via le hacheur (par la suite, ce rendement pourrait être déterminé de façon plus précise).

$$\text{On a alors : } Dequi_me_i = D(PGE\grave{a}PAC_{moy}) \times dt_{moy} / 0.9 \quad (\text{III.5})$$

$$\text{Avec : } dt_{moy} = P_{supercapa_i} / PGE\grave{a}PAC_{moy} \quad (\text{III.6})$$

III.4.2.3 Etape 2 de la stratégie

A chaque instant i , on envisage les différentes répartitions de puissance possibles entre les deux sources et on retient parmi elles celle qui conduit à la consommation instantanée totale équivalente $Dequi_tot$ la plus faible. Cette stratégie a été implantée dans le logiciel Advisor, dix répartitions de la puissance étant examinées à chaque seconde (stratégie temps réel). Cette recherche de la répartition de puissance, au sein de la source hybride, conduisant à une consommation instantanée totale équivalente minimale pourrait également se faire d'abord "hors ligne" et être utilisée ensuite dans le modèle de la chaîne de traction sous forme d'une cartographie qui nous donnerait :

$$PGE\grave{a}PAC_i = f(PGMP_i, SOC_i) \quad (\text{III.7})$$

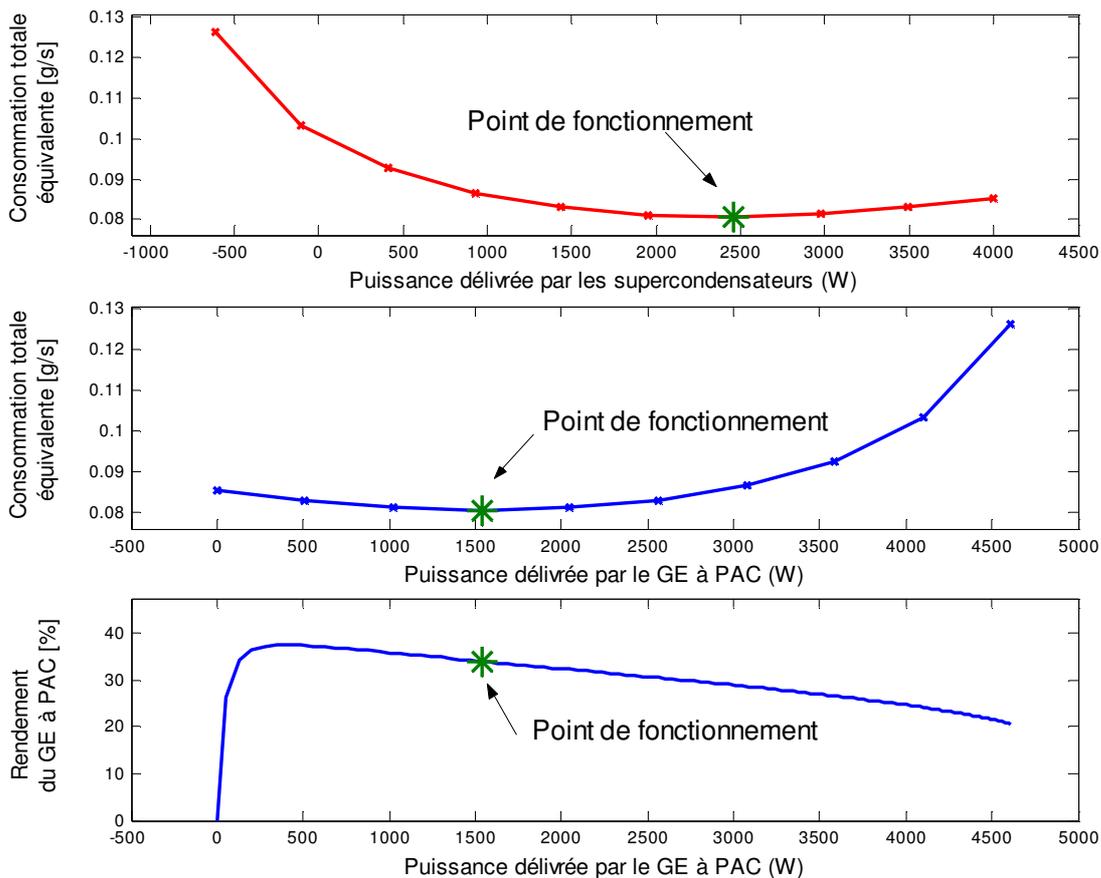


Figure III.17 : Exemple 1 de choix de la répartition de la puissance ($PGMP = 4000W$ et état de charge initial élevé des supercondensateurs).

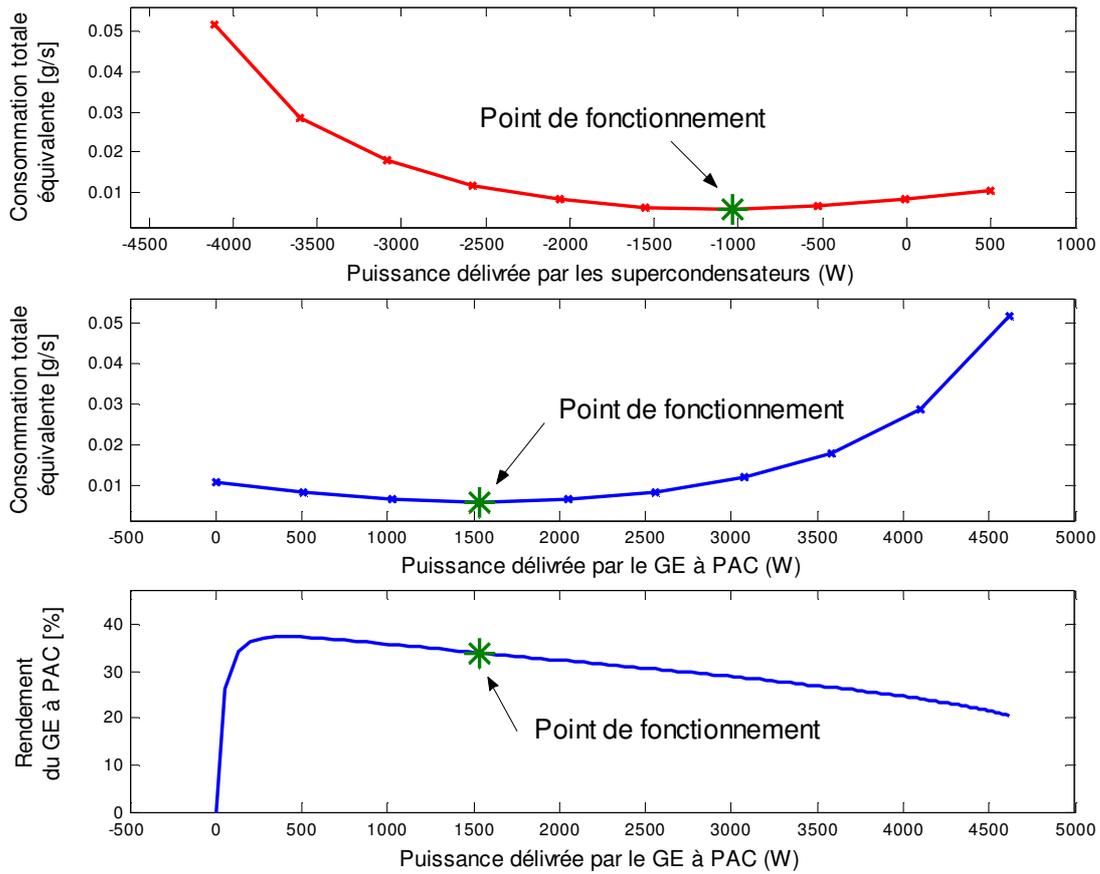


Figure III.18 : Exemple 2 de choix de la répartition de la puissance ($PGMP = 500$ W et faible état de charge initial des supercondensateurs).

III.4.2.4 Etape 3 de la stratégie

La répartition de la puissance qui a été faite entre le GE à PAC et les supercondensateurs aboutit à une minimisation de la consommation. Pour autant, la stratégie peut conduire, suivant le cycle de roulage, à une dérive de l'état de charge. C'est le cas si la valeur $P_{GE\grave{a}PAC_{moy}}$ n'est pas adaptée au cycle.

La valeur $P_{GE\grave{a}PAC_{moy}}$ ne caractérise en effet vraiment qu'un seul type de cycle et en l'utilisant, on présume en fait de la demande de puissance qui sera faite plus tard à la source hybride. La gestion de l'énergie risque de ne pas se faire correctement, en particulier dans des conditions réelles d'utilisation du véhicule où la demande future de puissance n'est pas connue à l'avance. Pour éviter ce phénomène de dérive et contrôler l'état de charge, plusieurs solutions peuvent être envisagées [Candusso Thèse 2002].

A l'instar de ce qui a été fait dans la première stratégie, on peut par exemple faire en sorte de maintenir un certain état de charge des supercondensateurs de manière à ce que le véhicule puisse, le plus souvent possible, être en mesure de soutenir une éventuelle accélération franche. Le GE à PAC délivre la puissance fixée par la stratégie de minimisation de la consommation, plus une puissance additionnelle (positive ou négative) destinée à maintenir un état de charge des supercondensateurs proche de 75 %.

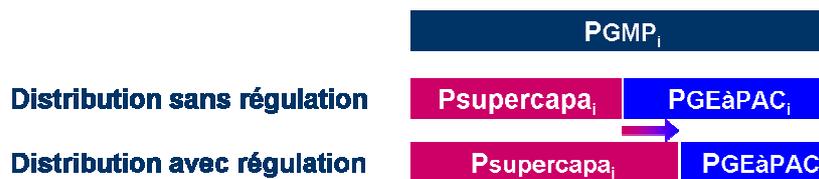


Figure III.19 : Nouvelle répartition de la puissance en fonction de l'état de charge des supercondensateurs (cas d'un état de charge des supercondensateurs élevé).

Cette puissance additionnelle est alors déterminée comme dans la première stratégie :

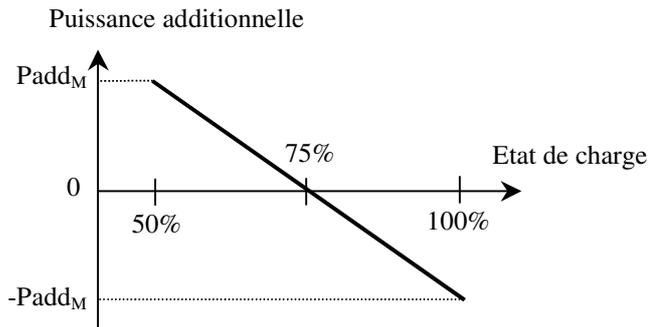


Figure III.20 : Calcul (linéaire) de la puissance additionnelle.

Lorsque l'état de charge des supercondensateurs vaut 75 %, le GE à PAC ne fournit de la puissance qu'au GMP. Cette correction de l'état de charge a bien sûr une incidence négative sur la consommation mais en contrepartie, le véhicule est plus souvent en mesure de répondre aux attentes du conducteur (accélération franche par exemple).

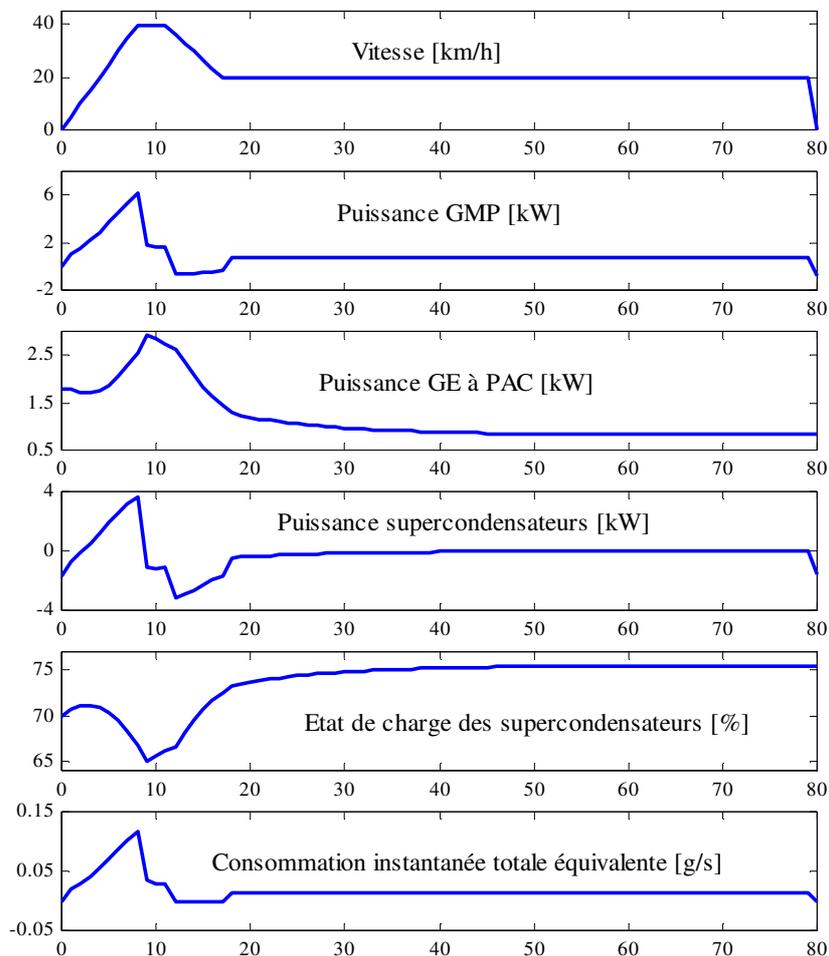


Figure III.21 : Simulation sur cycle avec plage à vitesse constante $P_{add_M} = 5 \text{ kW}$ et $P_{GE\text{à}PAC_{moy}} = 1 \text{ kW}$.

La puissance additionnelle varie linéairement en fonction de l'état de charge. Sur la plage à vitesse constante, l'état de charge tend vers 75 %. A noter que la puissance additionnelle peut être également déterminée de façon non linéaire par rapport à l'état de charge [Candusso Thèse 2002].

III.4.2.5 Evolutions possibles

Si la réduction de la consommation est de loin le principal objectif de l'optimisation, il est possible de prendre également en compte d'autres critères comme ceux liés au confort de conduite ou à la fiabilité de la pile (caractérisée par sa température de fonctionnement T , par le degré d'humidification de la membrane λ). La fonction objectif f à optimiser peut alors s'exprimer sous la forme :

$$f = \frac{\alpha D_{\text{equi_tot}_i} + \beta |T_{\text{ref}} - T_i| + \gamma |\lambda_{\text{ref}} - \lambda_i|}{\alpha + \beta + \gamma} \quad (\text{III.8})$$

où α , β , et γ sont des coefficients de pondération permettant de tenir compte de l'importance relative des différents critères. T_{ref} et λ_{ref} sont les consignes de température et de charge en eau dans la membrane.

La seconde difficulté, rencontrée dans la définition d'une stratégie de gestion de l'énergie, réside dans le fait que le paramétrage s'avère toujours être très dépendant du profil de mission, rarement connu à priori. Une solution consiste à développer des systèmes de reconnaissance de cycles, basés sur l'observation de paramètres comme la vitesse, ainsi que des stratégies de gestion capables de prendre en compte les nouvelles informations. A terme, l'utilisation d'un dispositif comparable au GPS, permettant de localiser le véhicule (zone urbaine, autoroute) et de prédire son parcours futur, devrait voir le jour.

III.5 Simulation en dynamique de chaîne de traction

Nous présentons maintenant un outil destiné à la simulation de chaînes de traction électriques à source hybride GE à PAC – éléments de stockage temporaire de l'énergie, qui utilise des modèles de connaissance dynamiques pour les sources d'énergie [Candusso C'VELEC 2002]. Seule la première stratégie de gestion de l'énergie est mise en œuvre.

III.5.1 Description du véhicule

Le type de véhicule étudié ici ne correspond plus à celui auquel nous nous sommes intéressés jusqu'à présent ; il correspond à une automobile appartenant à une catégorie de type « petite citadine ». Ce changement effectué dans le gabarit du véhicule étudié nous permet d'utiliser directement le modèle du GE à PAC développé par le CEA, sans avoir à redimensionner tous les organes de ce dernier [Baurens C'VELEC 1999] [Schott FDFC 2000]. La masse du véhicule électrique simulé ici est fixée à une tonne.

Architecture de la chaîne de traction

La chaîne de traction se compose d'un groupe motopropulseur (moteur électrique associé à son convertisseur) et d'une source hybride. La source hybride se compose :

- d'un GE à PAC ; la puissance brute du stack est de l'ordre de 30 kW,
- d'un élément tampon de stockage d'énergie pouvant fournir environ 5 kW pendant une dizaine de secondes (un module de 28 supercondensateurs (module Epcos 56 V – 100 F) est utilisé [EPCOS]),
- de hacheurs permettant le contrôle de la tension du bus continu.

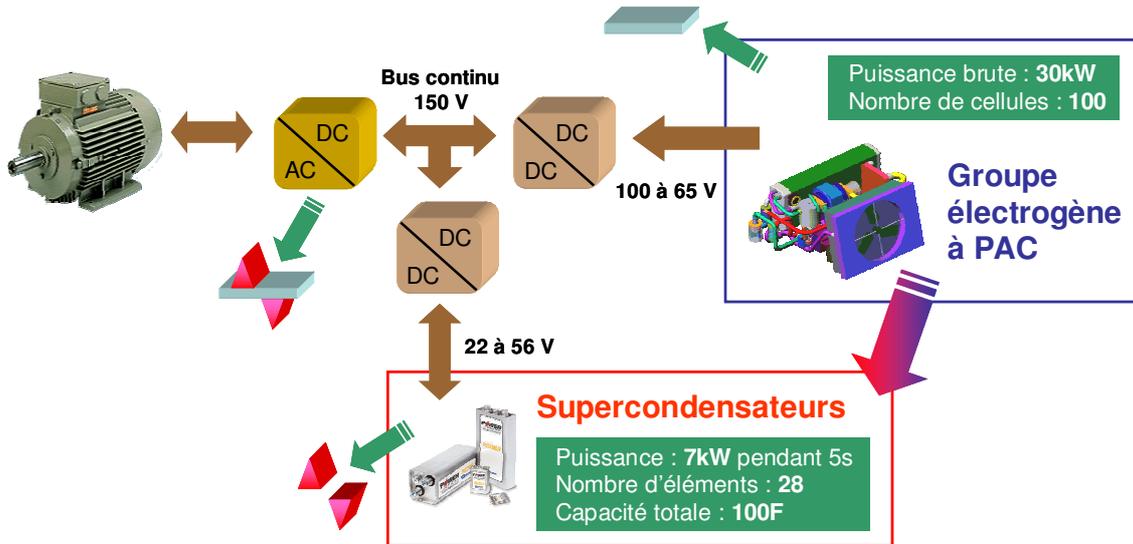


Figure III.22 : Architecture électrique de la chaîne de traction.

Le convertisseur permettant d'élever la tension de la PAC est un hacheur parallèle. Le convertisseur servant d'interface entre le module de supercondensateurs et le bus continu est un hacheur élévateur réversible en courant.

Description générale du GE à PAC

Le groupe électrogène est bâti autour d'une pile ayant une puissance maximale de 30 kW et comportant une centaine de cellules. L'alimentation de la pile en réactifs se fait par des plaques distributrices à poreux (et non par des plaques à canaux). L'humidification et le refroidissement de la pile sont effectués simultanément par une injection d'eau liquide dans le circuit d'air en entrée de pile. Le système est conçu pour fonctionner à basse pression (autour de 1.5 bars). Les pressions à la cathode et à l'anode doivent demeurer sensiblement constantes. La figure ci-dessous représente le schéma fonctionnel du groupe électrogène simulé. On retrouve la pile avec son circuit d'air côté cathode et son circuit d'hydrogène côté anode. A ces deux circuits s'ajoute celui destiné à la circulation de l'eau [Schott FDFC 2000].

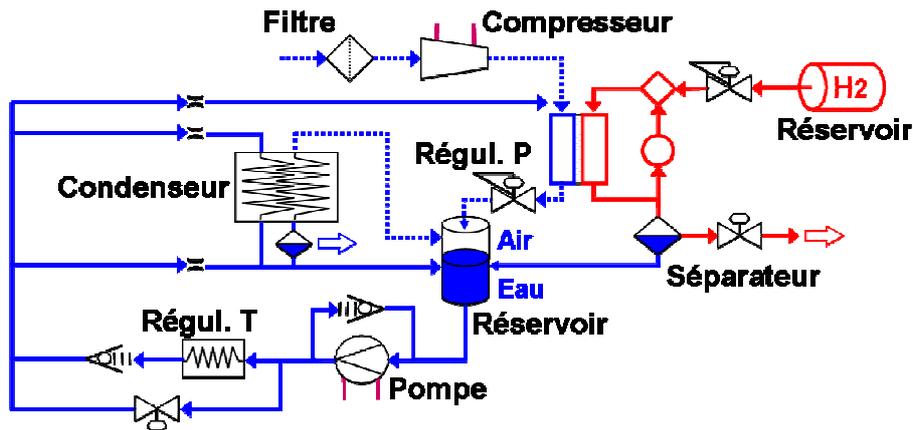


Figure III.23 : Schéma fonctionnel du groupe électrogène développé par le CEA [Schott FDFC 2000].

- Le circuit d'air :

L'air ambiant est filtré puis comprimé. Le débit d'air entrant à la cathode est régulé en boucle ouverte par une consigne de vitesse donnée au compresseur en fonction du courant délivré par la pile et d'une stœchiométrie fixée. La pression dans le compartiment cathodique est régulée par un dispositif mécanique assimilable à une soupape. Cette dernière s'ouvre quand la pression de l'air passe au-

Chapitre III

dessus d'un seuil donné. Dans le compartiment cathode, l'air se charge en vapeur et se mélange à l'eau liquide du circuit de refroidissement et d'humidification.

- Le circuit d'hydrogène :

L'hydrogène est stocké dans un réservoir sous forme gazeuse. Un détendeur permet de fixer la pression en entrée du compartiment anode de la pile. Le débit d'hydrogène entrant à l'anode est déterminé par la consommation de la pile et par le débit de purge. On travaille en sortie fermée avec des purges ponctuelles permettant d'évacuer l'eau. Celle-ci est récupérée par un séparateur.

- Le circuit d'eau :

L'eau est récupérée aux sorties d'anode et de cathode. Elle sert à humidifier la pile et à la refroidir. La chaleur est évacuée vers l'extérieur grâce à un radiateur. Le circuit d'eau permet également de condenser la vapeur d'eau en sortie cathode. Une pompe fonctionnant à débit constant fait circuler l'eau dans le circuit. L'eau est répartie dans le circuit par les trous calibrés. La pression dans le circuit d'eau (1.2 bars) est régulée par un clapet taré qui court-circuite la pompe. La température est régulée en un seul endroit, par un dispositif mécanique : suivant la température de l'eau en sortie du radiateur, une vanne de régulation augmente ou diminue le débit d'eau qui passe par le « by-pass » du radiateur. Le « by-pass » se ferme à partir d'une température de 50 °C.

Dans ce type de groupe électrogène, les phénomènes thermiques et hydrauliques sont fortement couplés. Quant à la dynamique du groupe électrogène, elle est essentiellement limitée par le compresseur. Le rendement du GE à PAC est maximal pour les fonctionnements à charge partielle. Aux très faibles charges, la consommation des auxiliaires fait baisser fortement le rendement.

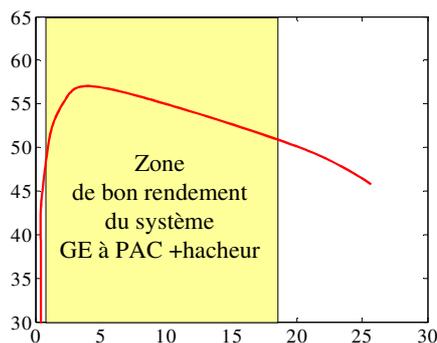


Figure III.24 : Allure en statique du rendement du système GE à PAC + hacheur en fonction de la puissance brute [kW].

III.5.2 Modélisation de la chaîne

Le modèle dynamique et détaillé du GE à PAC développé par le CEA a été inséré dans un modèle complet de chaîne de traction à source hybride, développé dans l'environnement Matlab Simulink. Ce modèle, qui prend en compte à la fois des processus électrique, thermique, hydraulique et chimique, doit permettre d'obtenir des résultats de simulation plus réalistes lorsque les différents systèmes sont soumis à des gradients de courant, de température importants. Grâce à ce modèle, nous avons mis en avant un autre intérêt de l'hybridation, au démarrage du véhicule : lors de la phase pendant laquelle la montée en pression du volume d'air contenu dans la pile limite les performances du GE à PAC, les supercondensateurs peuvent délivrer de la puissance.

Description du modèle global

Le modèle du système véhicule, implanté sous Simulink, est construit suivant une approche de type « forward-facing » ou « downstream » : le conducteur demande à la chaîne de traction de fournir un couple qui permette au véhicule de suivre un profil de mission donné. La consigne de vitesse peut ne pas être atteinte quand la chaîne de traction n'est pas en mesure de délivrer une puissance suffisante. Dans ce cas, la nouvelle vitesse, réellement atteinte, est recalculée.

Chapitre III

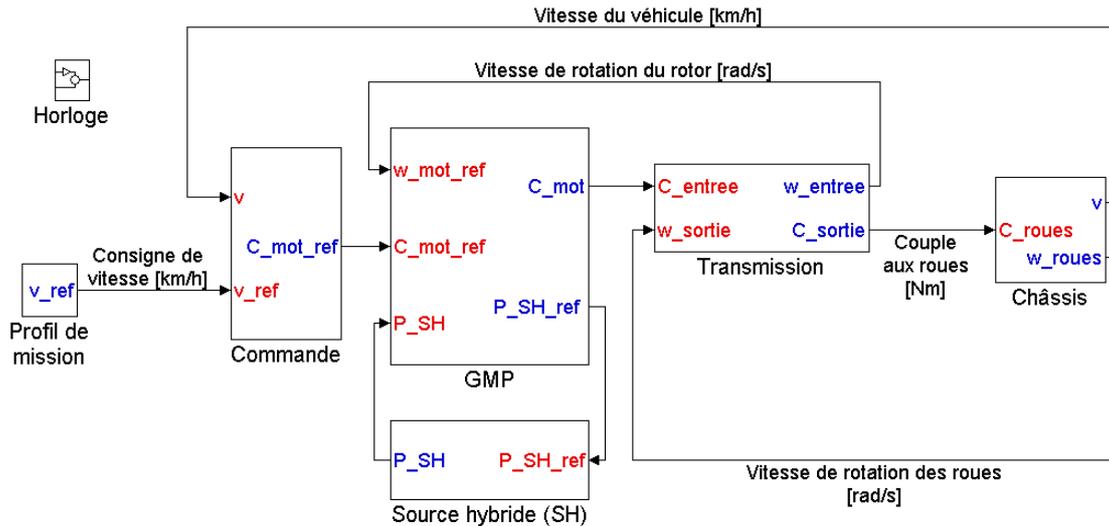


Figure III.25 : Niveau 1 du modèle de la chaîne de traction, développé sous Matlab-Simulink.

Le bloc *Commande* correspond aux pédales d'accélération et de frein. La consigne de couple moteur est donnée par un correcteur de type proportionnel.

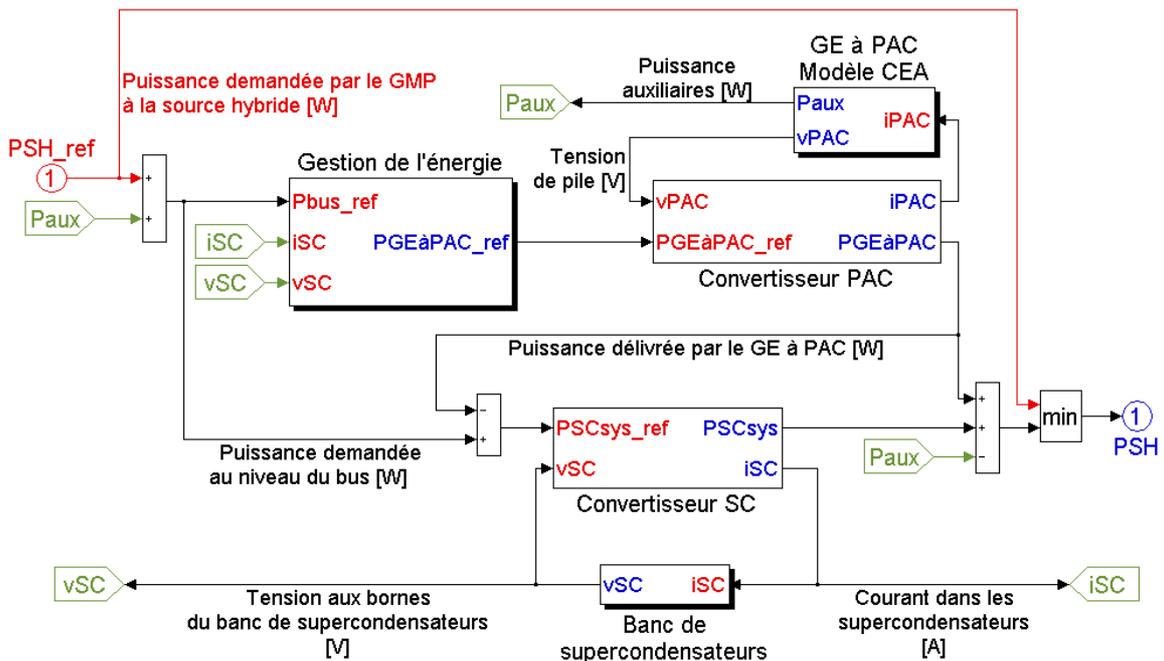


Figure III.26 : Niveau 1 du modèle de la source hybride - bloc *Source hybride SH*.

A l'intérieur du bloc Gestion de l'énergie est définie la stratégie qui permet de répartir la demande de puissance entre le GE à PAC et le banc de supercondensateurs. A noter qu'en phase de freinage, les supercondensateurs peuvent ne pas être en mesure de récupérer toute l'énergie renvoyée par le GMP (état de charge trop élevé, limite de courant dans les supercondensateurs atteinte). Dans ce cas, le surplus d'énergie est dissipé sous forme de chaleur.

Les modèles utilisés pour chacun des sous-systèmes de la chaîne de traction ont été décrits dans [Candusso Thèse 2002]. Nous ne donnerons ici que quelques informations concernant les éléments de la source hybride :

Modèle du GE à PAC développé par le CEA

Il s'agit d'un modèle dynamique (de nombreux phénomènes hydrauliques, thermiques, électrochimiques, mécaniques et électriques sont modélisés en dynamique) à l'architecture modulaire.

Chapitre III

Ce travail de modélisation multiphysique a été réalisé en recourant à la théorie des bondgraphs. Celle-ci permet notamment de résoudre des problèmes de causalité dus au grand nombre de variables utilisées et à la diversité des domaines physiques d'études auxquels elles appartiennent. Toutes les fonctions essentielles du groupe électrogène ont été représentées : l'humidification de la pile, la régulation de la pression de pile, la régulation de la pression du circuit d'eau, la régulation de la température de l'eau, la récupération de l'eau en sortie de cathode et d'anode, l'alimentation électrique de la pompe et du compresseur [Schott FDFC 2000]. Le modèle de pile utilisé correspond à celui développé par J.P. Poirot-Crouvezier dans sa thèse [Poirot Thèse 2000] [Baurens Poirot C'VELEC]. La figure ci-dessous représente de manière très schématique l'architecture adoptée pour le modèle de PAC.

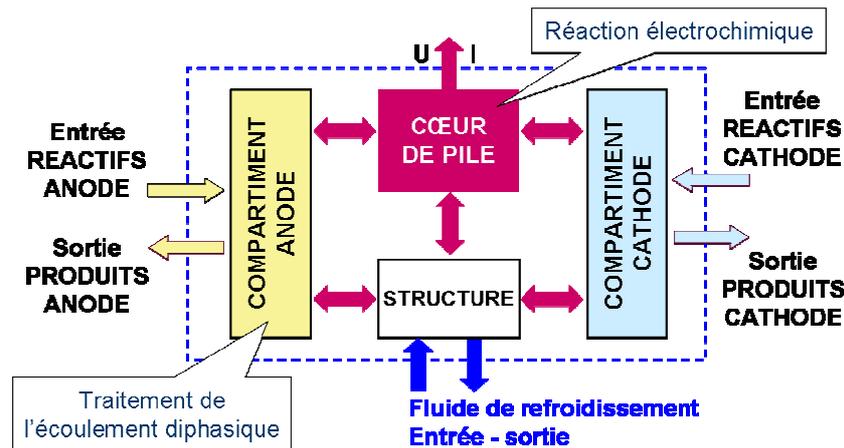


Figure III.27 : Architecture du modèle utilisé pour la PAC et développé par le CEA.

Modèle du banc de supercondensateur

Pour les supercondensateurs, un modèle à deux étages RC est utilisé. Ce modèle issu des travaux de [Zubieta IAS 1998] ; il a été décrit à la fin du chapitre 3 de [Candusso Thèse 2002] et fait référence [Belhachemi IAS 2000]. Les principaux phénomènes physiques sur lesquels repose la technologie des supercondensateurs y sont décrits, à savoir la double couche et le comportement électrique type ligne de transmission du supercondensateur.

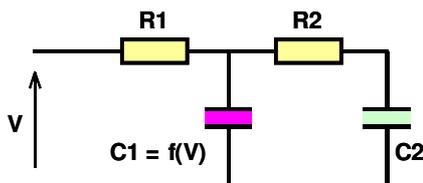


Figure III.28 : Modèle utilisé pour les supercondensateurs.

La valeur de la capacité $C1$ est indexée sur la tension.

Modèles des convertisseurs électroniques

Le modèle utilisé pour les convertisseurs interfaçant la pile et les supercondensateurs avec le bus continu de la chaîne de traction correspondent à des modèles moyens de hacheurs (cf chapitre II). Ils permettent en outre d'estimer le rendement de conversion électrique ainsi que les températures de fonctionnement des interrupteurs IGBT [Candusso Thèse 2002].

III.5.3 Résultats sur un profil de mission donné

Une simulation de la chaîne de traction a été réalisée sur un cycle de roulage d'une durée de 330 s, correspondant à un parcours de type périurbain.

Chapitre III

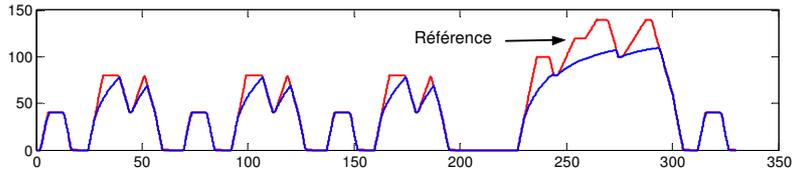


Figure III.29 :
Vitesse du véhicule
[km/h].

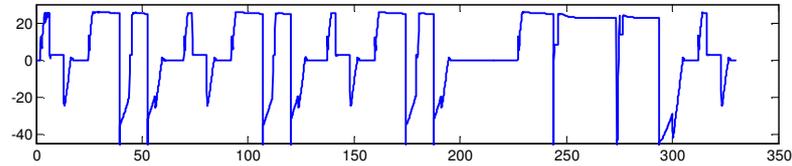


Figure III.30 :
puissance GMP
[kW].

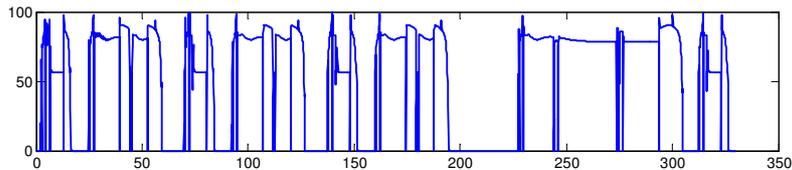


Figure III.31 :
rendement GMP
[%].

Le véhicule n'est pas toujours en mesure de suivre le profil de mission servant de référence. La vitesse réellement atteinte par l'automobile est donc recalculée. La simulation permet de trouver les points de fonctionnement couple - vitesse du groupe motopropulseur.

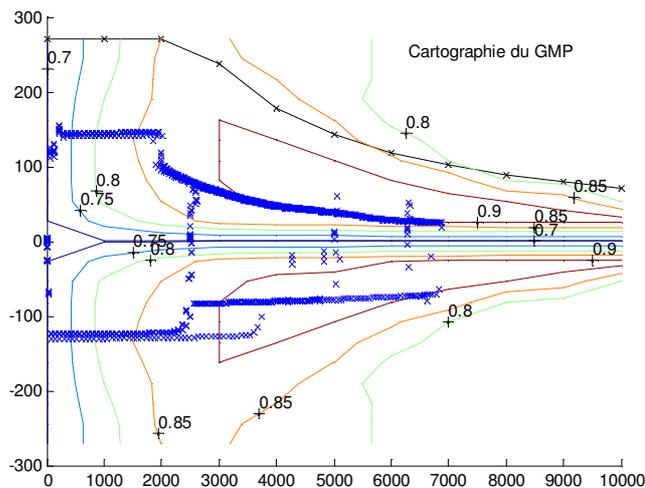


Figure III.32 : Lieux des points
de fonctionnement du GMP
sur le cycle
dans le plan couple [Nm],
vitesse [tr/min].

La stratégie de gestion de l'énergie mise en œuvre permet de répartir la demande de puissance entre le GE à PAC et les supercondensateurs [Candusso FDFC 2000]. Elle consiste d'une part à faire fonctionner, autant que possible, le GE à PAC à charge partielle, dans une gamme de puissance correspondant à un bon rendement. D'autre part, il est fait en sorte qu'un état de charge des supercondensateurs soit maintenu à une valeur proche de 75 %. Le GE à PAC fournit constamment de la puissance et la stratégie de gestion de l'énergie empêche le GE à PAC de fonctionner à faible charge (c'est-à-dire en dessous de 1 kW), sauf au démarrage.

Chapitre III

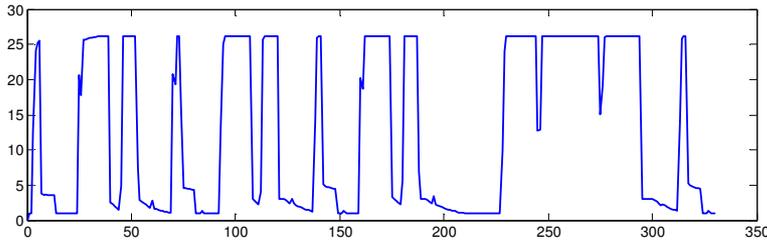


Figure III.33 :
Puissance brute
délivrée par la PAC
[kW].

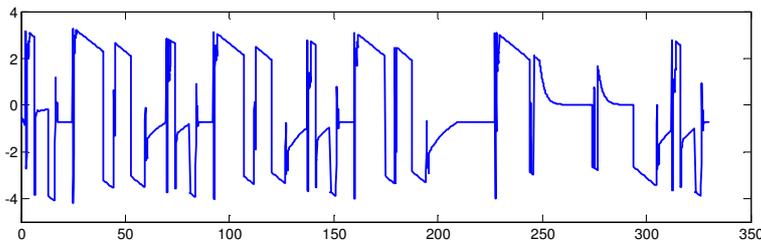


Figure III.34 :
Puissance délivrée par le banc
de supercondensateurs
[kW].

Les supercondensateurs prennent en charge une partie des transitoires de la demande de puissance exprimée par le GMP. Néanmoins, compte tenu de la taille relativement réduite du banc de supercondensateurs et également de la limite en courant des supercondensateurs, fixée ici à 100 A sans doute de manière un peu restrictive, le GE à PAC doit continuer à fournir une dynamique de puissance relativement importante. Il apparaît clairement que, dans le véhicule envisagé ici, le GE à PAC constitue la source de puissance principale et ne fonctionne pas à puissance constante, selon un mode de fonctionnement type prolongateur d'autonomie. La PAC demeure soumise à des gradients de courant importants.

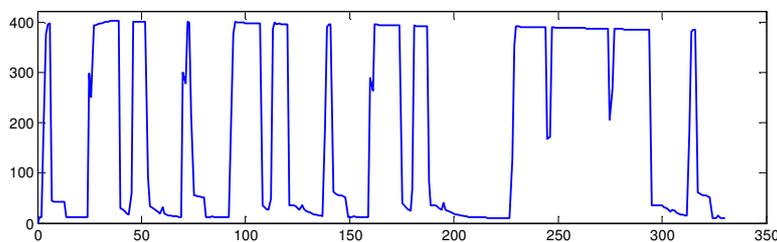


Figure III.35 :
Courant PAC
[A].

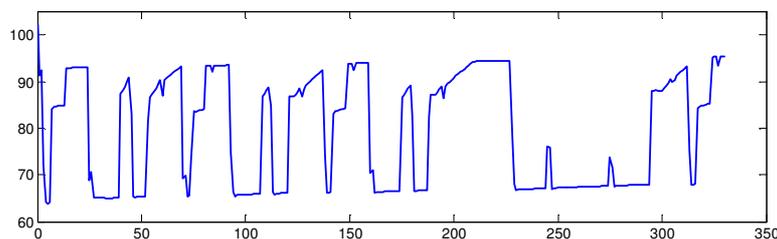


Figure III.36 :
Tension PAC
[V].

L'évolution de la pression à la cathode (coté air) a été reportée sur la figure suivante. Initialement, au début du cycle, le compartiment cathodique se trouve à la pression atmosphérique. Le débit d'air est régulé en boucle ouverte en fonction du courant soutiré à la pile et d'une stœchiométrie fixée ; les petits pics de pression observés sur la figure ci-dessous correspondent aux sollicitations de la pile en courant.

Chapitre III

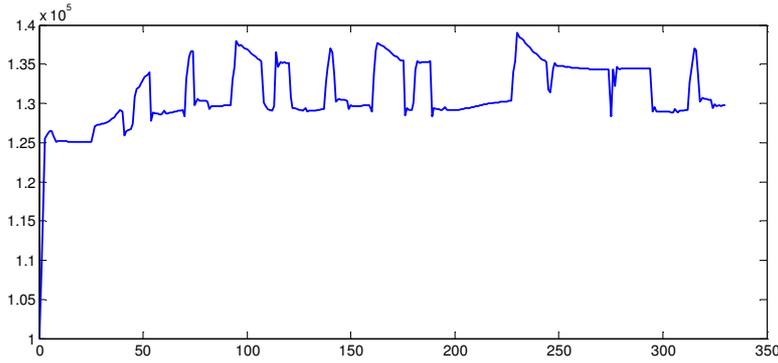


Figure III.37 :
Pression moyenne
à la cathode
[Pa].

On observe sur la figure ci-dessous la montée en température de la pile au cours du temps. Le régime permanent n'est atteint qu'après plusieurs cycles de fonctionnement. Le rendement en tension de la pile et le rendement global du GE à PAC aura donc tendance à croître globalement à mesure que de la distance est parcourue.

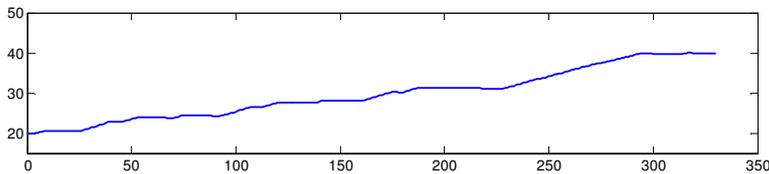


Figure III.38 :
Température moyenne
de pile [°C].

Les points de fonctionnement du GE à PAC, atteints au cours du cycle de roulage, ont été reportés dans un plan courant - tension, laissant apparaître, de manière discrète, la courbe de polarisation dynamique de la pile. Une courbe moyenne de polarisation (traits pointillés) a été tracée. Les points de fonctionnement du GE à PAC ont également été reportés dans un plan puissance - rendement, laissant alors apparaître, de manière discrète, la courbe de rendement dynamique du GE à PAC. Une courbe moyenne de rendement (traits pointillés) a été tracée sur le diagramme. Comme on le constate, pour une même puissance délivrée, différents points de fonctionnement ont pu être atteints ; les points correspondant à des bons rendements ont été atteints en fin de parcours, quand la température de la pile s'est élevée.

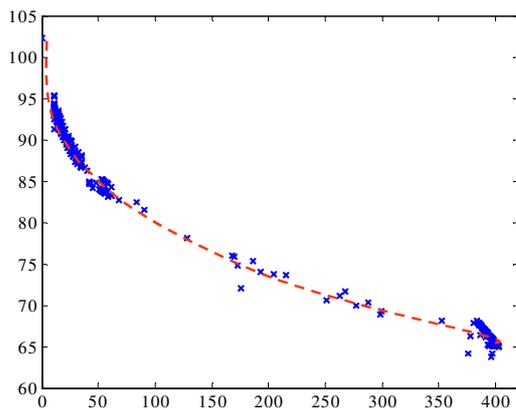


Figure III.39 : Courbe de polarisation dynamique
Tension [V] en fonction du courant [A]
Points de fonctionnement de la PAC.

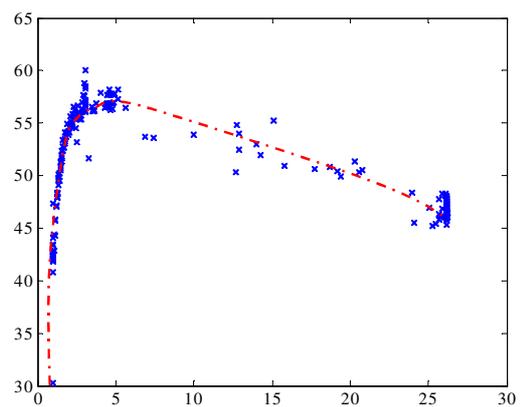


Figure III.40 : Rendement du système [%]
GE à PAC + hacheur
en fonction de la puissance brute [kW].

On constate, sur la figure ci-dessus, que le choix des paramètres relatifs à la stratégie de gestion de l'énergie pourrait être optimisé, de façon à ce que l'ensemble constitué du GE à PAC et de son convertisseur électrique ne fonctionne que pour des charges supérieures à 2 ou 3 kW, pour lesquelles le rendement est meilleur. En fait, les paramètres de la stratégie n'ont ici volontairement pas été

Chapitre III

choisis de façon optimale, de manière à placer certains organes en limite de plage de fonctionnement et pour mieux visualiser alors les effets des différentes boucles de régulation du modèle. Ainsi pouvons-nous observer, sur la figure ci-dessous, l'évolution entre 22 et 56 V, de la tension du banc de supercondensateurs. Ces niveaux de tensions limites correspondent respectivement à des états de charge des condensateurs de 50 et 100 %. Le courant de charge ou de décharge des supercondensateurs est limité à 100 A.

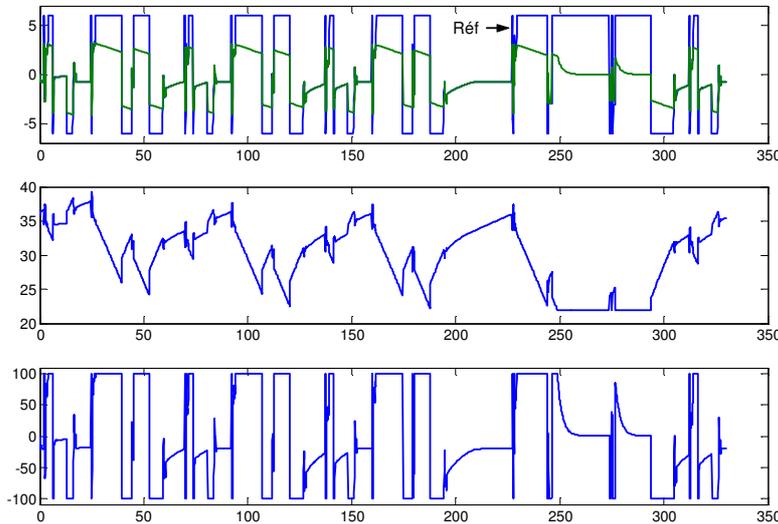


Figure III.41 : Puissance délivrée par les supercondensateurs [kW].

Figure III.42 : Tension aux bornes des supercondensateurs [V].

Figure III.43 : Courant délivré par les supercondensateurs [A].

Intéressons-nous maintenant à la période du profil de mission correspondant à la phase de démarrage du véhicule ($0 < t < 16$ s).

III.5.4 Cas particulier du démarrage

Le courant de consigne demandé à la pile à combustible est déterminé de façon à ce que la tension aux bornes de celle-ci ne soit pas inférieure à 65 V. Il est nécessaire de limiter le courant demandé à la PAC en particulier pendant la phase de démarrage lorsque la pression cathodique (côté air) n'est pas suffisamment élevée et que le courant demandé à la PAC par le GMP est élevé. Pendant cette phase du démarrage, les supercondensateurs fournissent autant de puissance qu'ils le peuvent.

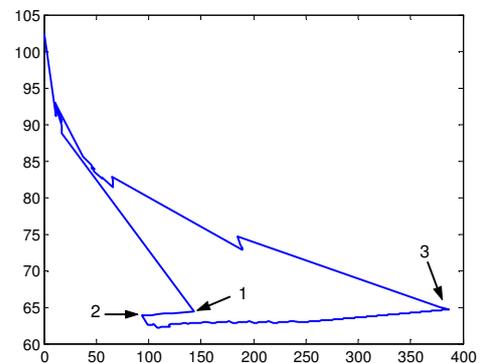
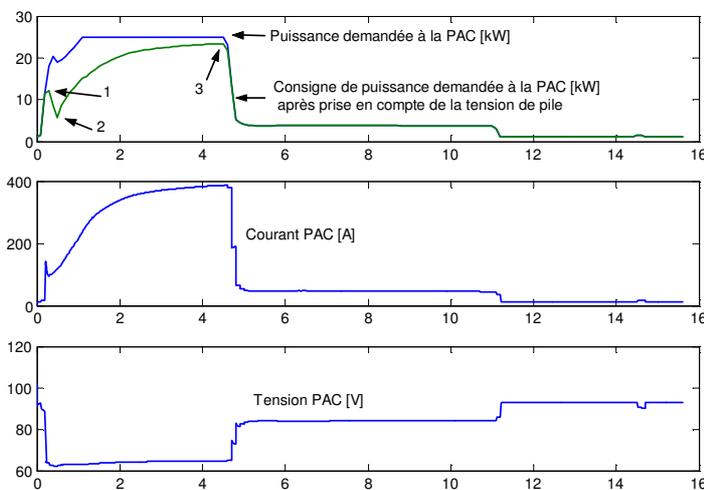


Figure III.45 : Courbe de polarisation en dynamique tension de pile [V] en fonction du courant [A].

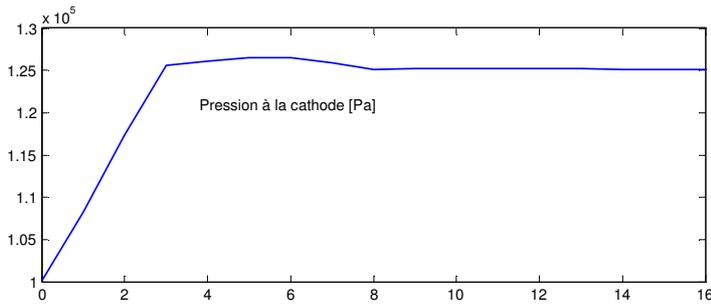


Figure III.44 : Evolution du courant,
de la tension de pile,
de la pression cathodique (air).

III.6 Conclusions et perspectives

Dans un véhicule, la PAC est soumise à des contraintes fortes et bien spécifiques aux applications transports. En particulier, la dynamique de puissance, liée aux besoins énergétiques exprimés par le groupe motopropulseur sur des profils de mission transport temps – vitesse (lors des phases d'accélération) est un élément à prendre absolument en considération.

Nous avons d'abord vu au début de ce chapitre que le recours à la modularité via l'association de plusieurs stacks grâce à des convertisseurs électroniques de puissance constitue une voie prudente et raisonnable pour la montée en puissance. Ceci souligne le rôle potentiel majeur et croissant des dispositifs électriques et électroniques embarqués (éléments de stockage intermédiaire de l'énergie, composants semi-conducteurs d'électronique de puissance).

Dans le cas des véhicules à moteur thermique (essence ou diesel), le concept d'hybridation a des apports qui sont bien connus maintenant. Un rapport puissance moyenne / puissance crête faible (cas des bus urbains ou d'un véhicule circulant en ville) justifie son intérêt dans un but de réduction des coûts des groupes électrogènes embarqués. La récupération envisageable de l'énergie au freinage et l'amélioration du rendement global sur cycle sont des atouts supplémentaires importants du concept d'hybridation.

Dans le cas d'un véhicule à générateur PAC, l'hybridation peut aboutir à une consommation moindre d'hydrogène et à l'amélioration de l'autonomie (problème du stockage assez volumineux de l'hydrogène sous pression). L'hybridation du GE à PAC par des dispositifs de stockage tampon de la puissance (par exemple des supercondensateurs et leurs convertisseurs électroniques associés) peut palier au manque de dynamique des GE à PAC. Ceux-ci offrent en effet des performances dynamiques essentiellement limitées par le comportement des auxiliaires (compresseur notamment). L'hybridation d'un générateur PAC peut avoir un impact fort sur la consommation en combustible (hydrogène). Elle peut aussi permettre de réduire les contraintes et sollicitations exercées sur la pile et donc, nous le verrons au [chapitre VII](#), d'accroître ainsi sa durée de vie et sa fiabilité.

Les GE à PAC peuvent être utilisés dans les véhicules de différentes manières. Soit ils sont placés en association avec une batterie à la capacité très limitée, comparable à celle des véhicules thermiques, et uniquement destinée à assurer le démarrage des auxiliaires du groupe. Soit ils sont associés à d'autres éléments de stockage de l'énergie (un stack de batteries plus ou moins important par exemple) et les deux composantes de la source hybride délivrent ensemble de l'énergie au groupe motopropulseur. L'architecture choisie et le degré d'hybridation conditionnent en grande partie le mode de fonctionnement du GE à PAC. Celui-ci peut être amené à fournir une dynamique de puissance importante ou bien, à l'inverse, à fonctionner en tant que prolongateur d'autonomie : il recharge alors les batteries en délivrant une puissance relativement faible et plus ou moins constante. L'hybridation du GE à PAC peut également permettre d'avoir recours à un GE plus petit et donc moins onéreux (« downsizing » de la pile). Compte tenu du prix encore élevé à ce jour d'un stack de pile, l'hybridation

pourrait permettre la mise sur le marché des premiers véhicules à PAC. Par ailleurs, un générateur PAC utilisé en mode prolongateur d'autonomie (« range extender ») peut aussi participer à l'augmentation de la durée de vie des batteries en réduisant la profondeur de décharge de ces dernières.

A noter encore que les supercondensateurs peuvent aussi être présentés comme des composants possédant des caractéristiques techniques très complémentaires vis à vis à des systèmes PAC. Ce sont en effet des dispositifs qui ont de bonnes aptitudes au cyclage charge - décharge (le chiffre de 500 000 cycles est souvent évoqué) et à la fourniture des puissances crêtes.

Le choix et l'optimisation du dimensionnement des composants de la source hybride, le degré d'hybridation de la PAC dépendront des progrès respectifs des différentes sources / filières.

Le travail qui a été initialement été entrepris en thèse de doctorat [Candusso Thèse 2002] aura consisté dans un premier temps à vouloir modéliser, finement et séparément, chacun des éléments électriques de la chaîne de traction (moteur à courant continu sans balais, onduleur triphasé et sa commande optimisée pour les modes accélération et freinage, hacheur, supercondensateurs) à partir des lois physiques qui les régissent. De ces modèles ont été issus, dans un second temps, des modèles simplifiés, quasi-statiques. Pour le groupe électrogène à pile à combustible (GE à PAC), nous avons eu recours en première approche à un modèle statique simple, qui nous a néanmoins permis de prédire qualitativement sur un cycle de roulage temps – vitesse les grandeurs électriques mises en jeu dans la pile. La modélisation du GE à PAC a ensuite été effectuée en collaboration avec le CEA Grenoble. Le modèle dynamique et détaillé du GE à PAC dont nous avons disposé a été inséré dans un modèle complet de chaîne de traction à source hybride, développé dans l'environnement Matlab Simulink. Ce modèle, qui prend en compte à la fois des processus électrique, thermique, hydraulique et chimique, doit permettre d'obtenir des résultats de simulation plus réalistes lorsque les différents systèmes sont soumis à des gradients de courant, de température importants. Ce type de modélisation permet de mettre en évidence l'intérêt de l'hybridation pour la prise en compte de phénomènes « fins » transitoires : pressurisation de la PAC, montée en température progressive...

La simulation proposée peut servir à l'élaboration finale d'un outil d'aide à la décision destiné à concevoir des chaînes de traction intégrant un GE à PAC.

Dans le domaine précis de l'hybridation des GE à PAC, les recherches peuvent concerner différents points.

Même si, cela a déjà été évoqué, la tendance est plutôt à l'apparition d'architectures standards dans le secteur automobile, très intégrées, il reste certainement une place pour des travaux visant à élaborer des topologies électriques originales et développer le contrôle-commande des convertisseurs électroniques associés. Ainsi, des montages électriques permettent-ils peut-être d'envisager une association « série » batterie – PAC. Dans le but de limiter le nombre de stacks PAC, voire de cellules sur une pile, et de disposer cependant d'une tension de bus continu élevée grâce aux batteries. Des pistes de réflexion sont peut-être à trouver dans certaines références [Takehara EVS14 1996] relatives à des structures censées permettre l'association batteries / supercondensateurs.

On peut aussi évoquer comme piste de travail le développement de pilotages fins des structures électriques dans les chaînes de traction, par exemple en considérant l'intérêt d'un bus continu variable pour aboutir à une optimisation énergétique des échanges électriques (à la Toyota Prius...).

Des stratégies de gestion de l'énergie peuvent encore aussi être imaginées. On notera cependant que si celles-ci sont abordées au niveau macroscopique, avec une approche statique ou quasi-statique pour la modélisation, dans le but de procéder à une optimisation énergétique (en considérant les échanges d'énergie entre les sous-systèmes : GE à PAC, batteries et GMP), les enjeux demeureront peut-être assez limités. Un véhicule doté d'une source hybride PAC – batterie est un véhicule hybride à architecture série, et la gestion de l'énergie est peut-être moins délicate à penser que pour le cas d'un véhicule thermique hybride parallèle à dérivation d'énergie (type Prius). Néanmoins, à partir du moment où la gestion de l'énergie est développée en prenant en compte les transitoires liés à la PAC et à ses auxiliaires (dans le cas par exemple de conditions opératoires particulières du type démarrage à froid), la tâche devient plus compliquée, et de facto, les travaux à mener prennent plus de sens.

Le point le plus intéressant consiste peut-être à penser l'hybridation en fonction non seulement d'une optimisation énergétique mais aussi d'un accroissement de la durée de vie et de la fiabilité de la source

Chapitre III

hybride. Les recherches et expérimentations déjà menées à Belfort sur des piles PEM ont permis de mettre en évidence quelques problèmes susceptibles d'apparaître en endurance (**chapitre VII**). Ils peuvent être liés par exemple aux phases critiques des démarrages brusques, aux contraintes mécaniques subies par les cœurs de pile (différences de pressions trop importantes entre les compartiments anode et cathode, dues à un contrôle parfois peu évident des organes de régulation des fluides et à leurs dynamiques limitées), à l'humidification des gaz réactifs également parfois difficile à réaliser en régime dynamique (les inhomogénéités dans les distributions hydrauliques sur les surfaces des membranes peuvent mener à l'apparition de points chauds sur celles-ci et donner naissance à des perforations).

Dans ce contexte, il est intéressant de viser à la définition et à la réalisation de modules génériques hybride générateur PAC – supercondensateurs ou batteries, pour un ou plusieurs véhicules donnés. En procédant à une optimisation des taux d'hybridation et de la gestion de l'énergie au sein de la source hybride et à mener, au regard d'objectifs multiples :

- amélioration de la durée de vie et de la fiabilité du groupe électrogène hybride en considérant les aspects fiabilité et durée de vie des différents composants,
- amélioration des performances du générateur hybride (en termes de dynamique, de rendement global et donc de consommation d'hydrogène, d'autonomie) avec prise en compte des spécificités des différents éléments, de leurs constantes de temps, et des pertes potentielles (pile, auxiliaires, supercondensateurs ou batteries, composants semi-conducteurs électronique de puissance dans les convertisseurs)
- réduction globale des masses et volumes du générateur hybride.

Dans cette optique, des outils logiciels de modélisation et de simulation doivent continués à être développés pour parvenir à une représentation comportementale du générateur hybride. Les briques élémentaires relatives aux modèles de GE à PAC, de batteries, de convertisseurs électroniques, d'unités de gestion de l'énergie peuvent ensuite être intégrées dans des modèles globaux de chaîne de traction disponibles dans la bibliothèque, l'environnement VEHLIB développé par l'IFSTTAR pour la simulation de véhicules routiers ou ferroviaires. Des travaux sont actuellement menés dans ce sens dans le cadre du projet européen Mobypost (Mobility with hydrogen for postal delivery ; <http://www.mobypost-project.eu>).

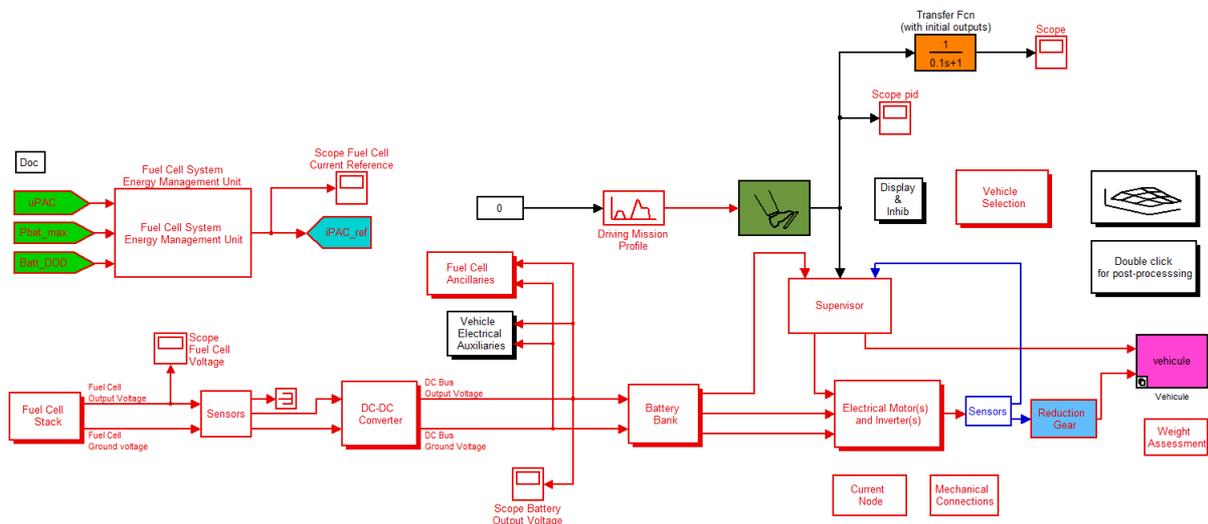


Figure III.46 : Couche supérieure du modèle de chaîne de traction d'un quadricycle à PAC et batteries développé dans le cadre du projet Mobypost.

III.7 Références

[Advisor]	Logiciel Advisor - Advanced Vehicle Simulator. Logiciel de simulation de véhicule hybride du National Renewable Energy Laboratory (NREL), U.S Department of Energy. Site internet: http://www.nrel.gov/ .
[Barrade VPPC 2004]	P. Barrade, A. Rufer, The use of supercapacitors for energy storage in traction systems, IEEE Vehicle Power and Propulsion Conference, Paris, Octobre 2004.
[Baurens C'VELEC 1999]	Pierre Baurens, Jean-Philippe Poirot-Crouvezier. Simulation des piles à combustible (type PEMFC) et des groupes électrogènes à PAC dédiés à la traction électrique : les modèles Vp_stack et Vp_syst du CEA, des modèles de conception et de prédiction pour les industriels de la traction électrique. C'VELEC 99 – Véhicule électrique et véhicule hybride, solutions actuelles et perspectives – 3 et 4 novembre 1999 à Grenoble.
[Beguery C'VELEC 1999]	P. Beguery. Renault – Direction de la recherche – Département Energie de Substitution. Problématique de la gestion d'énergie pour véhicule hybride. C'VELEC 99 – Véhicule électrique et véhicule hybride, solutions actuelles et perspectives – 3 et 4 novembre 1999 à Grenoble.
[Belhachemi IAS 2000]	F. Belhachemi, S. Rael, B. Davat. A physical based model of power electric double-layer supercapacitors. Proc. IEEE-IAS 2000 Conf. Rome (Italie), 8-12 octobre 2000.
[Bertrand TIE 2010]	Nicolas Bertrand, Jocelyn Sabatier, Olivier Briat, Jean-Michel Vinassa. Embedded Fractional Nonlinear Supercapacitor Model and Its Parametric Estimation Method. IEEE Transactions on Industrial Electronics. Vol. 57. N°12. Pages: 3991-4000. Décembre 2010.
[Bruce Lin 1999]	Bruce Lin. Conceptual design and modeling of a fuel cell scooter for urban Asia. Master's Thesis - Princeton University, 1999. http://www.spinglass.net/scooters/
[Candusso C'VELEC 2002]	D. Candusso, E. Rullière, J-P. Poirot-Crouvezier, P. Schott, P. Baurens (25 - 26 juin 2002) Modélisation dynamique d'un véhicule électrique à pile à combustible. Congrès Véhicules électriques et hybrides, enjeux technologiques et perspectives (C-VELEC n°5). Grenoble. Article paru ultérieurement dans les Actes INRETS n°84.
[Candusso ECM 2008]	D. Candusso, A. De Bernardinis, M.C. Péra, F. Harel, X. François, D. Hissel, G. Coquery, J-M. Kauffmann (avril 2008). Fuel cell operation under degraded working modes and study of a diode by-pass circuit dedicated to multi-stack association, Energy Conversion and Management, Vol. 49, n°4, pp. 880-895. Ed. Elsevier.
[Candusso EVS18 2001]	D. Candusso, E. Rullière, S. Bacha (20 - 24 octobre 2001). Modelling of a fuel cell hybrid power source for a small electric vehicle. Electric Vehicle Symposium 18 (EVS18). Berlin, Allemagne. 11 pages.
[Candusso EVS20 2003]	D. Candusso, E. Rullière, J-P. Poirot-Crouvezier (15 - 19 novembre 2003). A demonstration vehicle with a proton exchange membrane fuel cell hybrid energy source. Electric Vehicle Symposium 20 (EVS 20). Long Beach, Californie. 10 pages.

Chapitre III

[Candusso FDFC 2000]	D. Candusso, E. Rullière, J-P. Yonnet, P. Baurens (9 - 10 novembre 2000). Simulation d'un véhicule électrique à source hybride pile à combustible - éléments intermédiaires de stockage de la puissance. Colloque Piles à combustible et interfaces pour les transports. Belfort. pp 145-152.
[Candusso Thèse 2002]	D. Candusso (2002). Hybridation du groupe électrogène à pile à combustible pour l'alimentation d'un véhicule électrique. Thèse de Doctorat INPG Génie Electrique, Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble, soutenue le 29/11/ 2002. 168 pages.
[Candusso UPEC 2001]	D. Candusso, E. Rullière, E. Toutain (12 - 14 septembre 2001). A fuel cell hybrid power source for a small electric vehicle. Universities Power Engineering Conference (UPEC) 36. Swansea, Royaume-Uni. pp. 2061-2065.
[Chnani Thèse 2008]	Moussa Chnani. Modélisation Macroscopique de piles PEFC et SOFC pour l'étude de leur couplage. Thèse de doctorat de l'UFC et de l'UTBM. Belfort. 7 octobre 2008. 184 pages.
[Coquery ESSCAP'04]	G. Coquery, R. Lallemand, J. Kauv, A. De Monts, B. Soucaze-Guillous, J. Chabas, A. Darnault (2004). First accelerated ageing cycling test on supercapacitors for transportation applications: methodology, first results. ESSCAP'04 1st European Symposium on Supercapacitors & Applications, Belfort.
[De Bernardinis ECM 2010]	A. De Bernardinis, D. Candusso, F. Harel, X. François, G. Coquery (Mai 2010). Experiments of a twenty cell PEFC operating under fault conditions with diode bypass circuit for uninterrupted power delivery. Energy Conversion and Management. Vol. 51, n°5, pp. 1044-1054. Ed. Elsevier.
[Delprat Thèse 2002]	S. Delprat. Évaluation de stratégies de commande pour véhicules hybrides parallèle. Thèse de doctorat. Université de Valenciennes et du Hainaut-Cambrésis, 2002.
[El Brouji 2009]	H. El Brouji, O. Briat, J-M. Vinassa, H. Henry, E. Woïrgard. Analysis of the dynamic behavior changes of supercapacitors during calendar life test under several voltages and temperatures conditions. Microelectronics reliability. Vol. 49. N°9-11. Pages: 1391-1397. Septembre-Novembre 2009.
[EPCOS]	EPCOS – Components on line. http://www.epcos.com
[Erdinc JPS 2009]	O. Erdinc, B. Vural, M. Uzunoglu. A wavelet-fuzzy logic based energy management strategy for a fuel cell/battery/ultra-capacitor hybrid vehicular power system. Journal of Power Sources n°194 (2009). Pages 369 – 380.
[Felicitas]	Site internet du projet européen FELICITAS : http://www.felicitas-fuel-cells.info/
[Friedman 1999]	D.J. Friedman. Maximizing direct-hydrogen PEM fuel cell vehicle efficiency: is hybridization necessary? SAE International Congress and Exposition, 1-4 Mars 1999. Publié dans : Fuel Cell Power for Transportation (SP-1425), SAE# 1999-01-0530, Society of Automotive Engineers, Warrendale, PA, 1999.
[Gallay Gualous TI 2007]	Roland Gallay, Hamid Gualous. Applications des supercondensateurs. Techniques de l'Ingénieur. Référence D3335. Date de publication : 10 août 2007.
[Garnier Thèse 2006]	James Garnier. Association en parallèle de générateurs pile à combustible PEMFC. Thèse de Doctorat de l'UTBM et de l'UFC. Belfort. Juin 2006.

Chapitre III

[Gualous REE 2004]	H. Gualous, F. Harel, D. Hissel, J. M. Kauffmann (2004). Etude et réalisation d'une alimentation auxiliaire de puissance (APU) associant pile à combustible et supercondensateurs, REE, n°8, pp 90-100.
[Hammar Thèse 2006]	A. Hammar (2006). Modélisation du supercondensateur et étude de son vieillissement : Utilisation dans les applications de transport ferroviaire. Thèse de l'Université Claude Bernard Lyon 1, soutenue le 03 juillet 2006.
[Hyfleet Cute]	Site internet du programme européen HyFLEET CUTE : http://www.global-hydrogen-bus-platform/
[Jeong JPS 2005]	K.S. Jeong, W.Y Lee, C.S Kim, Energy management strategies of a fuel cell/battery hybrid system using fuzzy logics, Journal of Power Sources, Vol. 145 (2), pp. 319-326, Août 2005.
[Lachaize Thèse 2004]	Jérôme Lachaise. Etude des stratégies et des structures de commande pour le pilotage des systèmes énergétiques à Pile à Combustible (PAC) destinés à la traction. Thèse INP Toulouse. Soutenue le 20 septembre 2004.
[Lassègues TI 2001]	Jean-Claude Lassègues. Supercondensateurs. Techniques de l'Ingénieur. Référence D3334. Date de publication : 10 mai 2001.
[Mestre Thèse 1997]	P. Mestre. Etude et simulation d'un véhicule électrique à moteur synchrone monosource ou équipé de supercondensateurs. Thèse de doctorat INPT, juin 1997.
[Nachin PFE 2002]	C. Nachin. Prolongateur d'autonomie à pile à combustible pour petit véhicule électrique. Projet de fin d'études INPG – ENSIEG. Juin 2002 – Grenoble.
[Paganelli 2002]	G. Paganelli, Y. Guezennec, G. Rizzoni, Optimizing Control Strategy for Hybrid Fuel Cell. Vehicle, SAE World Congress & Exhibition, Detroit, Mars 2002.
[Paganelli Thèse 1999]	G. Paganelli. Conception et commande d'une chaîne de traction pour véhicule hybride parallèle thermique et électrique. Thèse de Doctorat de l'Université de Valenciennes et du Haut-Cambresis – septembre 1999.
[Poirot Thèse 2000]	Jean-Philippe Poirot-Crouvezier. Modélisation de la réponse énergétique d'une pile à combustible et du groupe électrogène associé. Thèse de Doctorat INPG. Réalisée au CEA Grenoble (2000) avec PSA Peugeot Citroën.
[Rodatz 2005]	P. Rodatz, G. Paganelli, A. Sciarretta, L. Guzzella. Optimal power management of an experimental fuel cell/supercapacitor-powered hybrid vehicle, Control Engineering Practice, Vol. 13, pp. 41-53, 2005.
[Schott FDFC 2000]	Pascal Schott, Jean-Philippe Poirot-Crouvezier, Pierre Baurens. Modélisation et simulation de la source d'énergie à pile à combustible du véhicule hydro-gen. Colloque Piles à Combustible et Interfaces pour les transports. 9 et 10/11/2000 à Belfort.
[Scordia Thèse 2004]	J. Scordia. Approche systématique de l'optimisation du dimensionnement et de l'élaboration. de lois de gestion d'énergie de véhicules hybrides. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré - Nancy 1. 2004.

Chapitre III

[Takehara EVS14 1996]	J. Takehara, K. Miyaoka, T. Fukuda. EV Mini-Van Featuring Series Conjunction of Ultracapacitors and Batteries for Load Leveling of its Batteries. Electric Vehicle Symposium 14. 1996
[Thounthong Thèse 2005]	Phatiphat Thounthong. Conception d'une source hybride utilisant une pile à combustible et des supercondensateurs. Thèse de Doctorat de l'INPL. Laboratoire GREEN. Soutenue le 9 décembre 2005.
[Trigui ATEC 2009]	R. Trigui (janvier 2010). Technologies hybrides et la réduction des émissions de CO ₂ . Revue TEC Transport / Environnement / Circulation (ATEC – ITS France), n°204, octobre – décembre 2009, pp., ISSN 0397-6513.
[Tritschler Thèse 2010]	Philipp Tritschler. Optimisation de l'architecture électrique et gestion d'énergie pour un système à pile à combustible embarquée dédié à l'application agricole. Thèse INPG. G2ELAB. Soutenue le 22 Octobre 2010.
[Wipke EVS18 2001]	Keith Wipke, Tony Markel, Doug Nelson. Optimizing energy management strategy and degree of hybridization for a hydrogen fuel cell SUV. Electric Vehicle Symposium 18 – du 20 au 24 oct 2001 à Berlin.
[Zubieta IAS 1998]	L. Zubieta, R. Bonert. Characterization of double-layercapacitors (DLCs) for power electronics applications. IEEE-IAS'98, Saint-Louis. Octobre 1998. Pages 1149-1154.

IV Caractérisations expérimentales de piles PEM. Compréhension et représentation des phénomènes	111
IV.1 Moyens de caractérisation, bancs d'essai	111
IV.1.1 Quelques mots sur la plateforme de Belfort	111
IV.1.1.1 Le bâtiment.....	111
IV.1.1.2 Les bancs	112
IV.1.1.3 Quelques chiffres technico-économiques en relation avec les tests conduits sur la plateforme de Belfort.....	114
IV.1.2 Bancs d'essai de caractérisation : examen de topologies envisageables	114
IV.1.2.1 Le circuit combustible	115
IV.1.2.2 Le circuit comburant	117
IV.1.2.3 Contrôle de la température de pile	119
IV.1.2.4 Gestion globale du système.....	119
IV.2 Retour sur la conception des moyens d'essai et sur la conduite d'essais par des analyses théoriques.....	119
IV.2.1 Analyse de topologies fluidiques de bancs d'essai et de systèmes PAC.....	119
IV.2.2 Travaux visant une plus grande fiabilité et robustesse de conception	121
IV.2.2.1 Un exemple : étude de courbes de polarisation par une Analyse en Composantes Principales (ACP).....	121
- L'ACP en quelques mots	121
- Exemples de résultats	122
IV.3 Méthodes de caractérisation électrochimiques pour stacks. Instruments associés.....	123
IV.3.1 Suivi du point de fonctionnement	124
IV.3.2 Courbes de polarisation	125
IV.3.3 Spectroscopie d'impédance électrochimique.....	127
IV.3.4 Voltamétries	132
IV.3.4.1 Voltamétrie linéaire	132
IV.3.4.2 Voltamétrie cyclique.....	133
IV.3.4.3 Extension de la voltamétrie à des mesures sur stack.....	134
IV.3.5 Mesures de densité de courant locales	134
IV.3.6 Récapitulatif des techniques de caractérisation « électrique »	135

IV.4 Analyse et représentation des phénomènes	136
IV.4.1 Modélisation comportementale du comportement statique et dynamique des PAC (« boîtes noires »).....	137
IV.4.2 Modélisation semi-physique ou semi-empirique (« boîtes grises »).....	138
IV.4.3 Modélisation physique ou mécanistique (« boîtes blanches »)	141
IV.5 Conclusions et perspectives	143
IV.6 Références	145

IV Caractérisations expérimentales de piles PEM. Compréhension et représentation des phénomènes

Le développement des technologies contemporaines accentue l'interdépendance entre la science et la technique, la théorie et la pratique / l'expérimentation (ex : « technosciences », nanotechnologies, biotechnologies, physique nucléaire). La recherche actuelle fait effectivement la part belle à la technologie en recourant à de puissants moyens de calcul et d'essais, à des instruments de plus en plus sophistiqués. Les instruments scientifiques deviennent des partenaires constants pour le chercheur au point que l'on peut penser que ce sont « ces instruments qui font la science » pour paraphraser l'intitulé du magazine Sciences et Avenir n°140 de 2004 [Sciences et Avenir oct-nov 2004].

Dans le domaine des PAC aussi, la compréhension et la représentation (sous forme de modèles) des phénomènes physiques liés aux PAC passent nécessairement par des phases importantes d'instrumentation, d'expérimentation et de caractérisation. Cela implique de développer des moyens d'essais et d'analyse permettant le contrôle précis et l'observation fine des PAC. Le développement de bancs d'essais et d'instruments de mesure pour PAC est souvent incontournable dans un contexte de recherche où les besoins évoluent rapidement. Ce développement d'outils et la maîtrise des conditions de fonctionnement des piles ne peuvent se faire sans une très bonne appréhension des phénomènes mis en jeu dans la PAC. On pourrait ainsi affirmer à ce propos : « Qui mesure et contrôle bien, comprend bien. ». Compte tenu de la multiplicité des domaines concernés par la mise au point des outils expérimentaux, le développement d'instruments permettant la caractérisation des PAC apparaît alors comme une activité scientifique, très éloignée d'un travail dont la finalité serait la production exclusive d'essais bruts.

Une partie importante de l'activité IFSTTAR à Belfort a pour objectif d'acquérir une maîtrise de la conception de bancs d'essais adaptés à la caractérisation de systèmes PAC, incluant l'instrumentation spécifique, la commande des essais et la constitution de bases de données. Elle est très en lien avec la conception des essais (élaboration des plans d'expériences) et la modélisation de l'expérience (qui font l'objet du Chapitre V). Si cette activité repose sans doute avant tout sur un savoir-faire important, sur une connaissance des technologies à mettre en œuvre (capteurs, actionneurs, logiciels...), nous verrons que certains outils développés dans un cadre plus théorique peuvent apporter une aide à la conception, par exemple en vue du choix et du positionnement des capteurs expérimentaux, des actionneurs. En fin de chapitre, sera proposée une brève typologie de modélisations pouvant être mises en œuvre pour analyser, comprendre et représenter des résultats d'expériences (dans une démarche orientée génie électrique et systèmes PAC).

Dans le domaine de la recherche sur les PAC, l'étape expérimentale nécessite des moyens matériels souvent lourds et onéreux. Elle est complexe, pas toujours évidente à valoriser sur un plan académique, elle demande des temps passés importants, peut même présenter des risques au niveau des biens et des personnels. Elle n'en est pas moins indispensable. Le besoin d'expérimenter sur des objets disponibles « en vraie grandeur », possédant des niveaux de puissance significatifs, s'avère incontournable pour pouvoir finalement accéder au retour d'expérience technologique et fonctionnelle des systèmes PAC pour applications embarquées. La plateforme de Belfort est un outil qui s'inscrit dans ce contexte.

IV.1 Moyens de caractérisation, bancs d'essai

IV.1.1 Quelques mots sur la plateforme de Belfort

IV.1.1.1 Le bâtiment

La plateforme d'essais PAC de Belfort est un bel instrument public qui possède peu d'équivalents en Europe. A notre connaissance, seules quelques unités de recherche, comme le Centre pour la recherche sur l'énergie solaire et l'hydrogène (ZSW basé à Ulm en Allemagne), le Joint Research Center

(Institute for Energy à Petten aux Pays-Bas) et Energy Research Centre of the Netherlands (ECN, également situé à Petten, Pays-Bas) offrent des moyens techniques satisfaisant le test de PAC fortes puissances. Actuellement, l'expérience européenne dans le domaine des générateurs PAC embarqués demeure encore limitée et la plateforme de Belfort doit aider à combler ce manque. Son infrastructure a d'ailleurs été pensée dès sa phase de conception pour répondre aux besoins précis des tests de systèmes piles opérant dans un environnement transport [Kauffmann Actes INRETS n°84 2002]. Elle comprend sur 1200m² utiles des bureaux, des laboratoires et une zone d'essais PAC. Trois cellules d'essais d'une capacité de 10, 80 et 200kW sont pourvues d'équipements spécifiques aux essais de piles (alimentations en gaz, régulation de la température et de l'hygrométrie ambiante, ventilation et traitement de l'air, détection d'hydrogène) et à la reproduction des environnements vibratoires, climatiques et thermiques dans lesquels évoluent les véhicules.

IV.1.1.2 Les bancs

Actuellement, trois bancs de tests sont mis en œuvre par l'IFSTTAR pour caractériser en fonctionnements statique et dynamique des PAC PEM de différentes puissances (1 kW, 10 kW et 20 kW environ). Sur chaque banc, une charge active (ex : TDI Dynaload) permet d'imposer des sollicitations en courant sur la pile étudiée, comparables par exemple à celles exercées par un groupe motopropulseur sur le groupe électrogène dans un véhicule électrique. Les bancs 10 et 20 kW peuvent être utilisés à puissance réduite (environ 2 kW) pour des essais climatiques. Les bancs peuvent aussi être utilisés pour étudier le comportement de PAC soumises à des vibrations mécaniques (nous reviendrons sur les essais climatiques et mécaniques dans le Chapitre VI). Un autre banc, dit « bi-piles », est davantage destiné à travailler dans le sens de l'intégration des systèmes PAC embarqués. Un cinquième banc est disponible pour le test de pile SOFC de puissance inférieure à 1 kW. Des bancs ont également été développés pour caractériser des organes de système PAC (ex : compresseurs [Tekin Thèse 2004]). Ces moyens d'essais ont en grande partie été conçus et réalisés avec le soutien de Fabien Harel, ingénieur à l'IFSTTAR, et ils continuent à bénéficier de développements constants dans le cadre des différents projets de recherche menés sur la plateforme de Belfort.

La conception et la réalisation du **banc PEM 1kW** ont été initiées dans le cadre d'activités de recherche menées au laboratoire L2ES à partir de 2000 [Jemeï DEA 2001] [Moratin Thèse CNAM 2002] [Dumercy Thèse 2004] [Glises JPS 2005]. Ce moyen d'essai constitue un outil très important. D'une part, il a permis aux personnels L2ES, INRETS, IFSTTAR, et à des étudiants de troisième cycle, d'acquérir leurs premières expériences et connaissances sur les piles PEM [Harel Rapport INRETS 1 2003] [Harel Rapport INRETS 2 2005] [Harel Rapport INRETS 3 2008]. D'autre part, il permet de réaliser des caractérisations fines utiles en particulier dans le contexte d'études phénoménologiques. Bon nombre de choix relatifs à ses architectures électrique et fluide, à ses sous-systèmes technologiques (topologies, système d'humidification, interface homme-machine développée par Fabien...) ont en outre été adoptés et déclinés sur les autres bancs de la plateforme de Belfort. Le banc 1kW est utilisé pour étudier à la fois le comportement de piles PEM soumises à des contraintes fortes (en terme de gradients de température, de pression, d'humidité, de dynamique de courant) et leur vieillissement sur des durées de fonctionnement significatives (1000 h) (Cf Chapitres VII). Ce type de tests endurance / fiabilité se fait sur de petites piles pour des raisons de coûts, de sécurité (les essais pouvant s'avérer destructifs) et le banc 1 kW se prête bien à ce type d'expériences.

Le **banc 10kW** a été acquis initialement auprès de la société HELION (groupe AREVA), située à Aix en Provence. Il a été livré et installé fin 2002 sur la plateforme de Belfort. Il permet de tester des piles PEM dont la puissance maximale est 10kW. Suite à une demande du L2ES, ce banc a fait l'objet par HELION de modifications, de décembre 2003 à début janvier 2004. Les améliorations ont porté essentiellement sur le système de régulation de température de pile et sur le contrôle du débit d'air. Le banc nous a alors servi à réaliser des tests sur une pile PEM HELION 5kW (alimentée en hydrogène / air) dans le cadre du projet SPACT [Candusso Rapport SPACT 2004] [Candusso IJHE 2006]. Le courant de pile était imposé au moyen de la charge active réalisée par le laboratoire GREEN de Nancy, par Alexandre De Bernardinis, Richard Lallemand du LTN et développée dans le cadre de ce programme [Lallemand EPE 2003]. Cette charge électronique est constituée d'une association de hacheurs et elle possède par conséquent une topologie très proche de celle des convertisseurs

Chapitre IV

embarqués dans les véhicules. Des modifications très importantes (topologie fluide du banc revue, nouveaux humidificateurs à bullage, nouvelle interface de pilotage...) ont ensuite été apportées au banc dans le but d'améliorer et d'optimiser ses fonctionnalités, principalement en vue du projet ANR MEPHISTO et de recherches sur les démarrages à froid [Bégot Fuel Cells 2008]. Un petit châssis déportable pouvant accueillir une pile, son circuit de contrôle de la température et différents capteurs peut dorénavant être placé dans une enceinte thermique jouxtant le banc HELION. Cette architecture avait initialement été proposée sur le banc 20 kW, décrit ci-dessous, lors des projets GENEPAC puis CELINA [Bégot ECM 2010] (Cf Chapitre VI).

Le **banc 20kW** a donc d'abord été conçu et construit dans le cadre des projets L2ES - FC LAB : GENEPAC et CELINA. Ultérieurement, ce banc a été développé pour pouvoir être utilisé lors du projet SPACT80. Il a alors accueilli une pile PEM HELION de 90 cellules [De Bernardinis Lucerne 2009]. Le banc 20 kW peut également être doté d'un châssis déportable autorisant le test d'une pile en fonctionnement dans une enceinte climatique ou sur la table vibrante de la plateforme. Des informations supplémentaires et relatives à ce moyen d'essai seront données dans les paragraphes du Chapitre VI consacrés au projet CELINA. Un autre banc 20 kW, présent sur la plateforme, a été développé par le laboratoire SET de l'UTBM (<http://set.utbm.fr>) dans le cadre du projet ANR FISYPAC. Sa principale particularité : il est doté de commandes numériques, ce qui simplifie les interfaces et la connectique.

Le **banc « bipiles »** a été conçu et réalisé en vue d'étudier l'association de deux générateurs PAC. Cette réalisation a été faite en lien avec la thèse de doctorat de James Garnier [Garnier Thèse 2006], encadrée d'une part par Alexandre De Bernardinis et Gérard Coquery au LTN, et d'autre part au L2ES par Marie-Cécile Péra et Jean-Marie Kauffmann.

Le **banc 1kW SOFC** a été construit dans le cadre du projet FELICITAS [Felicitas]. Il est encore actuellement utilisé pour tester de petits empilements de piles hautes températures approvisionnées auprès de la société suisse HT-CERAMIX. Les fonctionnements et caractérisations ont été exploités au L2ES dans le cadre de la thèse de Moussa Chnani, co-encadrée par Marie-Cécile Péra et Jean-Marie Kauffmann dans le cadre du projet européen FELICITAS.

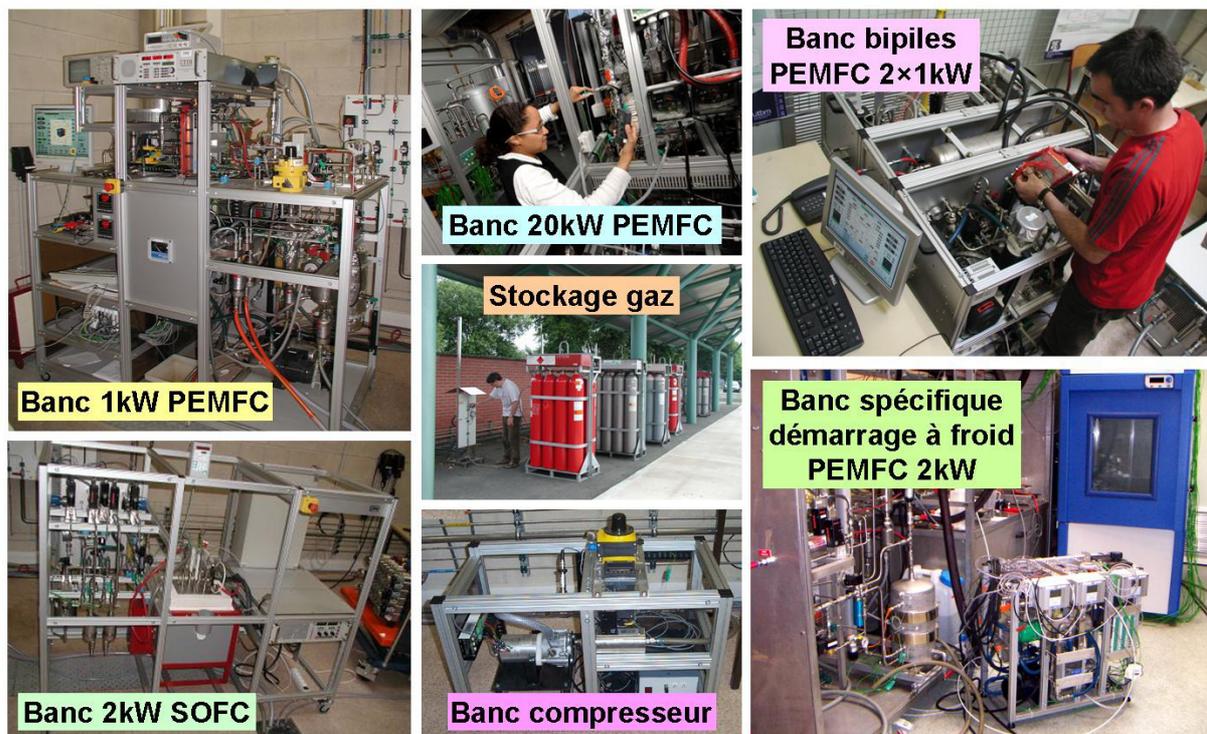


Figure IV.1 : Exemples de moyens d'essais PAC développés sur la plateforme de Belfort.

IV.1.1.3 Quelques chiffres technico-économiques en relation avec les tests conduits sur la plateforme de Belfort

- **Coût à l'achat d'un système PAC de type PEM pour des essais** : environ 5 – 10 k€/kW.
- **Coût d'un banc de caractérisation pour PAC, type banc 1kW du FC LAB** : environ 100 k€.
- **Coût moyen lié à l'exploitation d'une PAC dans le cadre d'essais** : environ 17 € du kWh.
- **Puissances électriques des stacks investigués à Belfort** :

De quelques dizaines de Watt pour une monocellule à 24 kW pour un stack PEM, niveau atteint pendant le projet SPACT80 avec une pile Hélion (avec une limitation en puissance liée aux charges électroniques disponibles).

- **Densités de courant des stacks investigués** : jusqu'à 1.2 A/cm² environ.
- **Compacité et masse des piles PEM** : >1 kW/l et 1 kW/kg pour certains stacks (technologie CEA – PSA notamment).
- **Charge en platine sur les électrodes de PAC PEM** : environ 0.4 mg/cm² (cas des membranes GORE MESGA PRIMEA type 5761, développées en vue des applications automobile).
- **Épaisseur des membranes de PAC PEM** : de 35 µm à 18 µm (GORE MESGA PRIMEA type 5761).
- **Plaques distribuant les réactifs dans les plaques de PAC PEM** : graphite composite usiné ou métalliques embouties.

- **Température de fonctionnement des PAC testées à Belfort** :

Pour les PAC PEM, plage de température 40 – 80°C (membranes perfluorosulfonées).

Pour les PAC SO, températures proches de 770°C (projet FELICITAS).

Démarrage des PAC PEM à -20°C (projet MEPHISTO). Des fonctionnements à -35°C avec démarrages à température ambiante (+20°C) dans le cadre de CELINA.

- **Pressions de fonctionnement des PAC testées à Belfort** :

Pour les PAC PEM, de la pression ambiante à 2.5 bar abs (air comprimé via des compresseurs à palettes ou à vis).

- **Humidification des réactifs** : par bullage, par injection de vapeur, par membrane et par roue enthalpique. Humidités relatives à la température de pile :

pour l'anode : gaz sec à 90%, pour la cathode : 20 - 90% environ.

- **Durée de vie des stacks** :

Des essais d'endurance de PAC PEM ont été réalisés pendant 1000 h environ sur la plateforme de Belfort avec de petits empilements (trois piles de 100 W et deux piles de 600 W) (cf. [Chapitre VII](#)). Les 1000 h ne correspondent pas à la durée de vie maximale des piles étudiées mais à des durées de test déterminées essentiellement en fonction de la disponibilité des bancs d'essais. Dégradation des performances observée en termes de tension de pile : environ -10%, -15% sur 1000 h.

Données issues de la littérature concernant la durée vie des stacks PEM : 2000 h – 3000 h de plus en plus souvent depuis deux, trois ans. Plus de 5000 h parfois, en particulier pour des PAC destinées à des applications stationnaires. Remarque : des essais menés sur des monocellules de faibles surfaces peuvent être plus facilement réalisés sur de longues durées (>10000 h), notamment par les constructeurs de cœurs de pile.

A noter aussi : un fonctionnement de PAC SO (SOFC) sur 1100 h cumulées (sans destruction) dans le cadre du projet FELICITAS et de la thèse FEMTO-ST de Moussa CHNANI [[Felicitas](#)].

IV.1.2 Bancs d'essai de caractérisation : examen de topologies envisageables

Une décomposition du système PAC en plusieurs sous-systèmes assurant des fonctions de base est réalisée [[Candusso TI 2007](#)], en considérant trois principaux circuits : pour le combustible, pour le comburant et pour le contrôle de la température de l'empilement. Un exemple de schéma de principe d'un banc de caractérisation pour PAC PEM est présenté ci-dessous ([Figure IV.2](#)).

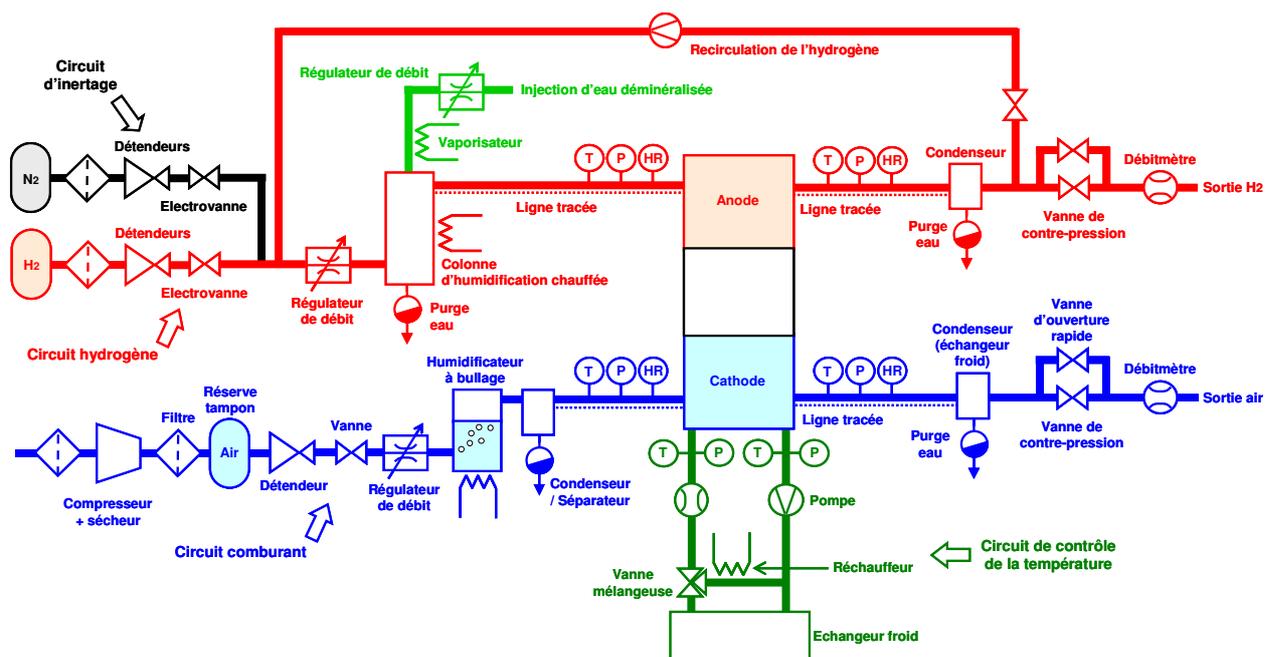


Figure IV.2 : Schéma de principe d'un banc d'essai et de caractérisation pour PAC de type PEM [Candusso TI 2007].

IV.1.2.1 Le circuit combustible

Sur une plate-forme d'essais destinée au test et à la caractérisation de PAC [Kauffmann Actes INRETS n°84], l'approvisionnement en gaz hydrogène pur (avec des quantités de polluants limitées, par exemple : CO < 10 ppm, NH₃ < 10 ppm, soufre < 0,1 ppm) peut être effectué à partir d'un réservoir sous pression (à 200 bar). Le gaz est alors détendu, souvent en plusieurs étapes (d'abord à une dizaine de bars, puis à la pression d'utilisation au sein même de la pile, soit dans la gamme usuelle 0 - 3 bar relatifs). Les différentes conduites nécessaires pour assurer la distribution de l'hydrogène sont réalisées en acier inoxydable (type 316L avec finition électro-polie).

Le débit d'hydrogène à acheminer vers la pile doit ensuite être régulé et ce contrôle peut s'effectuer de différentes manières (Figure IV.3).

Dans le cas d'un banc de caractérisation, des informations précises liées aux débits sont recherchées. Des débitmètres massiques et régulateurs de débit (débitmètres massiques associés à des vannes) sont alors mis en œuvre. A ce stade, différentes topologies fluidiques sont envisageables pour un équipement de laboratoire. La plus commune et probablement la plus adaptée consiste à placer un régulateur de débit d'hydrogène sec en amont de l'empilement et à utiliser éventuellement un débitmètre en aval du stack pour déterminer la quantité de gaz en sortie (Figure IV.3) [Harel Rapport INRETS 1 2003] [Harel Rapport INRETS 2 2005]. Sur certains bancs de caractérisation, plus rares, une régulateur de pression / détendeur fixe la pression en amont de la PAC tandis que le débit de réactif est imposé par une régulateur situé en aval de la pile (banc du CEA Grenoble dit banc PACHA20 [Gerbaux Thèse 1996], [Candusso IJHE 2006] [Candusso Rapport SPACT 2004]).

Il est à noter que les débitmètres et les régulateurs de débit ne fonctionnent idéalement qu'avec un gaz sec ; il est donc en particulier nécessaire d'éliminer les traces d'eau liquide susceptibles de les traverser (par un dispositif approprié de condensation et d'évacuation de l'eau liquide, du type : échangeur à plaques hydrogène / eau froide et séparateur). La quantité de gaz à amener vers le stack dépend du courant électrique à générer mais aussi des accumulations potentielles de résidus non réactifs (essentiellement de l'eau liquide présente sous la forme de gouttelettes) au sein de la pile, voire à l'intérieur du circuit carburant externe au stack. Il faut alors chasser ces résidus en assurant un débit d'hydrogène suffisant par un écart à la stœchiométrie plus élevé (de l'ordre de 1.5) et aboutir de la sorte à une alimentation en réactifs plus homogène sur toutes les surfaces des cellules de la pile. Le débit de gaz non consommé peut éventuellement être recirculé, c'est-à-dire redirigé vers l'amont au

Chapitre IV

moyen d'une pompe adaptée. La pression des gaz constitue une autre variable de contrôle importante du système pile. Les pertes de charge (ou différences de pressions) occasionnées par le débit en aval du stack et au sein même de la pile imposent naturellement un niveau de pression en entrée de pile supérieur à celui de l'atmosphère dans laquelle vont s'effectuer les rejets des effluents d'hydrogène. Néanmoins, pour aboutir à des performances en tension plus élevées au niveau du stack et faciliter la gestion de l'eau au niveau du système, il est possible d'établir des niveaux de pression plus importants en créant des pertes de charge additionnelles au moyen par exemple d'une vanne de régulation (de type proportionnel, de technologie pneumatique par exemple) placée en aval du stack. On peut ainsi choisir de contrôler la pression d'hydrogène en entrée du compartiment anode.

Sur des bancs d'essais de laboratoire, différentes solutions sont envisageables pour parvenir à humidifier l'hydrogène de manière externe. La solution la plus couramment utilisée consiste à faire passer le flux de réactif (sec) dans une réserve d'eau déminéralisée, dont la température est contrôlée [Bégot Fuel Cells 2008]. Le procédé du bullage permet d'obtenir un flux de gaz humide saturé, à une température de rosée donnée (et dont le niveau ne dépend pas de la température de pile). Le problème lié aux dynamiques relativement faibles d'un tel système de contrôle de la température de rosée peut être en partie résolu en adoptant un niveau haut pour la température de la réserve d'eau (soit dans la plage 60 – 80 °C) et en ajoutant, en sortie du bulleur, un ensemble condenseur (échangeur) / séparateur. Celui-ci peut alors permettre de faire varier plus rapidement le point de rosée du mélange. Une ligne chauffante (ou tracée) placée entre la sortie du séparateur et l'entrée du stack, ainsi que l'adoption d'une température de traçage supérieure à la température de rosée, permettent d'éviter toute condensation en amont de la pile. Par ailleurs, dans l'optique de la caractérisation fine des performances d'une PAC, le niveau choisi pour cette température permet de maîtriser le taux d'humidité relative du mélange hydrogène – vapeur d'eau, en amont de l'entrée du stack.

Le fait de ne contrôler qu'un faible nombre de températures (deux / trois) confère à ce type de système des qualités importantes en termes de fiabilité, de maîtrise des conditions opératoires et de répétabilité. Néanmoins, cette solution du bullage est particulièrement volumineuse et gourmande en énergie car elle suppose le maintien en température d'un volume d'eau relativement important. Elle sera donc essentiellement réservée à l'expérimentation en laboratoire.

Il faut aussi noter que, sur un banc de caractérisation, un condenseur supplémentaire doit également être placé en sortie de pile, en particulier dans le cas où une mesure de débit massique du gaz doit être réalisée ou bien si une estimation de la quantité d'eau en sortie est souhaitée. Des lignes traçantes sont aussi à prévoir entre la sortie de pile et ce condenseur. Sur un banc de caractérisation, la pile peut être instrumentée par différents capteurs : températures (thermocouples type T ou K), pressions (transmetteurs piezorésistifs), humidités relatives (transmetteurs d'humidité relative et de température).

Un circuit d'inertage est généralement présent sur les dispositifs de tests utilisés en laboratoire. Suite à l'apparition d'un défaut tel qu'une détection de fuite d'hydrogène, l'essai en cours est interrompu en suivant une procédure automatique définie, du type : arrêt de la demande de courant, arrêt de l'alimentation en gaz réactifs, ouverture des vannes en sorties de stack, balayage à l'azote du circuit anode pour évacuer l'hydrogène. Dans le cas d'un véhicule, des procédures d'arrêt d'urgence ne nécessitant pas de recours à un stockage d'azote embarqué sont à privilégier.

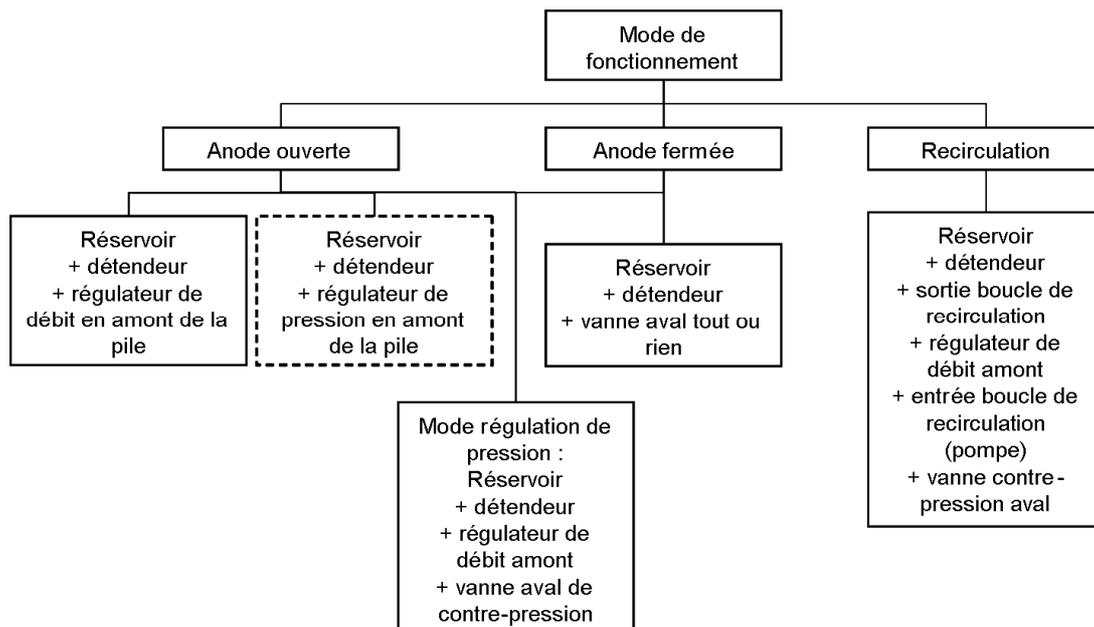


Figure IV.3 : Différents modes de fonctionnement et architectures du circuit combustible possibles (le moins utilisé apparait dans le cadre en pointillés) [Candusso TI 2007].

IV.1.2.2 Le circuit comburant

Différentes topologies et solutions technologiques sont envisageables (Figure IV.4). Les PAC PEM peuvent fonctionner à partir d'oxygène pur ou d'air stocké sous pression dans un réservoir (200 bars). Dans le cas d'une plateforme de test, l'air peut être aussi comprimé par un compresseur et le débit d'air est acheminé dans un réservoir tampon pour s'affranchir en partie des restrictions liées à la dynamique de l'organe de compression. Le compresseur est alors associé à un filtre (piégeant des particules de tailles fines, par exemple supérieures à 5 μm) et à un sécheur pouvant imposer des points de rosée bas sur une gamme de débits donnée (par exemple, -20 °C à pression atmosphérique). L'air est disponible à une pression de l'ordre de 10 bar dans la cuve faisant office de réserve tampon. Généralement, un (ou plusieurs) régulateurs de débit massique en parallèle sont présents entre la réserve et l'entrée du stack. Comme dans le cas du circuit combustible, une vanne de contre-pression peut aussi permettre d'ajuster le niveau de pression en entrée de pile. La différence de pression entre les compartiments anode et cathode doit cependant être maintenue dans une gamme raisonnable (0 – 500 mbar) de manière à ne pas occasionner de déchirure de membrane ni de déplacements des joints d'étanchéité placés entre les plaques bipolaires.

On pourra noter qu'une architecture fluide sensiblement différente a pu être adoptée sur certains bancs de caractérisation. A Belfort, la version initiale du banc 10kW disposait ainsi : d'un détendeur en amont de la ligne air, de deux débitmètres en amont et en aval de la PAC, et d'une vanne pneumatique de régulation placée en aval du stack [Candusso IJHE 2006] [Candusso Rapport SPACT 2004]. Si l'architecture choisie permettait de faire fonctionner la PAC en mode pression, et donc de faire bénéficier la pile de volumes tampons de gaz, la topologie choisie limitait aussi la précision de la régulation du débit d'air (du fait de la technologie envisageable au niveau de la vanne de contrôle en sortie cathode).

Chapitre IV

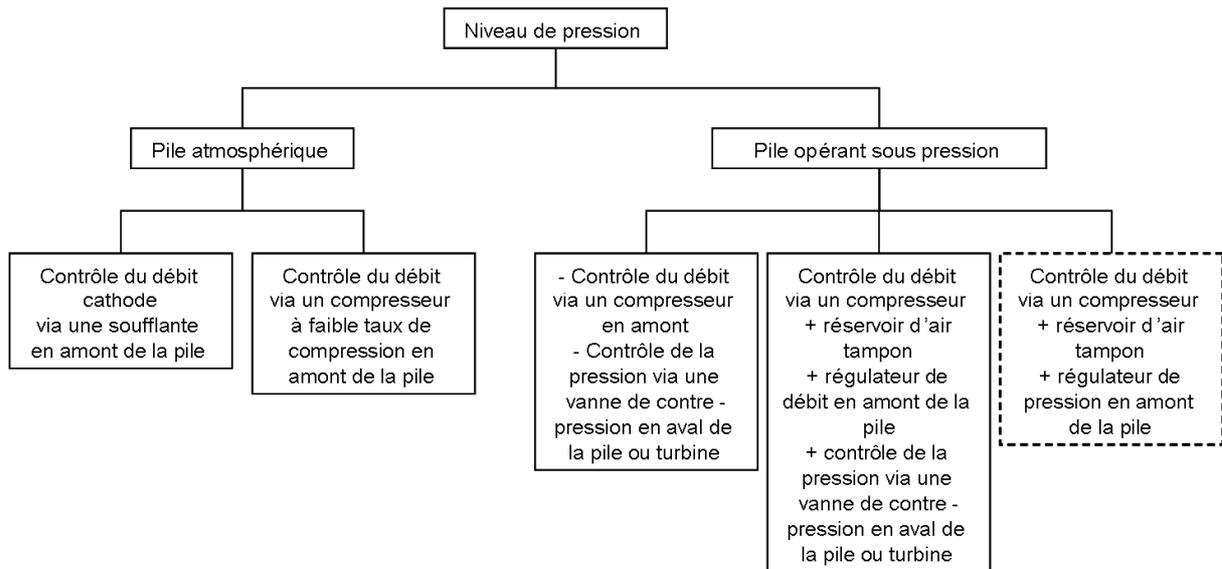
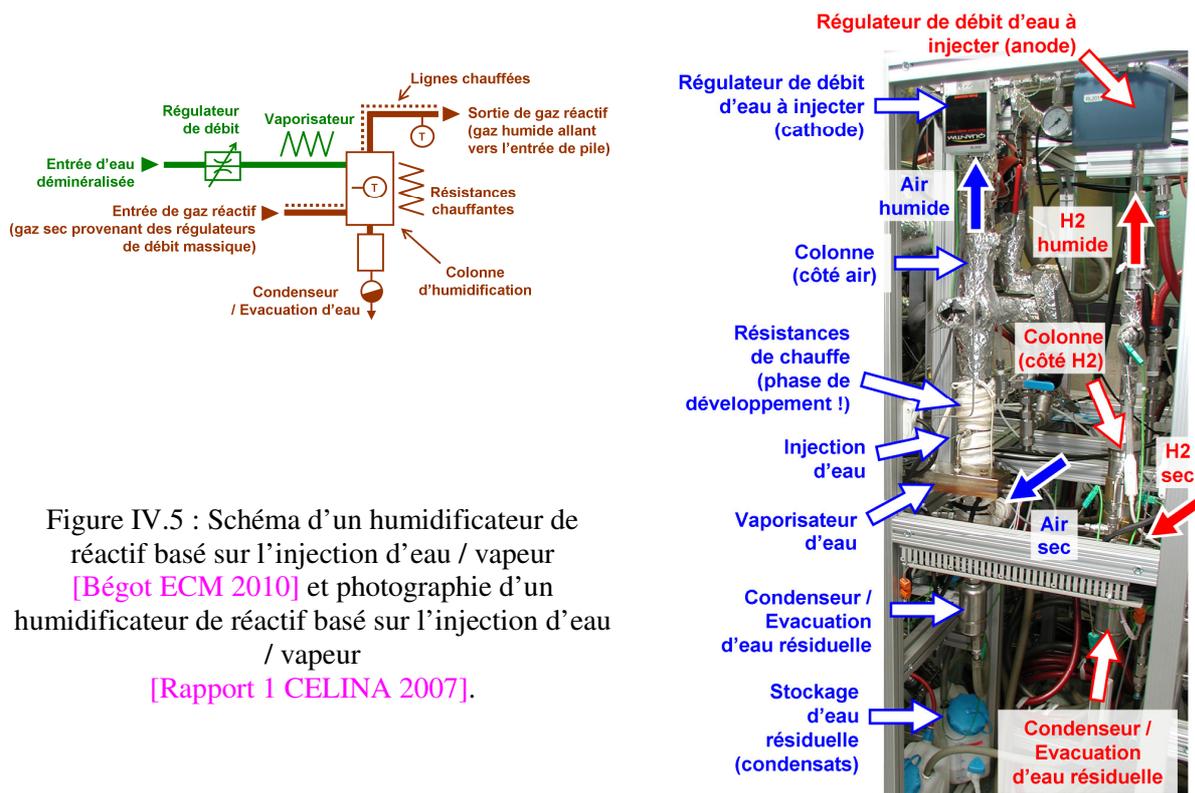


Figure IV.4 : Différents modes de fonctionnement et architectures de l'alimentation en air (le moins utilisé apparaît dans le cadre en pointillés) [Candusso TI 2007].

L'humidification peut être réalisée par divers procédés. Les systèmes diffèrent, là encore, en fonction de l'application visée : banc d'essais et de caractérisation, application stationnaire ou embarquée. Dans le premier cas, un système par bullage, similaire à celui décrit pour le circuit anode, apparaît bien adapté au besoin [Harel Rapport INRETS 2 2005] [Bégot Fuel Cells 2008].

La réserve d'eau chaude peut éventuellement être utilisée à la fois pour l'humidification de l'air et le contrôle de la température dans la pile [Moratin Thèse CNAM 2002] [Glises JPS 2005].

Une alternative à ce procédé de bullage consiste à réaliser de l'injection d'eau déminéralisée dans des capacités (ou colonnes) chauffées. Cette solution a été mise en œuvre au cours du projet CELINA [Bégot ECM 2010] [Rapport 1 CELINA 2007] [Rapport Synthèse CELINA 2008]. Dans un système à injection d'eau, un débit d'air régulé entre au bas d'une colonne alors qu'un débit de vapeur d'eau contrôlé est injecté au sommet. La quantité d'eau déminéralisée à injecter dans le flux d'air est d'abord fixée au moyen d'un régulateur de débit massique. La quantité d'eau est calculée en fonction de la température, de la pression, du débit d'air et du taux d'humidité recherché. L'eau est ensuite vaporisée et mélangée au flux d'air au sein de la colonne. Un séparateur, situé à la base de la colonne, récupère l'eau qui n'a pas été transférée. Par rapport à un dispositif de type bulleur, ce système est plus complexe à contrôler. Cette complexité peut s'expliquer d'une part par la présence supplémentaire du régulateur de débit d'eau et d'autre part par le fait que davantage de niveaux de température doivent être contrôlés ; notamment au niveau de l'évaporateur, mais aussi en haut, en bas de la colonne (où apparaissent des hétérogénéités thermiques). L'intérêt d'un tel système d'humidification réside néanmoins dans des dynamiques d'humidification potentiellement élevées (le débit d'eau injectée pouvant varier rapidement) et peut-être dans une plus grande compacité (absence de réserve d'eau importante).



IV.1.2.3 Contrôle de la température de pile

Dans le cas d'un banc d'essais où des températures de pile doivent être imposées à la fois précisément et sur une large plage de puissance thermique délivrée par le stack, le circuit de contrôle de la température devra généralement faire appel à un ensemble échangeurs froids / réchauffeur / vanne trois voies mélangeuse ou directrice. Dans le cas d'une application plus fonctionnelle (embarquée), la présence du réchauffeur n'est pas forcément nécessaire, en particulier si des démarrages à froid ne sont pas prévus. Le contrôle de la température peut alors être simplifié et ramené à un dispositif de limitation de la température, le stack assurant à lui seul la chauffe du circuit par l'énergie thermique dégagée.

IV.1.2.4 Gestion globale du système

Les descriptions des circuits liés au combustible, au comburant et au contrôle de la température de pile ont fait apparaître des couplages physiques et fonctionnels forts entre les différents paramètres physiques mis en jeu dans le système : notamment la température de pile, la pression des réactifs, et les taux d'humidification des gaz. Ceci explique la complexité des bancs d'essai dédiés à la caractérisation de piles qui doivent assurer la répétitivité des mesures par la maîtrise des conditions opératoires (Figure IV.2). Si la maîtrise du contrôle des paramètres physiques n'apparaît pas forcément comme un verrou fondamental bloquant la diffusion commerciale des générateurs PAC, elle n'en est pas moins critique pour l'obtention de bonnes performances avec des durées de vie importantes au niveau de la pile.

IV.2 Retour sur la conception des moyens d'essai et sur la conduite d'essais par des analyses théoriques

IV.2.1 Analyse de topologies fluidiques de bancs d'essai et de systèmes PAC

Sollicitée en courant, la PAC PEM répond en tension avec sa dynamique propre. Celle-ci est liée aux réactions électrochimiques se déroulant aux interfaces électrode – électrolyte de la pile, aux transports

de charges et de masses dans ses capacités de double couche et ses couches de diffusion. Mais pour fonctionner, la pile est entourée sur un banc de test (et dans un système autonome) d'organes permettant le conditionnement des réactifs (hydrogène, air) et leur régulation, tels que des détendeurs, des vannes, des canalisations, des régulateurs de débit, des pompes. Le banc, et dans une moindre mesure le générateur autonome, est également équipé d'appareils de mesures (débitmètres, capteurs de pression...) et d'un système de contrôle commande (développé avec le logiciel Labview sur les bancs du FC LAB par exemple). Tous les actionneurs et éléments assurant le conditionnement des réactifs possèdent eux aussi leurs temps de réponse propres (constantes mécaniques et électriques, effets tampons des volumes de canalisations) et ces derniers peuvent intervenir de façon forte sur la dynamique du système global. Le pilotage des actionneurs doit alors se faire de façon à ne pas endommager la pile ainsi qu'à pénaliser le moins possible la dynamique et le rendement de l'ensemble.

Un recueil et une étude de différentes topologies fluidiques envisageables, pour un banc d'essai ou pour une application embarquée, a été initiée dans le cadre du DEA de Moussa Chnani [Chnani DEA 2004]. L'objectif général de ce travail de DEA était de parvenir à mieux cerner l'incidence des actionneurs et des organes de conditionnement des fluides sur le comportement du système pile, en termes de sécurité, de dynamique et de consommation. Des résultats de simulation peuvent être trouvés dans [Chnani Lucerne 2005] et [Chnani EVS21 2005]. L'analyse a été menée en proposant une méthode de modélisation, basée sur une analogie électricité – fluide, des lignes de fluides réactifs. Dans ce type d'approche, chaque organe (actionneur, conduite) est représenté par un circuit RC (Résistance Capacité) pour modéliser : - d'une part les pertes de charges des fluides, - d'autre part le volume occupé par le mélange de gaz (azote, oxygène, vapeur d'eau du côté cathodique et azote, hydrogène, vapeur d'eau du côté anodique). Les lignes air et hydrogène de deux bancs d'essais (1kW et 10kW) disponibles sur la plateforme de Belfort ont été modélisées dans l'environnement Matlab-Simulink®. Le calage et la validation des modèles ont été effectués à partir d'essais réalisés en statique et sur des profils de mission temps - courant. Des stratégies de pilotage des fluides ont ensuite été élaborées, implantées et testées en simulation. L'étude d'un modèle générique dynamique et de type diphasique (présence de gaz et d'eau liquide) a également été initiée à la fin du stage et par les travaux de DEA de Youssef BOUAYAD [Bouayad DEA 2005].

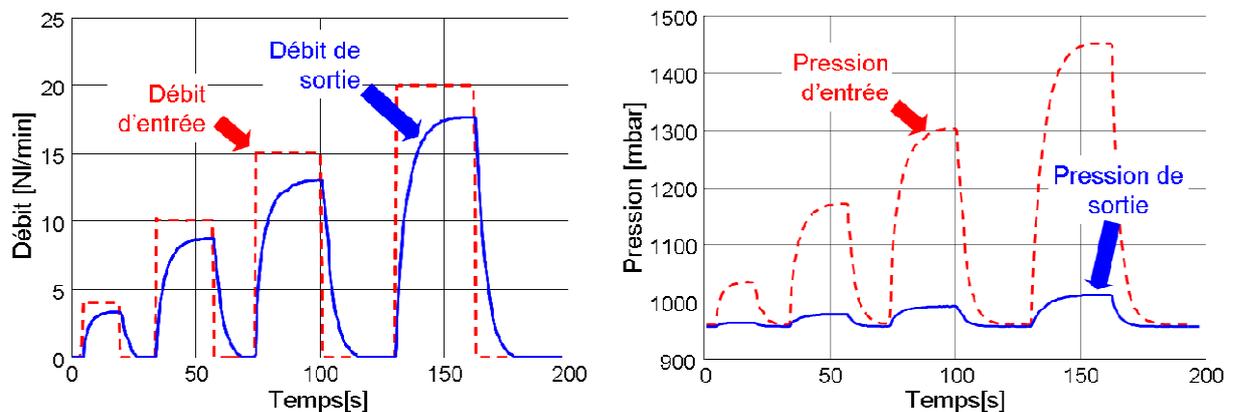


Figure IV.6 : Exemple d'évolutions de débits et pressions d'air dans la ligne cathode d'un banc PAC (mesures réalisées en amont et en aval d'une PAC ne consommant pas de réactifs). Les réponses « de type RC » suggèrent aux électriciens de recourir à une analogie fluide – électrique pour modéliser les topologies fluidiques de bancs et générateurs PAC [Chnani DEA 2004].

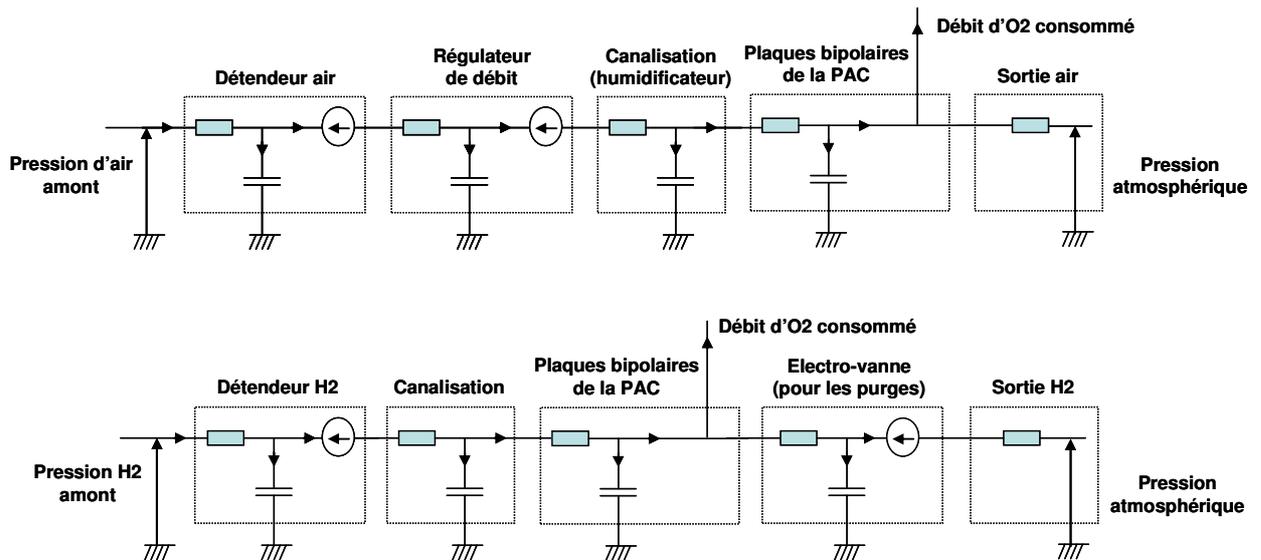


Figure IV.7 : Exemple de modélisation des lignes air et hydrogène d'un système PAC en recourant à une analogie fluide – électrique [Chnani DEA 2004].

Ce type de démarche mettant en œuvre des outils de modélisation est utile pour mieux appréhender le fonctionnement des lignes fluidiques des bancs ou systèmes PAC. Il peut aussi servir de base de réflexion pour proposer des lois de pilotage des différents organes actionneurs présents sur les lignes.

IV.2.2 Travaux visant une plus grande fiabilité et robustesse de conception

Les mesures réalisées sur une PAC placée sur un banc d'essai de caractérisation, très instrumenté, tel que celui décrit par la Figure IV.2 conduisent à des fichiers d'enregistrement faisant apparaître de nombreuses variables électriques, thermiques, fluidiques (généralement plus d'une centaine). Ces variables dépendant du temps. L'analyse du comportement du banc d'essai et de la conduite d'essai à travers l'étude de ces variables en est donc rendue forcément complexe. La qualité des régulations, le placement des différents capteurs, leur degré d'utilité dans la détermination des performances de la pile peuvent faire l'objet d'investigations dans l'objectif de parvenir à améliorer la conception du moyen d'essai (de manière à avoir un banc plus précis, plus robuste, plus simple...). Si la conception d'un banc de test pour PAC repose sans doute avant tout sur un savoir-faire technique, technologique, parfois sur des connaissances et des développements un peu empiriques, certains outils théoriques et statistiques tels que l'Analyse en Composantes Principales (ACP) peuvent aussi s'avérer utiles, et complémentaires, pour explorer les effets de groupes de paramètres sur les performances de la pile, pour mettre en évidence des corrélations entre variables et mettre en avant des similarités entre certaines mesures [Latévi IJHE 2010] [Charon FCLAB 2010].

IV.2.2.1 Un exemple : étude de courbes de polarisation par une Analyse en Composantes Principales (ACP)

- L'ACP en quelques mots

Soit un fichier de données issues des mesures réalisées sur un banc d'essai. Les données sont enregistrées puis exprimées sous la forme d'un tableau X de n mesures expérimentales brutes de p variables [Charon FCLAB 2010] [Duby Robin 2006]:

$$X = \begin{bmatrix} x_{11} & x_{12} & \dots & x_{1j} & \dots & x_{1p} \\ x_{21} & x_{22} & \dots & x_{2j} & \dots & x_{2p} \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ x_{i1} & x_{i2} & \dots & x_{ij} & \dots & x_{ip} \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ x_{n1} & x_{n2} & \dots & x_{nj} & \dots & x_{np} \end{bmatrix} \quad (\text{Equ. IV.1})$$

Ce tableau X fait apparaître les unités ou individus U_i (lignes – chaque ligne pouvant correspondre à un instant d’acquisition des données) des variables V_j (colonnes – chaque colonne correspondant à une variable du banc, par exemple une température, une humidité...). Ici, les mesures sont exprimées sous une forme normalisée pour chaque variable (moyenne nulle et valeurs comprises entre -1 et +1). Chaque U_i a p éléments et est donc un vecteur de l’espace R_p . Chaque U_i sera représenté par un point dans cet espace (chaque axe représente une variable). L’ensemble des n points qui représentent les unités est appelé traditionnellement “nuage des individus”. Les axes principaux sont déterminés successivement à partir de ce nuage de points.

- Notion d'axe principal

Le premier axe principal est celui par rapport auquel le nuage de points représente la plus petite inertie, autrement dit la plus petite variance ou encore la plus petite dispersion. Le deuxième axe principal est déterminé en recherchant le premier axe principal dans le sous-espace orthogonal au premier axe principal. Et ainsi de suite pour les axes principaux suivants.

- Notion de composantes principales

Les axes principaux représentent une base orthogonale qui peut servir à représenter les individus. Les individus peuvent ainsi être représentés dans l’espace des anciennes variables, en faisant un changement de base dans cet espace. Les nouveaux axes sont des combinaisons linéaires des anciens axes et peuvent donc être considérés comme de nouvelles variables combinaisons linéaires des anciennes. Ces nouvelles variables sont appelées “composantes principales”.

L’analyse en composantes principale permet de déterminer à partir de mesures les corrélations entre variables et les similitudes entre individus.

- Exemples de résultats

Un enregistrement de courbe de polarisation ([Chapitre II](#)) correspond à un relevé courant – tension de pile. Il fait néanmoins intervenir des mesures de nombreux paramètres liés au fonctionnement de la pile et du banc d’essai. Un exemple de mesure de courbe de polarisation est présenté [Figure IV.8](#). Dans ce cas, le courant de pile est incrémenté par paliers (au nombre de 11) et la tension aux bornes du stack mesurée. Une courbe peut être relevée dans le sens des courants croissants et décroissants.

La [Figure IV.9](#) montre que la composante principale 1 explique plus de 75 % de la variance. La [Figure IV.10](#) montre les individus dans le sous-espace délimité par les deux premiers axes principaux. On peut y observer l’évolution des individus lors de l’établissement de l’équilibre pour chaque palier de courant de la courbe de polarisation. La [Figure IV.11](#) fait apparaître les contributions des différentes variables d’origine dans la définition des deux premières composantes principales. Cela permet d’identifier les variables qui jouent un rôle. En fait, ici, 5 groupes peuvent être identifiés, dont le carré central composé de variables peu déterminantes.

Il est possible d’effectuer des analyses globales mais également locales par exemple sur un palier donné et par comparaison, de découvrir ensuite les variables dont l’importance a changé par rapport à un autre palier. La physique peut guider l’élaboration des lois de base en tenant compte des variables importantes identifiées lors de l’analyse des composantes principales. Les modèles qui en résultent sont semi-empiriques, les coefficients inconnus étant déterminés par régression.

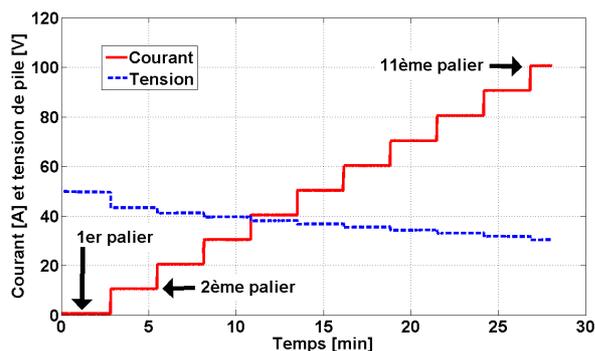


Figure IV.8 : Relevé de courbes de polarisation par paliers de 10A [Rapport 1 CELINA 2007].

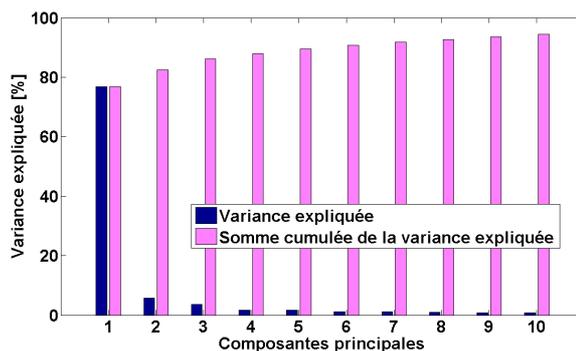


Figure IV.9 : Explication de la variance [Latévi IJHE 2010].

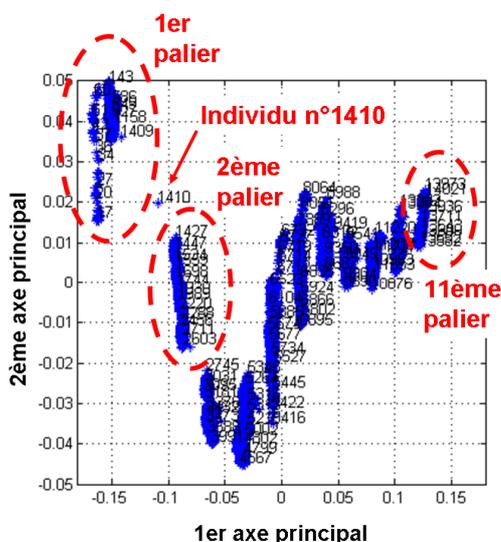


Figure IV.10 : Représentation des individus [Latévi IJHE 2010].

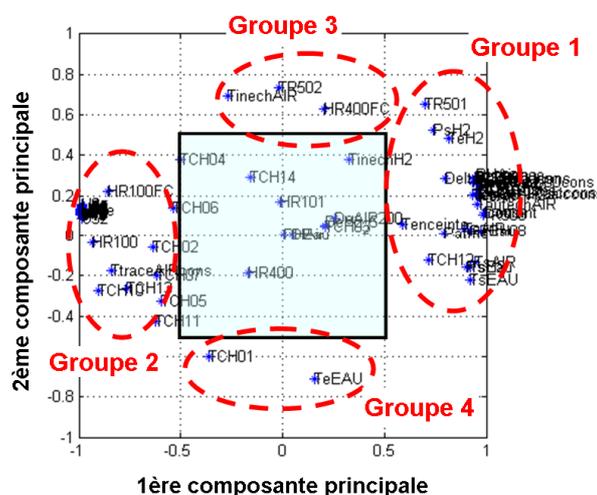


Figure IV.11 : Décomposition des composantes principales [Latévi IJHE 2010].

IV.3 Méthodes de caractérisation électrochimiques pour stacks. Instruments associés

L'acquisition d'un ensemble de techniques et de savoir-faire, souvent spécifiques au domaine de la PAC ne serait-ce que par l'étendue et la diversité des sujets scientifiques abordés, doit permettre d'effectuer des mesures sur les piles et d'avoir une confiance suffisante dans les résultats obtenus. La mesure est nécessaire à toute connaissance, à toute prise de décision et à toute action. Elle est bien sûr indispensable pour toute recherche qui vise à modéliser des systèmes physiques, à quantifier des grandeurs, leurs relations et leurs interactions, et à reproduire des phénomènes. Les recherches sur les PAC n'échappent évidemment pas à la règle. Enfin, mesurer, c'est aussi pouvoir communiquer et informer les tutelles (ministères, régions, UE...), le citoyen futur utilisateur potentiel des chaînes de traction de véhicules à PAC. Les travaux menés s'inscrivent aussi dans le cadre de la préparation de futures procédures normatives [FCTESTNET].

La démarche adoptée consiste à s'approprier et à développer progressivement tout un corpus de méthodes expérimentales permettant la caractérisation de PAC. Les méthodes de caractérisation expérimentale les plus couramment utilisées sont les suivis de points de fonctionnement, les relevés de courbes de polarisation, la spectrométrie d'impédance, l'étude de la réponse de la pile à des sollicitations dynamiques (de type créneaux de courant) et les voltamétries. Ces techniques sont généralement bien connues de la communauté des électrochimistes, moins de celle des électriciens. Par ailleurs, si dans le domaine des PAC, ces techniques sont courantes, elles ne sont souvent

appliquées qu'à des mono-cellules, souvent de faibles surfaces actives, voire à des demi-piles seulement en vue d'études orientées matériaux. Certains travaux utilisent toutefois certaines méthodes de mesure sur des petits stacks, composés de quelques cellules. Les caractérisations de stacks possédant des puissances significatives (supérieures au kW) et un nombre de cellules individuelles élevé sont plus rares, pour des raisons de coûts, du fait aussi de la complexité des moyens et des protocoles expérimentaux à mettre en œuvre. Les mesures réalisées sur des empilements conséquents constituent toutefois une étape forcément nécessaire dans le processus de développement des PAC satisfaisant aux cahiers des charges d'applications réelles, transports ou stationnaires. De telles mesures, appliquées au stack complet et aux cellules unitaires de l'empilement, sont aussi intéressantes dans la mesure où elles peuvent permettre de mettre en évidence et comprendre des hétérogénéités spatiales au niveau de la pile, comme le comportement différent des tensions cellules au sein d'un stack. Ce type de phénomène mérite d'autant plus d'attention qu'il a plus de possibilités de se produire dans un environnement transport ; nous le verrons dans le [Chapitre VI](#). Le cas d'une pile plongée dans une ambiance à température négative peut déjà être évoqué ici : ses plaques terminales risquent d'être plus exposées au froid. Le cas d'un empilement long peut également être mentionné : les tirants qui maintiennent les cellules n'agissent pas de manière uniforme sur chacune des cellules. De ces conditions locales différentes sur l'empilement peut apparaître une variabilité des performances au niveau des cellules. Nous le verrons au [Chapitre VII](#), l'uniformité des tensions unitaires pourra être considérée comme un élément témoignant d'un bon état de santé de la PAC. A contrario, la variabilité de ces tensions pourra être utilisée comme un support à des méthodes de diagnostic. Pour ces différentes raisons, nous avons donc intérêt à nous approprier les techniques de caractérisations électrochimiques et à les adapter pour la caractérisation d'empilements de puissance.

Dans la suite du paragraphe, nous allons décrire des techniques qui ont été progressivement introduites au FC LAB et qui ont l'avantage soit de pouvoir être utilisées in-situ (suivi de point de fonctionnement, courbes de polarisation, spectrométrie d'impédance) soit de ne pas nécessiter de capteur intrusif (voltamétries). Nous évoquerons aussi le cas des mesures de densité de courant locales. A noter que des synthèses plus exhaustives, plus détaillées des techniques expérimentales applicables à la caractérisation et au diagnostic de PAC ont été proposées dans les thèses de Sébastien Wasterlain [[Wasterlain Thèse 2010](#)] et Nadia Steiner [[Steiner Thèse 2009](#)].

IV.3.1 Suivi du point de fonctionnement

Le suivi du point de fonctionnement (ou « monitoring ») consiste à placer la PAC dans différentes conditions d'environnement (sans forcément adopter de protocole bien spécifique, à l'instar des relevés par courbes de polarisation, de la spectrométrie d'impédance électrochimique...), en lui appliquant par exemple des variations de courant de charge, et à observer son comportement (et celui de ses cellules dans le cas d'un stack). Le suivi de point de fonctionnement peut être considéré à la fois comme la plus commune et la plus simple des méthodes de caractérisation non-invasives de PAC. Le suivi du point de fonctionnement est particulièrement utile évaluer les performances d'une PAC vis-à-vis de conditions opératoires différentes (en termes de températures, de pressions, d'humidités...). Il est plus particulièrement mis en œuvre lors des essais d'endurance qui se déroulent sur plusieurs centaines d'heures ([Chapitre VII](#)). La dégradation globale des performances au cours du temps peut ainsi être mise en évidence.

La nature et la dynamique des variations au niveau des paramètres opératoires vont bien évidemment influencer sur la réponse de la PAC et sur les phénomènes physiques susceptibles d'être observés.

Suivi du potentiel à vide

Un suivi de point de fonctionnement simple à mettre œuvre, et fort utile à des fins de diagnostic ([Chapitre VII](#)), consiste à surveiller le potentiel à vide (« Open Current Voltage » - OCV) des cellules de la PAC, en particulier à la suite de l'arrêt des débits de réactifs (évolution du potentiel à l'abandon). Ce type d'essai permet de déceler une éventuelle fuite interne ou externe de réactifs dans la PAC. Un exemple de test spécifique permettant la localisation d'une cellule défaillante dans un empilement de 3 cellules est présenté [Figure IV.12](#). La pile est d'abord alimentée en gaz réactifs à courant de charge nul, en mode ouvert, puis les débits d'air et d'hydrogène sont interrompus de façon soudaine.

L'observation des tensions de cellules nous renseigne alors sur le numéro de la cellule défectueuse. En effet, à courant nul et après arrêt des débits, une cellule normale de pile conserve une tension relativement stable à ses bornes pendant une durée supérieure à la minute ; cette tension résiduelle est due aux volumes tampons des gaz réactifs contenus dans les électrodes. Lors du test considéré, la cellule défectueuse voit sa tension chuter de façon très rapide.

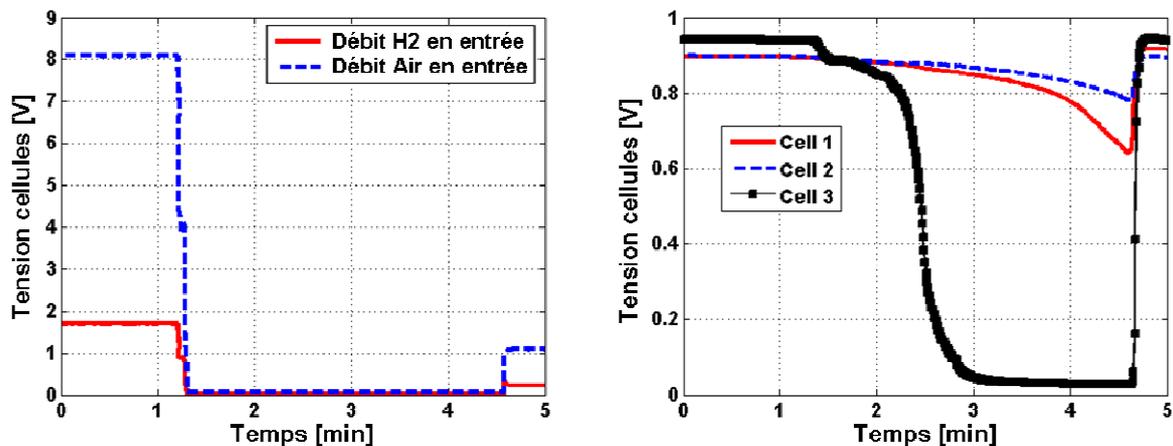


Figure IV.12 : Test dit du « créneau de gaz réactif ». Suivi des OCV à l'abandon des tensions cellules. Localisation d'une cellule défaillante (Cell 3) dans le cas d'une fuite anode - cathode [Tian JPS 2008].

IV.3.2 Courbes de polarisation

Les relevés de courbes de polarisation correspondent en mode galvanostatique à la mesure de la tension de pile en fonction du courant de charge (au contraire en mode potentiostatique) et ils sont parfois qualifiés d'essais statiques du fait que les variables électriques n'évoluent que lentement au cours du temps (le test dure entre 15 et 60 min en général). Ces relevés sont généralement effectués pour différents modes d'alimentation en gaz réactifs (modes ouvert, à anode fermée et régulation de pression), pour différentes valeurs de pressions, de températures, de surstoéchiométries et d'humidités relatives. Un exemple de courbe a été donné dans le [Chapitre II](#) et les différentes surtensions (zones d'activation, ohmique et de transport de matière) ont déjà été décrites.

La courbe de polarisation donne essentiellement une image globale des performances statiques d'une PAC. Quelques points caractéristiques (OCV, éventuellement le courant limite) et son allure (pente de Tafel, permettant d'évaluer les constantes de l'équation de Tafel, notamment la densité de courant d'échange [[Larminie 2000](#)]) nous renseignent sur certains différents phénomènes dissipatifs liés aux surtensions. La courbe de polarisation ne permet cependant pas de dissocier clairement les différentes chutes de tension observables à partir du potentiel théorique à charge nulle et témoignant des différents types de pertes. D'autres méthodes de caractérisation et de diagnostic doivent donc être mises en œuvre pour mieux déterminer les effets sur la tension de pile des différents phénomènes physiques (résistance de l'électrolyte, perméation de réactifs à travers la membrane, la diffusion des espèces réactives dans le cœur de la pile...).

Il est important de noter que si la courbe de polarisation peut apparaître au premier abord comme une méthode de caractérisation expérimentale relativement simple, le protocole de test fait d'ailleurs en soi l'objet de recherches visant à aboutir à une normalisation [[FCTESTNET](#)]. La réalisation d'un relevé sur une PAC de puissance (>kW) n'est pas non plus dénuée de difficultés techniques, compte tenu de la complexité des moyens d'essai à mettre en œuvre et de la qualité des régulations (au niveau des températures des fluides, des pressions et des hygrométries relatives des réactifs) souvent attendue dans les projets de recherche. Sur un banc de test de puissance, la régulation de la température de PAC doit ainsi se faire au moyen de commandes non linéaires du fait de l'existence des différents régimes thermiques apparaissant le long de la courbe de polarisation (qui dépendent de l'évolution du courant de charge). La maîtrise précise des hygrométries des gaz est aussi particulièrement difficile sur un banc d'essai de puissance et le contrôle-commande associé aux humidificateurs peut s'avérer complexe. De nombreuses courbes de polarisation sont disponibles dans la littérature. Pour autant,

Chapitre IV

l'évolution des différents paramètres physiques associée à ces courbes, permettant de juger de la qualité du relevé (précisions des contrôles, modalités de gestion liées à au conditionnement des réactifs...), n'est que rarement disponible. Peu de travaux portant sur la contrôle-commande des PAC sur banc d'essai font l'objet de communication.

Un exemple de relevé de courbe de polarisation est présenté en [Figure IV.13](#). La mesure a été faite en 2006 dans le cadre du projet CELINA sur une pile PEM de puissance 2.5 - 3.5 kW (puissance fonction de la pression : 1 ou 2 bar abs.) [[Rapport 1 CELINA 2007](#)]. Ici, la courbe a été tracée en maintenant au mieux des conditions opératoires (température de pile en entrée de stack de 60°C, pressions des gaz de 2 bar abs en sorties de stack, humidité relative des réactifs égale à 90% en entrées de pile, stoechiométries de 2) en diminuant progressivement le courant de charge par pas de 10 A, en maintenant des débits de réactifs à des valeurs correspondant à 20 A de courant. Certaines valeurs fluctuent plus que d'autres, notamment les températures des réactifs en entrée de pile du fait des contrôles encore basiques utilisés à cette époque au niveau des lignes chauffées amenant les réactifs vers la PAC. L'observation de toutes les dispersions rencontrées sur ce type de mesure donne tout son sens au travail entrepris pour rendre compte des performances d'une PAC à l'aide de méthodes statistiques (plans d'expérience, ACP par exemple) et modéliser la réponse de la pile (et du banc...) à l'aide d'outils connexes (régressions) [[Latévi IJHE 2010](#)]. A terme, il serait intéressant de pouvoir proposer une ou des lois, écrites par exemple sous formes matricielles, permettant de restituer de manière objective (peut-être dans un cadre normatif) l'évolution des performances de la PAC et du système PAC (ou banc de test) en fonction des paramètres physiques plus ou moins bien contrôlés.

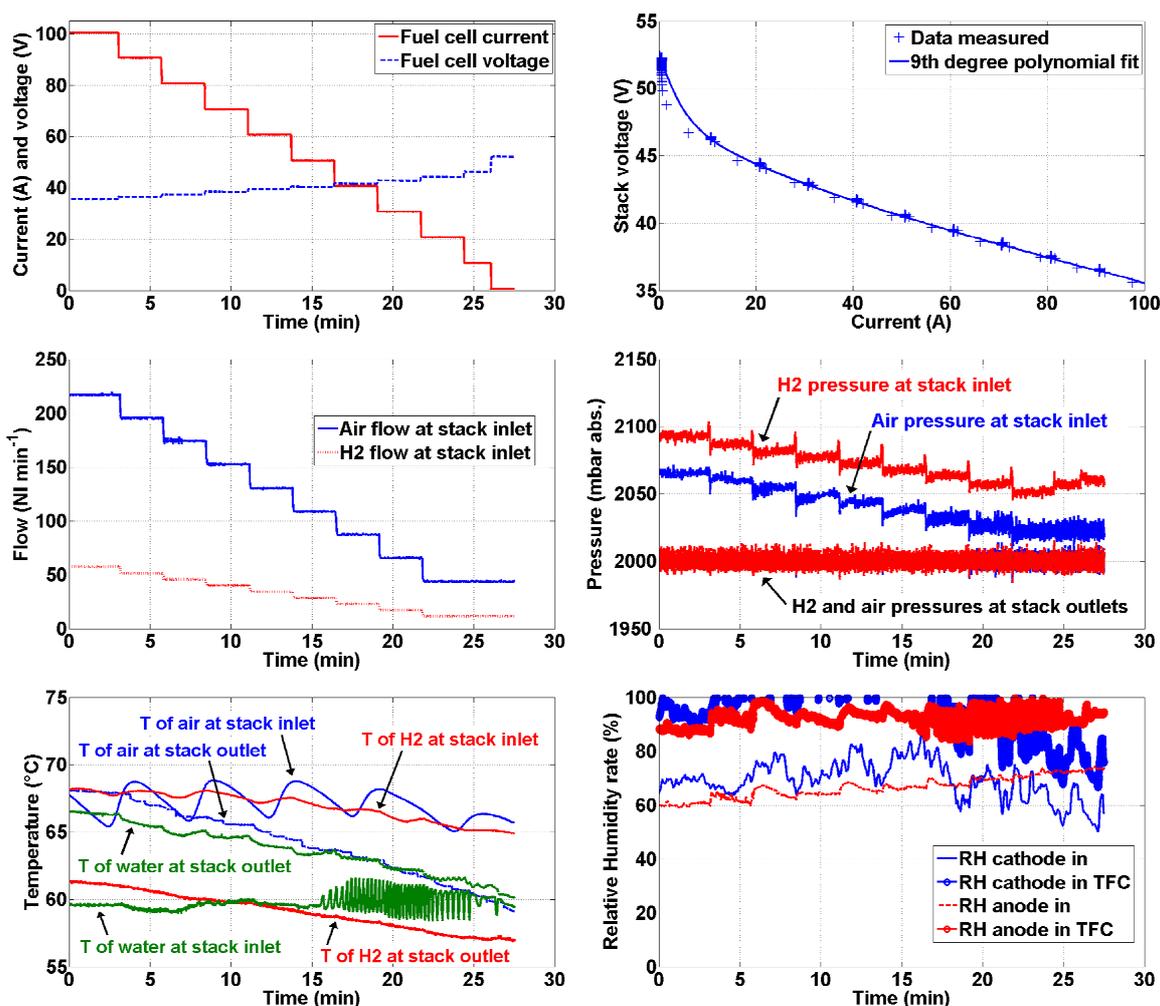


Figure IV.13 : Exemple de relevé de courbe de polarisation [[Rapport 1 CELINA 2007](#)].

Les courbes de polarisation sont bien sûr très adaptées pour évaluer et comparer simplement, et de manière visuelle, les performances d'une PAC placée dans différents environnements opératoires (Figure IV.14).

On notera que les courbes de polarisation relevées pour des courants ascendants et descendants ne se superposent pas complètement. La forme classique observée de comportement en « hystérésis » qui apparaît alors traduit des phénomènes dynamiques liés à la gestion de l'eau au sein de la PAC. Si les courbes de polarisation sont parfois qualifiées de « courbes statiques », en particulier par les électriciens, elles font forcément apparaître une ou des formes de dynamique. A plus forte raison quand les balayages en courant sont réalisés plus rapidement [Turpin 2007]. Le laboratoire Laplace à Toulouse a ainsi montré que des caractéristiques dynamiques liées aux doubles couches pouvaient par exemple être mises en évidence par ce type de caractérisation.

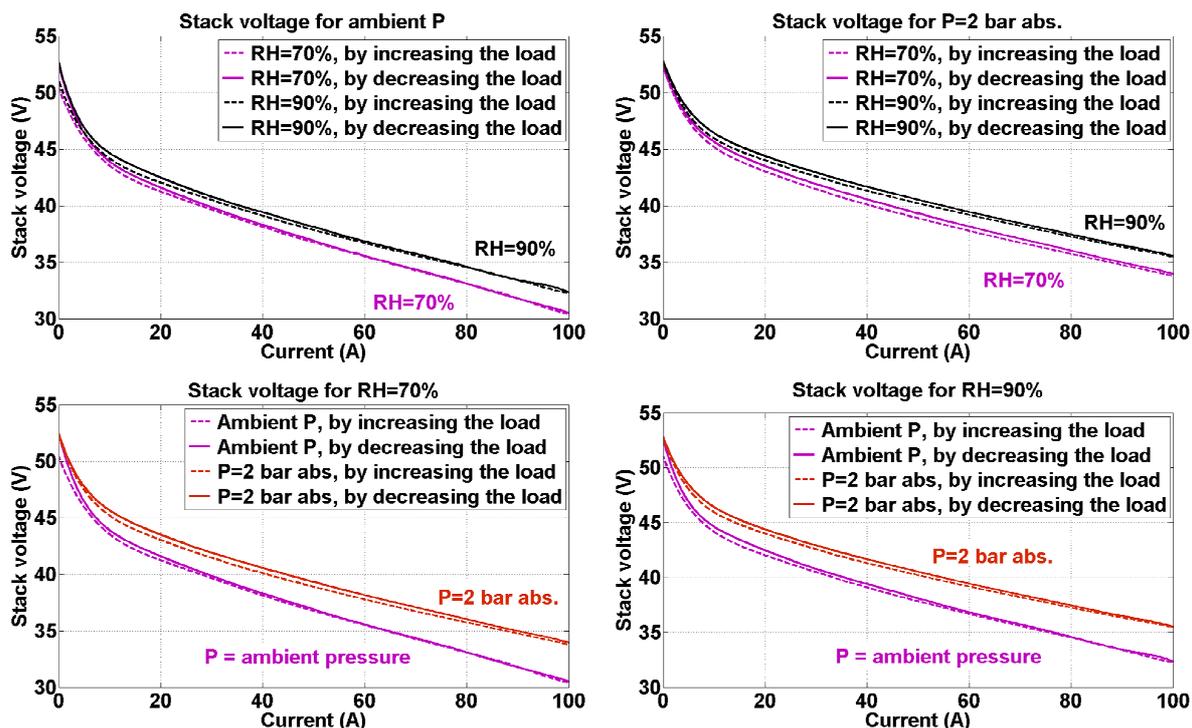


Figure IV.14 : Exemple de mise en évidence, par superposition de courbes de polarisation, des impacts du niveau de pression et des humidités sur les performances d'une PAC [Rapport 1 CELINA 2007].

IV.3.3 Spectroscopie d'impédance électrochimique

La PAC est un système non linéaire. Sa fonction de transfert ne peut donc être établie qu'en utilisant des signaux d'amplitude suffisamment faible autour d'un point de fonctionnement supposé quasi-stationnaire pendant la durée des mesures (étude de type « petits signaux ») [Diard 1996]. Le principe de la Spectroscopie d'Impédance Electrochimique (SIE) consiste à générer ces signaux afin de déterminer le comportement de la pile. La grandeur d'entrée imposée (par exemple le courant en mode galvanostatique, la tension en mode potentiostatique) est périodique et la grandeur de sortie correspondante (la tension ou le courant) est analysée pour différentes fréquences. Il est ainsi possible de dissocier les dynamiques mises en jeu dans le fonctionnement électrochimique de la PAC. Les plages de fréquences explorées pour les caractérisations des PAC de type PEM varient typiquement de 30 kHz à quelques mHz.

La SIE est généralement utilisée pour estimer l'état d'hydratation des membranes, pour détecter d'éventuelles difficultés liées aux transports des espèces dans la pile. L'étude des graphes d'impédance apporte des renseignements utiles : résistance de la membrane liée à l'hygrométrie des gaz (mesurée pour des fréquences généralement comprises entre 1 et 10 kHz), arcs hautes fréquences

Chapitre IV

(HF, entre 10 kHz et 1 Hz approximativement) relatifs aux transports de charges (électrons et protons), arcs basses fréquences (BF, inférieures au Hz environ) témoignant d'éventuels problèmes de diffusion des gaz. Des modèles d'impédance basés sur des circuits équivalents électriques peuvent être établis à la suite des observations faites par SIE (Cf. paragraphe IV.4.3).

La SIE est classiquement utilisée pour suivre l'évolution du comportement de cellules de PAC de type PEM sous différentes conditions de polarisation ou de composition des gaz d'alimentation.

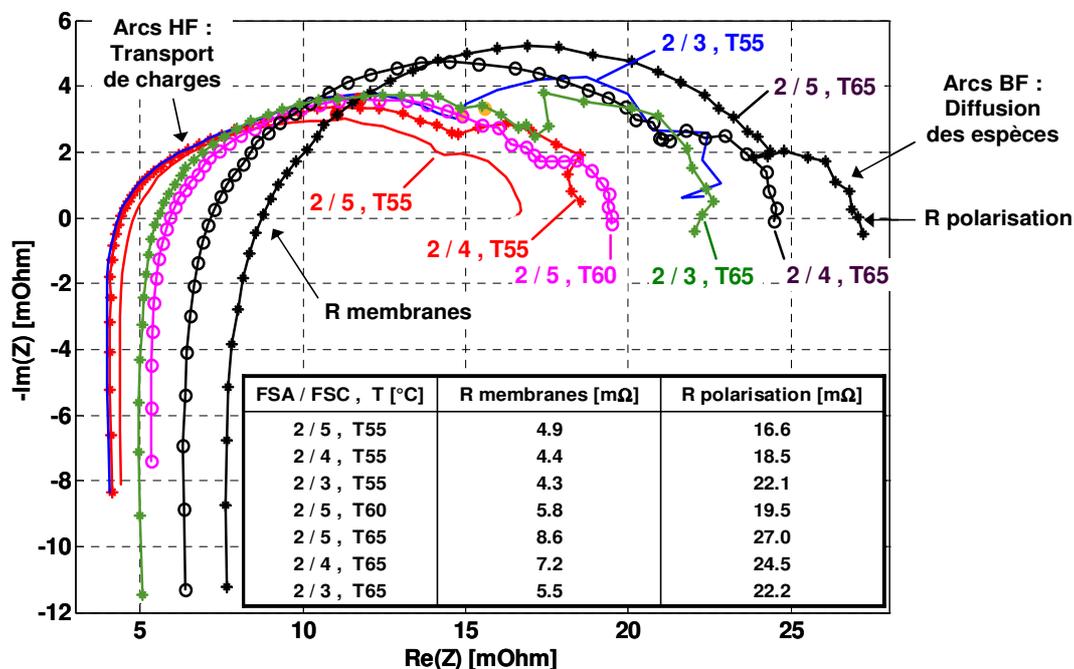


Figure IV.15 : Exemple de spectres d'impédance mesurés au FC LAB avec un impédancemètre Zahner sur une PAC dotée de 3 cellules de surface active 100cm² (courant de polarisation de 35 A). Pour différents Facteurs de Stoechiométrie Anode / Cathode (FSA / FSC) et températures de pile.

La SIE est une technique adaptée à l'étude fine des mécanismes de dégradation des générateurs électrochimiques. Cette méthode est d'ailleurs largement utilisée par la communauté des électrochimistes pour l'étude de piles, d'accumulateurs et de supercondensateurs. Dans le cas des PAC [Bultel Belfort 2000], les études sont très majoritairement effectuées sur des monocellules comportant des surfaces actives de membranes peu étendues (de l'ordre de quelques centimètres carrés) ; voire sur des demi éléments (anode ou cathode). Un nombre bien plus restreint d'études porte sur des empilements de plusieurs cellules [Walkiewicz DEA 2001]. Les mesures réalisées sur des stacks de puissance sont encore moins nombreuses, notamment parce que les spectromètres d'impédance permettant ce type de mesure sont très peu nombreux et fort chers. Les laboratoires sont d'ailleurs parfois conduits à réaliser leur propre matériel de mesure. Ce fut par exemple le cas au CEA en 2000 pour mesurer l'impédance d'une pile De Nora (Nuvera) de 5 kW de courant nominal 500 A [Pascal PFE 2000] [Candusso EVS18 2001]. L'impédancemètre réalisé dans le cadre du DEA de Thierry Pascal est basé sur l'utilisation d'amplificateurs opérationnels (AOP) de puissance. Ils permettent de générer la sollicitation alternative sinusoïdale nécessaire à la SIE (Figure IV.16).

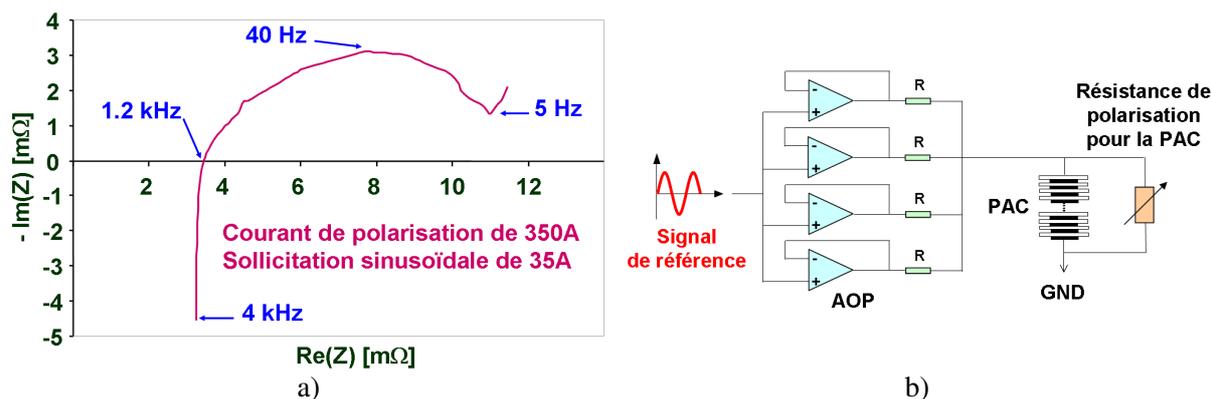


Figure IV.16 : a) Exemple de spectre d'impédance relevé sur une pile de puissance 5kW avec un matériel développé par le LEG (G2ELAB) et le CEA en 2000. b) Schéma de principe de la génération de la sollicitation sinusoïdale dans l'impédancemètre [Pascal PFE 2000] [Candusso EVS18 2001].

En 2009, le FC LAB a également été conduit dans le cadre du projet ANR DIAPASON a développé son propre instrument de mesure, « haute tension » et multivoies [Wasterlain Thèse 2010]. L'utilisation de la spectroscopie d'impédance sur des empilements conséquents peut s'avérer particulièrement intéressante dans la mesure où l'impédance mesurée aux bornes du stack correspond à un fonctionnement moyen des cellules, vis à vis des différentes inhomogénéités existant dans le stack (température, distribution fluïdique, pressions mécaniques, dispersions liées aux procédés actuels de fabrication des cœurs de pile...). Dès lors que des spectres peuvent également être acquis au niveau des tensions cellules unitaires du stack, l'impédancemètre apparaît comme un outil de diagnostic encore plus puissant [Wasterlain Thèse 2010].

L'instrument développé par Sébastien Wasterlain (Figure IV.17) est destiné au test de PAC présentant des niveaux de tensions supérieurs à 5V. Ce nouveau système est capable de réaliser des mesures sur des générateurs électrochimiques dont les tensions peuvent atteindre 1000 (ou 700 Vrms). Le spectromètre, dit « haute tension », est construit autour d'un châssis déporté et de cartes d'acquisition National Instrument®. Possédant 31 voies d'acquisition, le spectromètre est capable de faire une acquisition et une analyse séquentielle des spectres d'impédance sur différentes cellules individuelles du stack (ou groupes de cellules) et il réalise également une mesure synchrone de la tension du stack. Les premiers enregistrements de spectres d'impédance ont été réalisés sur des piles testées au FCLAB (PEM monocellule [Wasterlain JPS 2010], 3 cellules [Wasterlain Electromotion 2008], 5 cellules et 20 cellules [Wasterlain Lucerne 2009]). Un plan d'expérience combinant des conditions normales et dégradantes a été mise en œuvre [Wasterlain Thèse 2010]. Les données issues des mesures par spectroscopie d'impédance ont alors été analysées par la méthode probabiliste des réseaux bayésiens en vue du diagnostic du générateur (Chapitre VII).

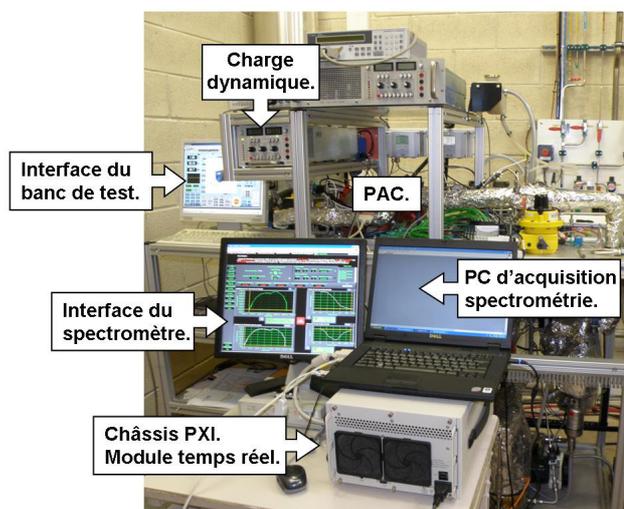


Figure IV.17 : Spectromètre d'impédance « haute tension » couplé au banc de test 1 kW du FCLAB (2009).

La Figure IV.18 est une illustration des possibilités offertes par l'instrument en termes de diagnostic in-situ. L'enregistrement a été effectué sur une pile PEM dotée de 20 cellules, déjà ancienne, et placée dans des conditions opératoires délicates (alimentation en hydrogène sec et en air très faiblement humidifié). La Figure IV.18 a) permet d'observer des disparités dans les comportements des tensions individuelles (en particulier aux basses fréquences) et de mettre en évidence les comportements singuliers de certaines cellules au sein du générateur PAC. Cette variabilité des comportements des cellules n'est pas liée à l'instabilité (à la non-stationnarité) de l'empilement complet comme en témoigne les enregistrements de spectres au niveau du stack qui sont approximativement identiques (Figure IV.18 b)).

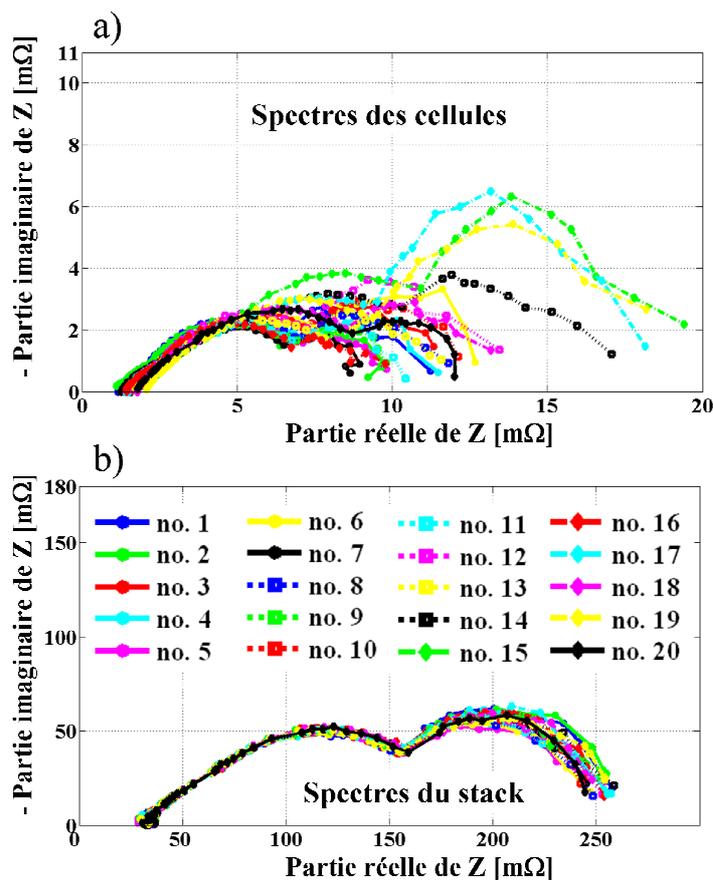


Figure IV.18

a) : Relevé de spectres sur les tensions unitaires d'un stack PEM 20 cellules. Enregistrements réalisés avec le spectromètre d'impédance « haute tension » de Sébastien Wasterlain (2009).

b) : Relevé de spectres sur les tensions stack. Enregistrements synchrones aux mesures effectuées sur les tensions unitaires d'un stack PEM 20 cellules.

Il faut encore souligner qu'il existe en fait différentes familles de SIE et que chacune d'entre elles présente des avantages et des limites dans la caractérisation des PAC (difficulté expérimentale, temps d'acquisition des signaux, signification physique de la mesure). La SIE linéaire à fréquence unique est sans doute la plus simple à mettre en œuvre et la précision du résultat est excellente. Toutefois, le temps d'acquisition nécessaire pour tracer le spectre d'impédance complet est important. De ce fait, l'utilisation de la SIE « classique » comme outil de détection des défaillances est une limite à l'objectif temps réel souvent visés pour le diagnostic. Dans ce contexte, l'utilisation de signaux d'amplitude et de contenu harmonique plus riche est une voie envisageable (cas des approches multi-sinus ou bruit blanc). Le système développé par Sébastien Wasterlain reste évolutif et pourra permettre l'introduction de nouvelles techniques de mesure par SIE : l'approche multi-sinus, mais aussi des approches plus « exotiques » comme la sollicitation par des signaux d'excitations triangulaires ou carrés afin de réduire autant que possible le temps d'acquisition du spectre d'impédance complet. Il sera possible aussi d'envisager l'adjonction de voies de mesures supplémentaires permettant ainsi l'acquisition de 93 voies par châssis PXI.

Si les impédancemètres de laboratoire sont construits sur la base de charges linéaires (AOP, transistors en mode conduction), il est envisageable d'utiliser des structures de convertisseur électronique servant

d'interface entre le générateur électrochimique (PAC) et un bus continu pour réaliser de la spectrométrie d'impédance. Cette possibilité a été étudiée par Thierry Pascal [Pascal PFE 2000]. Abdellah Narjiss, dans le cadre de sa thèse au FC LAB [Narjiss Thèse 2008] [Narjiss EPE 2008], a mis en œuvre cette solution en mettant au point un convertisseur statique à trois étages DC/AC/DC composé d'un onduleur côté pile et d'un redresseur côté bus continu (charge). En utilisant la commande MLI (Modulation de la Largeur d'Impulsion) des interrupteurs de puissance, il lui a été possible d'extraire des spectres d'impédance sur un stack PEM (dans une plage de fréquence comprise entre 2 Hz et 2.5 kHz). La double fonctionnalité de la topologie proposée (adaptation de la tension entre la PAC et la charge, système de mesure électrochimique) est potentiellement très intéressante d'un point de vue applicatif (stationnaire, embarqué), et la solution envisagée mérite d'être validée à des niveaux de puissance plus significatifs.

Il faut aussi indiquer que la composante alternative haute fréquence (1 – 10 kHz) d'un convertisseur électronique d'interface (de type hacheur) peut être utilisée pour estimer l'impédance des électrolytes et leur teneur en eau [Hinaje IJHE 2009]. Ce type de mesure peut en outre être associé à la commande d'humidificateur(s) [Schindele EVS 2005].

Quelques mots sur les créneaux de courant / interruption de courant / courants pulsés

L'étude de la réponse de la tension de pile à des sollicitations dynamiques en créneaux de courant est une approche alternative qui permet aussi d'identifier différentes causes aux surtensions [Gerbaux Thèse 1996] [Larminie 2000]. La constante de temps d'un système purement résistif est théoriquement nulle. De ce fait, la variation instantanée du potentiel par rapport à un échelon de courant permet de déterminer cette résistance. En pratique, la constante de temps liée à la chute ohmique dans une membrane de PAC est très faible (inférieure à la nanoseconde) mais non nulle. Sitôt la brusque variation / coupure du courant de pile induite, il est possible d'estimer la valeur de la résistance interne ohmique à partir de la chute de tension correspondante. Si ensuite, l'influence du transport de matière peut être négligée du fait de conditions opératoires adéquates, l'évolution de la tension rend alors possible la détermination des paramètres dynamiques liés aux surtensions d'activation.

Cette technique de mesure a été mise en œuvre dans [Candusso Thèse 2002] sur la PAC équipant le robot mobile décrit dans le Chapitre III. Plus récemment elle a été étudiée par EIFER – EDF à Karlsruhe dans le cadre de la thèse de Nadia Steiner [Steiner Thèse 2009]. Ce type de mesure nécessite de disposer d'une charge capable de commuter rapidement le courant et d'un système d'acquisition rapide (au laboratoire EIFER de Karlsruhe : commutation de la charge en 15 ms et acquisition toutes les 10 μ s environ). En comparaison à la SIE, cette technique est sans doute un peu moins à même de rendre aussi clairement possible la distinction entre les différents phénomènes physiques (résistance de membrane, transfert de charges, diffusion). Cependant, le type de signal généré est susceptible de se produire assez naturellement lors d'un démarrage de PAC ou à l'occasion d'un changement de régime lié au fonctionnement du générateur PAC. L'analyse par créneaux de courant constitue donc une voie intéressante en vue d'un diagnostic à finalité applicative (système PAC embarqué par exemple).

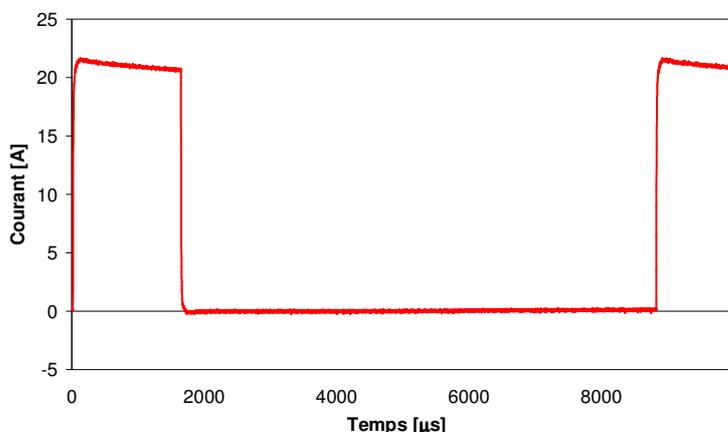
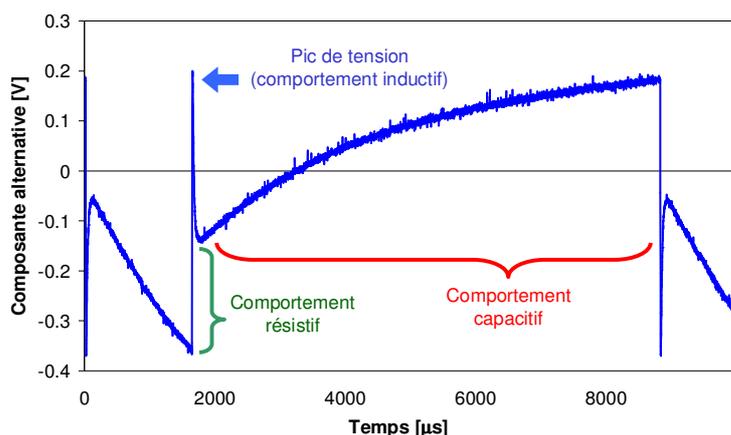


Figure IV.19

a) : Courant de pile à 110 Hz



b) : Réponse en tension de la pile à 110 Hz (composante alternative) [Candusso Thèse 2002].

IV.3.4 Voltamétries

La voltamétrie est une autre technique utilisée en laboratoire par les électrochimistes pour caractériser des générateurs tels que batteries, des supercondensateurs ou des PAC et accéder à une meilleure compréhension de leur fonctionnement.

Dans le domaine des PAC, on utilise en fait deux types de voltamétrie : la Voltamétrie Linéaire (VL) et la Voltamétrie Cyclique (VC). Leur maîtrise est très utile pour quantifier la détérioration des cœurs de pile, soumis à différentes conditions dégradantes (cycles marche/arrêt, polluants dans les réactifs, démarrages à froid...).

Contrairement aux techniques électroanalytiques précédentes, la mise en œuvre de la voltamétrie ne fait pas appel aux mêmes gaz que ceux assurant le fonctionnement normal de la PAC [Wasterlain JPS 2010] [Wasterlain Thèse 2010]. Dans la plupart des cas, l'hydrogène reste employé à l'anode mais à la cathode, l'oxygène / l'air est remplacé par un gaz inerte, en général l'azote. Les débits imposés sont maintenus constants.

IV.3.4.1 Voltamétrie linéaire

La VBL est une méthode d'électro-analyse basée sur la mesure du flux d'électrons résultant de l'oxydation des molécules d'hydrogène qui ont traversé la membrane et qui se retrouvent présentes à la cathode. Pour oxyder électrochimiquement l'hydrogène qui traverse la membrane, il est nécessaire d'appliquer un potentiel variable sur l'électrode de travail, la cathode [Wasterlain Thèse 2010]. L'utilisation d'un potentiostat est alors indispensable. Dans une expérience par VBL, le potentiel de la PAC PEM est contrôlé linéairement par rapport au temps entre deux valeurs spécifiques (généralement de quelques mV à 0.85 V environ, avec une vitesse de balayage de 1 à 4 mV/s). La VBL est essentiellement utilisée pour évaluer le courant de perméation traduisant un passage de réactifs dans la membrane (« crossover »). Une membrane « en bonne santé » présente une valeur de courant de perméation inférieure à 3 mA/cm² environ ; un électrolyte en fin de vie une valeur approximative de 10 mA/cm². LA VBL sert aussi à estimer la résistance de court-circuit électronique (passage d'électrons dans la membrane qui n'est pas un isolant électronique parfait). Sur les diagrammes de VBL, la présence d'un court-circuit interne se traduit par une pente positive et quasiment linéaire pour les potentiels supérieurs à 0.3 V environ. On définit la résistance interne électronique de l'électrolyte comme l'inverse de la pente de la courbe entre 0.4 et 0.6 V.

Des exemples d'enregistrements VBL sont présentés en Figure IV.20. L'incidence des conditions opératoires sur les paramètres mesurés est commentée dans [Wasterlain JPS 2010] et [Wasterlain Thèse 2010].

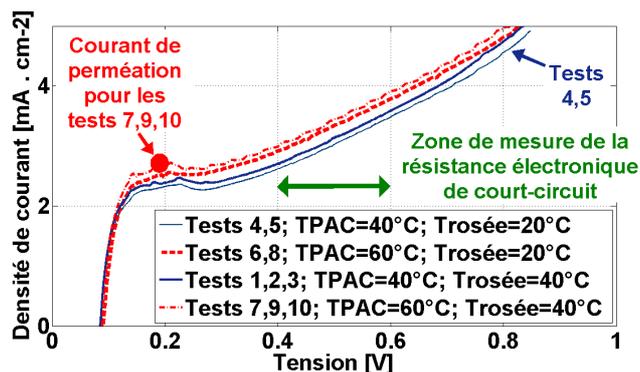


Figure IV.20 : Exemple de relevés de voltamétrie linéaire effectués sur une pile PEM monocellule. Surface d'électrode de 100 cm². Débits de gaz de 1NI/min (Anode : hydrogène. Cathode : azote). Essais réalisés avec du matériel Zahner pour différentes températures de pile (TPAC) et humidifications à la cathode (contrôle de la température de rosée de l'azote Trosée en amont de la cellule). Résistances de court-circuit : environ 220 à 230 Ω·cm² [Wasterlain JPS 2010].

IV.3.4.2 Voltamétrie cyclique

La Voltamétrie Cyclique (VC) est une méthode d'électroanalyse basée sur la mesure du flux d'électrons résultant de la réduction ou de l'oxydation des composés tests présents en solution sous l'effet d'une variation contrôlée de la différence de potentiels entre deux électrodes spécifiques [Wasterlain Thèse 2010]. La VC est communément utilisée en électrochimie pour déterminer l'activité catalytique d'une électrode. Comme pour la VBL, c'est le potentiel qui est contrôlé et le courant (faradique et de double couche). La VC se démarque néanmoins de la VBL par la forme de l'onde du potentiel appliqué ainsi que par la vitesse de balayage en potentiel (valeur comprise entre 5 et 100 mV/s ; une valeur de 10 mV/s semble être la plus courante). Le potentiel appliqué aux bornes de la PAC est de forme triangulaire et induit deux balayages : direct et inverse. Ce qui implique que les espèces oxydées lors du balayage direct ($dV / dt > 0$) peuvent être réduites lors du balayage inverse ($dV / dt < 0$). Comme pour la VBL, la différence de potentiel des électrodes ne doit pas dépasser les 1 V pour éviter l'oxydation du platine.

La détermination de la Surface Electrochimique Active (SEA) réelle aux électrodes de la PAC se calcule à partir de la quantité de charges produites lors de l'adsorption ou désorption de l'hydrogène sur le catalyseur. Dans le cas de systèmes parfaits, la quantité de charge produite par l'adsorption de dihydrogène est égale à celle produite lors de la désorption de dihydrogène. Exprimée en C/cm², la charge liée à la réaction électrochimique de l'hydrogène sur le catalyseur est représentée par la surface pleine indiquée sur l'un des voltamogrammes de la Figure IV.21.

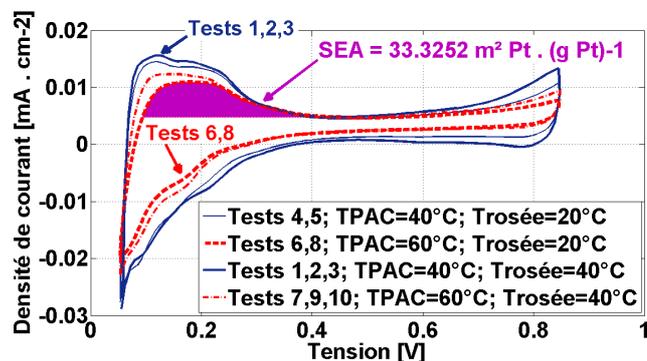


Figure IV.21 : Exemple de relevés de voltamétrie cyclique effectués sur une pile PEM monocellule. Surface d'électrode de 100cm². Débits de gaz de 1NI/min (Anode : hydrogène. Cathode : azote). Essais réalisés avec du matériel Zahner pour différentes températures de pile (TPAC) et humidifications à la cathode (contrôle de la température de rosée de l'azote Trosée en amont de la cellule) [Wasterlain JPS 2010].

A partir de la connaissance de la quantité de charges, il est possible d'estimer la SEA « réelle » de l'électrode. Les mécanismes électrochimiques susceptibles de se produire pendant une voltamétrie cyclique, et mettant en jeu le platine, sont décrits dans la thèse de Sébastien Wasterlain [Wasterlain Thèse 2010]. L'impact des conditions opératoires sur les résultats de mesure y est aussi discuté.

IV.3.4.3 Extension de la voltamétrie à des mesures sur stack

D'assez nombreux travaux font appel à la mise en œuvre de la voltamétrie pour caractériser des monocellules de PAC. Il n'existe cependant à notre connaissance que très peu de sources indiquant que la voltamétrie est pratiquée sur des stacks. Dans le contexte des recherches menées au FC LAB et à l'INRETS, qui tendent à se porter sur des objets présentant des niveaux de puissance de plus en plus en rapport avec les applications transport, et à l'instar de la démarche déjà suivie pour l'EIS (avec l'objectif de mettre en évidence des hétérogénéités au sein du stack), nous avons cherché à appliquer la VBL et la VC à des empilements de PAC. Ces travaux ont été menés dans le cadre de la thèse de Sébastien Wasterlain [Wasterlain Thèse 2010]. Des mesures ont été réalisées sur des piles 3 et 5 cellules, à la fois au niveau du stack complet et des cellules unitaires au sein du stack. Si la démarche est demeurée assez exploratoire, la cohérence des premiers résultats expérimentaux obtenus a laissé supposer qu'il y avait un sens à faire de telles mesures. Le tableau ci-dessous fait la synthèse d'expériences de VBL menées sur un stack de 3 cellules. Il indique que la moyenne des courants de perméation déterminés sur chacune des 3 cellules d'un stack correspond approximativement au courant de « crossover » mesuré aux bornes de l'empilement. Il en va de même pour les résultats concernant les mesures de résistance de court-circuit électronique. Des résultats concernant la VC, et indiquant aussi une certaine cohérence entre les mesures effectuées d'une part au niveau des cellules et d'autre part aux bornes du stack, peuvent être trouvés dans [Wasterlain Thèse 2010].

Tableau IV.1 : Récapitulatif de mesures obtenues suite à une VBL sur un stack PEM 3 cellules.

	Cellule 1	Cellule 2	Cellule 3	Stack		
Courant de perméation [mA / cm ²]	0.7102	0.7633	0.811	0.7746	Moyenne des mesures sur les 3 cellules : 0.7615	Ecart Moyenne / stack : 1.7 %
Résistance de court-circuit [Ω·cm ²]	279.26	192.96	216.63	675.77	Somme des mesures sur les 3 cellules : 688.85	Ecart Somme / stack : 1.93 %

IV.3.5 Mesures de densité de courant locales

Les cellules d'un stack présentent une variabilité plus ou moins prononcée en termes de performance. La distribution du courant sur la surface active des électrodes d'une PAC n'est généralement pas non plus homogène, a fortiori sur les cellules de grande taille. Il est ainsi possible de constater par exemple que, sur certaines piles, la température dans la partie inférieure de la pile est plus élevée que celle dans la partie supérieure. Pour étudier ces types d'écarts, différentes techniques sont envisageables : essentiellement des mesures locales de température (avec par exemple des thermocouples adaptés, insérés dans la cellule) et des mesures de densité de courant. En 2001, un dispositif de mesure du champ magnétique dans une cellule de pile a été étudié par le CEA et le LEG (actuel G2ELAB) [Soulier DEA 2001]. La mesure était effectuée au moyen de capteurs magnéto-résistifs glissés dans des alésages spéciaux usinés dans les plaques bipolaires. Grâce aux équations de Maxwell, une cartographie des densités de courant pouvait être déduite des mesures du champ magnétique induit [Candusso EPJAP 2004]. On peut noter que la société S++ commercialise à présent des systèmes permettant de telles cartographies de densités de courant [S++].

Chapitre IV

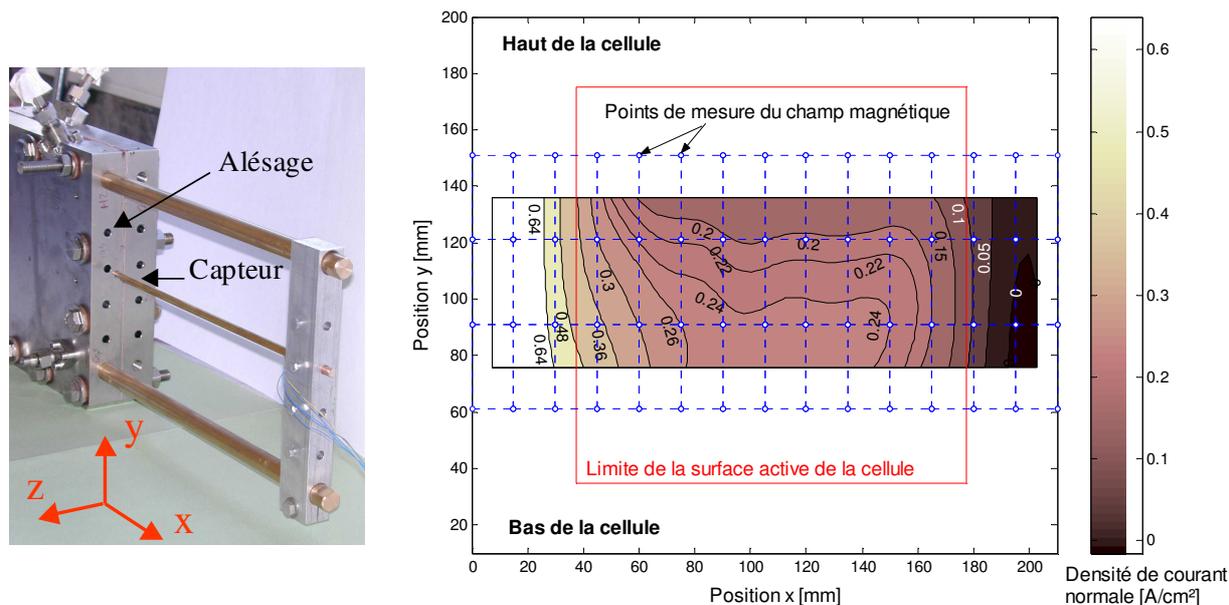


Figure IV.22 : Dispositif CEA de cartographie des densités de courant dans une cellule de pile. Mesure réalisée pour un courant moyen de 200A [Soulier DEA 2001] [Candusso EPJAP 2004].

IV.3.6 Récapitulatif des techniques de caractérisation « électrique »

Tableau IV.2 : Récapitulatif des techniques de caractérisation « électrique » utilisées.

Type de méthode	Phénomènes considérés et / ou paramètres mesurés (liste non exhaustive)	Commentaires
Suivi de point de fonctionnement	Détermination des performances de la PAC (tensions, puissance) dans différentes conditions opératoires.	Utile pour étudier le comportement d'une PAC sur des points stabilisés. En particulier en endurance.
Surveillance des tensions à vide à l'abandon	Fuite anode - cathode	Procédure de diagnostic de cellule défaillante (cf Chapitre VII)
Courbe de polarisation	OCV Constantes de l'Equation de Tafel (dont courant d'échange i_0) Densité de courant limite Evaluation « grossière » de la résistance de l'électrolyte dans la zone linéaire de la courbe.	La méthode pour évaluer ces paramètres est bien décrite dans le chapitre 3 de [Larminie 2000].
Spectrométrie d'impédance Electrochimique (SIE)	Résistance des membranes Résistance de polarisation Estimation des capacités de double-couche, résistances de transfert, coefficients des impédances de diffusion.	L'estimation des paramètres est souvent réalisée au moyen de circuits électriques équivalents.
Sauts de courant	Résistance des membranes Coefficients (résistance (s), capacité(s)) liés aux surtensions d'activation	
Voltamétrie linéaire (LSV)	Courant de perméation Résistance de court-circuit	
Voltamétrie cyclique (CV)	Surfaces électroactives réelles Densité de courant d'échange Pente de Tafel Possibles mécanismes d'adsorption et de désorption du polycristallin de platine Coefficient de rugosité de l'électrode	

IV.4 Analyse et représentation des phénomènes

La modélisation des PAC correspond à une phase importante des recherches car elle participe à de meilleures compréhensions, conceptualisations et représentations des phénomènes mis en jeu au sein des PAC. La construction d'un modèle dépend généralement de l'utilisation à laquelle il est destiné : un modèle peut servir à comprendre, concevoir, prévoir ou bien encore commander. Il peut s'appuyer tantôt sur l'expression de lois physiques (modèles de connaissance, mécanistiques, « boîtesanches ») ou sur une retranscription comportementale des données collectées expérimentalement (modèles de représentation, dits « boîtesnoires »). En fait, les modèles développés utilisent en fait fréquemment (pour ne pas dire forcément) des approches plus ou moins intermédiaires (pouvant être qualifiées de « boîtesgrises »).

Les années 1990 et 2000 surtout ont vu, dans le monde et en France, le développement d'un nombre important de modèles de PAC et systèmes PAC. Les travaux menés ont été liés notamment au besoin et à la volonté de restreindre au mieux la phase du prototypage, très coûteuse dans le domaine des générateurs piles. Cette période a également été accompagnée d'une généralisation de l'outil informatique, en particulier dans les universités, et d'une amélioration forte des possibilités en termes de moyens affectés à la modélisation. Les modèles proposés varient en fonction de leur niveau de complexité, des échelles de temps et de dimensions sur lesquelles se déroulent les phénomènes étudiés. Les modèles deviennent très, voire trop compliqués (temps de calcul informatique rédhibitoire) lorsque l'on tente de tenir compte de l'ensemble des phénomènes. C'est pour cette raison que la modélisation doit encore être faite dans une optique précise, en trouvant un juste équilibre dans le degré de finesse, de détail à adopter lors de la description des différents phénomènes et en gardant à l'esprit les limites du modèle.

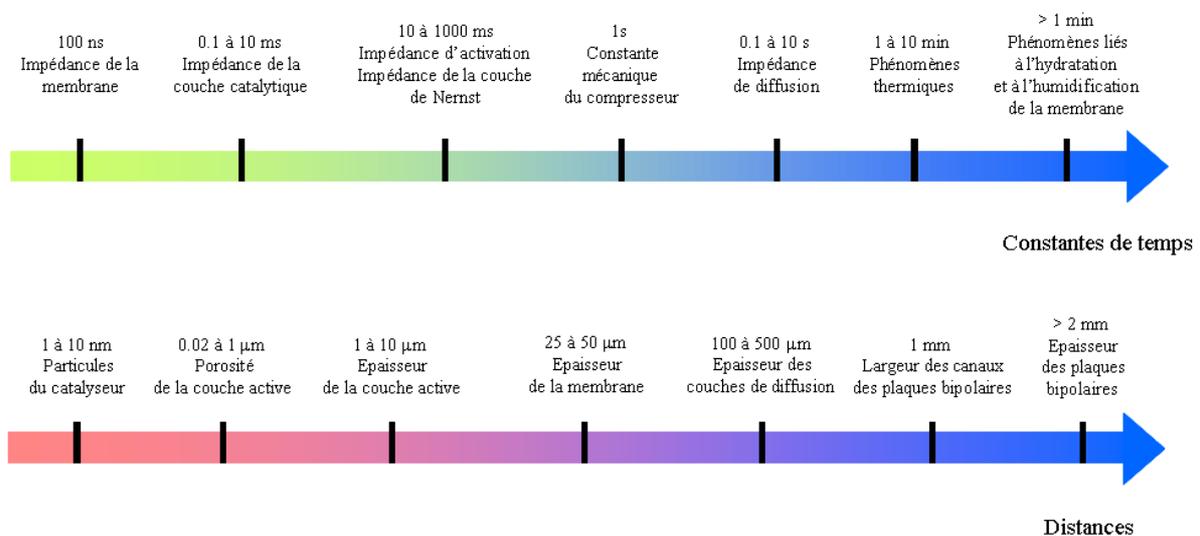


Figure IV.23 : Echelles de temps et de distance de quelques phénomènes intervenant dans une pile ou dans un groupe électrogène à PAC.

Des synthèses relatives aux modèles de PaC existants peuvent être trouvées par exemple dans [Biyikoglu IJHE 2005] [Haraldsson JPS 2004] [Péra IEEE Newsletter 2006]. A présent, des modèles de PAC ou de composants de pile sont également disponibles dans le commerce (applications du logiciel ANSYS Fluent par exemple : <http://www.ansys.com/>). Dans le domaine du génie électrique, de nombreuses approches de modélisation ont également été mises en œuvre ces dernières années. Une liste non exhaustive d'approches pouvant être retenues est donnée ci-dessous. Quelques unes d'entre elles seront illustrées par des travaux visant souvent à retrouver par une modélisation assez simple un résultat expérimental particulier. Certaines voies empruntées pour aboutir à la modélisation et à la simulation des systèmes PAC ont aussi déjà été évoquées dans les chapitres précédents. Les modèles

ou briques de modèles considérés ci-après ont été soit conçus ou mis en œuvre à Grenoble au LEG (G2ELAB) de 1999 à 2003 ([Candusso Thèse 2002]), soit réalisés ou utilisés en partenariat avec les universités impliquées au sein du FC LAB (UFC et UTBM), depuis 2003. Ces dernières années, à la suite des analyses de résultats expérimentaux collectés sur la plateforme de Belfort, différentes méthodes permettant l'analyse et le traitement des informations collectées (en vue du diagnostic par exemple, cf [Chapitre VII](#)), plusieurs types de modèles comportementaux et phénoménologiques / physiques de systèmes PAC ont été proposés et utilisés. Cette partie de mes activités, au caractère davantage théorique et méthodologique, est réalisée plus volontiers avec des étudiants inscrits en troisième cycle universitaire et menant leurs travaux de recherche à Belfort.

Nous passons donc en revue différents types de modèles en tentant de définir quels peuvent être leurs applications en particulier dans le domaine du génie électrique.

IV.4.1 Modélisation comportementale du comportement statique et dynamique des PAC (« boîtes noires »)

L'objectif est de décrire le comportement global d'un générateur PAC, d'une PAC ou d'un élément du système PAC sans avoir recours aux paramètres les plus internes des sous-systèmes composant l'élément considéré. Ce type d'approche s'avère souvent utile dans le cas des PAC car les paramètres internes (tels que les températures locales du cœur de pile par exemple) sont souvent peu évidents à définir ni à estimer. Le principal inconvénient de ce type de modèle est bien sûr l'absence de liaison avec les phénomènes physiques mis en jeu.

La caractéristique statique courant – tension d'une PAC (courbe de polarisation) peut ainsi être représentée par un simple tableau de point ou par une fonction mathématique quelconque sans signification physique, du type loi polynomiale par exemple dans le cadre d'une approche statistique / plan d'expérience ([Chapitre V](#)). Celle-ci peut représenter très précisément l'allure de la tension pour des conditions physiques données. Par contre, sa plage de validité ne dépasse pas celle des essais qui ont permis l'identification de ses coefficients. Ce type de courbe courant – tension peut par exemple être utile à l'électrotechnicien devant concevoir un convertisseur pour la pile et qui a par conséquent besoin, lors d'une première étape de dimensionnement, de connaître les plages de tension et de courant du stack. L'électrotechnicien doit néanmoins savoir que, pour d'autres conditions de température, de pressions, la courbe de polarisation peut avoir une allure autre. Le modèle obtenu par cette méthode est donc établi pour une configuration d'essai et un mode de fonctionnement bien déterminés.

D'un point de vue électrique, la pile est modélisée par une source de tension mise en série avec une résistance dont la non linéarité ne dépend que du courant.

Dans l'hypothèse d'une représentation d'un phénomène par une fonction mathématique, linéaire ou non linéaire, des méthodes de régression peuvent être mises en œuvre pour estimer en un temps très court les différents paramètres de l'expression retenue. Ce type de démarche peut également être retenu pour représenter des phénomènes dynamiques tels que la réponse de la PAC à des sollicitations en créneaux de courant.

Les réseaux neuromimétiques ou réseaux de neurones (RN) constituent, au moins dans la forme, une alternative à ce type d'approche. Les comportements électriques statiques et dynamiques d'une PAC (y compris en endurance) peuvent être reproduits après des phases d'apprentissage [[Jemeï ISIE 2005](#)]. Le comportement mécanique d'une PAC a fait aussi l'objet de modélisations ([Chapitre VI](#)). La commande, le contrôle et le diagnostic apparaissent comme les principaux domaines d'application visés par ce type de modèle.

Les RN ont ainsi pu être appliqués en vue de diagnostiquer le noyage d'une PAC. Les pertes de charge cathodiques mesurées sur un stack PEM 20 cellules ont été comparées à celles calculées par un RN à partir des débits d'entrée d'air, de la température du stack et du courant. Au préalable, l'apprentissage du RN aura été fait à partir de données recueillies dans des conditions expérimentales où le stack n'était pas noyé (régime normal). Les résidus générés ont été utilisés pour déterminer l'état de santé du stack : PAC noyée, non noyée et dans un état intermédiaire [[Steiner IMACS 2008](#)].

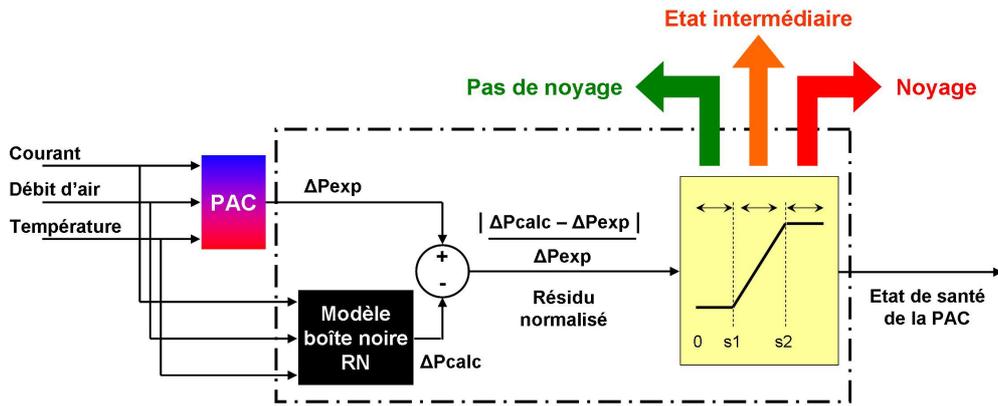


Figure IV.24 : Principe de la détection du noyage des électrodes d'une PAC à partir d'un modèle de type réseau de neurones estimant les pertes de charges en régime normal [Steiner IMACS].

IV.4.2 Modélisation semi-physique ou semi-empirique (« boîtes grises »)

L'approche par circuits électriques équivalents correspond bien à ce type d'approche, intermédiaire entre des modélisations complètement « boîtes noires » et des modèles détaillés, dits de connaissance. Le modèle de type circuit permet de décrire le comportement électrique, voire énergétique ou fluide, de la PAC. Les différents éléments du circuit reflètent alors d'un point de vue macroscopique les phénomènes physico-chimiques locaux. Ils peuvent de plus, dans certains cas, décrire le comportement fréquentiel du composant électrochimique ; ils constituent alors des modèles dynamiques. Ces modèles, même s'ils sont simples, permettent de conserver un certain lien avec les phénomènes physiques. Ils sont assez facilement paramétrables et se prêtent bien à l'implantation dans les simulateurs de type circuit utilisés en génie électrique. Ils peuvent dans ce cas être aisément associés à des modèles de convertisseurs électriques en vue d'élaborer des lois de commande, d'étudier l'interaction entre un système PAC et un réseau électrique de distribution ou embarqué [Valero Thèse 2004] [Lachaize Thèse 2004]. Soit on considère que c'est un modèle purement statique dont on n'attend aucune réponse temporelle, soit on considère qu'il constitue une représentation fréquentielle valable pour une seule fréquence donnée. A la vue d'un diagramme d'impédance, ce type de modèle purement résistif n'est valable que pour une fréquence de l'ordre du kHz, ce qui n'est d'ailleurs pas très éloigné de la fréquence de fonctionnement des convertisseurs actuels. Ce type de modèle ne s'avère néanmoins pas assez précis si un dimensionnement fin du convertisseur est envisagé (par exemple dimensionnement des circuits d'aide à la commutation et des filtres).

La tension aux bornes d'une cellule ou d'un stack peut être calculée au moyen d'une fonction paramétrée par le courant de pile, sa température, les pressions des réactifs, le chargement en eau de la membrane... La forme mathématique de la fonction repose sur des concepts physiques (ainsi, une dépendance logarithmique de la tension en fonction du courant reflète-t-elle un phénomène d'activation). Le domaine de validité de ce type de modèle semi-empirique est plus étendu que celui du modèle de représentation pure évoqué dans le paragraphe précédent. Les résultats de simulation sont toujours qualitativement corrects même si, dans des conditions physiques particulières, ce modèle peut s'avérer être un peu moins précis que le modèle de représentation.

Une expression du type $U = f(I, T, P, \dots)$ permet d'observer les effets de la variation du courant (I), de la température (T), de la pression (P) ... sur la tension de pile (U). Il faut conserver à l'esprit que la forme de l'expression mathématique de la tension a été établie en considérant des phénomènes électrochimiques se déroulant dans le cœur de pile. Or, souvent, dans de nombreux modèles, les pressions des réactifs par exemple, venant alimenter l'équation de la tension de pile, ne correspondent pas aux conditions locales de pressions (au niveau de l'AME) mais à celles du canal. Les phénomènes hydrauliques, thermiques ayant lieu entre le canal et le cœur de pile ne sont alors pas pris en compte. Les paramètres présents dans l'expression de la courbe de polarisation sont eux-mêmes difficiles à évaluer ; les mesures ne peuvent généralement pas être faites localement, les paramètres doivent être identifiés à partir de mesures de pressions, de températures... externes.

Chapitre IV

D'un point de vue électrique, la pile est modélisée par une source de tension mise en série avec une résistance non linéaire. Ce modèle statique, comme le précédent, ne fournit une réponse temporelle correcte que pour une fréquence donnée, ou une plage de fréquence restreinte. Ce modèle est bien adapté à une utilisation de type contrôle commande ; il peut en effet, dans des simulations, être aisément associé à des modèles topologiques et moyens de convertisseurs électriques en vue d'élaborer des lois de commande, d'étudier l'interaction entre un système PAC et le réseau électrique [Candusso IECON 2002] [Candusso GEVIQ 2002] (Cf. les topologies présentées à la fin du Chapitre II).

Différents modèles dynamiques de type de circuit peuvent ensuite être utilisés en fonction de l'application. On peut ainsi être amené à vouloir retrouver par la simulation les différentes formes d'ondes observées (courants, tensions) dans un hacheur fonctionnant à 40 kHz (convertisseur décrit dans le Chapitre III). A cette fréquence, il faut tenir compte des inductances dues aux fils et aux connexions qui influent de manière importante sur les formes d'ondes. Avec ce type de modèle « hautes fréquences », les simulations sont généralement faites sur des durées allant de quelques dixièmes de milliseconde à quelques millisecondes.

Dans l'exemple de la Figure IV.25, la PAC a été représentée par sa courbe de polarisation statique et par une inductance mise en série de manière à faire apparaître le comportement inductif de la pile observé expérimentalement [Candusso Thèse 2002]. Pour modéliser la PAC, le convertisseur et la charge résistive, nous avons eu recours aux modèles de composants électriques issus de la librairie Power System Blockset de Matlab - Simulink. Les simulations ont été faites à rapport cyclique donné.

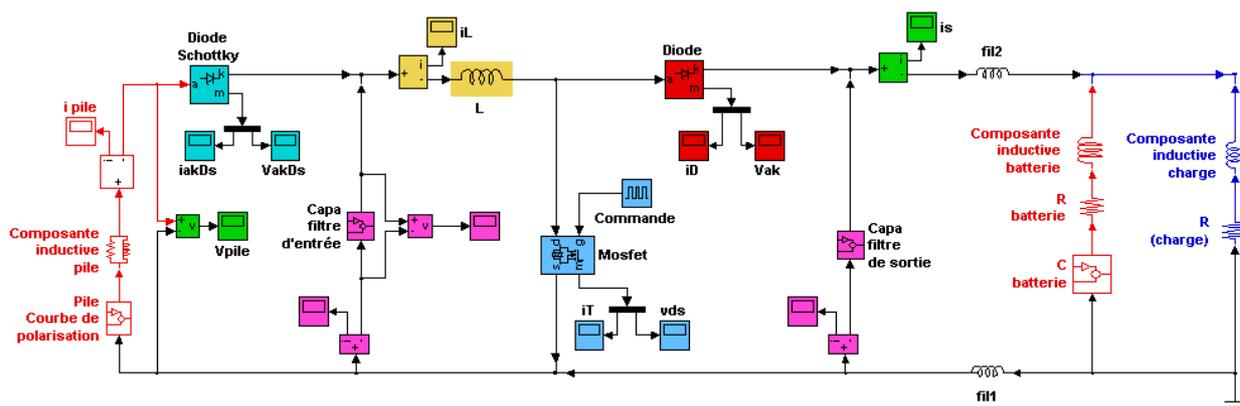
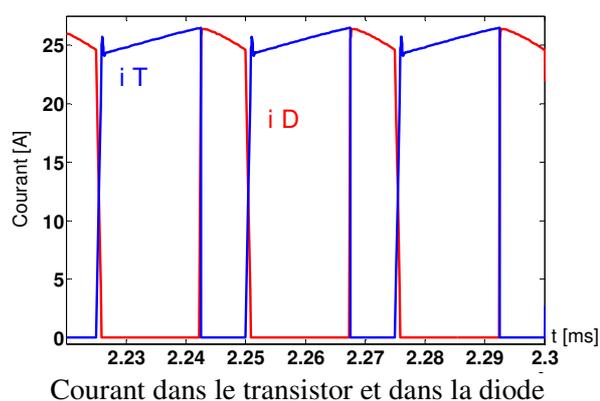
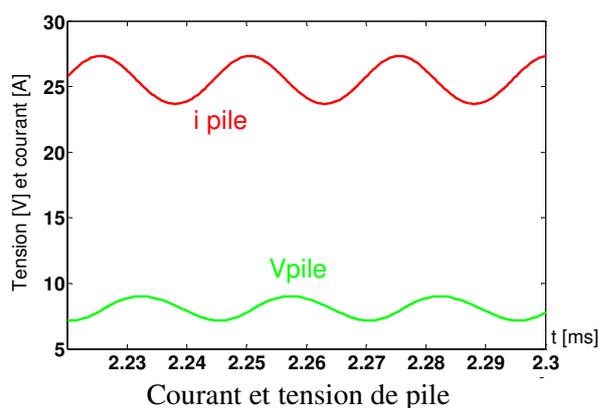
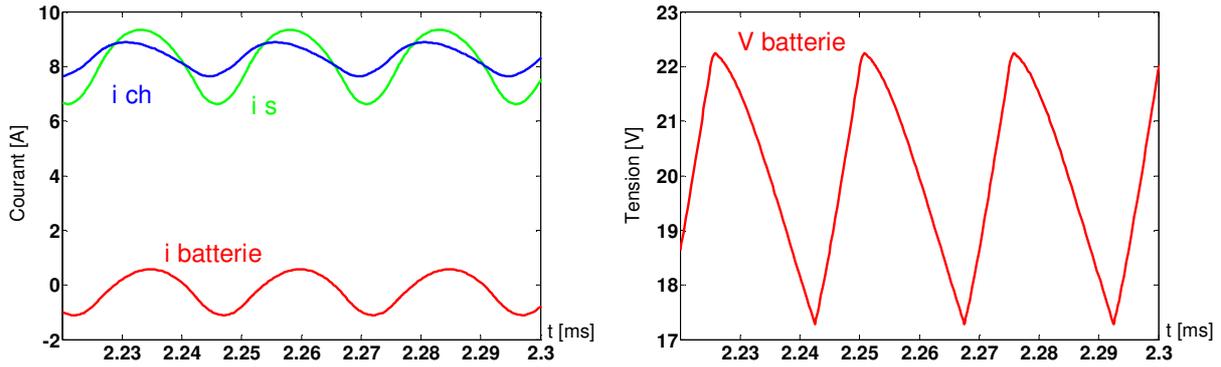


Figure IV.25 : Schéma Simulink du modèle de l'ensemble pile – convertisseur – charge résistive.





Courants de sortie, de charge, dans les batteries

Tension aux bornes des batteries

Figure IV.26 : Formes d'onde simulées pour l'ensemble pile – convertisseur – charge résistive.

D'un point de vue électrique, la pile peut ensuite être modélisée par une source de tension, une résistance non linéaire, une inductance, un dipôle RC parallèle rendant compte du transfert de charges. Dans ce cas, seuls les phénomènes hautes fréquences sont modélisés : la plage de fréquence est comprise entre quelques kilohertz et quelques centaines, voire dizaines d'hertz. Pour rendre compte des phénomènes plus lents (transport de matière), un second dipôle RC peut être ajouté en série. Les valeurs des résistances, de l'inductance et des capacités peuvent être identifiées à partir de diagrammes d'impédance établis dans des conditions physiques données. Ce type de modèle, assez simple, est bien adapté à l'usage que peuvent en faire les électriciens concepteurs de convertisseurs d'électronique de puissance ([Candusso Thèse 2002 Chap. 5]).

Des circuits électriques peuvent être également utilisés pour modéliser des phénomènes fluidiques existant dans les PAC et dans les systèmes PAC. Comme cela a été indiqué précédemment (au [paragraphe IV.2.1](#)), une modélisation dynamique et de type monophasique, basée sur une analogie électricité – fluide, a ainsi été proposée pour représenter les actionneurs et éléments assurant le passage et le conditionnement des gaz [Chnani DEA 2004]. Chaque organe est alors représenté par un circuit RC (Résistance Capacité) pour modéliser d'une part les pertes de charges des fluides, d'autre part le volume occupé par le mélange de gaz (azote, oxygène, vapeur d'eau du côté cathodique et azote, hydrogène, vapeur d'eau du côté anodique). Ce type d'approche a été mise en œuvre au niveau d'une cellule de PAC (Figure IV.27) pour retrouver la forme des évolutions des tensions cellules d'une PAC présentant des inétanchéités internes (affichées dans le [paragraphe IV.3.1](#)) et soumise à un arrêt prompt des débits de réactifs (Figure IV.28) [Tian JPS 2008] [Endichi DEA 2007]. Ce travail a été initié dans le cadre du Master de Issame ENDICHI. Le principe de la modélisation retenue pour la pile repose sur l'écriture en statique de la tension à vide d'une PAC PEM et sur la représentation en dynamique (fluide monophasique) des ensembles membrane - couches de diffusion - électrodes par la mise en œuvre de l'analogie électricité – fluide. Deux essais principaux ont servi de support à la modélisation : celui correspondant au « test du créneau de gaz réactifs » (qui consiste à observer le potentiel à vide de la pile et à couper de manière soudaine l'alimentation en réactifs), celui permettant la localisation des cellules abîmées sur le stack 5kW par la génération de gradients de pression anode – cathode ([Chapitre VII](#)). Les modèles proposés ont permis de montrer que l'évolution des potentiels à vide pouvait être en partie corrélée par le taux de perméation de réactifs entre les compartiments carburant – comburant (pouvant être ramené à un courant dit de "crossover"). Les travaux ont aussi débouché sur des questionnements liés à la représentation du potentiel à vide des PAC, notamment sur la façon de déterminer et représenter les parts relatives des surtensions liées au "crossover", aux phénomènes d'activation, à des réactions entre le platine des électrodes et l'oxygène de l'air. Il est aussi apparu que les diffusions de réactifs (hydrogène et/ou air) pouvaient être gouvernées par des gradients de pressions anode – cathode et que des scénarios de diffusion différents pouvaient être imaginés suivant les conditions de fonctionnement de la pile. Des informations plus précises sur le modèle adopté sont disponibles dans [Tian JPS 2008] [Endichi DEA 2007].

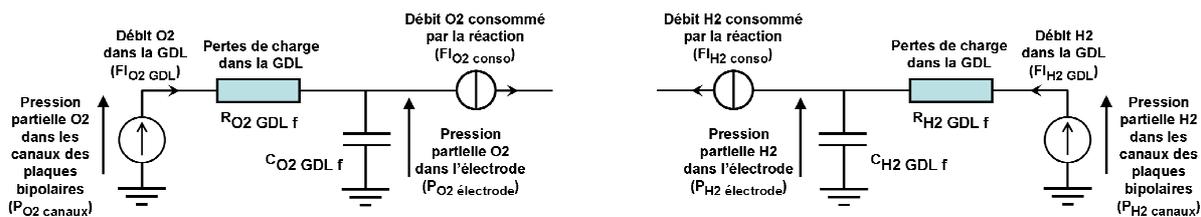


Figure IV.27 : Modèle circuit (monophasique) utilisé pour modéliser des phénomènes fluidiques dans une PAC. Pour chaque électrode : représentation des volumes dans les canaux des plaques bipolaires et dans les électrodes, des pertes de charges dans les couches de diffusion (GDL), du courant de perméation anode-cathode [Tian JPS 2008].

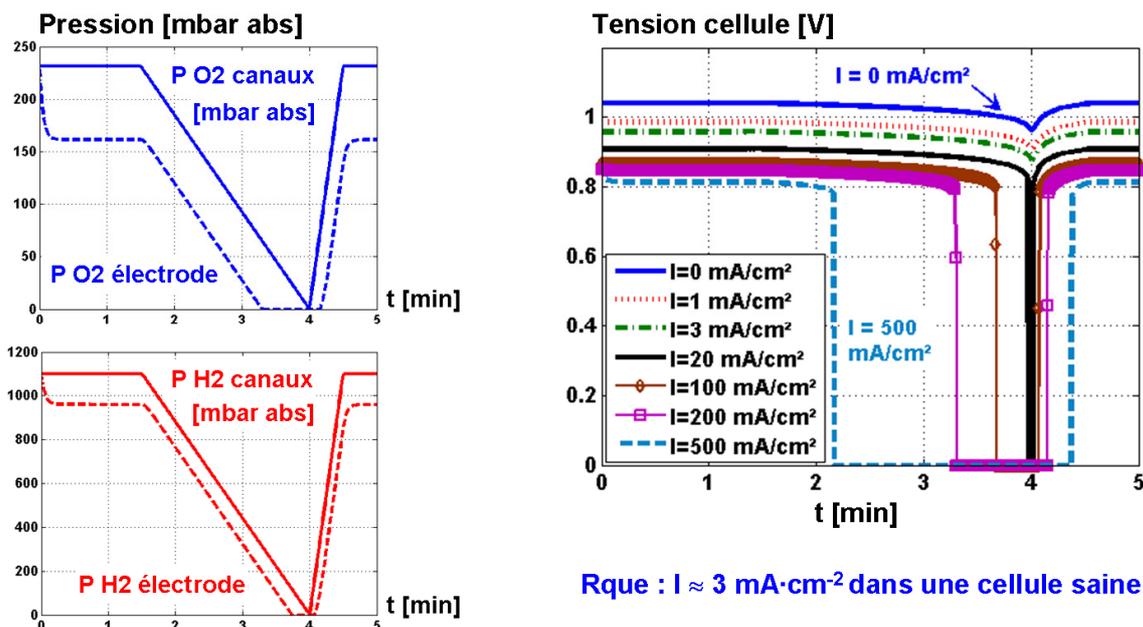


Figure IV.28 : Profils de pression imposés dans les canaux d'une PAC de type PEM et évolution des tensions à vide / à l'abandon d'une cellule de pile pour différentes valeurs de courant de perméation anode – cathode ("crossover") après l'arrêt des débits de gaz réactifs [Tian JPS 2008].

IV.4.3 Modélisation physique ou mécanistique (« boîtes blanches »)

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. Etablir un modèle de connaissance (ou physique, mécanistique, analytique), c'est décrire un processus de manière scientifique et quantitative. Les mathématiques permettent cette transcription quantitative des problèmes physiques et offrent de nombreux outils pour résoudre les problèmes, partiellement ou complètement. On ramène ensuite la solution dans son contexte d'origine. Cette description du processus permet d'en étudier l'évolution, d'en simuler les variantes, en modifiant certains paramètres.

La modélisation physique d'une PAC est ainsi basée sur la description directe des phénomènes et constituants des cellules. Cette approche nécessite une compréhension fine des phénomènes électriques, thermiques, fluidiques et électrochimiques associés aux éléments des cellules de la PAC et aussi un accès aux paramètres internes du stack (caractéristiques des matériaux, épaisseur des électrodes...). L'inconvénient de ce type de modélisation réside alors dans la complexité de son élaboration et éventuellement aussi dans des temps de calcul pouvant être longs. La description physique devient rapidement très compliquée du fait des effets des nombreux paramètres et phénomènes investigués, souvent fortement couplés, répartis dans l'espace dimensionnel de la PAC et dépendants des variations liées au temps.

Plusieurs voies sont aujourd'hui envisagées pour aboutir à la modélisation des PAC, des systèmes PAC ou de ses composants. Nous pouvons citer ici :

- la modélisation thermique des PAC de type PEM [Dumercy Thèse 2004] [Boillot Thèse 2005] [Ramousse Thèse 2005],
- la modélisation éléments finis (« Computational Fluid Dynamics » : CFD) [Scholta JPS 2006],
- la modélisation énergétique (Bond-graphs [Saisset Thèse 2004] [Franco Lucerne 2005] et REM [Chrenko Master 2005]),
- la modélisation électrochimique (modélisation analytique et fréquentielle par circuits électriques équivalents) [Walkiewicz DEA 2001] [Garnier Thèse 2006] [Fontès Thèse 2005],
- la représentation par des équations d'états [Hernandez Thèse 2006],
- la modélisation d'auxiliaires tels que le compresseur [Tekin Thèse 2004],
- les modèles dynamiques multi-physiques des PAC [Gerbaux Thèse 1996] [Poirot Québec 2000] [Friede Thèse 2003] [Franco Lucerne 2005],
- les modèles dynamiques multi-physiques des systèmes PAC. Le modèle développé par le CEA [Schott Belfort 2000] a servi à l'obtention des résultats présentés au Chapitre III dans le paragraphe III.5.

Toutes ces modélisations ont en commun de nécessiter des moyens d'essais et des travaux expérimentaux importants.

Deux modèles ont été plus particulièrement utilisés dans [Candusso Thèse 2002] puis [Candusso IJHE 2006] : d'une part e modèle analytique fréquentiel développé par le LEPMI et d'aitre part le modèle développé par le CEA. Les deux approches sont décrites ci-dessous, en quelques mots seulement.

Modèle analytique et fréquentiel

Ce modèle correspond à celui développé par le LEPMI [Walkiewicz DEA 2001]. Utilisé dans [Candusso Thèse 2002 Chap. 2], il permet d'accéder à une meilleure compréhension de mécanismes physiques de la pile tels que le transfert de charges, le transfert de matière se déroulant dans des conditions de température, de pressions stationnaires. La possibilité de tracer des graphes d'impédance permet de visualiser la manifestation de ces phénomènes, grâce aux différents arcs et à leurs fréquences caractéristiques. L'élaboration de ce type de modèle et la détermination de ses coefficients vont de pair avec une bonne maîtrise de la technique de l'impédancemétrie. Celle-ci permet d'estimer la valeur de la résistance interne de la pile en fonctionnement ; elle constitue un moyen efficace pour contrôler le bon fonctionnement des cellules, la qualité de l'alimentation en gaz ou l'état d'humidification de la membrane. L'allure des diagrammes d'impédance, mesurée expérimentalement, peut être retrouvée au moyen du modèle analytique, de façon assez précise. Même si les phénomènes ont des constantes de temps qui ne sont pas toujours aisément dissociables, ce qui entraîne des superpositions d'arcs.

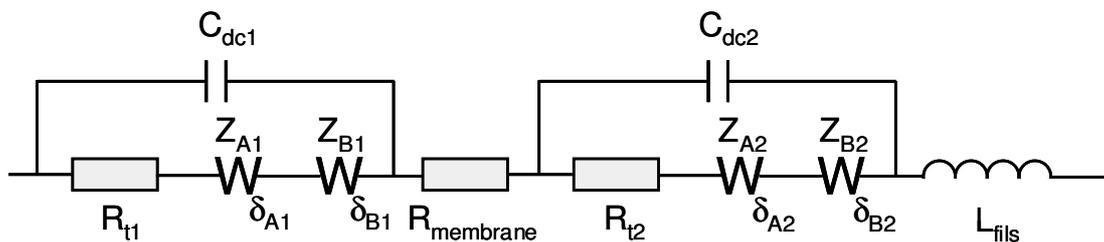


Figure IV.29 : Circuit équivalent d'une cellule de pile – modèle des électrochimistes.

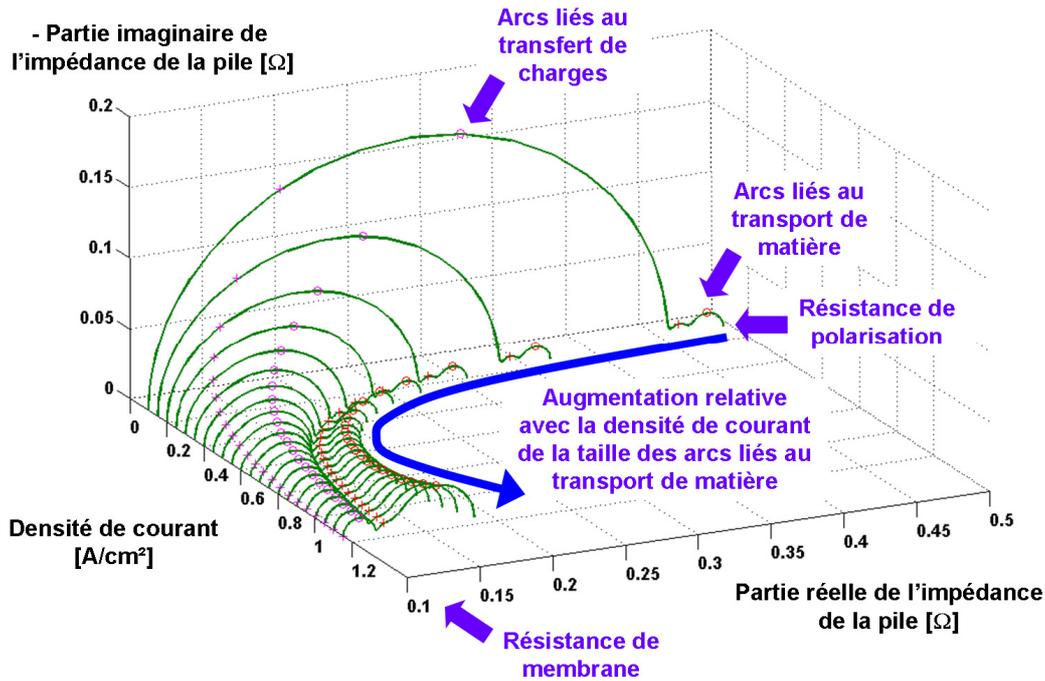


Figure IV.30 : Diagrammes d'impédance établis le long de la courbe de polarisation. Représentation 3D issue de [Candusso Thèse 2002] à partir d'un modèle proposé dans [Walkiewicz DEA 2001].

Le modèle dynamique d'un point de vue hydraulique et thermique

Ce type de modèle a été développé par le CEA à Grenoble pour répondre aux besoins des industriels de l'automobile et de la traction électrique. Un véhicule subit de nombreuses successions d'accélération et de freinages ; aussi sa "source d'énergie" fonctionne-t-elle la majeure partie du temps en régime transitoire. Ce qui implique que le modèle doit indispensablement fonctionner en dynamique, d'un point de vue hydraulique et thermique, pour rendre une image fidèle du comportement réel de la pile au cours du temps. Les phénomènes étudiés, pris en compte et mis en évidence par le modèle, ont généralement des durées supérieures à 0.1 s environ. Les simulations peuvent traiter des phénomènes se déroulant sur plusieurs minutes.

Les modèles de pile du CEA associent des modèles de connaissance de la membrane, des électrodes (zones active et diffusionnelle), des compartiments anode et cathode (plaques distributrices de gaz à canaux ou à poreux) à un calcul de la réponse électrochimique du cœur de pile. Cette dernière est calculée à partir d'une relation électrique de type semi-empirique et est basée sur l'hypothèse d'un régime pseudo-stationnaire. La durée, au bout de laquelle le régime permanent de la réponse électrochimique est atteint, est négligée devant les durées au bout desquelles sont atteints les régimes permanents concernant les bilans thermique et de matière. La PAC peut être soit assimilée à une cellule unique, soit discrétisée en un nombre donné de cellules. Une discrétisation le long de l'écoulement des réactifs est également possible. Ces deux types de discrétisation permettent de rendre compte des inhomogénéités en concentration, en température et en densité de courant dans le stack.

Le modèle de pile du CEA, associé à des modèles d'auxiliaires (compresseur, échangeur, pompe...), est particulièrement bien adapté à la simulation des chaînes de traction de véhicule sur des profils de mission temps – vitesse dès lors qu'il y a besoin de la réponse hydraulique et thermique en transitoire d'une pile ou d'un groupe électrogène à PAC. Il nous a ainsi été possible de le mettre en œuvre dans des modèles de chaînes de traction à source hybride PAC / supercondensateurs ([Candusso Thèse 2002]). Cf Chapitre III.

IV.5 Conclusions et perspectives

Le développement de moyens expérimentaux (bancs d'essai et instruments de mesure, protocoles expérimentaux et outils d'analyses) permettant la caractérisation des PAC ne constitue pas un objectif

Chapitre IV

en soi, tel que celui visant au développement et à l'amélioration du système PAC ou de ses composants. Il s'avère cependant essentiel et constitue même un préalable à la fois pour atteindre la détermination des performances des systèmes PAC et aboutir à une meilleure compréhension de la physique des PAC.

Sur une plateforme comme celle de Belfort, il est donc bien sûr indispensable de contribuer au développement de moyens d'essais performants et innovants, de mettre au point des protocoles de test et des méthodes de caractérisation efficaces, pouvant conduire en outre à la proposition d'indicateurs de vieillissement discriminants. Dans le domaine des systèmes PAC, le besoin apparaît d'autant plus grand que les méthodes de caractérisation « électrique » ne sont pas si nombreuses. Il faut encore mentionner que les travaux menés servent aussi à la mise en place progressive de procédures de caractérisation pouvant satisfaire aux besoins de l'embarqué.

Dans ce contexte d'expérimentation des PAC, il apparaît maintenant particulièrement important de pouvoir bénéficier à Belfort de l'apport de compétences externes en particulier dans le domaine de la caractérisation des matériaux utilisés dans les piles et des analyses post-mortem pour mieux appréhender notamment leurs modes de défaillances.

La relative difficulté à mettre en place des moyens d'essais ad-hoc satisfaisant aux tests de PAC, les temps passés importants à mettre au point les instruments nécessaires, le nombre souvent important de paramètres à prendre en compte et à évaluer en vue de la modélisation sont autant de points qui nous conduisent à adopter et développer des méthodes efficaces permettant la collecte et l'analyse des données expérimentales ([Chapitre V](#)).

IV.6 Références

[Bégot ECM 2010]	S. Bégot, F. Harel, D. Candusso, X. François, M-C. Péra, S. Yde-Andersen (juillet 2010). Fuel cell climatic tests designed for new configured aircraft application. Energy Conversion and Management. Vol. 51, n°7, pp. 1522-1535. Ed. Elsevier.
[Bégot Fuel Cells 2008]	S. Bégot, F. Harel, J.M. Kauffmann. Design and Validation of a 2 kW-Fuel Cell Test Bench for Subfreezing Studies. Fuel Cells. Vol. 8, n°1, pages 23-32. Publié en ligne le 23 janvier 2008. http://www3.interscience.wiley.com/cgi-bin/fulltext/117893355/PDFSTART
[Biyikoglu IJHE 2005]	A. Biyikoglu. Review of proton exchange membrane fuel cell models. International Journal of Hydrogen Energy, vol. 30, n°11, pp. 1181-1212, 2005.
[Boillot Thèse 2005]	Mathieu Boillot. Validation expérimentale d'outils de modélisation d'une pile à combustible de type PEM. Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, Thèse soutenue le 26 octobre 2005.
[Bouayad DEA 2005]	Youssef Bouayad. Etude statique et dynamique du conditionnement des fluides réactifs alimentant un système pile à combustible. Rapport de stage de Masters Recherche et Prof. PROTEE. Durée : mars 2005 – juillet 2005. Soutenance au L2ES Belfort le 19/07/2005
[Bultel Belfort 2000]	Y. Bultel, J.P. Diard, B. Le Gorrec. Study of the impedance of a PEM fuel cell under load, Colloque Piles à Combustible et Interfaces pour les transports. Belfort. Novembre 2000.
[Candusso EPJAP 2004]	D. Candusso, J-P. Poirot-Crouvezier, B. Bador, E. Rullière, R. Soulier, J-Y. Voyant (janvier 2004). Determination of current density distribution in Proton Exchange Membrane Fuel Cells. The European Physical J. Applied Physics. Vol 25, n°1, pp. 67-74. Ed. EDP Sciences.
[Candusso EVS18 2001]	D. Candusso, T. Pascal, E. Rullière, P. Baurens (20 - 24 octobre 2001). Impedance measurement of a proton exchange membrane fuel cell. Electric Vehicle Symposium 18 (EVS18). Berlin, Allemagne. 7 pages.
[Candusso GEVIQ 2002]	D. Candusso, I. Valero, A. Walter, S. Bacha, E. Rullière (12 - 13 juin 2002). Modélisation, contrôle et simulation d'un système pile à combustible destiné à une application stationnaire. Colloque Génie Electrique, Vie et Qualité (GEVIQ). Marseille. pp. 139-144.
[Candusso IECON 2002]	D. Candusso, A. Walter, S. Bacha, E. Rullière (5 - 8 novembre 2002). Modelling, control and simulation of a fuel cell based power supply system with energy management. IEEE Industrial Electronics Conference (IECON). Séville, Espagne. Vol. 2, pp. 1294–1299.
[Candusso IJHE 2006]	D. Candusso, F. Harel, A. De Bernardinis, X. François, M.C. Péra, D. Hissel, P. Schott, G. Coquery, J-M. Kauffmann (juillet 2006). Characterisation and modelling of a 5kW PEMFC for transportation applications. Int. J. of Hydrogen Energy. Vol. 31, n°8, pp. 1019-1030. Ed. Elsevier.

Chapitre IV

[Candusso Rapport SPACT 2004]	D. Candusso, F. Harel, X. François, A. De Bernardinis (2004). Essais expérimentaux réalisés sur l'ensemble banc – pile Helion 5kW. Rapport d'essais. Projet PACo SPACT. 44 pages + annexes.
[Candusso Thèse 2002]	D. Candusso. Hybridation du groupe électrogène à pile à combustible pour l'alimentation d'un véhicule électrique. Thèse de Doctorat INPG Génie Electrique, Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble, soutenue le 29 novembre 2002. 168 pages + annexes.
[Candusso TI 2007]	D. Candusso, R. Glises, D.Hissel, J-M. Kauffmann, M-C. Péra (octobre 2007). Pile à combustible PEMFC et SOFC. Description et gestion du système. Techniques de l'Ingénieur. Génie énergétique. 11 p. BE8595. Editeur T.I. 11 pages.
[Charon FCLAB mars 2010]	Willy Charon. Le traitement des incertitudes dans la conception des PEMFC. Mars 2010. Séminaire interne FC LAB. 22 pages.
[Chnani DEA 2004]	Moussa Chnani. Etude de l'incidence des actionneurs et des organes de conditionnement des fluides sur le comportement d'un système pile à combustible. Rapport de stage de DEA PROTEE. Durée : mars 2004 – sept. 2004. Soutenance au L2ES Belfort le 31/8/2004.
[Chnani EVS21 2005]	M. Chnani, H. Maker, M-C. Péra, D. Candusso, D. Hissel (2 - 6 avril 2005). Modeling of a PEFC generator. Electric Vehicle Symposium 21 (EVS21). Monaco. 9 pages.
[Chnani Lucerne 2005]	M. Chnani, H. Maker, D. Candusso, M-C. Péra, D. Hissel (4 - 8 juillet 2005). Electrical analogy modelling of PEFC system fed by a compressor. 3rd European Polymer Electrolyte Fuel Cell Forum (EPEFC). Lucerne, Suisse. 14 pages.
[Chrenko Master 2005]	Daniela Chrenko. Characterization of a Polymer Electrolyte Fuel Cell System. Contribution to the Study of Fuel Cell Ageing. Master L2ES. 31 Octobre 2005.
[De Bernardinis Lucerne 2009]	A. De Bernardinis, F. Harel, L. Girardot, D. Candusso, D. Hissel (29 juin – 2 juillet). Experimental Dynamic Behavior of a 30kW 90Cell PEFC Prototype under Transportation Load Cycle Constraints. European Fuel Cell Forum 2009. Lucerne, Suisse, 16 pages.
[Diard 1996]	J.P. Diard, B. Le Gorrec, C. Montella. Cinétique électrochimique. Hermann – Editeurs des sciences et des arts. Paris, France, 1996. 246 pages.
[Duby Robin 2006]	C. Duby, S. Robin. Analyse en Composantes Principales – 2006. Département O.M.I.P. de l'Institut National Agronomique Paris Grignon. 54 pages. http://www.agroparistech.fr/IMG/pdf/ACP2006.pdf
[Dumercy Thèse 2004]	Dumercy Laurent. Contribution à la caractérisation thermique et fluïdique d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons PEMFC. Thèse L2ES. Belfort, 27/10/2004.
[Endichi DEA 2007]	Issame Endichi. Etude et modélisation de problèmes liés à l'étanchéité interne des piles à combustible PEM Master PROTEE. Encadrement : D. Candusso. Mars 2007 - juillet 2007. Soutenance au L2ES Belfort le 17/07/2007.
[FCTESTNET]	Home Page of the Fuel Cell TEsting and STandardisation thematic NETwork (FCTESTNET). Site internet : http://ie.jrc.ec.europa.eu/fctestnet/

Chapitre IV

[Felicitas]	Site internet du projet européen FELICITAS : http://www.felicitas-fuel-cells.info/
[Fontès Thèse 2005]	Guillaume Fontès. Modélisation et caractérisation de la pile PEM pour l'étude des interactions avec les convertisseurs statiques. Thèse de Doctorat à l'INPT, 2005.
[Franco Lucerne 2005]	A.A. Franco, P. Schott, C. Jallut et B.M. Maschke. A Multiscale. Dynamic Mechanistic Model for Transient Analysis of PEFCs. 3rd European PEFC Forum, Lucerne, 2005.
[Friede Thèse 2003]	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.
[Garnier Thèse 2006]	James Garnier. Association en parallèle de générateurs pile à combustible PEMFC. Thèse de Doctorat de l'UTBM et de l'UFC. Belfort. Juin 2006.
[Gerbaux Thèse 1996]	Luc Gerbaux. Modélisation d'une pile à combustible de type hydrogène air et validation expérimentale. Thèse de doctorat INPG – préparée au CEA Grenoble et soutenue en 1996.
[Glises JPS 2005]	R. Glises, D. Hissel, F. Harel, M.C. Péra. New design of a PEM fuel cell air automatic climate control unit. Journal of Power Sources, Vol. 150, 4 octobre 2005, Pages 78-85.
[Haraldsson JPS 2004]	K. Haraldsson, K. Wipke. Evaluating PEM fuel cell system models. Journal of Power Sources, vol. 126, n°1-2, pp. 88-97, 2004.
[Harel Rapport INRETS 1 2003]	Harel F., Francois X., Jemeï S., Moratin S. (2003) Conception et réalisation d'un banc d'essai pour piles à combustible à membrane de faibles puissances. Bron, France: INRETS, Rapport LTE0310, 77 p. ISRN INRETS/RR/03-521-FR.
[Harel Rapport INRETS 2 2005]	F. Harel, D. Candusso, X. François, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (janvier 2005). Expérimentations sur piles à combustible à membrane de faibles puissances. Rapport INRETS LTE N°0503. 92 pages.
[Harel Rapport INRETS 3 2008]	Harel F., 2008. Expérimentations de piles à combustible en approche système embarqué - Rapport INRETS-LTE N°0802.
[Hernandez Thèse 2006]	Andres Hernandez. Diagnostic d'une pile à combustible de type PEFC. Thèse de Doctorat préparée au L2ES. Novembre 2006.
[Hinaje IJHE 2009]	M. Hinaje, I. Sadli, J.-P. Martin, P. Thounthong, S. Raël, B. Davat, Online humidification diagnosis of a PEMFC using a static DC-DC converter, Int J Hydrogen Energy, (2009), Vol. 34, pp. 2718-2723.
[Jemeï DEA 2001]	Samir Jemeï. Mise en place et étude expérimentale d'une pile à combustible à membrane de 500W. Rapport de DEA PROTEE. Belfort. 2001. Encadrement : M-C. Péra.
[Jemeï ISIE 2005]	S. Jemeï, F. Harel, X. François, D. Candusso, D. Hissel, M-C .Péra, J-M. Kauffmann (20 - 23 juin 2005). PEM fuel cell modelization including durability considerations. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Dubrovnik, Croatie. Vol. 2, pp. 833-837, ISBN 0-7803-8738-4.

Chapitre IV

[Kauffmann Actes INRETS n°84 2002]	JM Kauffmann, G. Rey, X. François (pp. 55-64) dans : Yonnet J.P., Badin F. (2002) Véhicules électriques et hybrides - Enjeux technologiques et perspectives - 5e Colloque C-VELEC, Grenoble, 25 et 26 juin 2002. Les Collections de l'INRETS, Actes INRETS (84). Arcueil: INRETS, 200 p. ISBN 2-85782-568-4.
[Lachaize Thèse 2004]	Jérôme Lachaize. Etude des stratégies et des structures de commande pour pilotage des systèmes énergétiques à pile à combustible (PAC) destinés à la traction. Thèse de Doctorat, LEEI à Toulouse, soutenue le 20 septembre 2004.
[Lallemand EPE 2003]	R. Lallemand, A. De Bernardinis, G. Coquery, J-P. Ousten, S. Raël and B. Davat. Active load for fuel cell system dedicated to transportation applications, EPE 2003, 10 th European Conference on Power Electronics and Applications, 2-4 Septembre 2003, Toulouse.
[Larminie 2000]	James Larminie, Andrew Dicks. Fuel Cell Systems Explained. John Wiley & Sons, Ltd – réimprimé en novembre 2000.
[Latévi IJHE 2010]	L. Placca, R. Kouta, D. Candusso, J-F. Blachot, W. Charon (mai 2010). Analysis of PEM fuel cell experimental data using Principal Component Analysis and multi-linear regression. International Journal of Hydrogen Energy. Vol. 35, n°10, pp. 4582-4591. Ed. Elsevier.
[Moratin Thèse CNAM 2002]	Stéphane Moratin. Conception, réalisation et modélisation d'un système permettant de contrôler la température et l'hygrométrie de l'air alimentant une pile à combustible de 500 W. Mémoire CNAM. Belfort. 10 janvier 2003. Encadrement : R. Glises, D. Hissel.
[Narjiss EPE 2008]	A. Narjiss, D. Depernet, D. Candusso, F. Gustin, D. Hissel (1 - 3 septembre 2008). Online diagnosis of PEM fuel cell. 13th International Conference on Power Electronics and Motion Control (EPE-PEMC). Poznan, Pologne. 6 pages. ISBN 978-1-4244-1742-1.
[Narjiss Thèse 2008]	Abdellah Narjiss. Diagnostic non-intrusif d'une pile à combustible PEMFC grâce au convertisseur statique, thèse UFC. FC LAB Belfort (2008).
[Pascal PFE 2000]	Thierry Pascal. Dispositif de mesure d'impédance d'une pile à combustible par spectroscopie. Projet de fin d'études (de mars à septembre 2000) en 3ème année ENSIEG, option Electronique de Puissance et Traitement de l'Energie (EPT). Réalisé au LEG (G2ELAB) en partenariat avec le CEA Grenoble.
[Péra IEEE Newsletter 2006]	M.C. Péra, D. Candusso, D. Hissel, J.M. Kauffmann. Fuel Cell Power Generators: a great idea but a stubborn reality. IEEE Industrial Electronics Society Newsletter. September Vol. 55, N°3 2006. ISSN 0746-1240.
[Poirot Québec 2000]	J.P. Poirot-Crouvezier, P. Baurens, D. Levrard. Modélisation dynamique d'une pile à combustible De Nora destinée au véhicule électrique. Proceedings du Millénaire de l'hydrogène – 10ème conférence canadienne sur l'hydrogène, Québec, 2000.
[Ramousse Thèse 2005]	Julien Ramousse. Transferts couplés masse – charge – chaleur dans une cellule de pile à combustible à membrane polymère. Thèse INPL au Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMETA) soutenue le 21 novembre 2005.

Chapitre IV

[Rapport 1 CELINA 2007]	D. Candusso, S. Bégot, X. François, F. Harel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (2007). Livrable D3.3.2 : Test data and report of reference test results. Projet européen CELINA (L2ES – FC LAB). 46 pages + annexes.
[Rapport Synthèse CELINA 2008]	D. Candusso, S. Bégot, X. François, F. Harel, V. Rouss, P. Lesage, W. Charon, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (avril 2008). Livrable D3.3.6 : Test report. Rapport de synthèse sur l'ensemble des essais réalisés à Belfort dans le cadre du projet européen CELINA (L2ES – FC LAB). 26 pages.
[S++]	Site internet de la société S++ qui commercialise des systèmes de mesure de densité de courant pour PAC : http://www.splusplus.com/measurement/en/cslin.html
[Saïssset Thèse 2004]	Rémi Saïssset. Contribution à l'étude systémique de dispositifs énergétiques à composants électrochimiques. Formalisme Bond Graph appliqué aux piles à combustible, accumulateurs Lithium-Ion, Véhicule Solaire. Thèse de Doctorat préparée à l'INP de Toulouse et soutenue le 2 Avril 2004.
[Schindele EVS 2005]	L. Schindele, J. Scholta, H. Späth, PEM-FC Control using power-electronic quantities, Electric Vehicle Symposium, Monaco (2005).
[Scholta JPS 2006]	J. Scholta, G. Escher, W. Zhang, L. Küppers, L. Jörissen et W. Lehnert. Investigation on the influence of channel geometries on PEMFC performance. Journal of Power Sources, Vol. 155, n°1, 18 avril 2006, pages 66-71.
[Schott Belfort 2000]	Pascal Schott, Jean-Philippe Poirot-Crouvezier, Pierre Baurens. Modélisation et simulation de la source d'énergie à pile à combustible du véhicule hydro-gen. Colloque PàC et Interfaces pour les transports, 9-10/11/2000 à Belfort.
[Sciences et Avenir oct-nov 2004]	Ces instruments qui font la science. Sciences et Avenir 2004 (hors série, oct-nov).
[Soulier DEA 2001]	Régis Soulier. Cartographie des densités de courant dans une Pile à Combustible par mesure du champ magnétique induit. DEA INPG Génie électrique. Grenoble, 2001.
[Steiner IMACS 2008]	N. Yousfi-Steiner, D. Candusso, D. Hissel, P. Moçotéguy, A. Aslanides, A. Hernandez (8 – 11 juin 2008). Modelling for PEMFC flooding diagnosis purpose. Electrimacs (IMACS). Québec, Canada. 6 pages.
[Steiner Thèse 2009]	Nadia Steiner (2009). Diagnostic non intrusif de groupes électrogènes à piles à combustible de type PEMFC. Thèse UFC / FEMTO-ST/ENISYS / Eifer-EDF, soutenue le 3 décembre 2009. 205 pages.
[Tekin Thèse 2004]	Mestan Tekin. Contribution à l'optimisation d'un générateur pile à combustible embarqué. Thèse de Doctorat de l'Université de Franche-Comté, n°82, 2004.
[Tian JPS 2008]	G. Tian, S. Wasterlain, I. Endichi, D. Candusso, F. Harel, X. François, M-C. Péra, D. Hissel, J-M.Kauffmann (août 2008). Diagnosis methods dedicated to the localisation of failed cells within PEMFC stacks. J. Power Sources. Vol. 182, n°2, pp. 449-461. Ed. Elsevier.
[Turpin 2007]	C. Turpin, G. Fontes, S. Astier, M. Garcia Arregui, V. Phlippoteau, A novel large signal and dynamic characterisation to parameter a novel large signal and dynamic circuit model of a PEM fuel cell, Hydrogen & Fuel Cells 2007, Vancouver.

Chapitre IV

[Valero Thèse 2004]	Ianko Valero. Interfaçage et contrôle commande de piles à combustible pour applications stationnaires et transport. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble et soutenue en 2004.
[Walkiewicz DEA 2001]	S. Walkiewicz. Etude par spectroscopie d'impédance électrochimique de piles à combustible à membrane échangeuse de protons. DEA Electrochimie INPG de-LEPMI 2001. 40 pages.
[Wasterlain Electromotion 2008]	S. Wasterlain, F. Harel, D. Candusso, D. Hissel, X. François (1 – 3 juillet 2009). First results obtained with an impedancemeter developed for the diagnosis of large PEFC stacks. Electromotion, EPE Chapter "Electric Drives", Joint Symposium, Lille, 6 pages.
[Wasterlain JPS 2010]	S. Wasterlain, D. Candusso, D. Hissel, F. Harel, P. Bergman, P. Menard, M. Anwar (février 2010). Study of temperature, air dew point temperature and reactant flow effects on PEMFC performances using electrochemical spectroscopy and voltammetry techniques. J. Power Sources. Vol. 195, n°4, pp. 984-993. Ed. Elsevier.
[Wasterlain Lucerne 2009]	S. Wasterlain, F. Harel, D. Candusso, D. Hissel (29 juin – 2 juillet). Development of a High Voltage Impedance Spectrometer for the Characterization and Diagnosis of Large PEFC Stacks. European Fuel Cell Forum 2009. Lucerne, Suisse.
[Wasterlain Thèse 2010]	Sébastien Wasterlain (2010). Approches expérimentales et analyse probabiliste pour le diagnostic de pile à combustible de type PEM. Thèse UFC / FEMTO-ST/ENISYS, soutenue le 4 février 2010. 298 pages.

V	Modélisation de l'expérience	153
V.1	Problématique. Les limites de la modélisation des PAC : « la chasse aux paramètres »	153
V.2	Approche retenue	154
V.3	Brefs rappels sur la méthode des plans d'expérience	155
V.3.1	Histoire	155
V.3.2	Principe	156
V.4	Les plans d'expérience appliqués au domaine des générateurs électrochimiques et des PAC	158
V.4.1	Exemple 1 : Caractérisation et modélisation d'un élément de PAC	158
V.4.1.1	Plan d'expérience réalisé	159
V.4.1.2	Graphes des effets et des interactions	160
-	Notion d'effet d'un facteur	160
-	Notion d'interaction	160
V.4.1.3	Modélisation sous forme matricielle	162
V.4.2	Exemple 2 : Optimisation du fonctionnement d'une PAC et intérêt des plans fractionnaires	163
V.4.2.1	Plan d'expérience réalisé	163
V.4.2.2	Analyse de variance	165
V.4.2.3	Plan fractionnaire	166
V.4.3	Exemple 3 : Essai d'endurance d'un stack et fonctionnement robuste de la pile	167
V.4.3.1	Surfaces de réponse	167
V.4.3.2	Surfaces de réponse duale	170
V.5	Conclusion et perspectives	171
V.6	Références	174

V Modélisation de l'expérience

V.1 Problématique. Les limites de la modélisation des PAC : « la chasse aux paramètres »

Aujourd'hui, les modèles de PAC développés peuvent offrir un niveau de détail considérable et le problème qui se pose par conséquent peut-être avec le plus d'acuité, concerne l'identification, le calage et la validation de ces modèles. Toutes les approches retenues pour la modélisation passent obligatoirement par une phase expérimentale plus ou moins longue et ardue. Ce sont cependant probablement les modèles physiques qui nécessitent le plus grand nombre d'essais, y compris dans les domaines d'applications connexes au génie électrique. Dans cette « chasse aux paramètres » [Friede Thèse 2003], le besoin d'expérimenter sur des objets disponibles « en vraie grandeur », possédant des niveaux de puissance significatifs, redevient vraiment d'actualité pour pouvoir finalement accéder au retour d'expérience technologique et fonctionnelle, en particulier dans le domaine des transports.

Les expérimentateurs sont amenés à mettre en place des moyens expérimentaux complexes pour tester et développer les PAC et les systèmes PAC dans des conditions de sécurité satisfaisantes (prise en compte par exemple des risques liés à l'hydrogène). Par la suite, l'identification des plages de variation des différents paramètres physiques permettant d'étudier, de caractériser, puis d'optimiser le fonctionnement du stack et du système, est généralement effectuée en recourant à un grand nombre d'essais expérimentaux, qui nécessitent à la fois du temps, une disponibilité des moyens d'essais et des moyens financiers conséquents pour un laboratoire. La longueur des essais est liée en partie aux constantes de temps importantes liées aux phénomènes thermiques et à leur contrôle. Les coûts des expériences sont élevés car les PAC demeurent encore des objets sophistiqués et rares ; les prix des gaz réactifs sont encore élevés. Dans ce contexte, il apparaît donc important de bien déterminer et organiser les essais à effectuer.

Nous avons déjà mentionné le fait que les PAC et générateurs PAC ont des performances qui dépendent fortement des conditions de fonctionnement liées à l'environnement dans lequel ils se trouvent (Figure V.1). De plus, le pilotage et la gestion de ces systèmes demeurent délicats en raison du grand nombre de paramètres physiques mis en jeu tels que le profil du courant imposé par la charge, la température du stack, les températures dans le système et liées à l'environnement, pressions, débits, taux d'hydratation du combustible et du comburant... Toutes ces grandeurs ont des impacts sur le fonctionnement du système qui sont souvent particulièrement difficiles à estimer et à exprimer clairement. En effet, les grandeurs sont liées par des relations fortement non linéaires, souvent difficiles à modéliser, et très dépendantes les unes des autres ainsi que des choix technologiques retenus pour les organes auxiliaires entourant la pile (compresseur, humidificateur...). Le difficile accès à certains paramètres internes de la pile est une autre difficulté à prendre en compte. Par ailleurs, certains modèles de PAC doivent témoigner des inhomogénéités des phénomènes rencontrés d'une cellule de pile à l'autre par exemple. Ces dispersions potentielles existant dans les performances, dans les matériels et matériaux doivent être appréhendées grâce à des procédures de mesures adaptées. A l'heure actuelle, aucune norme établie relative aux procédures de caractérisation, ni standard lié aux propriétés des composants mis en œuvre dans la PAC n'existe vraiment. Chaque fournisseur utilise ses procédures de test, ses propres matériaux et procédés de fabrication. Les caractéristiques de ces derniers ne sont d'ailleurs pas souvent accessibles. Par conséquent, la transposition des valeurs mesurées d'une pile à une autre doit encore être effectuée avec une certaine prudence (problèmes de la reproductibilité et de la répétabilité des expériences). Finalement, les paramètres physiques sont susceptibles d'être modifiés en fonction de la durée de vie de la pile.

Pour tenter de répondre à cette problématique, une approche faisant appel à la Méthodologie des Plans d'Expériences (MPE) a été proposée [Wahdame Thèse 2006].

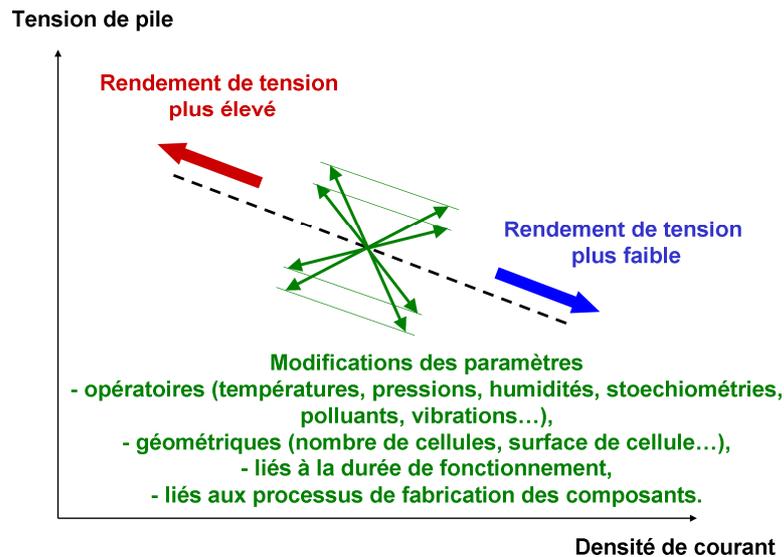


Figure V.1 : Effet de quelques paramètres sur le rendement de tension d'une PAC. Schéma inspiré de [FC Handbook 2000 p 2-9].

V.2 Approche retenue

Comme cela a déjà été mentionné dans l'introduction du mémoire, une part importante des verrous à lever pour rendre la technologie PAC plus mature se situe au niveau des éléments matériels ou composants constituant les cœurs de pile. Des recherches « matériaux », très ciblées, sont donc encore forcément indispensables et les Plans d'Expériences (PE) peuvent être et sont d'ailleurs déjà utilisés par des chercheurs (chimistes, électrochimistes...) travaillant plus spécifiquement sur les matériaux pour aboutir par exemple à l'élaboration de nouveaux ensembles électrodes – membrane – couches de diffusion. Un certain nombre de références sont données dans [Wahdame IJHE n°34 2009]. Pour autant, compte tenu de la configuration du générateur PAC, qui fait apparaître des échanges énergétiques et fonctionnels importants, une approche système globale doit être envisagée pour obtenir une amélioration des performances. Les travaux de recherche que nous avons menés se sont donc orientés vers le système PAC. L'objectif final des recherches menées actuellement par l'IFSTTAR sur la plateforme expérimental de Belfort pourrait par exemple être exprimé simplement ou résumé de la manière suivante : il consiste à savoir placer la PAC (le stack) dans un environnement opératoire favorable en effectuant des travaux sur le système PAC et sur son intégration dans le véhicule. L'objectif premier poursuivi est de déterminer les conditions les plus favorables au fonctionnement des technologies PAC existantes et testées, pour aboutir aux performances les plus élevées possibles en termes de rendement d'une part, de durée de vie et de fiabilité d'autre part. Dans une telle optique système, les données collectées par les essais réalisés doivent notamment permettre une meilleure définition des technologies à adopter pour les organes auxiliaires (compresseur, humidificateur...) et aboutir ainsi à une intégration optimisée du générateur PAC (par exemple, hybridation éventuelle du système PAC par des batteries ou des supercondensateurs).

Les travaux réalisés ont une composante expérimentale forte, du fait de la nécessaire caractérisation des performances des PAC existantes, du besoin d'évaluer leurs durées de vie et leurs modes de défaillance sous les contraintes réelles des applications transports. La démarche scientifique adoptée doit indissolublement mêler étroitement expérimentation / analyse des phénomènes (pour avoir ainsi la chance, par les observations réalisées, d'être en quelque sorte "aux premières loges"), modélisation de l'expérience (pour évaluer quantitativement les impacts des paramètres étudiés et qualitativement les niveaux de prédiction), modélisation comportementale et physique (pour mieux représenter et comprendre les phénomènes observés).

A Belfort, l'IFSTTAR cherche particulièrement à développer, partager des compétences et un savoir-faire dans les domaines de l'expérimentique [Assoc. Expérimentique 2005] (c'est-à-dire la

méthodologie expérimentale, la stratégie expérimentale et les PE) et de la métrologie appliquées au système PAC. L'acquisition d'un ensemble de techniques et de savoir-faire, souvent spécifiques au domaine de la PAC ne serait-ce que par l'étendue et la diversité des sujets scientifiques abordés, doit permettre d'effectuer des mesures sur les piles et d'avoir une confiance suffisante dans les résultats obtenus. La mesure est nécessaire à toute connaissance, à toute prise de décision et à toute action. Elle est bien sûr indispensable pour toute recherche qui vise à modéliser des systèmes physiques, à quantifier des grandeurs, leurs relations et leurs interactions, et à reproduire des phénomènes. Les recherches sur les PAC n'échappent évidemment pas à la règle.

Une approche faisant intervenir la méthodologie des PE doit permettre de définir de manière rationnelle les essais visant à caractériser rapidement et efficacement la PAC. Elle doit aboutir à la détermination des paramètres les plus influents sur le comportement du générateur pile et à la mise en évidence des interactions éventuelles qui lient ces facteurs. D'autre part, la caractérisation complète de la PAC par des PE a pour finalité de prédire le comportement du système sur l'étendue de ses paramètres de fonctionnement et d'envisager ainsi, par la suite, des stratégies de pilotage du système visant à optimiser un critère déterminant de fonctionnement tel que le rendement, la consommation d'hydrogène, la puissance électrique maximale, voire la durée de vie du stack. Des modèles « statistiques » doivent pouvoir être élaborés dans ce sens : ils permettront alors de choisir les niveaux des paramètres physiques de façon appropriée pour optimiser un critère donné (tension de pile maximale par exemple). La mise en place d'une telle méthodologie a pour autre but de rendre plus aisée et plus objective la comparaison entre différents stacks. La MPE doit aussi constituer une aide permettant de juger du niveau utile de complexité à adopter pour le développement ou l'adoption d'un modèle de PAC en vue d'une application donnée.

Dans la suite de ce chapitre, nous donnons des éléments essentiels sur la MPE qui permettront au lecteur de cette thèse, non familiarisé avec cette approche, de mieux appréhender les travaux décrits. Nous verrons que cette méthodologie a déjà pu être appliquée dans de nombreux domaines, y compris celui des générateurs électrochimiques. Quelques travaux sur les PAC ont aussi fait l'objet de publications académiques.

Trois exemples d'application de la méthodologie des PE au domaine de la PAC [Wahdame IJHE n°34 2009]. L'objectif est à chaque fois de mieux saisir l'intérêt de la méthode dans le contexte qui nous intéresse et d'illustrer de manière concrète les concepts méthodologiques brièvement introduits.

Le premier exemple concerne la caractérisation et la modélisation « statistique » de composants de PAC. Le second exemple aborde le problème de l'optimisation du fonctionnement des PAC et les plans fractionnaires. Les aspects durée de vie et fonctionnement robuste des PAC sont évoqués dans le troisième exemple à travers l'utilisation de plans produits. Pour conclure, une synthèse typologique des différents outils de la méthode des PE est proposée relativement aux utilisations qui peuvent en être faite dans le domaine de la recherche sur les PAC.

V.3 Brefs rappels sur la méthode des plans d'expérience

V.3.1 Histoire

Le point de départ des principes modernes de l'expérimentation est souvent fixé à 1919, date de l'engagement du statisticien (également biologiste évolutionnaire et généticien) Ronald A. Fisher (1890 - 1962) par la Rothamsted Experimental Station (Centre de recherche agronomique) dans le cadre d'études agronomiques [Fisher 1925] [Fisher 1935]. Très rapidement, les travaux de Fisher font apparaître les notions de répétition, de répartition au hasard ou randomisation, de constitution de blocs, d'expériences factorielles, d'effets principaux et d'interactions, de confusions des effets. En 1931, Fisher est rejoint par Frank Yates (1902 – 1993). De leur collaboration résultent de nouveaux développements théoriques tels que les expériences factorielles fractionnaires, les notions d'expériences en blocs aléatoires incomplets [Yates, 1935, 1936, 1937]. Deux autres noms peuvent être cités : William G. Cochran (1909 – 1980) et David J. Finney (1917 -). On doit notamment à ces deux chercheurs des contributions importantes concernant les expériences croisées et portant aussi sur les expériences factorielles fractionnaires. A partir des années 1935-1940, les notions

d'expérimentation interviennent également dans le secteur industriel. Des concepts nouveaux apparaissent alors, tels que les plans de Placket et Burman (1946), la notion de surface de réponse (1952), les plans optimaux (1959) et les plans Taguchi (1959, 1960, 1987) [Dagnelie 2000] [Taguchi 1986] [Taguchi 1993]. Depuis, les PE ont pris un essor considérable avec le développement de l'informatique et la puissance de calcul qui l'accompagne.

V.3.2 Principe

[Pillet 1999] [Goupy 1988] [Vigier 1988] [Kouta 2004] [Myers 1995] [Montgomery 2005] [Wahdame Thèse 2006]

Dans le langage scientifique, expérience signifie, fait attendu ou provoqué de manière à vérifier une hypothèse, une loi, un modèle et parvenir ainsi à une connaissance théorique de la façon dont se déroulent des phénomènes. Lors d'études expérimentales multiparamétriques, le nombre de variables peut être élevé. Les stratégies couramment employées pour mener à bien ces expérimentations sont souvent informelles, parfois quelque peu inutiles, et elles peuvent conduire à un nombre de résultats difficile à exploiter. Pour optimiser l'organisation des expériences et exploiter efficacement les résultats obtenus, le scientifique peut avoir intérêt à recourir à des méthodes telles que les PE. Le principe général des PE consiste à n'étudier que certains points du domaine expérimental sous investigation, tout en réussissant pourtant à appréhender le phénomène physique étudié sur l'ensemble du domaine considéré. En s'inspirant de la norme ISO 3534-3 [Assoc. Expérimentique 2005], un PE peut être défini comme une organisation raisonnée d'essais. Une difficulté importante de la méthodologie réside alors dans la manière de choisir les points d'études de façon optimale. Dans l'industrie, la connaissance de la méthode des PE apparaît aujourd'hui comme un préalable d'une part à l'amélioration de la qualité des produits et des procédés, et d'autre part à la réduction des temps de développement. La méthode des PE permet en effet d'obtenir un maximum d'informations à un coût minimal. En résumé, les avantages les plus reconnus des PE sont :

- l'efficacité, car seules les expériences indispensables sont réalisées,
- l'exactitude : pour un effort expérimental donné, la plus grande exactitude possible sera atteinte,
- les interactions : les synergies existant entre les différents paramètres étudiés sont identifiées et mieux comprises.

D'une manière générale, un PE consiste à mettre en évidence et à quantifier l'influence existant entre deux types de variables :

- les **facteurs et/ou entrées** : des variables, ou des états (contrôlés ou non), qui agissent sur le système étudié,
- la **réponse** : la grandeur mesurée afin de connaître les effets des facteurs sur le système. Il convient bien sûr que la réponse soit représentative du phénomène observé.

Plus précisément, les PE visent à établir des relations liant la réponse tant avec les facteurs, qu'avec les facteurs entre eux (interactions). Cette technique des PE, employée dans des domaines aussi divers que l'agriculture, la chimie et la pétrochimie, la biologie, l'électronique, permet d'obtenir une modélisation expérimentale des phénomènes physiques et d'apprécier la confiance à accorder aux résultats. A ce stade, nous tenons à insister sur la différence entre la modélisation de l'expérimentation et la modélisation du phénomène physique. Modéliser l'expérimentation, c'est être capable de prévoir la réponse du phénomène physique uniquement en fonction des paramètres étudiés lors de l'expérimentation et variant dans le domaine d'étude choisi. Cela signifie qu'en général :

- la réponse du modèle de l'expérimentation ne pourra théoriquement pas être extrapolée à des valeurs de paramètres situées en dehors du domaine d'étude,
- les valeurs quantitatives des réponses seront liées à des configurations particulières de l'expérimentation, et ne seront pas non plus forcément extrapolables à d'autres conditions de fonctionnement (par exemple, cas d'un changement de machine).

Cette étape relative à la modélisation de l'expérimentation apparaît néanmoins très importante car elle permet tout de même d'appréhender localement le phénomène physique par la connaissance de la surface de réponse générée dans le domaine expérimental considéré.

Chapitre V

Les contextes d'application de la méthode peuvent aller du traitement et de la résolution des problèmes qualité à l'optimisation d'un produit (sous l'angle de la conception) ou d'un processus destiné à fabriquer un produit. En outre, les PE peuvent être vus comme un ensemble de méthodes, d'outils qui peuvent être choisis en fonction des objectifs de l'étude à effectuer. Les principales méthodes des PE, liées à des utilisations et besoins différents sont :

La méthode comparative (en anglais : comparative design). Elle permet de trouver la relation cause - effet entre plusieurs facteurs de l'étude, et de déterminer le facteur important a priori. La question est ici de savoir si le facteur a un rôle "significatif" dans l'obtention de la réponse, s'il engendre ou pas un changement crucial de la réponse en fonction de ses différents niveaux.

La technique de criblage (screening design). Elle est mise à profit pour explorer un domaine expérimental inconnu. Les plans sont alors conçus de manière à isoler les facteurs influents et examiner les effets principaux des facteurs. La technique de criblage se nomme également technique principale d'effets.

La Méthode de la Surface de Réponse (MSR) (Response Surface Methodology, RSM). Elle est mise en œuvre pour élaborer des modèles descriptifs ou prévisionnels des phénomènes étudiés. Elle permet une étude qualitative des facteurs. Son utilisation est intéressante dès lors qu'il faut effectuer des optimisations, mettre au point des formulations permettant d'estimer les interactions entre facteurs ainsi que les effets quadratiques. La MSR permet, grâce à l'idée que l'on peut se faire de la forme de la surface de réponse, d'améliorer la qualité (la robustesse, la fiabilité) des produits.

La modélisation par régression (regression modeling). Elle est faite pour estimer les paramètres d'un modèle précis, en mesurant la dépendance de la ou des réponse(s) à l'égard des entrées du processus.

Pour résumer, les PE correspondent à une suite d'essais organisée à l'avance de manière à déterminer, en un minimum d'essais et avec un maximum de précision, l'influence de multiples paramètres sur une ou plusieurs réponses. Les PE permettent de répondre à deux familles de questions :

- Comment estimer et comparer les effets des paramètres de réglage d'un processus ?
- Comment affiner les paramètres de réglage d'un processus pour atteindre un optimum ?

Les travaux de la thèse de Bouchra Wahdame [Wahdame Thèse 2006] s'inscrivent pleinement dans ce double contexte, avec pour objet d'étude la PAC. Pour illustrer ces différentes questions au travers du sujet qui nous intéresse, prenons quelques exemples.

- Comment estimer et comparer les effets des paramètres de réglage de la PAC tels que le niveau du courant imposé par la charge, la température du stack, les températures, pressions, débits, taux d'hydratation du combustible et du comburant... sur la tension de pile ?
- Comment régler les paramètres de fonctionnement de la PAC pour atteindre un optimum en tension, en puissance, en rendement ?

Des éléments bibliographiques essentiels relatifs à la MPE ont été présentés dans [Wahdame Thèse 2006]. Les différents types de variables ont été recensés et différentes définitions ont été données (par exemple, définition du domaine d'étude et du domaine d'étude possible soumis soit à des contraintes en position soit à des contraintes en valeurs atteintes). Le deuxième volet du deuxième chapitre de [Wahdame Thèse 2006] a porté sur un aspect fondamental de la MPE : la modélisation, avec les principales techniques mathématiques utilisées pour exprimer les variations des réponses en fonction des valeurs des facteurs. Les deux principales composantes de la MPE, la technique de criblage et la méthodologie des surfaces de réponses, y ont ensuite été décrites.

Les travaux présentés dans [Wahdame Thèse 2006] ont été réalisés en respectant pour le mieux la méthodologie des PE, et en particulier ses différentes étapes et objectifs :

- Définition du problème,
- Application de l'analyse de criblage : étude qualitative et quantitative du système,
- Application de la méthodologie des surfaces de réponse,
- Optimisation.

La démarche mise en œuvre pour mener à bien et dans les meilleures conditions toute expérimentation peut être résumée par le schéma de synthèse suivant (Figure V.2) :

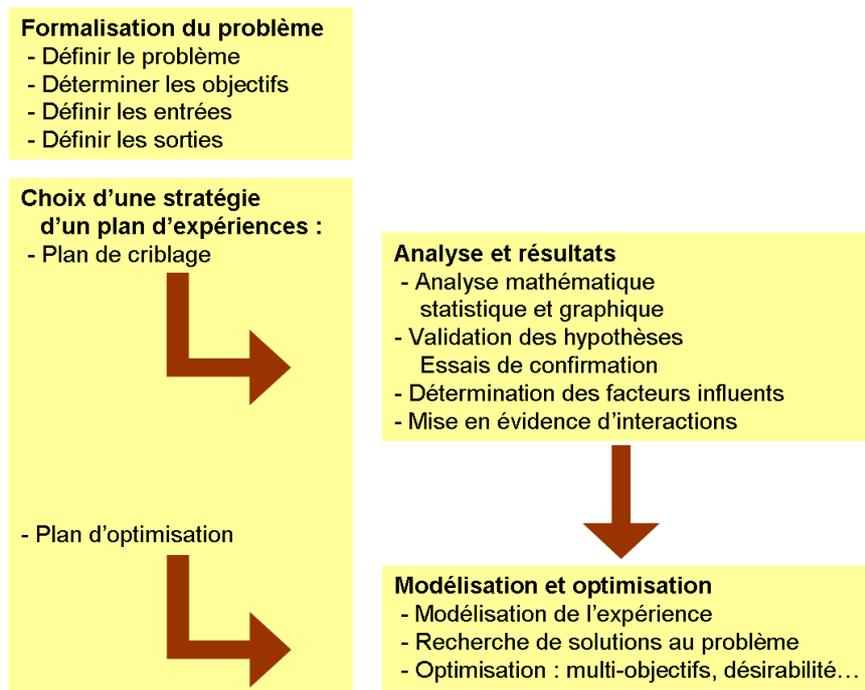


Figure V.2 : Synoptique d'une démarche PE.

V.4 Les plans d'expérience appliqués au domaine des générateurs électrochimiques et des PAC

Trois exemples de travaux faisant intervenir les PE sont présentés dans cette partie [Wahdame IJHE n°34 2009] [Candusso CNRS 2008]. Ils montrent que les PE peuvent être utiles pour :

- le développement de matériaux et de composants pour PAC,
- l'analyse et amélioration des performances de monocellules et de stacks,
- l'évaluation et développement de systèmes PAC.

Le premier exemple est destiné à une étude de caractérisation in-situ d'un composant particulier de PAC : les membranes électrolytes d'une pile PEM. L'évolution de l'impédance des membranes en fonction de trois paramètres est étudiée et modélisée en considérant un plan complet factoriel.

Le second exemple correspond à l'étude d'un stack 20 cellules dont la puissance électrique maximale est sujette à différentes valeurs de débits et pressions de réactifs. Cet exemple met en évidence l'intérêt des plans factoriels fractionnaires.

Dans le troisième exemple, un essai d'endurance mené sur 1000 h est analysé par la méthode des surfaces de réponse. La variabilité des performances des cellules individuelles de la pile est examinée au moyen d'un plan produit.

V.4.1 Exemple 1 : Caractérisation et modélisation d'un élément de PAC

Ce paragraphe constitue une ouverture vers des travaux de recherche futurs qui pourraient être menés en utilisant la MPE dans le domaine des PAC et en particulier dans l'optique du développement de modèles de connaissance. Nous pensons en effet que la MPE peut être très utile pour définir et organiser les essais destinés à obtenir des données permettant le calage et la validation de modèles physiques. La technique des PE doit aussi offrir une aide tout à fait pertinente afin de juger du niveau utile de complexité à adopter lors de l'élaboration ou lors du choix d'un modèle physique de pile ou de système pile, en vue d'une application donnée.

Chapitre V

Nous montrons ici comment la MPE peut être mise en œuvre pour caractériser la membrane polymère et sa résistivité qui varie en fonction des conditions d'humidification [Wahdame Thèse 2006] [Wahdame FC 2007] [Wahdame IJHE n°34 2009].

Dans les générateurs PAC de type PEM, la gestion de l'eau demeure en effet encore à la fois cruciale et problématique dans certaines conditions. Les membranes doivent en effet être correctement hydratées pour posséder une bonne conductivité protonique. A contrario, un excès d'eau liquide dans les couches de diffusion gêne le transport des réactifs vers les sites réactionnels (phénomène de noyage). C'est pour cette raison qu'une étude expérimentale faisant apparaître l'impact de l'humidification des gaz sur la résistance de membrane s'avère être très intéressante.

V.4.1.1 Plan d'expérience réalisé

Les essais ont été réalisés au FC LAB sur le banc 1 kW avec une pile PEM de puissance nominale 500 W fournie par le constructeur allemand ZSW - UBzM. Cette pile est équipée de 20 cellules de 100 cm², à membranes Gore (Gore MESGA Primea, série 5510). Le stack fonctionne à pression atmosphérique avec des surpressions dans les compartiments anode et cathode autorisées jusqu'à 500 mbar. La pile est alimentée en hydrogène sec et en air humidifié (Tableau V.1).

Tableau V.1 : Principales caractéristiques de la pile étudiée.

Type	Pile PEM
Puissance nominale de sortie	500 W
Plage de puissance	0 à 800 W
Courant nominal	50 A
Nombre de cellules	20
Surface active par cellule	100 cm ²
Température de fonctionnement	20 à 65°C
Température nominale	55°C
Plage de pression	Max. 1.5 bar _{absolu} (0.5 bar _{relatif})
Alimentation cathode	Air humide (température nominale de rosée de 45°C)
Alimentation anode	Hydrogène pur (sec)
Refroidissement	Eau déminéralisée

L'impédance à haute fréquence, reflétant la teneur en eau des membranes, est mesurée par impédancemétrie. Cette étude du comportement dynamique de la PAC est effectuée en mode galvanostatique, soit en considérant un point statique de fonctionnement constant (courant de polarisation de 20 A) et une composante alternative sinusoïdale (d'amplitude égale à 4 A). La fréquence d'oscillation retenue pour la génération de la composante sinusoïdale est de 1 kHz. Il s'agit d'une valeur pour laquelle la partie imaginaire de l'impédance du stack est très faible, proche de zéro. Le choix de cette fréquence correspond à un compromis entre des fréquences plus élevées, pour lesquelles apparaissent des phénomènes inductifs liés principalement aux connexions et aux câbles, et des fréquences plus basses où apparaissent les comportements capacitifs de la pile (liés aux doubles couches et aux diffusions des espèces). La tension aux bornes du stack est mesurée quand la PAC atteint des conditions de fonctionnement stable.

La réponse étudiée dans ce PE est donc l'impédance de la pile à 1 kHz. Elle est notée Y_{ZPAC} . Les facteurs considérés dans l'étude sont la température de pile, la température de rosée de l'air en amont du stack et le type de régulation de pression choisi. Trois et quatre niveaux sont adoptés respectivement pour la température de pile (variable T_{pile}) et pour la température de rosée côté air (facteur $T_{rosée}$). Dans les expériences effectuées, la température de pile est toujours plus élevée que la température de rosée de l'air, de sorte à éviter le noyage des cellules de la pile. Deux modes de fonctionnement en pression (variable P) sont également considérés (Tableau V.2). En effet, les gaz en sortie de la pile peuvent être maintenus à la pression ambiante (mode ouvert) ou alors, régulés à une valeur fixe (mode régulation de pression). Dans ce dernier cas, les pressions anode/cathode mesurées en entrée du stack sont régulées à des valeurs de 1300 mbar abs.

Le plan utilisé pour l'étude de l'impact de l'humidification de l'air sur la résistance des membranes est un plan factoriel complet. Compte tenu du nombre de facteurs et de niveaux considéré, le nombre total d'essais est égal à $3 \times 5 \times 2 = 20$.

Tableau V.2 : Niveaux des facteurs dans l'étude de la résistance interne du stack.

Facteurs (X)	Niveaux (centrés normalisés : réels)				
	Mini.	Intermédiaire		Maxi.	
Trosée [°C]	-1 : 25	-0.5 : 30	0 : 35	+0.5 : 40	+1 : 45
Tpile [°C]	-1 : 50		0 : 55		+1 : 60
P	-1 : mode ouvert			1 : mode régulation de pression	

Si les PE constituent avant tout un outil de gestion et d'organisation d'une campagne expérimentale, un autre objectif incontestable des PE est de permettre une restitution de l'expérimentation réalisée sous une forme facilement interprétable par l'utilisateur.

V.4.1.2 Graphes des effets et des interactions

Afin de comparer les impacts des différents facteurs sur l'impédance de la pile, nous représentons les effets des facteurs sous forme de graphes des effets moyens (Figure V.3) et des interactions (Figure V.4).

- Notion d'effet d'un facteur

L'effet principal du facteur A (Trosée par exemple) au niveau i (-1 ou +1 en coordonnées centrées réduites), noté $E_{A(i)}$, est calculé de la manière suivante :

$$E_{A(i)} = \bar{Y}_{A(i)} - \bar{Y} \tag{V.1}$$

Où : $\bar{Y}_{A(i)}$ est la moyenne des réponses lorsque A est au niveau i et \bar{Y} est la moyenne globale des réponses collectées sur tout le PE.

L'effet moyen d'un facteur est défini comme étant la moitié de l'effet global.

- Notion d'interaction

Lorsque l'effet d'un facteur dépend de la valeur prise par un autre facteur, cela se traduit par une interaction entre les deux facteurs. On appelle interaction d'ordre n une interaction entre n facteurs.

L'interaction $I_{A(i)B(j)}$ est recherchée à partir des résultats moyens des essais réalisés lorsque le facteur A se trouve au niveau i et le facteur B au niveau j. Si $\bar{Y}_{A(i)B(j)}$ est la moyenne générale des essais, il est possible d'écrire :

$$I_{A(i)B(j)} = \bar{Y}_{A(i)B(j)} - \bar{Y} - E_{A(i)} - E_{B(j)} \tag{V.2}$$

Grâce à ces représentations graphiques des effets moyens et des interactions (développées dans l'environnement MatlabTM), il est immédiatement possible de constater que des changements réalisés entre les niveaux bas et haut affectent de manière plus ou moins importante la variation de la réponse suivant les facteurs considérés.

Pour interpréter les résultats suggérés par les graphes des effets moyens, il suffit de comparer entre elles les pentes de chacun des segments de droite [$\bar{Y}_{A(-1)}$ $\bar{Y}_{A(+1)}$] dont les extrémités correspondent aux effets moyens calculés aux niveaux -1 et +1 (Figure V.3). L'effet moyen d'un facteur est en effet défini par la variation observée ou modélisée de la réponse caractérisant le phénomène à étudier, entre deux états distincts correspondant aux modalités du facteur. Plus la pente de la droite caractérisant l'effet est grande, plus le poids du facteur est important.

D'une part, la faible pente du tracé de l'effet moyen relatif au mode de fonctionnement en pression signifie que ce paramètre a un faible impact sur la résistance ; d'autre part, les fortes pentes des segments liés aux températures de pile et de rosée témoignent des influences importantes de ces

Chapitre V

facteurs. En outre, les représentations graphiques révèlent le caractère linéaire du facteur température de rosée dans le domaine d'étude considéré. Ceci pourrait éventuellement entraîner une réduction possible du nombre d'expériences nécessaire.

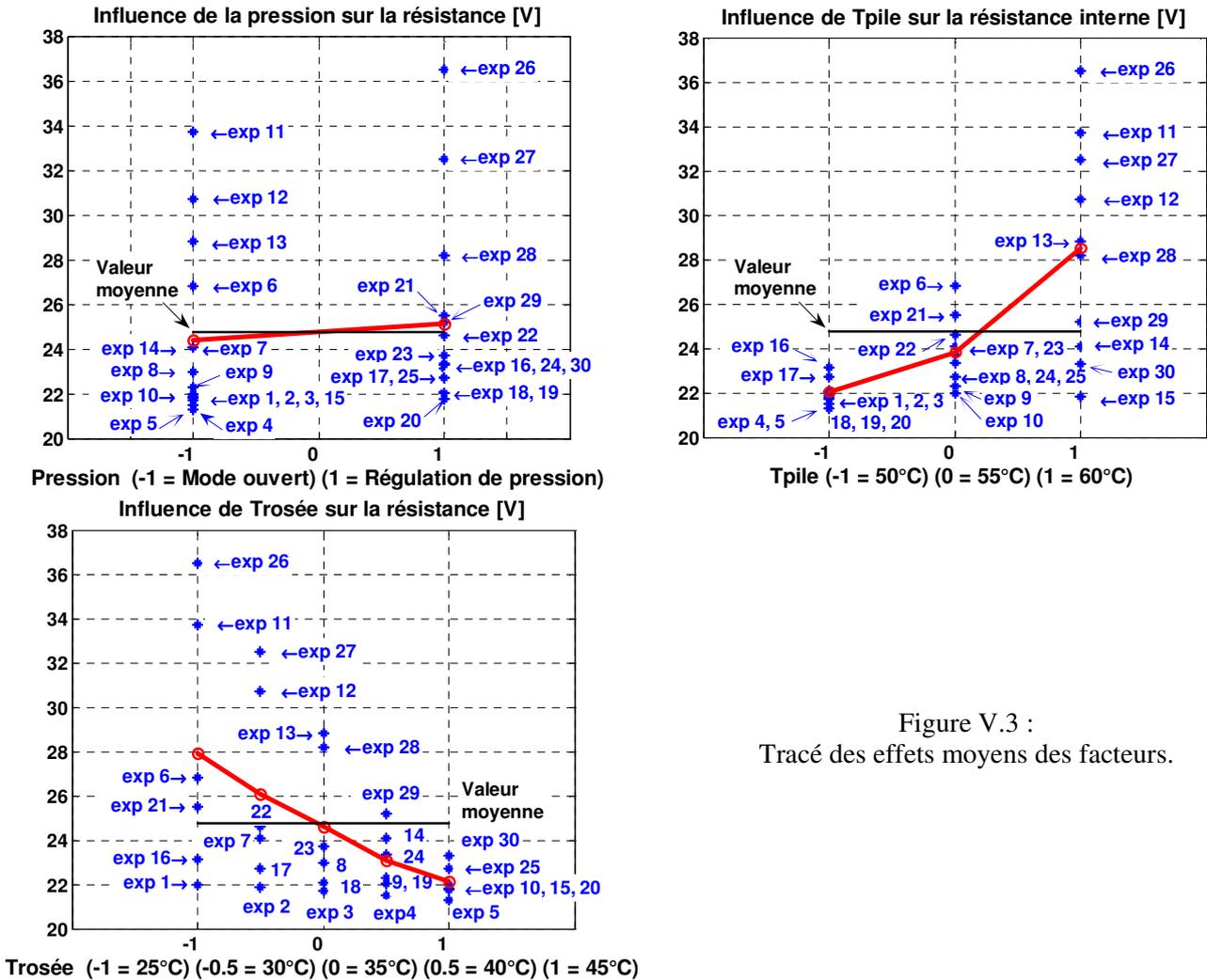


Figure V.3 :
Tracé des effets moyens des facteurs.

Sur chacun des graphes des interactions, la présence d'une interaction est décelée lorsque les deux droites ($[I_{A(-1)B(-1)} I_{A(+1)B(-1)}]$ et $[I_{A(-1)B(+1)} I_{A(+1)B(+1)}]$) ne sont pas parallèles (Figure V.4).

L'interaction entre la température de pile et la température de rosée est également détectée par l'intermédiaire de l'intersection franche qui existe entre les segments relatifs aux trois températures de pile considérées. L'importance de cette interaction peut facilement être interprétée d'un point de vue physique. En effet, la température de pile étant dans nos expériences toujours plus élevée que la température de rosée, une plus grande différence entre ces deux températures conduit à un assèchement des membranes de la pile et donc à une valeur de résistance interne plus élevée.

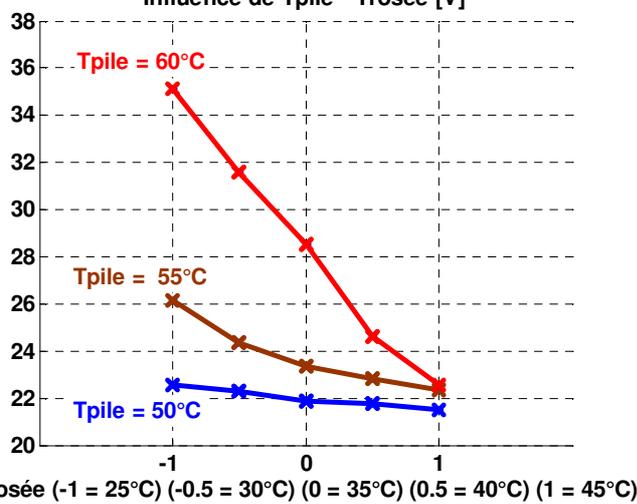
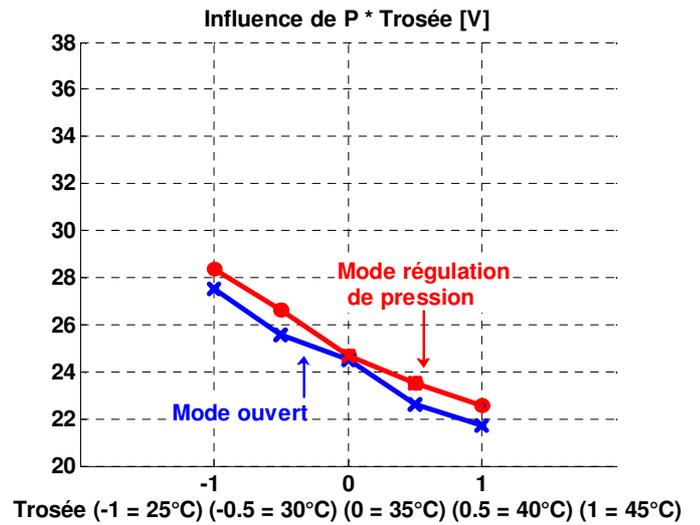
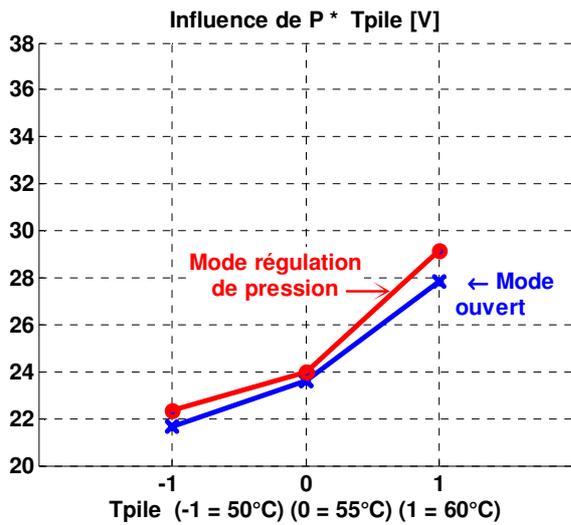


Figure V.4 :
Tracé des interactions des facteurs

Remarque :
La représentation adoptée pour les graphes des interactions est identique à celle adoptée dans [Pillet 1999, 2ème tirage, p 48].

V.4.1.3 Modélisation sous forme matricielle

La définition des expériences à réaliser permettre de construire un modèle d'exploration du domaine expérimental. Il existe naturellement plusieurs familles de modèles, à choisir en adéquation avec les objectifs des expérimentateurs.

Ici, à partir des calculs des effets et des interactions, un modèle de l'impédance de la PAC (Y_{ZPAC}) peut être écrit en fonction des trois paramètres considérés. Le modèle peut d'abord être exprimé sous forme matricielle et en utilisant des valeurs centrées réduites.

$$\begin{aligned}
 Y_{ZPAC} = & \bar{Y}_{ZPAC} + [E_{P(-1)} \ E_{P(+1)}][P] + [E_{T(-1)} \ E_{T(0)} \ E_{T(+1)}][T] \\
 & + [E_{Trosée(-1)} \ E_{Trosée(-0.5)} \ E_{Trosée(0)} \ E_{Trosée(+0.5)} \ E_{Trosée(+1)}][Trosée] \\
 & + [P]^t \begin{bmatrix} I_{P(-1)T(-1)} & I_{P(-1)T(0)} & I_{P(-1)T(+1)} \\ I_{P(+1)T(-1)} & I_{P(+1)T(0)} & I_{P(+1)T(+1)} \end{bmatrix} [T] \\
 & + [P]^t \begin{bmatrix} I_{P(-1)Trosée(-1)} & I_{P(-1)Trosée(-0.5)} & I_{P(-1)Trosée(0)} & I_{P(-1)Trosée(+0.5)} & I_{P(-1)Trosée(+1)} \\ I_{P(+1)Trosée(-1)} & I_{P(+1)Trosée(-0.5)} & I_{P(+1)Trosée(0)} & I_{P(+1)Trosée(+0.5)} & I_{P(+1)Trosée(+1)} \end{bmatrix} [Trosée] \\
 & + [T]^t \begin{bmatrix} I_{T(-1)Trosée(-1)} & I_{T(-1)Trosée(-0.5)} & I_{T(-1)Trosée(0)} & I_{T(-1)Trosée(+0.5)} & I_{T(-1)Trosée(+1)} \\ I_{T(0)Trosée(-1)} & I_{T(0)Trosée(-0.5)} & I_{T(0)Trosée(0)} & I_{T(0)Trosée(+0.5)} & I_{T(0)Trosée(+1)} \\ I_{T(+1)Trosée(-1)} & I_{T(+1)Trosée(-0.5)} & I_{T(+1)Trosée(0)} & I_{T(+1)Trosée(+0.5)} & I_{T(+1)Trosée(+1)} \end{bmatrix} [Trosée]
 \end{aligned}
 \tag{V.3}$$

Où :

\bar{Y}_{ZPAC} correspond à la moyenne arithmétique des éléments du vecteur réponse Y_{ZPAC} ,

$E_{A(i)}$ est l'effet du facteur A au niveau i sur la réponse Y_{ZPAC} ,

$I_{A(i)B(j)}$ est l'interaction entre le facteur A au niveau i et le facteur B au niveau j,

Chaque facteur [A] peut être exprimé selon le niveau considéré. Prenons ainsi l'exemple du facteur [P]. Alors, [P] peut être écrit soit $[1\ 0]^t$ ou $[0\ 1]^t$.

Avec les valeurs numériques, le modèle de l'équation (V.3) devient :

$$\begin{aligned}
 Y_{ZPAC} = & 24.7635 + [-0.38688 \quad 0.3868][P] + [-2.7575 \quad -0.9585 \quad 3.716][T] \\
 & + [3.1789 \quad 1.3115 \quad -0.1785 \quad -1.6885 \quad -2.6235][Trosée] \\
 & + [P]^t \begin{bmatrix} 0.0508 & 0.2218 & -0.2727 \\ -0.0508 & -0.2218 & 0.2727 \end{bmatrix} [T] \\
 & + [P]^t \begin{bmatrix} -0.0557 & -0.1382 & 0.3014 & -0.0548 & -0.0532 \\ 0.0557 & 0.1382 & -0.3018 & 0.0548 & 0.0532 \end{bmatrix} [Trosée] \\
 & + [T]^t \begin{bmatrix} -2.62 & -1.0425 & 0.0725 & 1.4525 & 2.1375 \\ -0.8340 & -0.7665 & -0.2765 & 0.7085 & 1.1685 \\ 3.4540 & 1.8090 & 0.2040 & -2.1610 & -3.3060 \end{bmatrix} [Trosée]
 \end{aligned}
 \tag{V.4}$$

Un tel modèle présenté sous la forme d'une relation mathématique basée sur les développements de la méthode des PE fait apparaître des informations pertinentes sur les effets des facteurs physiques investigués et sur les possibles interactions entre facteurs.

Une telle relation peut être incorporée au sein d'un un sous-modèle lui-même partie d'un modèle physique de pile plus global. Le sous-modèle « boîte noire » représenterait alors des phénomènes locaux et particuliers liés à l'impédance de membrane, qui ne peuvent pas être forcément décrits via une approche mécanistique.

Au final, un modèle simplifié issu de l'équation V.4 peut être proposé pour exprimer la valeur de l'impédance en fonction des paramètres significatifs.

La nouvelle relation est établie en considérant d'abord que les facteurs (exprimés sous la forme de leurs coordonnées centrées réduites) évoluent linéairement dans l'intervalle [-1 1] et en adoptant ensuite les valeurs numériques réelles (par exemple : T = 60°C):

$$Y_{ZPAC} = 24.763 + 0.387 \cdot P + 3.237 \cdot T - 2.921 \cdot Trosée + 0.162 \cdot P \cdot T - 0.018 \cdot P \cdot Trosée - 2.95 \cdot T \cdot Trosée
 \tag{V.5}$$

V.4.2 Exemple 2 : Optimisation du fonctionnement d'une PAC et intérêt des plans fractionnaires

L'étude présentée dans cet exemple a été menée avec une pile PEM de puissance nominale 500 W aux caractéristiques similaires à celles présentées dans le [Tableau V.1](#), mais dotée de 20 cellules [[Wahdame Thèse 2006](#)] [[Wahdame JPS 2006](#)] [[Wahdame IJHE n°34 2009](#)]. Nous nous contentons de rappeler ici que le stack est destiné à travailler à pression atmosphérique, avec un niveau de surpression autorisé jusqu'à 500 mbar rel.

V.4.2.1 Plan d'expérience réalisé

Le PE est destiné à étudier l'influence des débits et des pressions des gaz réactifs, côté hydrogène et côté air, sur les performances de la pile utilisée en mode régulation de pression. La réponse étudiée est la puissance maximale atteinte par la pile dans des conditions données. Les facteurs principaux considérés dans ce PE sont :

Chapitre V

- la pression d'hydrogène (PH₂),
- la pression d'air (Pair),
- le débit d'hydrogène (DH₂),
- le débit d'air (Dair).

Deux modalités, ou niveaux, ont été retenues pour chacun des quatre paramètres (Tableau V.3). Les niveaux ont été fixés en prenant en considération les limites technologiques du stack et du banc de test 1 kW du FC LAB. Les facteurs peuvent être considérés comme étant linéaires du fait des plages de pression et de débit relativement restreintes (cette hypothèse a pu être vérifiée par la suite en ajoutant au plan quelques supplémentaires compris dans le domaine expérimental et ayant des niveaux intermédiaires para rapport à ceux déjà choisis [Wahdame Thèse 2006]).

Le plan complet factoriel comprend $2^4 = 16$ expériences (quatre facteurs à deux niveaux chacun).

Tableau V.3 : Format du plan complet à quatre paramètres et deux niveaux
(valeurs réelles et centrées normalisées).

Test N°.	PH2	Pair	DH2	Dair	PH2 * Pair * DH2 * Dair
	-1 : 1.3 bar abs. +1 : 1.4 bar abs.	-1 : 1.3 bar abs. +1 : 1.4 bar abs.	-1 : 5.5 NI min ⁻¹ +1 : 8.5 NI min ⁻¹	-1 : 26.3 NI min ⁻¹ +1 : 39.6 NI min ⁻¹	
1	-1	-1	-1	-1	+1
2	+1	-1	-1	-1	-1
3	-1	+1	-1	-1	-1
4	+1	+1	-1	-1	+1
5	-1	-1	+1	-1	-1
6	+1	-1	+1	-1	+1
7	-1	+1	+1	-1	+1
8	+1	+1	+1	-1	-1
9	-1	-1	-1	+1	-1
10	+1	-1	-1	+1	+1
11	-1	+1	-1	+1	+1
12	+1	+1	-1	+1	-1
13	-1	-1	+1	+1	+1
14	+1	-1	+1	+1	-1
15	-1	+1	+1	+1	-1
16	+1	+1	+1	+1	+1

Chacune des 16 expériences est réalisée de la manière suivante. La température de la pile est maintenue à une valeur constante (température de 40°C mesurée et réglée en sortie de pile sur le circuit d'eau). Le stack est alimenté par de l'air humidifié (température dite de rosée de l'air à 25°C en amont du stack) et de l'hydrogène sec. Les débits de réactifs sont imposés à l'aide des régulateurs de débit massique placés en amont de la pile. Dans chacun des essais, les débits hydrogène et air sont maintenus à des valeurs constantes. Par exemple, dans l'expérience présentée sur la Figure V.5, leurs valeurs sont égales à 8.5 NI min⁻¹ and 39.6 NI min⁻¹. Quant à la régulation des pressions mesurées en amont du stack, elle est assurée par les déverseurs (vannes de contre-pression) qui sont associés sur le banc à des systèmes de régulation type PID.

La valeur du courant de charge est augmentée progressivement, par pas de quelques Ampères (Figure V.5). La puissance délivrée par le stack augmente alors petit à petit tandis que la tension de pile décroît. Lorsqu'une tension de cellule passe en dessous du seuil de sécurité préconisé par le constructeur de la pile (fixé ici à 380 mV), on cesse de faire délivrer du courant à la pile et l'expérience se conclut. La puissance maximale atteinte au cours de l'essai est alors relevée et cette valeur fait figure de réponse. Il est à noter que la puissance électrique maximale peut être obtenue pour des valeurs de courants différentes.

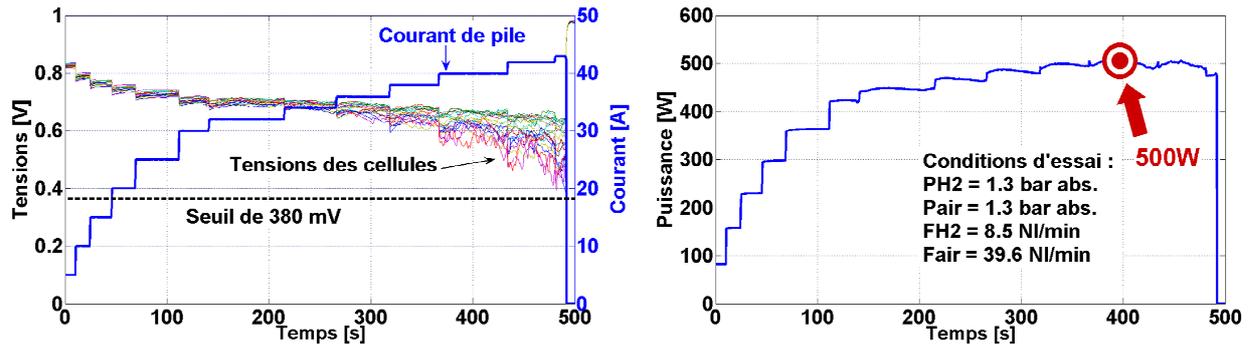


Figure V.5 : Evolutions des paramètres (courant de pile, tensions des cellules, puissance électrique du stack) durant l'expérience N° 13.

V.4.2.2 Analyse de variance

Pour comparer les effets des quatre facteurs sur la réponse de la PAC, des graphes des effets moyens pourraient être utilisés [Wahdame JPS 2006]. Nous choisissons ici d'analyser les résultats du PE avec un autre outil statistique : l'analyse de la variance (en anglais : ANalysis Of Variance, ANOVA, largement utilisée par les statisticiens [Taguchi 1986] [Pillet 1997]) qui permet de calculer les contributions respectives des facteurs physiques à la puissance maximale atteinte par la PAC. L'ANOVA nous permet de déterminer à partir de quel seuil un effet peut être considéré comme significatif. Pour ce faire, il faut comparer la variation d'un facteur pris en compte dans le modèle avec la variance dite résiduelle (témoignant des impacts de facteurs non pris en compte dans l'étude ou non contrôlés). Lorsque le facteur n'est pas pris en compte dans le modèle, l'effet du facteur est alors contenu dans la variance résiduelle. La variation de la variance résiduelle permet ainsi de déterminer si globalement le facteur a une influence significative sur la réponse, c'est-à-dire si au moins une des variables associées à chacun des niveaux des facteurs a un effet non nul.

L'ANOVA est réalisée à partir des 16 expériences du plan (Tableau V.3). Seules les interactions d'ordre un entre deux facteurs (PH2 * Pair par exemple) sont prises en considérations.

L'ANOVA a sept colonnes [Matlab Stat Toolbox].

La première colonne désigne la source de la variation.

La deuxième colonne représente le degré de liberté (ddl) de chaque facteur et interaction.

La troisième colonne est la somme des carrés des écarts (SCE) ; elle fait apparaître l'amplitude de la variation aléatoire affectant les observations concernant les effets et interactions.

La quatrième colonne présente le pourcentage de contribution (CTR %) de chaque facteur en décomposant la variation d'une réponse à partir des contributions apportées par chacun des facteurs et interactions dans le modèle.

La cinquième colonne concerne le calcul des carrés moyens des facteurs, des interactions et des erreurs afin de vérifier la significativité des différences espèces. Il correspond au rapport de SCE / ddl.

La sixième colonne représente la valeur du test de significativité Snedecor " F_{obs} ".

La septième colonne permet de déterminer à partir du seuil α choisi (relatif au test de Snedecor) l'importance de l'effet du facteur ou de l'interaction sur la réponse. En général, on considère qu'un facteur a un effet significatif quand la probabilité est inférieure à 0.05 – 0.01 [Matlab Stat Toolbox].

Les résultats de l'analyse de variance présentés dans le Tableau V.4 montrent notamment l'importance prépondérante sur la puissance maximale des effets du débit d'air (Dair), avec une contribution de 88.5%, et du débit d'hydrogène (DH2), avec une contribution de 6%. Dans le domaine expérimental considéré, les effets de ces facteurs sont par ailleurs beaucoup plus significatifs que les effets des deux pressions (probabilités supérieures à 0.05). De plus, le caractère significatif de l'interaction débit d'air * débit d'hydrogène (Dair * DH2) est mis en évidence par le tableau de l'ANOVA.

Les résultats de cette étude montrent que la technologie de PAC investiguée nécessite des stoechiométries élevées pour bien fonctionner. Ils suggèrent que le débit d'air en particulier participe activement à l'évacuation de l'eau produite dans la pile.

Cet exemple applicatif met en évidence l'intérêt de la MPE et de ses outils tels que l'ANOVA

Tableau V.4 : L'ANOVA pour le plan complet (16 puissances maximales mesurées).

Source de variation	ddl	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F _{obs}	Probabilité
PH2	1	749.4	0.8	749.4	2.99	0.144
Pair	1	199.5	0.21	199.5	0.8	0.413
DH2	1	5531.6	6	5531.6	22.1	0.005
Dair	1	82010	88.5	82010	327	≈ 0
PH2 * Pair	1	21.4	2e-3	21.4	0.09	0.781
PH2 * DH2	1	78.8	5e-3	78.8	0.31	0.599
PH2 * Dair	1	8.3	≈0	8.3	0.03	0.863
Pair * DH2	1	28.9	0.03	28.9	0.12	0.747
Pair * Dair	1	213.9	0.23	213.9	0.85	0.397
DH2 * Dair	1	2512.5	2.71	2512.5	10	0.024
Erreur	5	1252.1	1.35	250.4		
Total	15	92607				

V.4.2.3 Plan fractionnaire

Un plan factoriel fractionnaire peut être proposé à partir du plan complet comportant 16 essais. Un plan fractionnaire permet de réduire le nombre d'essais d'une manière intelligente, rationnelle. Les expériences sont alors menées et exploitées, tout en se laissant la possibilité de les compléter par une autre série d'essais bien choisis pour confirmer ou mettre en évidence d'autres résultats. L'idée clef de la méthode est que les effets principaux ont d'avantage de chance d'être plus importants que les interactions doubles, que les interactions doubles ont d'avantage de chance d'être plus importantes que les interactions triples, etc.

Le plan factoriel fractionnaire à construire doit quant à lui vérifier un certain nombre de propriétés dont la première est le nombre de degrés de liberté. Une autre condition à remplir est l'orthogonalité [Box 1978]. Nous allons donc chercher un des 15 demi-plans orthogonaux qui peuvent être extraits du plan complet et qui ne comportent pas de confusion entre les actions supposées non nulles du modèle. Si nous négligeons les interactions du quatrième ordre, nous pouvons couper le plan complet à l'aide du générateur d'alias $I = PH2 * Pair * DH2 * Dair$, et obtenir ainsi le plan fractionnaire correspondant aux seules lignes grisées du Tableau V.3 ($I = +1$). Le nouveau plan comporte alors 8 ($= 2^{4-1}$) expériences.

Une nouvelle ANOVA est réalisée à partir des huit expériences sélectionnées. Les interactions ne sont pas prises en compte (Tableau V.5). Les résultats obtenus viennent confirmer ceux de l'étude du plan factoriel complet, à savoir en particulier le degré d'importance du débit d'air (Dair) pour obtenir une puissance maximale, avec une contribution de 91%.

Chaque expérience se déroulant sur une durée approximative de 10 min (Figure V.5), la durée totale pour réaliser le plan fractionnaire est d'environ 80 min, moitié moins que celle nécessitée par le plan complet. L'approche plan fractionnaire apparaît donc particulièrement utile pour réduire la durée des essais.

Tableau V.5 : L'ANOVA pour le plan fractionnaire (8 puissances maximales considérées).

Source de variation	ddl	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F _{obs}	Probabilité
PH2	1	247.5	0.52	247.5	0.48	0.538
Pair	1	52.5	0.11	52.5	0.1	0.770
DH2	1	2397.8	5	2397.8	4.64	0.120
Dair	1	42997.8	91	42997.8	83.26	0.003

V.4.3 Exemple 3 :

Essai d'endurance d'un stack et fonctionnement robuste de la pile

V.4.3.1 Surfaces de réponse

Peu d'études ont été menées sur l'étude du vieillissement des PAC au moyen de la MPE. A titre d'exemple, les travaux de Rajeswari Chandrasekaran et al. peuvent être mentionnés [Chandrasekaran JPS 2008]. Pour mettre en avant un nouvel intérêt de la MPE et de ses outils dans le domaine des PAC, nous présentons ici une analyse expérimentale du premier essai d'endurance réalisé sur la plateforme de Belfort [Wahdame Thèse 2006] [Wahdame IJHE n°34 2009]. Le vieillissement étant un phénomène extrêmement complexe à modéliser, nous avons privilégié une approche expérimentale appelée méthodologie des surfaces de réponses (MSR) qui permet notamment au final la recherche d'un optimum au sein d'un domaine expérimental donné. La MSR a été utilisée pour modéliser la dégradation des performances d'un PAC au cours du temps. La dégradation a été observée à partir de relevés de courbes de polarisation (courbes courant – tension de pile) enregistrés à intervalles de temps réguliers au cours de l'essai d'endurance et pour différents facteurs de stœchiométrie cathode [Wahdame ISIE 2006]. Par ailleurs, l'approche des Surfaces de Réponses Duales (SRD) a été mise à profit pour déterminer les conditions d'essais favorables (courant de charge, stœchiométrie cathode) menant à un compromis entre de performances électriques élevées au niveau du stack et une faible variabilité des tensions dans la pile en fonction du temps et de la position des cellules dans la pile [Wahdame IECON 2006] [Wahdame IEEE TEC 2008].

La PAC étudiée est similaire à celle qui a servi de support aux essais et analyses décrits dans les parties précédentes. Cependant, elle ne comporte que trois cellules.

Des informations précises sur les protocoles de test mis en place pour assurer l'essai de vieillissement, les caractérisations régulières, sur les résultats d'essai peuvent être trouvées dans différents documents [Wahdame ISIE 2006] [Wahdame IECON 2006] [Wahdame IEEE TEC 2008].

Ici, l'analyse proposée est faite à partir des courbes de polarisation recueillies au cours du temps pour différents facteurs de stœchiométrie anode / cathode (FSA / FSC) : 2/5, 2/4 et 2/3.

Chaque courbe de polarisation est réalisée en incrémentant progressivement le courant de 0 à 70 A. Quand la valeur du courant vaut 70 A ou quand l'une des trois tensions de cellules atteint le seuil minimum de 380 mV, le relevé de la courbe de polarisation est arrêté.

Les courbes de polarisations relatives à chacun des quatre couples de surstœchiométries peuvent être affichées en trois dimensions, en « 3D », sous la forme d'une nappe, en fonction de la durée de vieillissement. Les lignes de niveaux correspondant à la tension de pile apparaissent dans le plan Temps – Courant. Par exemple, pour les surstœchiométries FSA/FSC = 2/5, nous obtenons la nappe de la Figure V.6.

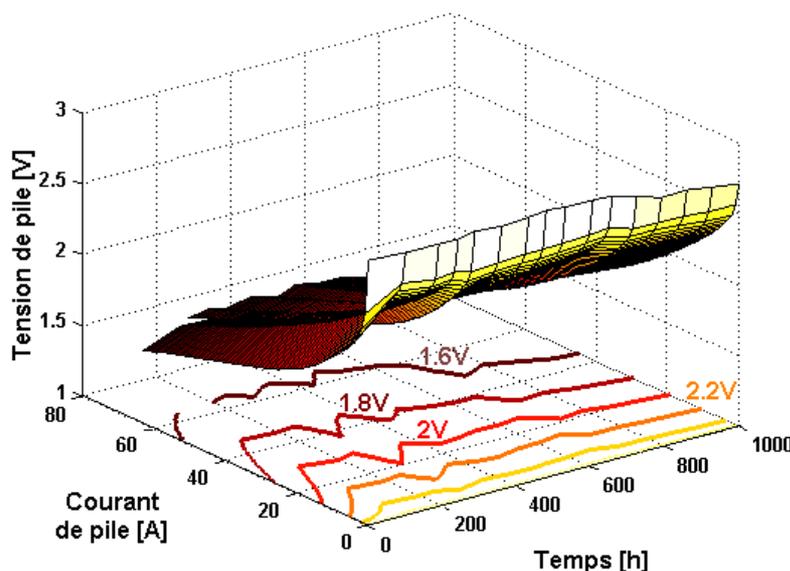


Figure V.6 :
Affichage en 3D de l'ensemble
des relevés de courbe de
polarisation
[Wahdame ISIE 2006].

Chapitre V

Ces lignes de niveaux font apparaître une amélioration des performances de la pile pendant les 100 premières heures de fonctionnement. Les 200 heures suivantes correspondent à une période de stabilisation des performances. C'est entre la 300^{ème} et 400^{ème} heure de fonctionnement qu'apparaît une dégradation du rendement de tension de la pile. Celle-ci s'effectue de manière plutôt régulière. Les petits pics présents sur les lignes de niveaux « tension de pile » peuvent quant à eux être attribués aux impacts des séquences de caractérisation réalisées, voire aussi à quelques arrêts forcés de la procédure de vieillissement qui ont eu lieu suite à des problèmes techniques rencontrés soit au niveau du banc de test, soit au niveau de l'équipement de la plateforme. Ce genre de graphique fournit déjà une représentation visuelle claire et simple du vieillissement de la PAC. Néanmoins, cette manière de faire ne peut pas s'avérer suffisante si, par exemple, il nous faut trouver les conditions de fonctionnement optimales de la pile menant à la tension de pile la plus élevée en fonction du temps, ou bien s'il faut déterminer de manière précise l'impact du temps et de la position des cellules sur les performances dans le stack. Pour cela, un modèle numérique / statistique de la dégradation de la pile est nécessaire. Par ailleurs, il faut aussi constater qu'une quantité de données importante doit être analysée au regard du nombre de facteurs (et de leurs niveaux) à considérer : les 16 séquences de caractérisation (à $t = 0h$, $t = 101 h$, $t = 190 h$, ... , $t = 923 h$, $t = 995 h$) [Wahdame ISIE 2006] [Wahdame IECON 2006] [Wahdame IEEE TEC 2008], le nombre de cellules dans la pile égal à trois, la gamme de courant et de stœchiométrie cathode prises en compte. Dans cette optique, nous appliquons dans le prochain paragraphe la Méthodologie des Surfaces de Réponse (MSR).

Dans la première partie de notre étude, les facteurs considérés sont la durée ou temps de vieillissement (associé à la variable t), la surstœchiométrie air (FSC) et le courant de charge (I). La tension de PAC est la réponse ($U_{\text{stack MSR}}$). Les niveaux adoptés pour les facteurs sont récapitulés dans le [Tableau V.6](#).

Tableau V.6 : Niveaux des différents facteurs.

Facteurs	Niveaux			
	Minimum	Intermédiaire	Maximum	Nombre de niveaux
Temps de vieillissement (t)	0 h	Temps liés aux caractérisations	1000 h	16
FSC (FSC)	3	4	5	3
Courant (I)	0 A	Pas de 10 A	70 A	8

Dans le cadre des plans destinés à l'étude des surfaces de réponse, une forme de modélisation est généralement retenue : il s'agit des modèles polynomiaux du second degré, qui lient la réponse y aux i facteurs et peuvent s'écrire sous la forme générale suivante :

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i \cdot x_i + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} \cdot x_i^2 + \sum_{i=1}^k \sum_{j>i}^k \beta_{ij} \cdot x_i \cdot x_j + \beta_{1:k} \prod_{i=1}^k x_i + \varepsilon \quad (6)$$

Les termes de premier degré ainsi que la constante β_0 permettent de définir un hyperplan, auquel viendront s'ajouter les courbures représentées par les termes du second degré. D'un point de vue terminologique, β_0 correspond à la moyenne arithmétique des réponses, β_i aux effets des facteurs, β_{ii} aux effets quadratiques, β_{ij} aux interactions entre facteurs et $\beta_{1:k}$ à l'interaction entre tous les facteurs. La variable ε représente l'erreur du "fitting", de l'estimation des paramètres du modèle par la méthode des moindres carrés.

Le modèle quadratique de la tension de pile généré à partir du PE précédemment décrit (notamment dans le [Tableau V.6](#)) a la forme suivante :

$$\begin{aligned} U_{\text{stack MSR}} = & 1.811074 - 0.118371 \cdot t_c + 0.029318 \cdot \text{FSC}_c \\ & - 0.621122 \cdot I_c - 0.061091 \cdot t_c^2 - 0.013025 \cdot \text{FSC}_c^2 + 0.323302 \cdot I_c^2 \\ & + 0.063182 \cdot t_c \cdot \text{FSC}_c - 0.066317 \cdot t_c \cdot I_c + 0.043855 \cdot \text{FSC}_c \cdot I_c \\ & + 0.045029 \cdot t_c \cdot \text{FSC}_c \cdot I_c + \varepsilon \end{aligned} \quad (7)$$

Le coefficient R^2 de corrélation multiple obtenu lors de la régression est égal à 0.9736.

Des valeurs centrées normalisées (d'où l'indice c sur les variables) ont été utilisées dans les calculs permettant d'établir l'expression numérique. Ce modèle permet de représenter sous forme de contours iso-tensions l'évolution des performances électriques de la PAC en fonction du courant de charge et du temps, et pour une stœchiométrie cathode donnée (Figure V.7).

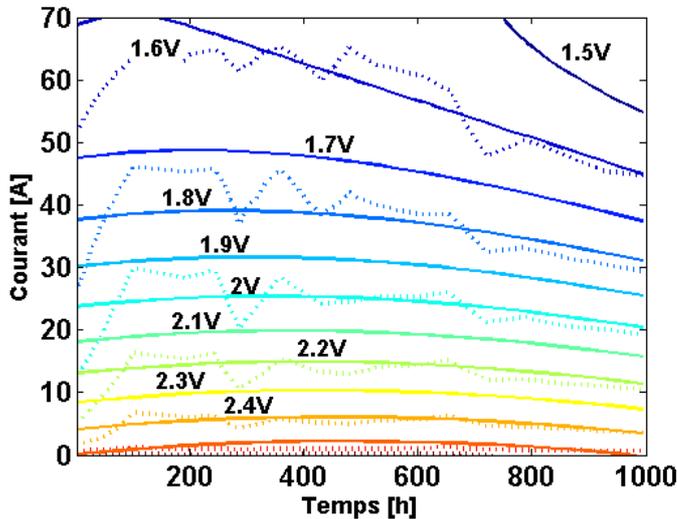


Figure V.7 :
Superposition des courbes iso-réponses relatives à la tension de pile mesurée (...) et prédite (-) pour FSC = 5.
[Wahdame ISIE 2006].

Le modèle de l'équation peut être utilisé à des fins d'optimisation pour déterminer le facteur de stœchiométrie cathode optimal conduisant à la tension de pile la plus élevée possible dans le domaine expérimental Temps - Courant exploré.

La Figure V.8 fait apparaître les résultats de l'optimisation. Au début de l'essai d'endurance, FSC égal à trois permet d'obtenir les meilleures performances pour les basses valeurs de courant. Avec le temps, une surstœchiométrie cathode égale à cinq devient nécessaire pour atteindre des tensions de pile élevées. Ce résultat peut être pris en considération par exemple pour dimensionner ou concevoir un compresseur alimentant en air le système PAC. En effet, le besoin en comburant au niveau du stack augmente avec le temps, de sorte que la consommation de l'auxiliaire compresseur devient au fur et à mesure également plus élevée.

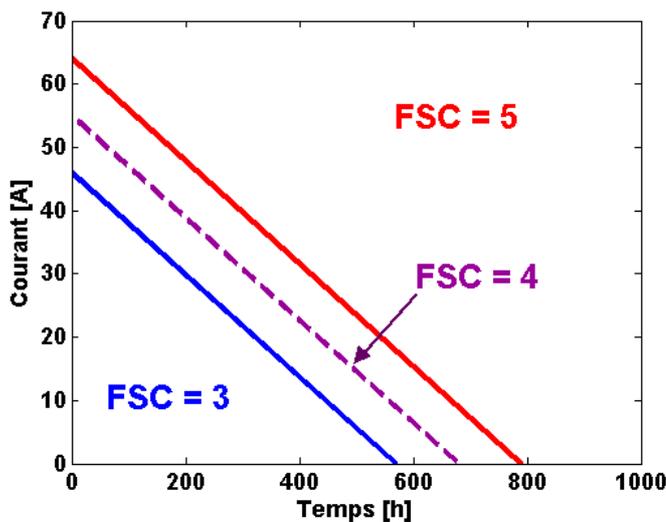


Figure V.8 :
Valeurs de FSC menant aux tensions de PAC les plus élevées
[Wahdame IEEE TEC 2008].

V.4.3.2 Surfaces de réponse duale

Un autre objectif consiste à trouver les conditions opératoires qui permettent d'atteindre au cours du temps lié au vieillissement à la fois des tensions de stack élevées et un bon niveau d'homogénéité des tensions cellules (soit en considérant une cellule « moyenne » et en analysant ses variations vis-à-vis du temps, soit en considérant l'ensemble des tensions unitaires dans l'empilement. Dans les différents cas, ces faible variabilité des tensions est synonyme d'un bon état de santé de la PAC). Les niveaux de courant et de FSC doivent donc être déterminés en conséquence, pour réduire l'impact du temps sur la performance électrique globale au niveau de l'empilement. Dans ce cas, le temps peut être vu comme une source ou un facteur de bruit et les techniques des MSR / SRD peuvent être utilisées pour choisir les bons paramètres contrôlables (niveaux de courant, de FSC) dans un contexte de problème de robustesse. L'approche SRD, qui apparaît bien adaptée au besoin ainsi exprimé, est très liée au concept de « plan produit » ou « plan croisé ». Ce type de plan permet l'acquisition des données expérimentales et consiste à croiser deux plans, un pour les facteurs contrôlés (le plan principal) et un second pour les facteurs bruits (le plan bruit). Le plan produit consistera à répéter les expériences du plan principal pour chaque configuration des paramètres bruits apparaissant dans le plan produit. Cette présentation originale permet de réaliser la double optimisation qui permettra d'obtenir des systèmes fonctionnant de façon optimale, même dans un environnement bruité. Dans notre étude, la réponse représente la tension de sortie de la PAC (U_{pile}). Les facteurs contrôlés sont le courant de charge (I) et le taux de surstœchiométrie d'air (FSC). Ces deux facteurs forment un plan principal de dimensions (8 × 3). Le facteur bruit est le temps de vieillissement (t). Les niveaux adoptés pour les facteurs ont déjà été récapitulés dans le [Tableau V.6](#). Le plan produit résultant de dimension (8 × 3) × 16 est résumé par le [Tableau V.7](#).

Tableau V.7 : Plan produit mis en œuvre pour collecter les données.

Plan principal, Facteurs contrôlables : x			Plan produit, facteur bruit : z			
			n°	(1)	(2)	(16)
n°	FSC	I	t	H0	H101	H995
(1)	3	0		y ₁₋₁	y ₁₋₂	y ₁₋₁₆
(2)	3	10		y ₂₋₁	y ₂₋₂	y ₂₋₁₆
(3)	3	20		y ₃₋₁	y ₃₋₂	y ₃₋₁₆
(22)	5	50		y ₂₂₋₁	y ₂₂₋₂	y ₂₂₋₁₆
(23)	5	60		y ₂₃₋₁	y ₂₃₋₂	y ₂₃₋₁₆
(24)	5	70		y ₂₄₋₁	y ₂₄₋₂	y ₂₄₋₁₆

Dans l'approche SRD, deux modèles empiriques sont établis. L'un sert à décrire l'évolution moyenne de la réponse en fonction des facteurs. L'autre donne une expression de la variabilité observée dans la réponse. Le développement théorique des équations du modèle sous-jacent peut être trouvé dans [\[Wahdame IECON 2006\]](#).

Les deux relations mathématiques sont utilisées simultanément de manière à aboutir d'une part à la réponse moyenne cible et d'autre part à une variabilité de la réponse minimale vis-à-vis des facteurs non contrôlés. Pour parvenir à cet objectif, deux surfaces de réponses sont élaborées grâce aux deux équations. Les lignes de niveaux (ou contours) iso-réponses de la moyenne et de la variance, relatives aux deux surfaces, sont réunies sur une même surface de manière à faire apparaître la surface de réponse duale. Au final, une analyse graphique peut être faite pour déterminer les conditions les plus favorables.

La figure fait apparaître la surface de réponse duale relative à la puissance d'une cellule « moyenne ». Les expressions mathématiques permettant d'aboutir à l'affichage des iso-réponses peuvent être trouvées dans [\[Wahdame Thèse 2006\]](#) [\[Wahdame IECON 2006\]](#).

Par exemple, pour une valeur cible de puissance de cellule égale à 30W, une simple analyse graphique indique qu'il vaut mieux fonctionner à un courant de 57 A, ceci afin d'obtenir un rendement de tension le plus élevé possible ([Figure V.9](#)). Pour cette valeur de courant, FSC = 5 réduira l'impact du temps de vieillissement sur la variabilité de la tension de pile.

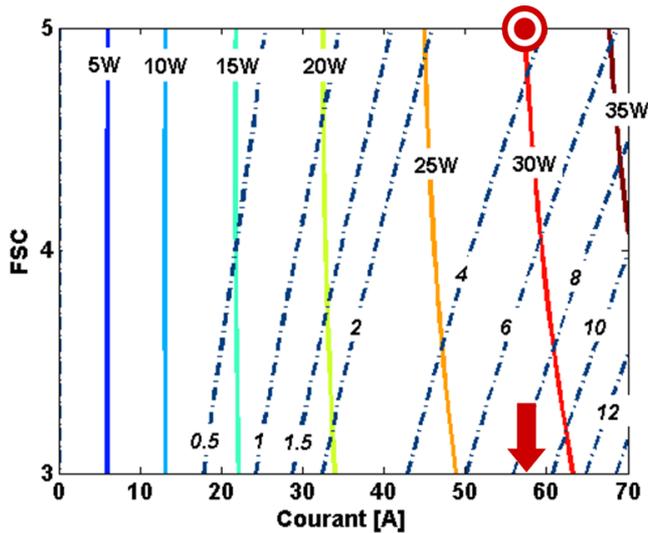


Figure V.9 :
Surface de Réponse Duale
calculée pour la puissance
d'une cellule "moyenne" (le
temps lié au vieillissement étant
le facteur bruit)
[Wahdame IECON 2006]
[Wahdame IEEE TEC 2008].

Nous n'avons présenté ici qu'un exemple de surface de réponse duale, pour laquelle seul le facteur temps a été considéré. Des analyses complémentaires sont présentées dans [Wahdame Thèse 2006] [Wahdame IECON 2006] [Wahdame IEEE TEC 2008] ; elles visent à prendre en compte également la position des cellules dans le stack.

V.5 Conclusion et perspectives

D'une façon générale, la technique des PE constitue un outil d'organisation et de gestion d'une campagne expérimentale destinée à apporter des éléments d'information, facilement interprétables sur le système étudié. La méthode des PE est constituée d'outils sûrs, pratiques permettant de conduire avec la meilleure efficacité possible une étude où interviennent de nombreux paramètres. Bien utilisée, elle doit conduire par exemple dans des phases d'élaboration de produits à des délais de conception et de production limités, à des coûts moindres, à une augmentation de la précision dans l'obtention des résultats, à une amélioration de la fiabilité. Ces avantages reposent sur le fait que la méthode s'appuie sur des fondements mathématiques rigoureux. La définition des expériences à réaliser permet notamment de construire des modèles d'exploration du domaine expérimental, modèles qui peuvent alors être utilisés à des fins d'optimisation.

Les générateurs PAC ont des performances qui dépendent fortement des conditions de fonctionnement liées à l'environnement dans lequel ils se trouvent. De plus, le pilotage de ces systèmes demeure délicat en raison du grand nombre de paramètres physiques mis en jeu tels que le profil du courant imposé par la charge, la température du stack, les températures, les pressions, les débits, l'hydratation des gaz... Un rapide état de l'art portant sur les différentes approches liées à la modélisation des PAC (Chapitre IV) permet de montrer que de forts besoins s'expriment en termes d'expérimentations, de métrologie, de rationalisation des essais, de modélisation des expériences. L'élaboration de modèles comportementaux et de connaissance demande en effet nécessairement des phases de tests importantes destinées à l'observation des phénomènes, à l'identification des paramètres et à la validation des propositions théoriques.

La MPE permet de définir de manière rationnelle les essais visant à caractériser rapidement et efficacement une PAC. Elle 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 facteurs. D'autre part, la caractérisation du générateur PAC par des PE a pour finalité de prédire le comportement du système vis-à-vis de ses paramètres de fonctionnement et d'envisager ainsi, par la suite, des stratégies de pilotage du système visant à optimiser un critère déterminant tel que la tension, la consommation d'hydrogène, la puissance électrique maximale, voire la durée de vie du stack.

Chapitre V

Un premier exemple de travail présenté dans ce chapitre a d'abord permis de montrer comment la méthode des PE pouvait s'inscrire dans une démarche scientifique et technique visant à aboutir à de meilleures compréhensions et représentations des phénomènes physiques intervenant dans les PAC. La première application de la méthodologie a concerné la caractérisation d'une zone physique particulière de pile, en l'occurrence : les membranes d'un stack PEM. Des résultats « parlants » ont pu être obtenus par l'utilisation de méthodes statistiques et par des représentations graphiques des effets et interactions des paramètres. Des modèles « statistiques » matriciels ont aussi été proposés pour exprimer la réponse (impédance des membranes de la pile étudiée) en fonction de différents paramètres opératoires, cette réponse pouvant constituer ultérieurement un sous-modèle d'un modèle physique plus global

Dans un deuxième temps, le travail présenté a montré que la méthodologie des PE pouvait être un moyen adapté pour organiser une campagne d'essais, réduire de manière rationnelle le nombre d'essais grâce à des plans fractionnaires. Un plan destiné à étudier l'influence des débits et des pressions, côté hydrogène et côté air, sur la puissance maximale de la pile a été réalisé sur une pile PEM 500 W utilisée en mode régulation de pression. Le plan complet comporte seize essais. Les analyses de la variance pour le plan complet et pour le plan fractionnaire (8 expériences choisies judicieusement parmi les 16 réalisées) ont conduit à des résultats sensiblement identiques, à savoir une influence majeure du facteur débit d'air sur le niveau de puissance maximal atteint par la pile étudiée.

Dans un troisième exemple, nous avons montré que la MPE est un moyen pertinent pour analyser un essai d'endurance mené sur une PAC (fonctionnement en régime stationnaire pendant 1000 heures) et pour déterminer ensuite les conditions opératoires les plus favorables à la PAC. La Méthode des Surfaces de Réponses (MSR) utilisée conduit, dans le domaine expérimental considéré, à la recherche d'une combinaison des facteurs satisfaisant au mieux les exigences exprimées en termes de réponse optimale. Dans notre cas, les résultats de l'optimisation réalisée mettent notamment en évidence la possibilité de fonctionner à des surstœchiométries faibles pendant les premières heures de fonctionnement de la PAC. Après deux cents, voire trois cents heures en fonction de la valeur du courant, les tensions les plus élevées ne sont plus atteintes que pour de fortes valeurs de surstœchiométrie. Dans la deuxième partie du chapitre, nous étudions plus particulièrement la robustesse de la PAC vis-à-vis du temps et des conditions opératoires adoptées durant l'essai d'endurance. L'approche des surfaces de réponses duales est appliquée pour estimer les rôles respectifs des facteurs courant, surstœchiométrie cathode, durée du vieillissement et position des cellules dans la pile sur le niveau de la tension du stack. Des conditions de fonctionnement optimales sont déterminées pour obtenir d'une part une tension la plus élevée possible, et d'autre part une variabilité en fonction du temps et au niveau des tensions de cellules la plus faible possible, ceci de manière à aboutir à une fiabilité potentiellement plus grande (réduction de l'impact du vieillissement sur les performances et diminution de l'occurrence des problèmes tels que les noyages, la formation de points chauds sur les membranes). Cette étude a notamment permis de montrer l'intérêt d'adopter des surstœchiométries variables au cours du temps pour aboutir d'une part à des performances élevées en terme de tension de pile et d'autre part à une diminution de la variabilité des tensions de cellules. D'une manière générale, le travail présenté montre que la MSR est un moyen approprié pouvant contribuer à caractériser, analyser et améliorer un ensemble aussi complexe qu'une PAC soumise à un vieillissement.

Nous pensons que les trois différentes études réalisées ont contribué à bien montrer les potentialités offertes par la MPE dans le domaine de la modélisation des générateurs PAC et en particulier dans le cadre d'une approche phénoménologique. Nous pensons ainsi avoir proposé, par la thèse de Bouchra Wahdame, un premier ensemble de travaux significatifs permettant de répondre à la problématique figurant en introduction de ce mémoire. Cette thèse a ainsi contribué à bien montrer certaines des potentialités offertes par la méthodologie des PE dans le domaine des recherches sur les systèmes PAC. L'intérêt pratique des méthodes, des outils logiciels développés peut être mis en avant car les travaux réalisés ont une portée et une finalité pratiques assez spécifiques à l'application PAC.

La méthodologie nous a semblé parfois quelque peu contraignante dans la mesure où nous n'étions pas toujours habitués au laboratoire à devoir réaliser des séries d'essais définies de manière très formelle.

Il est ainsi parfois apparu que certains tests venaient à manquer dans les bases de données existantes et que cela rendait par conséquent difficile leurs exploitations ultérieures par la MPE. Certains types de plans, non étudiés dans cette thèse tels que les plans optimaux, pourraient peut-être contribuer à faire face à ce problème. L'intérêt, voire la nécessité, de réaliser les essais dans un ordre quelconque (randomisation) a représenté une autre difficulté, en particulier vis-à-vis des changements de niveaux devant intervenir sur des paramètres physiques liés à des constantes de temps importantes (température, hygrométrie). Enfin, il est apparu que la problématique sous-jacente aux PE, relative à l'harmonisation et à la standardisation des moyens d'essais et des procédures de tests demandera encore beaucoup d'efforts aux expérimentateurs de PAC.

La MPE pourrait maintenant être mise en œuvre dans un contexte opératoire bien spécifique aux applications transports ; nous pensons en particulier au cas des cycles de courant issus de profils de mission dynamiques temps – vitesse du véhicule. L'objectif principal consisterait alors à mettre en place une gestion et un conditionnement optimaux des gaz réactifs se traduisant par des consommations en hydrogène limitées et des performances élevées au niveau de la pile (voire au niveau du groupe électrogène) sur le profil considéré. La MPE pourrait ainsi nous aider à déterminer les valeurs des paramètres liés à cette gestion optimale (par exemple : choix des niveaux et des variations de débits, de pressions, d'humidifications... sur un cycle donné, connu ou pas a priori). L'apport des PE serait certainement particulièrement intéressant dans la mesure où peu de modèles de connaissance dynamiques sont susceptibles d'apporter des réponses à cette problématique très complexe.

Pour conclure ce chapitre, une typologie succincte mais plus conceptuelle est proposée. Elle met en relation les problèmes posés dans la recherche sur les PAC et les différentes approches de PE que l'on peut trouver dans une littérature de plus en plus abondante. Des références de travaux correspondant aux différents types d'approches peuvent être trouvées dans [\[Wahdame IJHE n°34 2009\]](#).

Première caractérisation d'un stack PEM ou d'un système PAC inconnu, mais possédant des composants relativement classiques (membrane Gore par exemple) :

- Utilisation d'un plan de criblage (si possible fractionnaire) pour différents paramètres température de stack, pressions, débits, courant de charge, humidifications, sur des gammes relativement larges (exemple : 20°C – 80°C pour la température, avec quelques niveaux seulement). Quelques essais supplémentaires de validation pour éviter de faire un plan complet.

Ensuite :

- Utilisation de surfaces de réponse sur des gammes d'évolution des paramètres réduites qui peuvent conduire à la recherche d'optima. Gammes « intéressantes » déterminées également grâce à l'expérience et au savoir-faire acquis sur la caractérisation de ce type de pile et sur la connaissance de son comportement général. (exemple : pour la température, MSR sur la plage 60 – 80°C ou sur une plage délimitée correspondant à des démarrages ou fonctionnements à froid 20 - 30°C ou -10 - +10°C).

Puis :

- Optimisation des conditions de fonctionnement par exemple par des méthodes de type désirabilité, multi-objectifs (en prenant en considération plusieurs réponses : puissance, rendement du système PAC...).

Première caractérisation d'une zone physique de stack PEM inconnue :

- Plans de criblage

Volonté de déterminer la reproductibilité et la répétabilité d'essais :

- Plans produits

Essais de durée de vie, fiabilité et diagnostic :

- Plans d'optimisation, plans produits et/ou duaux.

V.6 Références

[Assoc. Expérimentique 2005]	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.
[Box 1978]	G. E. P. Box, W. G. Hunter, J. S. Hunter, Statistics for experimenters: an introduction to design, data analysis, and model building, John Wiley & Sons. 1978. ISBN 0-471-09315-7.
[Candusso CNRS 2008]	D. Candusso, J.M. Kauffmann, F. Harel, X. François (17 – 18 juillet 2008). Systèmes piles à combustible et modélisation de l'expérience. Présentation aux Journées CNRS Système PAC – Thème modélisation. Paris. CNRS - Délégation Paris Michel-Ange.
[Chandrasekaran JPS 2008]	Chandrasekaran R, Bi W, Fuller TF. Robust design of battery/fuel cell hybrid systems - Methodology for surrogate models of Pt stability and mitigation through system controls. Journal of Power Sources 2008;182(2):546-557.
[Dagnelie 2000]	Pierre Dagnelie. La planification des expériences: choix des traitements et dispositif expérimental. Journal de la Société Française de Statistique 141 (1-2), 5-29, 2000.
[FC Handbook 2000]	Fuel Cell Handbook (Fifth Edition). By EG&G Services Parsons, Inc. Morgantown, West Virginia 26507-0880. Octobre 2000.
[Fisher 1925]	Ronald Aylmer Fisher, Statistical Methods for Research Workers (1925) ISBN 0-05-002170-2.
[Fisher 1935]	Ronald Aylmer Fisher, The design of experiments (1935) ISBN 0-02-844690-9.
[Friede Thèse 2003]	Wolfgang Friede. Modélisation et caractérisation d'une pile à combustible du type PEM. Thèse de Doctorat à l'INPL. Nancy. 28 août 2003.
[Goupy 1988]	Jacques Goupy. La méthode des plans d'expériences : optimisation du choix des essais & de l'interprétation des résultats. Paris : Dunod, c1988. ISBN : 2-04-018732-4.
[Kouta 2004]	Raed Kouta. Ingénierie robuste et optimisation d'expériences. Cours MA72, proposés à l'école doctorale Sciences Pour l'Ingénieur et Microtechniques (SPIM) 2003/2004, UTBM.
[Matlab Stat Toolbox]	Statistics Toolbox, Optimization Toolbox For Use with MATLAB®, The MathWorks, Inc., http://www.mathworks.com .

Chapitre V

[Montgomery 2005]	Montgomery DC. Design and Analysis of Experiments. John Wiley and Sons, New York, 2005.
[Myers 1995]	Myers RH, Montgomery DC. Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments, John Wiley and Sons, first ed., 1995.
[Pillet 1999]	Maurice Pillet. Les plans d'expériences par la méthode Taguchi. Paris : Les Ed. d'Organisation, 1999, c1997, ISBN : 2-7081-2031-X.
[Taguchi 1986]	Taguchi G. Introduction to quality Engineering. Asian Productivity Organization (distributed by American Supplier Institute Inc., Dearborn, MI), 1986.
[Taguchi 1993]	Taguchi G, Yokoyama Y, Wu Y. Taguchi Methods: Design of Experiments. American Supplier Institute, Allen Park, Michigan, 1993.
[Vigier 1988]	Michel Vigier. Pratique des plans d'expériences : méthodologie Taguchi et compléments. Paris : Les Editions d'Organisation, c1988. ISBN : 2-7081-0850-6.
[Wahdame FC 2007]	Wahdame B, Candusso D, François X, Harel F, De Bernardinis A, Kauffmann JM, Coquery G. Study of a 5kW PEMFC using experimental design and statistical analysis techniques. Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007;1:47-62.
[Wahdame IECON 2006]	Wahdame B, Candusso D, François X, Harel F, Péra MC, Hissel D, Kauffmann JM. Dual Response Surface Approach for the Analysis of a Fuel Cell Durability Test. IEEE IECON 2006, Paris, France.
[Wahdame IEEE TEC 2008]	B. Wahdame, D. Candusso, X. François, F. Harel, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (décembre 2008). Analysis of a Fuel Cell Durability Test Based on Design of Experiment Approach. IEEE Transactions on Energy Conversion. Vol. 23, n°4, pp. 1093-1104.
[Wahdame IJHE n°34 2009]	B. Wahdame, D. Candusso, X. François, F. Harel, J-M. Kauffmann, G. Coquery (janvier 2009). Design of experiment techniques for fuel cell characterisation and development. Int. J. Hydrogen Energy. Vol. 34, n°2, pp. 967-980. Ed. Elsevier.
[Wahdame ISIE 2006]	Wahdame B, Candusso D, François X, Harel F, Péra MC, Hissel D, Kauffmann JM, Analysis of a Fuel Cell Durability Test using the Response Surface Methodology. IEEE ISIE 2006, Montréal, Canada.
[Wahdame JPS 2006]	Wahdame B, Candusso D, Kauffmann JM. Study of gas pressure and flow rate influences on a 500W PEM fuel cell, thanks to the experimental design methodology. J. Power Sources 2006;156(1):92-99.
[Wahdame Thèse 2006]	Bouchra Wahdame. Analyse et optimisation du fonctionnement de piles à combustible par la méthode des plans d'expériences. Thèse L2ES - UFC / UTBM. Soutenue le 21 novembre 2006. 214 pages + annexes.

VI	Expérimentation de PAC en environnement transport	179
VI.1	Rappel des contraintes opératoires liées à l'environnement transport.....	179
	- Le projet SPACT.....	179
	- Le programme SPACT80	180
	- Le projet CELINA.....	180
VI.2	Dynamiques de courant	182
VI.2.1	Les différentes plages de fréquences.....	182
VI.2.2	Dynamiques basses fréquences liées aux profils de mission véhicule	183
VI.2.2.1	Exemples de résultats. Gestion des réactifs	184
VI.2.2.2	Optimisation de la consommation en combustible et du rendement système sur profil de mission.....	188
VI.2.2.3	Un exemple de problème : vanne de contre-pression et gestion de l'air en dynamique.....	189
VI.3	Essais climatiques.....	191
VI.3.1	Contexte / problématique liés aux essais climatiques.....	191
VI.3.2	Description d'un moyen d'essai de la plateforme de Belfort	193
VI.3.3	Types de tests réalisés lors du projet CELINA	195
VI.3.4	Cas du stockage et démarrage d'un système PAC à basse température	195
VI.3.5	Synthèse des différents essais climatiques réalisés durant CELINA	198
VI.4	Essais vibratoires	201
VI.4.1	Contexte et problématique	201
VI.4.2	Banc d'essai vibratoire	202
VI.4.3	Procédure de test.....	205
VI.4.4	Résultats d'essai.....	205
VI.4.4.1	Exemple de résultat obtenu suivant la direction Y.....	205
VI.4.4.2	Observations concernant les trois directions.....	206
VI.4.4.3	Quelques observations relatives au test de fuite.....	207
VI.4.5	Synthèse des essais vibratoires réalisés lors du projet CELINA.....	207
VI.5	Conclusion et perspectives	208
VI.6	Références	210

VI Expérimentation de PAC en environnement transport

Sur le plan expérimental, le développement de générateurs PAC aptes à répondre au besoin des applications transport implique de mener des travaux qui vont au-delà des nécessaires essais « classiques » de caractérisation des PAC (du type relevé de courbe de polarisation, de spectre d'impédance...), décrits dans le [Chapitre IV](#). Des expérimentations bien spécifiques à l'environnement transport sont aussi nécessaires et les conditions réelles d'usage doivent être dupliquées en laboratoire. Un environnement expérimental adapté doit être prévu en conséquence [[Kauffmann CVELEC'02](#)]. Des moyens d'essai complexes et onéreux doivent ensuite être conçus et réalisés. Les essais à envisager s'avèrent aussi souvent longs et difficiles à réaliser mais, en général, ils sont néanmoins loin de donner lieu à de simples collectes d'essais bruts. Des comportements de pile intéressants, voire inattendus, peuvent en effet susciter des interrogations, conduire à des propositions et à des développements scientifiques non négligeables par exemple en termes de phénoménologie, ou bien encore de mise au point de lois de gestion de l'énergie.

VI.1 Rappel des contraintes opératoires liées à l'environnement transport

Les contraintes opératoires sévères liées à l'environnement transport ont déjà été évoquées dans le [Chapitre I](#). L'environnement transport se distingue par des contraintes particulièrement fortes avec du cyclage électrique, thermique, fluïdique pour les générateurs électrogènes et dans un milieu (air ambiant, combustible, liquide de refroidissement) au sein duquel peut être présent un certain nombre d'éléments agissant comme des contaminants pour le générateur PAC (CO par exemple). L'environnement climatique peut s'avérer également sévère (température ambiante maximale (+55°C). Température ambiante minimale : -20°C, voire en deçà : -40°C pour les applications terrestres. Bien moins encore pour les applications aéronautiques (-75°C) [[CELINA DoW 2005](#)] [[Doc RCTA 2004](#)]). Le cas particulier des démarrages à froid peut s'avérer particulièrement problématique à traiter. L'environnement mécanique (vibrations) est aussi à prendre en considération, en particulier vis-à-vis de la sûreté de fonctionnement des systèmes PAC embarqués.

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons successivement à l'impact des sollicitations dynamiques de la charge exercée par la chaîne de traction sur la PAC, à l'influence des environnements climatique et vibratoire sur la pile et sur son système. Les contraintes sur la durée de vie liées à l'environnement transport seront plus spécifiquement traitées au [Chapitre VII](#).

Différents projets de recherche auront servi de support aux résultats de travaux présentés dans ce chapitre. Parmi lesquels SPACT, SPACT80 et CELINA.

- Le projet SPACT

Le projet SPACT (Systèmes Pile à Combustible pour les Applications Transport) correspond à une proposition enregistrée et labellisée par le réseau technologique PACo sous le numéro PF-99-46. Ce projet, qui a débuté en 2002 et pris fin début 2004, a été réalisé dans le cadre d'une collaboration entre l'INRETS (LTE et LTN), les universités du pôle génie électrique Grand-Est, l'UFC et l'UTBM (L2ES à Belfort) ainsi que l'INPL et l'UHP (laboratoire GREEN à Nancy), le CEA, Armines et la DGA. Le comité de pilotage comprenait, outre les partenaires du projet, des représentants de l'Etat, de la Région Franche-Comté et le CNRT INEVA. Le projet SPACT a porté sur la création d'outils de recherche destinés à la modélisation, à la simulation et à la validation expérimentale de systèmes PAC pour les applications transports. Il a accompagné dans son déroulement la réalisation de la plateforme d'essais de Belfort et la création d'un pôle de compétence entre les laboratoires partenaires.

Le projet comportait essentiellement deux volets : le développement d'un outil de simulation d'une part et la définition, l'acquisition d'un outil de validation expérimentale d'autre part. Le logiciel proposé s'est organisé autour d'une base de simulation dynamique d'un système pile de type PEM,

fourni par le CEA, et des « briques » complémentaires ont été apportées par les autres partenaires. La contribution du L2ES de Belfort a ainsi concerné la simulation du groupe moto-compresseur et la modélisation thermique du stack. Les travaux réalisés par l'INRETS à Belfort dans le cadre de SPACT ont quant à eux été principalement de nature expérimentale. Des essais nombreux et variés ont en effet pu être réalisés lors de ce projet dans le but de recueillir des données d'essais fiables permettant de mieux appréhender le comportement électrique, thermique, hydraulique et électrochimique de la pile étudiée [Candusso FDFC 2004] [Candusso IJHE n°31 2006]. Une première étude a été menée par l'INRETS sur l'influence de la forme d'onde du courant (amplitude ΔI et fréquence du signal) au niveau de la pile. Cette étude faite sur les plages de ΔI et de fréquence disponibles n'a pas permis de constater une amélioration ou une dégradation notable du rendement de la pile en fonction des paramètres considérés. Une cinquantaine de relevés de courbes de polarisation a ensuite été effectuée à partir de janvier 2004. Les enregistrements permettent notamment d'observer l'incidence du courant, des pressions, de la température ou des débits sur la tension de pile. Des essais dynamiques sur profils de mission type transport (en modes ouvert et anode fermée) ont également été réalisés. L'originalité de ces expériences réside dans le fait qu'elles ont été effectuées sur la base de contraintes liées à un environnement transport (solicitations aux fréquences de fonctionnement des convertisseurs électriques embarqués ; dynamiques de courant issues de profils de mission).

- Le programme SPACT80

Le programme SPACT80 avait pour objectif le développement et l'expérimentation d'un groupe électrogène à PAC de puissance pour chaînes de traction hybrides. Deux plateformes roulantes ont servi de support applicatif aux développements techniques et scientifiques : un locotracteur ferroviaire et un véhicule tout-terrain militaire.

Sept partenaires ont été impliqués : la SNCF et la DGA (Délégation Générale pour l'Armement) qui étaient les deux utilisateurs potentiels finaux du générateur PAC, le CEA, le CNRS (Fédération Jacques Villiermaux de Nancy), l'INRETS, le FC LAB et Héliion, qui a développé pour la première fois dans le cadre de ce projet une PAC hydrogène/air de forte puissance. Le programme SPACT80 a été réalisé à partir de 2005 (d'abord dans le cadre du réseau PACo puis grâce au soutien de l'ANR) en trois différentes phases constituant autant de projets distincts vis-à-vis du Ministère de la Recherche.

Les développements scientifiques ont permis de cumuler plus de 33000 heures d'essais visant à optimiser la conception du système PAC final. Les expériences ont été réalisées sur trois échelles différentes : monocellules (9 W), ministacks (600 W) et stack prototype de 90 cellules (30 kW). Les essais envisagés dans des conditions opératoires non optimales ou extrêmes (pollution des réactifs) ont le plus souvent été menés sur des monocellules par le CEA et le CNRS. Des essais de durée de vie (Chapitre VII) ont été réalisés simultanément par le CNRS et le FC LAB afin de vérifier l'homogénéité de comportement entre monocellules et stacks pilotes (i.e. petits empilements) [Bonnet JPS 2008]. Les essais sur les piles de puissances ont été réalisés à Belfort (module de 30 kW dotée de 90 cellules) et chez Héliion (stack définitif de 50 kW). Des essais statiques (courbes de polarisation) et sur cycles transports ont été réalisés [Harel FDFC 2008] [De Bernardinis Lucerne 2009].

Héliion a pu au final concevoir un générateur complet associant deux stacks de puissance hydrogène - air. La conception a duré environ un an, en intégrant des essais de validation des composants principaux : compresseur, humidificateur, re-circulateur d'hydrogène et échangeur air-eau. Les stacks de puissance ont tous deux démontré une capacité brute de 60 kW entre octobre et décembre 2006. L'intégration du système a été effectuée au premier semestre 2007, avec un premier démarrage complet en août 2007. Les essais complets ont rapidement montré la capacité du système à fonctionner conformément aux cahiers des charges, en dépit de quelques difficultés rencontrées au niveau des organes auxiliaires. La PAC a pu délivrer jusqu'à 70 kW_e dans un contexte d'essais en laboratoire [Boblet 2009].

- Le projet CELINA

Le projet européen CELINA (fuel cell application in a new configured aircraft [Summary CELINA 2008] [Fuel cell bulletin N°9 2006]) (STREP EU FP6, Contract N° AST4-CT2005-516126, Project N° 516126) s'est déroulé de janvier 2005 à juin 2009. Le coordinateur du projet était Airbus Deutschland GmbH et les autres partenaires étaient les suivants : Air Liquide, Dassault, Diehl Avionik Systeme, EADS, Energy Research Centre of the Netherlands (ECN), Deutschen Zentrum für Luft und Raumfahrt

Chapitre VI

(DLR), Germanische Lloyd, University of Applied Science Hamburg (HUAS), University of Hanover (IfS), INPT, IRD Fuel Cell, Joint Research Centre – Institute for Energy (JRC-IE), Josef Stefan Institute (JSI), KID, L2ES/UTBM/INEVA, THALES, University of Patras (UPAT).

Ce projet s'est inscrit dans le contexte global des recherches portant sur l'avion « plus électrique » qui doit permettre d'atténuer les impacts de l'aviation civile sur l'environnement en termes de consommation d'énergies fossiles, d'émissions polluantes et de bruit. Certains systèmes pneumatiques et hydrauliques présents dans les appareils tendant à être peu à peu remplacés par des organes électriques, il va devenir nécessaire de trouver un générateur électrique performant, à haut rendement, capable d'alimenter ces derniers. Dans cette perspective, l'utilisation d'hydrogène comme combustible et la mise en œuvre de systèmes PAC à bord des avions doivent être considérées en particulier pour proposer des alternatives aux générateurs APU actuels basés sur des turbines à gaz. L'intérêt des PAC est multiple : elles ont un rendement élevé, elles peuvent permettre d'envisager une réduction de la consommation de kérosène, une diminution des émissions polluantes (CO et de NOx) et une limitation du bruit. Les systèmes PAC souffrent aussi d'handicaps. Leur puissance massique est inférieure à celle des APU actuelles ; et leurs temps de démarrage sont plus longs, en particulier si le combustible (hydrogène ou mélange hydrogéné) doit être produit à partir de kérosène via un reformeur. Par ailleurs, des réductions de coûts au niveau des PAC sont encore à envisager et la question de la fiabilité / durée de vie de ces systèmes dans un environnement aussi contraignant / exigeant que celui des applications aéronautiques est encore à traiter. Il faut en particulier considérer les conditions de vol conduisant à des températures très basses [Doc RCTA 2004] et les variations de températures très importantes qui s'exercent sur l'avion et sa structure pendant les phases de décollage et d'atterrissage. Dans un premier temps, la PAC pourrait aussi être utilisée à bord des avions en tant qu'alimentation de secours (en remplacement de la RAT - Ram Air Turbine - une petite hélice qui se déploie en vol et qui connectée à un générateur fournit de l'électricité). Un projet comme CELINA peut être considéré comme important pour la plateforme de Belfort si l'on considère comme certains que, dans le domaine des transports, le marché des PAC pourrait être initié par les applications liées au domaine de l'aéronautique.

Dans le cadre du projet, des modèles de générateur à PAC ont été développés par différents partenaires en vue de l'intégration future du système pile à bord des avions de prochaines générations. Le L2ES - FC LAB, en collaboration avec le Joint Research Centre Institute for Energy (JRC-IE) et DLR (Centre de l'Aérospatiale Allemande), était en charge des tests à mener sur le stack (puissances électriques : de 2.5 à 3.5 kW en fonction du niveau de pression choisi : pression atmosphérique ou pression totale de 2 bar abs.). Pour Belfort, les objectifs du projet européen CELINA étaient les suivants : caractériser par des courbes de polarisation et dans différentes conditions opératoires (de pression, d'hygrométrie des réactifs) une PAC de type PEM fournie par le fabricant danois IRD [IRD], évaluer les possibilités techniques offertes par cette technologie de PAC existante et soumise à des conditions de fonctionnement difficiles et spécifiques à l'aviation : fortes dynamiques de courant, fonctionnements et démarrages à basses températures [Bégot ECM 2010], phénomène d'appauvrissement de l'air en oxygène dû à l'altitude, impacts des mélanges de carburant issus du reformeur de kérosène, environnement vibratoire [Rouss IJHE n°22 2008] [Rouss IJHE n°21 2008]. Au-delà de l'aspect étude de faisabilité technique, le programme avait aussi pour autre objectif important d'établir les besoins en termes de sécurité et de sûreté de fonctionnement liés à l'utilisation future de la PAC dans l'aviation. Les grands équipements spécifiques de la plateforme belfortaine (banc de test dit 20 kW, chambre climatique, dispositifs de mélange des gaz, table vibrante) ont ainsi été mis à contribution pour reproduire en laboratoire et au mieux les conditions de fonctionnement liées à un environnement de type aéronautique.

Le projet européen CELINA a donc demandé la réalisation et la mise en œuvre de moyens expérimentaux à la fois considérables et variés.

D'autres résultats présentés dans ce chapitre sont issus de travaux menés au L2ES lors de la convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02 (« Influence de l'environnement sur les performances et le vieillissement des PAC PEM ») et de l'Action Concertée Incitative CNRS L2ES - LSGC VITAPAC (« Etude des causes du vieillissement des PAC de type PEM »). Ces projets de recherche seront présentés plus en détail au [Chapitre VII](#).

VI.2 Dynamiques de courant

VI.2.1 Les différentes plages de fréquences

Les dynamiques de charge, ou de courant, se caractérisent notamment par leurs fréquences. Dans le cas des applications transport (cas que l'on pourrait étendre ici à celui des applications stationnaires), il est possible de distinguer trois principaux domaines de fréquences :

- la plage des Hautes Fréquences - HF (de 100 kHz à 1 kHz environ), qui est celle liée à la commutation des convertisseurs électronique de puissance utilisés comme interface entre la PAC et le bus continu de la chaîne de traction du véhicule,
- la plage des Fréquences Intermédiaires (FI) (de 1 kHz à 1 Hz environ), qui correspond notamment aux temps de réponses des correcteurs impliqués dans les boucles de régulation de courant, de tension des systèmes PAC,
- la plage des Basses Fréquences (BF) (inférieures au Hz) qui est celle des profils de mission transport du type temps – vitesse du véhicule.

Une correspondance peut être établie entre ces trois plages de fréquences et différents types de modèles électriques évoqués au [Chapitre IV](#). La [Figure VI.1](#) établie à partir d'un graphe d'impédance de PAC 5kW associe de manière synthétique les trois domaines de fréquences considérés à trois types de modélisation.

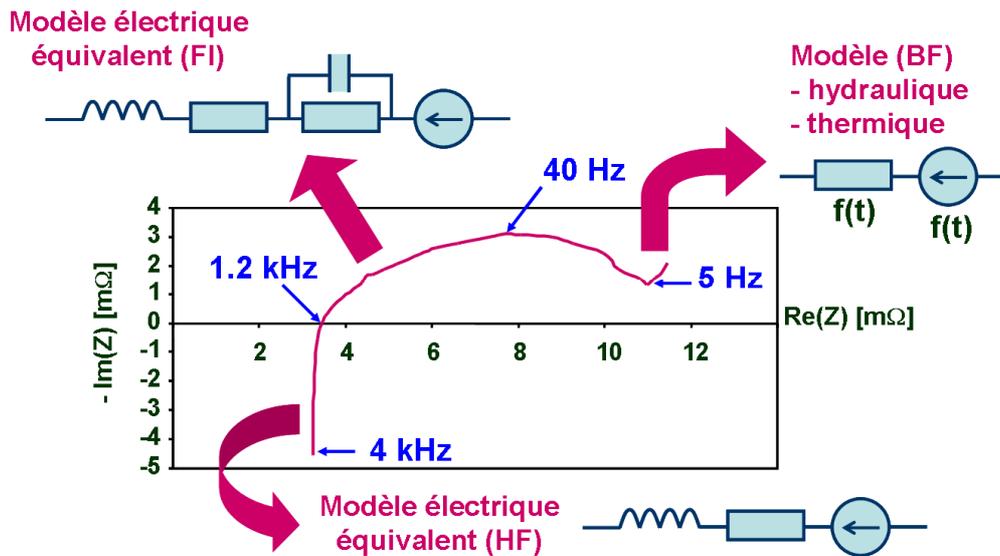


Figure VI.1 : Spectre d'impédance et correspondance plages de fréquences - modèles électriques [Candusso Thèse 2002].

Les convertisseurs électroniques assurant l'interface PAC – bus continu peuvent imposer sur la pile des formes d'ondes courant – tension particulières ([Chapitres II et IV](#)). En particulier :

- à la fréquence de quelques kHz (fréquence de commutation des transistors de puissance),
- à des fréquences caractéristiques plus basses, induites par les régulations des grandeurs électriques, parfois liées à l'application (incidence possible des fréquences des phases de l'onduleur de la chaîne de traction du véhicule, ou onde 50 Hz / 60 Hz dans le cas d'une application stationnaire).

Dans de nombreux travaux et réalisations, les PAC sont souvent associées à des convertisseurs du type hacheur parallèle (« boost ») qui donnent lieu à des formes d'ondes courant – tension somme toute « classiques » pour un électrotechnicien. L'impact de ce type de sollicitation sur la durée de vie de la pile doit cependant encore être évalué ([Chapitre VII](#)) et la question du filtrage demeure posée

(nécessité ou pas de mettre en œuvre des capacités entre la PAC et le convertisseur). Ces problématiques d'interaction PAC – électronique peuvent se poser avec plus d'acuité encore dans le cas de topologies de convertisseurs plus sophistiqués [Lefèvre Thèse 2004] (tels que des convertisseurs à résonance) qui sont susceptibles d'imposer à la PAC des formes d'ondes plus « chahutées », voire d'entraîner éventuellement des phases de conceptions discontinues sur la PAC (phases où le courant est nul). Une bonne compréhension des phénomènes de dégradation susceptibles d'intervenir dans les piles (liés par exemple aux fonctionnements à tension à vide - OCV) semble alors toute indiquée pour mieux appréhender les interactions PAC – convertisseur et réfléchir sur des topologies électroniques, des modes de contrôles alternatifs. La connaissance des valeurs d'impédances liées aux fonctionnements de la pile est aussi nécessaire pour mettre au point des régulations de courant et/ou de tension (calcul des correcteurs) (Chapitre II). Un exemple de calcul de correcteur intervenant dans la boucle de régulation de courant de pile peut être trouvé dans [Candusso Thèse 2002] (travaux en lien avec le convertisseur embarqué au sein du démonstrateur robot mobile présenté au Chapitre III).

A noter qu'au-delà de la plage de fréquence 1 Hz - 10 Hz, il semble difficile d'envisager de mettre en œuvre, sur banc d'essai ou au niveau d'un système, des stratégies de gestion des réactifs (débits, pressions) particulières. Les constantes de temps des actionneurs fluidiques et thermiques, les temps de réponse envisageables au niveau de la PAC liés aux circuits fluidiques ne le permettant de toute façon pas. Au mieux, peut-on s'assurer en vue d'une variation de charge de la présence de réserves tampons de réactifs au sein de la pile et des circuits de fluide à proximité.

VI.2.2 Dynamiques basses fréquences liées aux profils de mission véhicule

Sur les profils de mission transport (temps – vitesse du véhicule) qui impliquent des dynamiques de puissance au niveau de la PAC et du système, les fréquences concernées sont inférieures au Hertz environ. Les dynamiques de courant qui en résultent doivent être combinées à des gestions des fluides et de l'énergie thermique (réactifs et caloporteur) appropriées. D'une part pour assurer des niveaux de tension suffisants sur les tensions cellules et minimiser sur le court et long termes l'impact de conditions dégradantes, d'autre part pour garantir des rendements satisfaisants au niveau global du système PAC. Différentes solutions ont déjà été évoquées quant à la façon d'imposer des dynamiques de réactifs dans la PAC et les différents modes de fonctionnements possibles au niveau de la gestion des gaz (ouvert, fermé à purges, régulation de pression) ont été décrits précédemment (Chapitre II et IV). L'importance de la topologie fluidique retenue, du choix des actionneurs, du contrôle-commande peut être soulignée à nouveau.

A ce stade, et avant d'aborder la problématique de la gestion des réactifs sur profil de mission transport, il est important de mentionner qu'une PAC placée dans des conditions idoines (températures adaptées, débits et pressions de gaz suffisants...) peut fournir des dynamiques de puissance importantes, eu égard à son niveau de puissance nominal. La Figure VI.2, issue de résultats d'essais obtenus durant le projet CELINA, illustre bien cette aptitude des PAC de type PEM [Candusso Celina livrable test ref 2007]. Sollicitée par des dynamiques de puissances conséquentes (créneaux de courant) et placée dans des conditions opératoires favorables, la pile étudiée a montré des performances très intéressantes, voire surprenantes. Pour autant, ce type de mode opératoire n'est sans doute pas propice à une durée de vie optimale de la PAC et l'impact des contraintes dynamiques sur la durée de vie de la pile n'a pas été étudié au cours du projet CELINA. Des hétérogénéités plus fortes dans les comportements des tensions cellules du stack (et/ou dans les densités de courant locales, dans les répartitions de température sur les surfaces des électrodes) peuvent en effet apparaître plus couramment dans ce type de conditions d'essais.

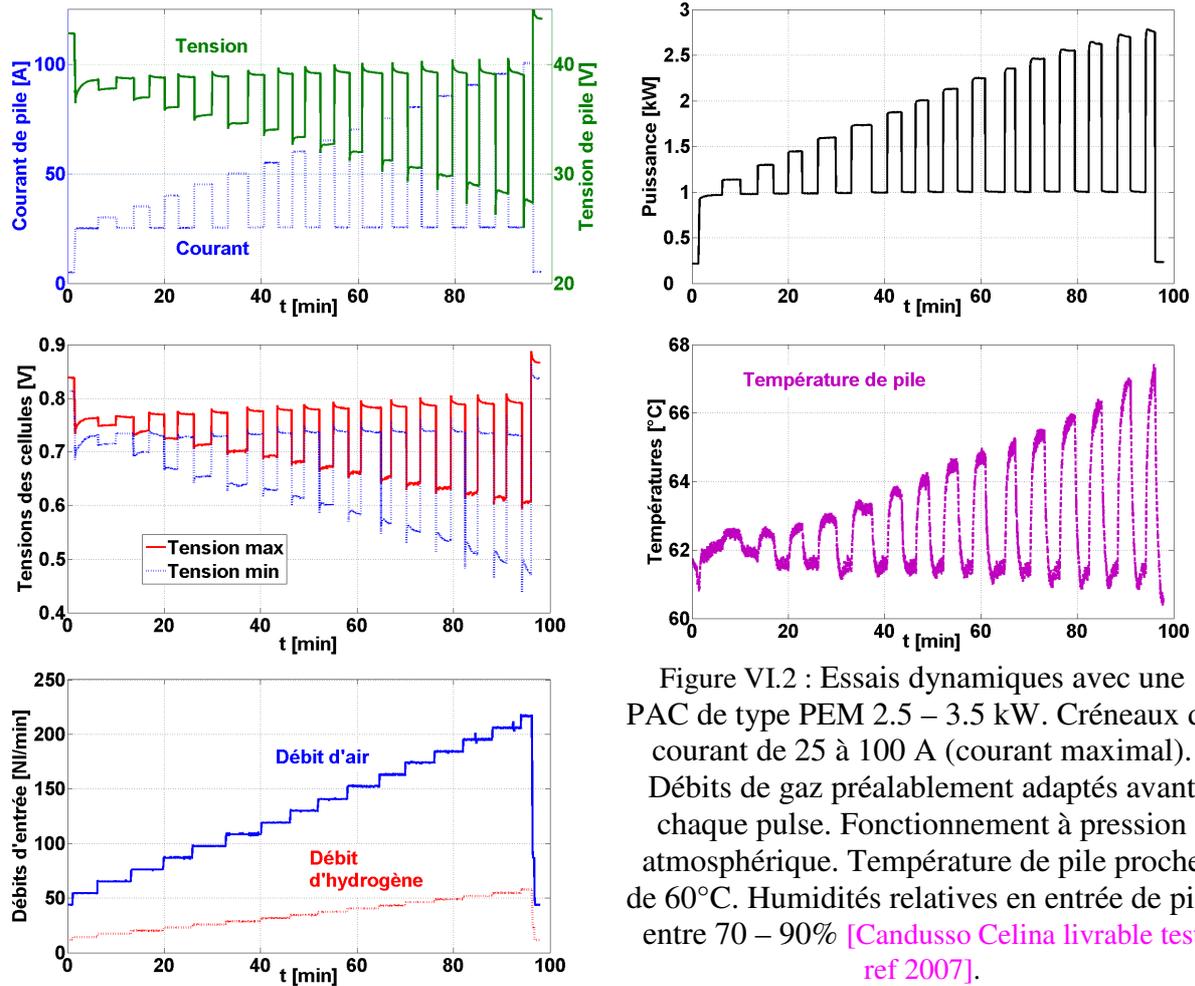


Figure VI.2 : Essais dynamiques avec une PAC de type PEM 2.5 – 3.5 kW. Créneaux de courant de 25 à 100 A (courant maximal). Débits de gaz préalablement adaptés avant chaque pulse. Fonctionnement à pression atmosphérique. Température de pile proche de 60°C. Humidités relatives en entrée de pile entre 70 – 90% [Candusso Celina livrable test ref 2007].

VI.2.2.1 Exemples de résultats. Gestion des réactifs

D'un point de vue expérimental, la maîtrise en dynamique des conditions de fonctionnement d'une PAC (débits, pressions, températures, humidités...) est un exercice relativement difficile, y compris sur un banc d'essai en laboratoire. Il faut aussi souligner l'importance du niveau de puissance de la PAC à investiguer dans le degré de difficulté à atteindre des précisions satisfaisantes concernant les régulations des paramètres opératoires. Historiquement, sur la plateforme de Belfort, les expérimentations de ce type ont d'abord été réalisées sur des piles aux puissances faibles (quelques centaines de Watt) entre 2003 et 2004. Cette expérience aidant, des investigations ont ensuite pu être portées sur des empilements de plus fortes puissances (de quelques kW à quelques dizaines de kW) entre 2004 et 2009. Dans la suite de ce paragraphe, un premier exemple de résultat obtenu sur une pile PEM de faible puissance (100 W environ) est d'abord présenté. La pile est sollicitée en courant dans les conditions d'un profil de mission transport de type parcours urbain. Une première mode de gestion dynamique des débits de réactifs est appliqué. D'autres exemples de résultats obtenus sur des piles de plus fortes puissances (5 kW - >20 kW) seront ensuite évoqués.

- Exemple 1 : pile de faible puissance (100W)

La pile est de type PEM, dotée de trois cellules de surface 100 cm². Elle est alimentée en hydrogène sec et en air humide. Elle fonctionne à pression ambiante (pas d'utilisation de vannes de contre-pression en aval de la pile), en mode ouvert, et son courant nominal est 50 A. Le cycle temps - courant adopté pour cet essai (Figure VI.3) correspond au profil de mission temps – vitesse Hyzurb HURBANC [Harel FC 2007] [André 1997]. La puissance électrique a été calculée au moyen du logiciel VEHLIB développé par l'IFSTTAR LTE et elle est représentative d'un véhicule déterminé (AX électrique) [Trigui 2004]. Ce profil de puissance est ramené à un profil de courant équivalent

Chapitre VI

compatible avec la puissance de la pile testée ; dans cet essai, l'amplitude maximale du courant de pile est de 70 A environ. La valeur moyenne du courant sur le cycle est 12.5 A. La réponse en tension de la pile peut être observée sur la [Figure VI.4](#).

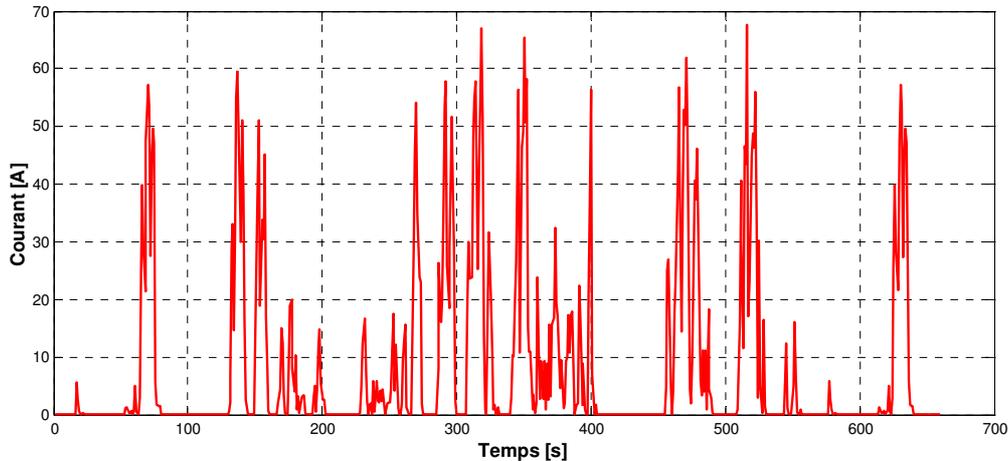


Figure VI.3 : Profil de courant [A] demandé à la pile en fonction du temps [s] au cours d'un cycle [[Harel FC 2007](#)].

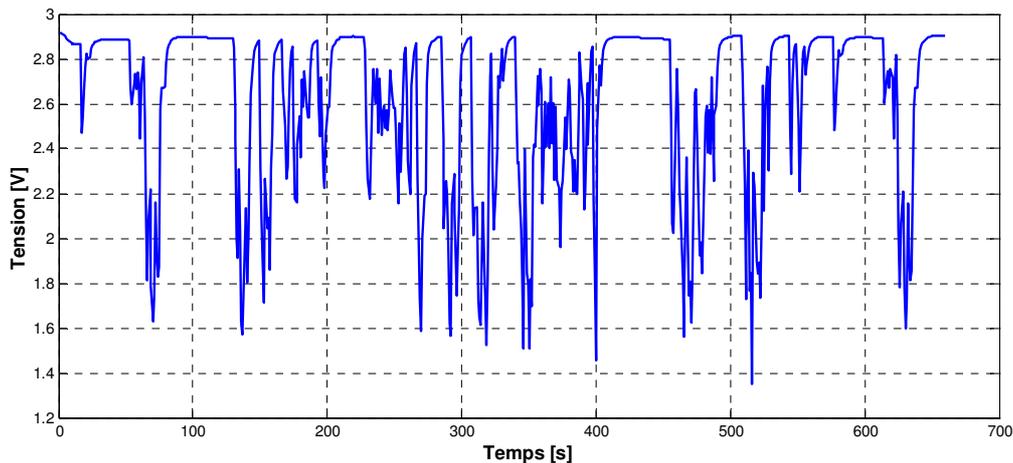


Figure VI.4 : Tension du stack [V] sur le cycle [[Harel FC 2007](#)].

Dans cet exemple, les consignes de débits de gaz ont été préalablement calculées à partir du profil de courant présenté ci-dessus et avec ici, des surstœchiométries anode/cathode constantes (égales à 2/4) ([Figures VI.5 et VI.6](#)). Des valeurs minimales de débits hydrogène et air (0.2 NI/min pour l'hydrogène et 1 NI/min pour l'air) ont toutefois été fixées de manière à permettre une bonne évacuation de l'eau et à faire profiter la pile de volumes tampons de réactifs. Ceux-ci sont nécessaires pour assurer des tensions de cellules suffisantes (i.e. supérieures au seuil sécurité de 380 mV préconisé par le constructeur de la PAC testée) lorsqu'une augmentation rapide de charge fait suite à une phase à courant nul. Les consignes de débit définies, synchrones par rapport au profil de courant imposé, sont ensuite appliquées aux régulateurs. Les consignes de débits dynamiques rendent alors possible le suivi de cycle, malgré les retards liés aux constantes de temps occasionnées par le passage des réactifs dans les lignes fluidiques en amont de la pile (et éventuellement modélisables par des circuits RC, cf [Chapitre IV](#)). Cette stratégie de gestion des réactifs a été mise en œuvre avec succès lors d'un essai d'endurance réalisé sur plus de 700 h [[Harel FC 2007](#)].

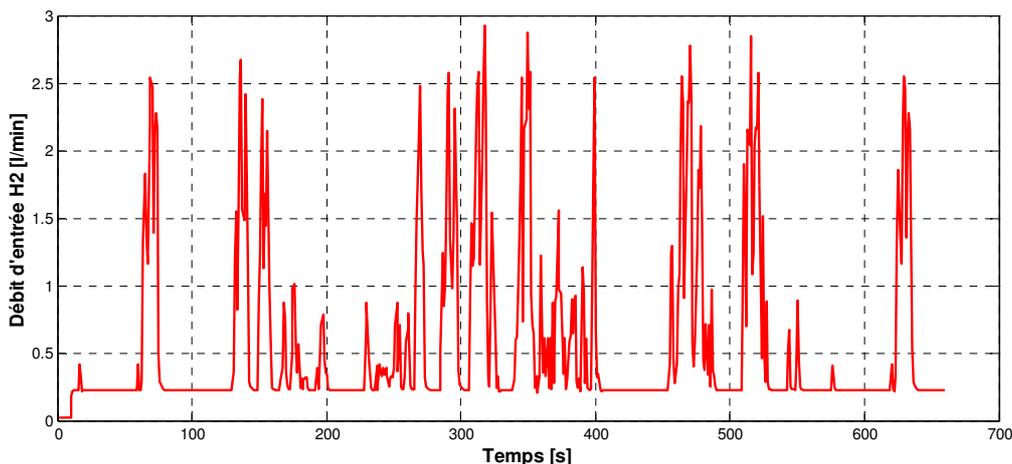


Figure VI.5 : Evolution du débit d'hydrogène [l/min] mesuré en amont de la pile.

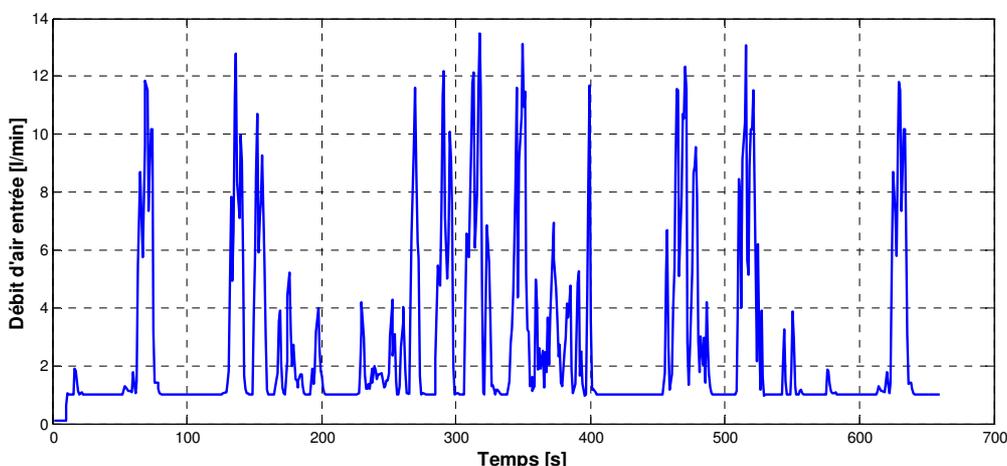


Figure VI.6 : Evolution du débit d'air [l/min] mesuré sur le débitmètre placé en amont de la pile.

Ce type de gestion des réactifs peut être utilisé quand le cycle de courant et donc le profil de mission sont connus a priori, ce qui n'est généralement pas le cas dans la réalité. Le profil de mission d'un véhicule guidé (de type métro automatique) s'apparente plus à ce type de cas mais les aléas de parcours ne sont pas exclus. Par ailleurs, la localisation par satellite des véhicules (guidés ou pas) permettrait par ailleurs d'obtenir, dans une mesure certainement assez limitée, certaines indications sur le profil à parcourir et d'en déduire des adaptations de paramètres liés au pilotage du système PAC. En outre, dans un véhicule, il faut aussi tenir compte de la dynamique du compresseur d'air, plus lente que celle d'un régulateur de débit de laboratoire (avec une constante de temps inférieure à la seconde). D'autres stratégies de contrôle des réactifs doivent alors être mises en place. Côté anode, le mode fermé semble être le plus simple à mettre en œuvre mais le mode recirculation d'hydrogène mérite d'être encore évalué car il peut participer à l'obtention d'un meilleur rendement système. La recirculation est réalisée soit par une pompe / compresseur (cas du banc 10 kW d'origine Hélium sur la plateforme de Belfort), soit par un éjecteur (cas du système GENEPAC bénéficiant d'une réalisation de la société Bertin Technologies). Côté cathode, plusieurs solutions sont envisageables [Harel Rapport INRETS LTE n°3 2008], parmi lesquelles :

- un fonctionnement à débit d'air constant correspondant au débit maximal nécessaire sur un cycle [Candusso FDFC 2004] [Candusso IJHE n°31 2006]. Intérêt : dynamique au niveau du compresseur limitée aux seules phases d'arrêts, démarrages. Inconvénient : rendement énergétique moins élevé (un apport de gaz en excès peut se traduire par une dynamique meilleure au niveau de la tension de pile mais aussi par un rendement moindre du système) et fonctionnement à des

surstœchiométries importantes éventuellement sources de dégradation pour la pile (écart avec les conditions nominales),

- un asservissement du niveau de pression mesuré par un capteur en amont de la pile [Harel Rapport INRETS LTE n°3 2008]. La consommation de réactifs par la pile, liée à la production de courant, entraînant une fluctuation de la pression en amont du stack, celle-ci doit alors être régulée en agissant sur la commande du compresseur. Ce type de stratégie est plus simplement utilisable en mode ouvert pour une pile fonctionnant à pression atmosphérique, sans vanne déverseuse (i.e. de contre-pression). Pour être mise en œuvre, une connaissance préalable des niveaux de pertes de charge dans la ligne cathode est nécessaire,
- une variation des débits de gaz par le pilotage le compresseur en fonction du niveau de tension de la pile [Candusso Thèse 2002], voire des niveaux des tensions des cellules [Harel Rapport INRETS LTE n°3 2008]. Des débits plus importants peuvent être fournis quand les niveaux de tension diminuent. Mais cette approche implique, au niveau du contrôle-commande, la prise en compte d'autres paramètres (températures, voire humidités ou résistances des membranes...) et elle nécessite un couplage avec un système de diagnostic de l'état de santé de la PAC (il faut par exemple veiller à ne pas ventiler d'avantage la pile avec du comburant trop asséchant si les membranes ont tendance à voir leur résistance Haute Fréquence augmenter).

Le type de gestion des réactifs est à choisir d'une part en fonction du degré de complexité souhaité au niveau de l'architecture fluide et de son contrôle, et d'autre part en fonction du type de profil de mission. Un fonctionnement à débit d'air constant pouvant s'avérer adapté sur un profil de mission donnant lieu à peu de dynamiques de charge. Des outils de modélisation tels que ceux développés dans [Chnani DEA 2004] peuvent s'avérer pertinents et utiles pour mieux comprendre et améliorer la conception et le contrôle des architectures fluidiques d'un banc / système PAC. Néanmoins, la complexité de la modélisation nécessaire pour restituer finement par la simulation le comportement dynamique d'un système PAC (demandant en particulier la prise en compte du caractère diphasique des écoulements de réactifs) fait que l'expérimentation s'avère indispensable pour évaluer correctement les options choisies en termes d'architecture système et de contrôle-commande pour assurer le suivi de profil de mission véhicule.

- Exemple 2 : piles de fortes puissances (5 kW - >20 kW)

Les évolutions progressives du banc 10 kW réalisées à Belfort depuis 2003, avec l'apport notamment de modifications importantes au niveau de sa topologie fluide, peuvent illustrer et témoigner de la difficulté rencontrée à maîtriser en dynamique, sur des cycles de courant transport, les paramètres opératoires d'une PAC de puissance significative (ex : débit d'air constant sur le profil de mission affiché Figure VI.7 [Candusso FDFC 2004]). Les résultats expérimentaux publiés dans [Candusso FDFC 2004] et [Candusso IJHE n°31 2006] mettent en évidence les limites de l'architecture fluide initialement choisie. Les améliorations apportées au banc 10 kW ont ensuite permis une meilleure maîtrise en dynamique des stœchiométries, et donc de pouvoir suivre des profils de mission avec des dynamiques moins limitées et d'imposer des conditions opératoires plus optimales (en occasionnant par exemple moins de fortes variations de stœchiométries). Dans la mise au point de bancs et systèmes de puissance, la difficulté rencontrée réside en particulier dans des choix technologiques plus restreints en termes de composants disponibles pour les forts niveaux de puissance (vannes actionneuses de régulation de pression par exemple). Dans la perspective de ce type d'application, il peut sembler bien délicat d'être amené à faire varier de forts débits de réactifs en ayant toujours au sein du stack de si fines membranes sensibles aux différentiels de pression anode – cathode. Nous avons vu par ailleurs au Chapitre IV que le contrôle de l'hygrométrie dans la PAC était également peu aisé en mode dynamique et que des inhomogénéités locales dans les distributions de températures, d'humidités, de courants étaient susceptibles de donner lieu à des dégradations de la pile (Chapitre VII).

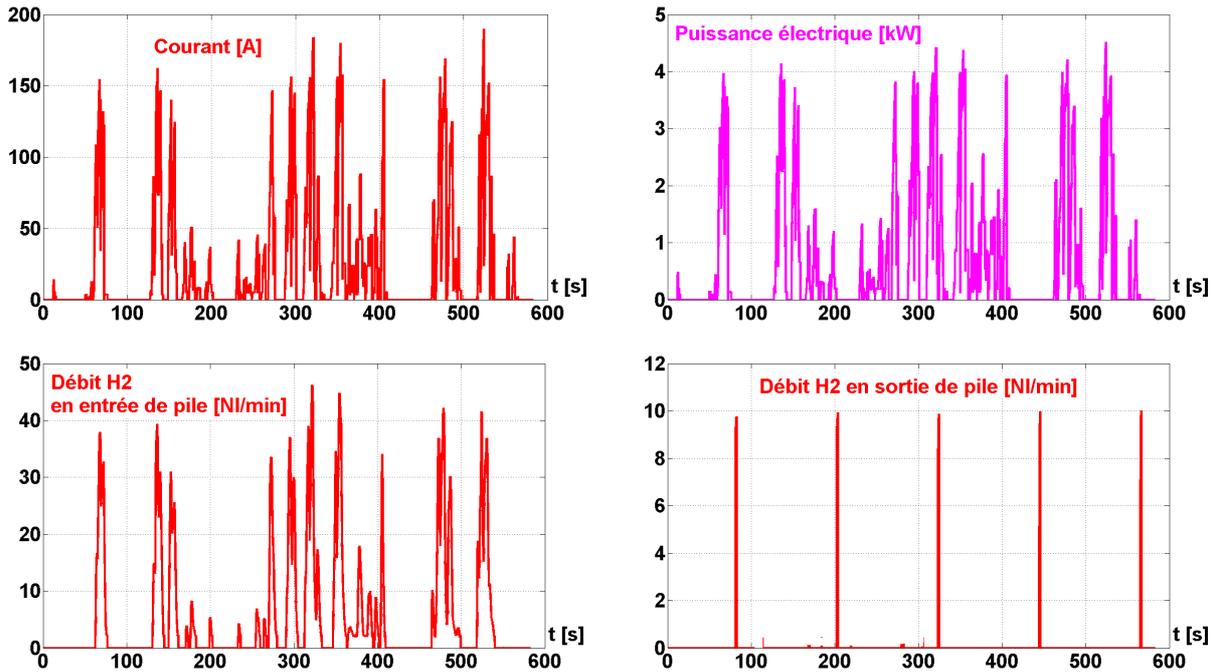


Figure VI.7 : Résultat d'essai dynamique obtenu pendant le projet SPACT en 2004 [Candusso FDFC 2004]. Pile PEM 5 kW de 42 cellules. Température de pile de 50°C. Alimentation en hydrogène et air humidifiés. Pressions de gaz à 1.1 bar rel. Fonctionnement en mode fermé avec purges périodiques à l'anode. Débit d'air constant à la cathode (280 NI/min).

Dans le cadre du projet SPACT80, une stratégie de gestion des réactifs similaire à celle décrite dans l'exemple 1 a pu être mise en œuvre à Belfort en 2008 sur un banc de puissance supérieure à 20 kW. Les résultats d'essais, disponibles dans [Harel FDFC 2008] et [De Bernardinis Lucerne 2009], témoignent des progrès accomplis, de 2003 à 2009, au niveau de la maîtrise du contrôle des débits de réactifs en mode dynamique, et de la montée en puissance qui a pu s'en suivre. Ces résultats, certes obtenus sur des profils de mission représentatifs de l'application transport mais aux dynamiques relativement modérées, viennent aussi illustrer la difficulté rencontrée à faire fonctionner de manière optimale (c'est-à-dire en gardant des surstœchiométries proches des valeurs nominales) un générateur PAC de puissance sur de fortes dynamiques. Ils tendent à montrer par là-même un peu plus encore l'intérêt de l'hybridation du système PAC par des organes de stockage tampon de l'énergie.

VI.2.2.2 Optimisation de la consommation en combustible et du rendement système sur profil de mission

Comme cela a été suggéré, aucune architecture fluïdique avec sa gestion des réactifs associée ne semble aujourd'hui s'imposer complètement. Côté cathode, le débat reste ouvert ; entre piles à pression atmosphérique et piles à vannes de contre-pression (ou turbine, solution sans doute plus élégante en termes de rendement mais aussi plus complexe). Côté anode, le choix peut être fait entre mode bouché avec purges et mode recirculation. Il est possible aussi que les différentes approches continuent à co-exister.

Cependant, après avoir arrêté le choix d'une architecture fluïdique et d'un mode de pilotage des actionneurs (régulations de débits et pressions des réactifs...), il reste encore à déterminer les paramètres opératoires conduisant à une optimisation de la consommation en combustible sur un profil de mission donné, voire à l'optimisation du rendement global au niveau du système PAC considéré.

La consommation d'hydrogène peut être déterminée sur un cycle de manière relativement simple [Candusso FDFC 2004]. Sur le cycle considéré dans l'essai de la Figure VI.7, le volume total d'hydrogène entrant dans la pile est de 51.52 litres. Le rendement de la pile sur le profil de mission peut être calculé de la manière suivante [FUERO 2003] :

$$\eta_{\text{cycle}} = \frac{100 \times \int_{\text{cycle}} I_{\text{stack}} \times E_{\text{stack}} dt}{V_{\text{H}_2 \text{ consommé+purges}} / 22.4 \times \Delta H_f^0(\text{H}_2\text{O}(\text{g}))} = \frac{100 \times 373.10^3}{51.52 / 22.4 \times 241.82.10^3} = 67\% \quad (\text{VI.1})$$

avec :

$V_{\text{H}_2 \text{ consommé+purges}}$: le volume total d'hydrogène entrant vers la pile
(ce volume total correspond à la somme du volume d'hydrogène consommé par la réaction et du volume d'hydrogène évacué lors des purges)

$\Delta H_f^0(\text{H}_2\text{O}(\text{g}))$: l'enthalpie [J/mol] de formation LHV (à 298K, sous 1 atm et avec de l'eau produite sous forme de vapeur)

Remarque : sur le cycle, le volume d'hydrogène sortant de la pile lors des purges est de 0.77 litres.

La détermination du rendement au niveau du système PAC est plus complexe. Des mesures de puissances électriques au niveau des différents organes périphériques (compresseur, vannes actionneuses...) sont notamment nécessaires. Ce type de développement expérimental demeure encore à être effectué sur les bancs de la plateforme de Belfort. Bien sûr, l'approche « plans d'expérience » décrite au [Chapitre V](#) présenterait un intérêt certain dans l'évaluation du pilotage d'un système PAC.

VI.2.2.3 Un exemple de problème : vanne de contre-pression et gestion de l'air en dynamique

Sachant que des travaux déjà nombreux ont déjà été et sont encore effectués au niveau de l'organe clé du générateur pile qu'est le compresseur d'air, nous portons ici notre attention sur la vanne de régulation placée à la sortie cathode du stack.

Nous rappelons d'abord que les piles PEM peuvent être classées en deux catégories, en établissant une distinction vis à vis de l'architecture de leur circuit d'air ([Chapitre II](#)).

- Le premier type de PAC peut être qualifié de pile atmosphérique.
- Le second type de pile fonctionne à une pression sensiblement plus élevée, d'un bar au moins par rapport à l'atmosphère. Les piles appartenant à cette catégorie présentent en général des puissances électriques supérieures au kilowatt et des pertes de charges faibles.

Dans le second cas, le contrôle de la pression de l'air dans la PAC est réalisé au moyen d'une vanne aval de contre-pression ou « déverseur ». La vanne de régulation, sa technologie et son contrôle, peuvent faire l'objet d'une étude intéressante. Le mode d'utilisation de l'organe dans un environnement opératoire de type transport peut aussi être traité par des travaux originaux.

- Le problème technologique du choix de la vanne

Les vannes de régulation doivent présenter un certain nombre de caractéristiques essentielles pour pouvoir répondre aux besoins des applications PAC. Ces organes doivent ainsi avoir des pertes de charges aussi faibles que possible à l'ouverture complète, de manière à pouvoir assurer la fourniture d'un débit d'air élevé nécessaire à l'obtention d'une puissance électrique maximale au niveau de la pile. Pour une application transport, les vannes doivent être aussi dynamiques que possible lors des phases de démarrage et des transitoires de puissance. Elles doivent pouvoir être pilotées de manière souple et rapide, notamment pour ne pas engendrer de différences de pressions critiques entre les compartiments anode et cathode du stack. Dans le même ordre d'idée, les vannes doivent être de type "normalement ouverte" de manière à éviter toute surpression ou tout écart trop important entre les pressions anodique et cathodique, suite à une interruption de l'alimentation électrique. Actuellement, sur la plateforme, ce sont des vannes de contre-pression contrôlées de manière pneumatique qui sont mises en œuvre sur les bancs (constructeurs : Kämmer et Bürkert). Elles présentent néanmoins des inconvénients pour l'intégration dans le véhicule, en particulier en termes de masse et

Chapitre VI

d'encombrement. Leur pilotage est en outre parfois peu aisé lors d'applications nécessitant un fonctionnement dynamique. De plus, elles doivent parfois être elles-mêmes pilotées par d'autres vannes pneumatiques (cas du banc 20 kW de la plateforme), ce qui augmente la complexité.

Pour ces différentes raisons, le recours à d'autres sortes de vannes de régulation pourrait par conséquent être envisagé. En tant qu'électriciens, nous pensons naturellement à des vannes de type électromagnétique, basées sur l'utilisation d'actionneurs linéaires voire rotatifs. Des premiers travaux visant à rechercher puis évaluer des technologies de vannes existantes peuvent être menés, pour différentes puissances de piles et donc différentes gammes de débits d'air. Il nous faut ensuite voir s'il y a lieu d'envisager un développement de vannes spécifiques en vue d'applications PAC. Dans le cas où les vannes existantes ne satisfont pas suffisamment aux diverses contraintes particulières (débit, pression, température, compacité, pilotage en dynamique...), un premier cahier des charges pourra être établi dans l'optique du générateur pile embarqué. Le type de vanne alors envisagé pourrait peut-être aussi trouver d'autres champs d'application. La photographie ci-dessous représente deux vannes de régulation Bronkhorst Hi-Tec (modèles F-004AC et F-004BC).



Figure VI.8 : Vannes de régulation Bronkhorst Hi-Tec.

Ces vannes correspondent à des organes électromagnétiques conçus pour des applications à forts débits et à faibles pertes de charges. La vanne de contrôle F-004 est une vanne à soufflet de mise en équilibre des pressions permettant de fonctionner avec de faibles pressions différentielles (exemple : débit de 50 Nl/min avec une différence de pressions de 13 mbars). D'autres constructeurs sont bien sûr susceptibles de disposer de vannes pouvant être compatibles avec nos besoins. Ainsi Brooks Instruments, avec les vannes de régulation 5835 – 5838 ; mais la valeur minimale des pertes de charges n'est pas connue.

- Le problème de la stratégie de gestion de l'air sur des profils de mission type transport

Le problème initial, posé tout d'abord dans un cadre très concret, pratique et technologique, peut déboucher sur des questions et des recherches de nature plus théorique. Peut-être d'une part lors de la conception éventuelle d'une nouvelle vanne, mais aussi et sans aucun doute au niveau du mode d'utilisation de la vanne sur des profils de mission transport temps – vitesse du véhicule. Sur de tels cycles dynamiques, l'objectif premier consiste bien sûr à piloter la vanne de manière à ce que la pile puisse délivrer le courant souhaité. La mise en place d'une gestion optimale des gaz réactifs permettant d'aboutir à des consommations en hydrogène limitées et à des performances élevées, en ne prenant en considération que le stack dans un premier temps (puis en tenant compte du compresseur par la suite), peut constituer un deuxième but. Le problème peut ensuite être étoffé par la prise en compte de la contrainte liée à la pression différentielle anode – cathode, de manière à éviter les sollicitations mécaniques trop importantes sur les cœurs de pile. Le mode régulation de pression, et la possibilité qu'il offre d'engendrer un gradient de pression contrôlé entre les compartiments anode – cathode, pourraient même être étudiés lors de recherches plus exploratoires visant d'une part à diminuer un éventuel taux de fuite interne (membrane percée ou joint défectueux) et d'autre part à mieux maîtriser l'humidification des cœurs de pile (via les transferts d'eau dans la membrane).

Le sujet posé peut aboutir à des problèmes plus théoriques d'optimisation sous contrainte multiparamétrique et multi-objectifs. Ces problèmes peuvent être complexes à traiter, par les deux voies de l'expérimentation et de la modélisation. Dans le premier cas, la méthode des plans d'expériences et l'utilisation de ses techniques peut constituer une aide nous permettant à la fois de définir au mieux les différents essais à réaliser et de déterminer les paramètres liés à une gestion optimale des gaz réactifs (choix des niveaux de débits et de pressions sur un cycle donné, connu ou

pas à priori). Dans le second cas, le recours à des modélisations fluidiques monophasiques et diphasiques similaires à celles développées dans le cadre du DEA de M. CHNANI [Chnani DEA 2004] et du Master Recherche de Y. BOUAYAD [Bouayad DEA 2005] peut être envisagé. La résolution du problème fait alors appel à des notions de génie électrique, d'automatique, de mécanique des fluides, voire de mathématique appliquée.

L'ensemble des travaux à mener dans ce contexte permettrait au final d'acquérir une connaissance plus précise du potentiel des systèmes PAC sollicités en dynamique. Les recherches effectuées viendraient ainsi alimenter un peu plus la réflexion menée autour de l'hybridation du générateur PAC par des batteries ou des supercondensateurs.

VI.3 Essais climatiques

Comme cela a déjà été mentionné dans l'introduction de ce chapitre, les résultats qui seront présentés dans cette partie du sont issus d'investigations expérimentales menées dans le cadre du projet européen CELINA. Les essais climatiques en question ont été réalisés au FC LAB en suivant différents scénarios liés aux applications aéronautiques et les effets de l'environnement froid sur un stack de type PEM ont été étudiés pour mieux cerner les possibilités offertes par ce type de technologie. Les conditions de vol d'un avion conduisent en effet à des températures très basses [Doc RCTA 2004]. Et des variations de températures très importantes s'exercent sur l'avion et sa structure pendant les phases de décollage et d'atterrissage.

Après avoir restitué le contexte et la problématique du fonctionnement et du démarrage à froid des générateurs PAC, une brève description du moyen d'essai mis en œuvre sera faite.

Des exemples de tests climatiques seront présentés et analysés. Des conclusions sont données sur le comportement du stack aux basses températures, et des perspectives sont proposées pour des études expérimentales futures. L'un des objectifs importants est ici de montrer que des travaux expérimentaux conduits au niveau système d'un générateur PAC (avec un niveau de puissance significatif pour les applications transport) sont importants, d'abord pour mieux identifier les contraintes réelles qui vont s'appliquer sur le système PAC et ensuite pour proposer des solutions technologiques qui vont permettre l'implantation de PAC de type PEM dans les avions mais aussi dans les véhicules de transport terrestre.

VI.3.1 Contexte / problématique liés aux essais climatiques

Le fonctionnement et le démarrage des PAC de type PEM (équipée de membranes perfluorosulfonées) à des températures négatives constituent des points critiques pour l'intégration des générateurs PAC au sein des systèmes de transport (terrestres et aéronautiques). Les travaux les plus récents sur le sujet sont souvent soutenus ou développés par les industriels de l'automobile. On pourra citer par exemple Volkswagen [Schießwohl JPS 2009] et Nissan [Tajiri JPS 2007].

La prise en compte de quelques principes physiques simples liés au comportement de ce type de PAC permet de mieux appréhender la problématique. Tout d'abord, en fonctionnement, la réaction de la réduction de l'oxygène produit de l'eau, qui s'accumule principalement à la cathode de la PAC. Par ailleurs, les réactifs qui alimentent la pile doivent être préalablement humidifiés avant leur entrée dans le stack. Dans des conditions normales, usuelles, cette eau peut être évacuée par les débits de réactifs. Mais aux températures négatives, l'eau peut se transformer en glace et venir partiellement bloquer le transport des réactifs vers les interfaces réactionnelles aux électrodes, par exemple dans les canaux des plaques bipolaires ou au sein du milieu poreux des couches de diffusion (GDLs) [Lee JPS 2007] [Tajiri JPS 2007]. L'eau qui a pu se transformer en glace peut couvrir le catalyseur, en particulier à la cathode, et empêcher le déroulement normal de la réaction électrochimique [Ahluwalia JPS 2006]. Dans le pire des cas, le gel peut entraîner l'arrêt de la pile. De plus, la glace est susceptible d'endommager les matériaux de l'AME ; des particules de glace peuvent par exemple conduire à la formation de craquelures dans les membranes [Yan JPS 2006]. Le froid peut aussi modifier les propriétés de contact aux interfaces entre les différentes couches de l'AME : les GDLs, les électrodes et les membranes (phénomène de délamination de la membrane). Avant de placer un stack dans une

ambiance froide, à des températures négatives, des procédures de purge / d'assèchement doivent généralement être appliquées pour évacuer l'eau résiduelle dans l'assemblage (plaques bipolaires et matériaux poreux) et limiter les risques de dégradation de la PAC [Hou JPS 2006].

Un nombre croissant d'équipes conduit des recherches ciblées pour accéder à une meilleure compréhension des mécanismes de formation du gel dans les PAC. Des travaux de modélisation et des analyses théoriques sont entrepris pour décrire les mécanismes électrochimiques et liés au transport de matière durant les démarrages à froid à températures négatives. Dans [Yun Wang 2007], Yun Wang mène des investigations sur les transferts de chaleur, de matière et sur les cinétiques électrochimiques au sein de la couche catalytique durant le démarrage à froid de piles PEM. Un certain nombre de paramètres clés qui gouvernent le fonctionnement à froid, associés à des constantes de temps, sont définis et leurs impacts sont étudiés via la modélisation. Dans les travaux de Yun Wang et de son équipe, c'est la réduction de la surface active électrochimique au niveau de la couche catalytique liée à la formation de glace qui est présenté comme un mécanisme important venant expliquer la baisse de tension de cellule lors du démarrage à froid. Bien évidemment, des travaux à caractère plus expérimental sont aussi réalisés dans cette même optique phénoménologique. Les travaux qui traitent des aspects matériaux sont ainsi particulièrement importants pour assurer le développement de stacks aptes à démarrer et à fonctionner dans des ambiances froides. Dans ce domaine, la plupart des investigations expérimentales sont réalisées ex-situ (i.e. sur des matériaux ou des composants de pile [Guo JPS 2006]), parfois sur des PAC hors état de fonctionnement [Mac Donald FC 2004] [Cho 2003]. Certaines recherches sont faites in-situ mais sur des monocellules aux surfaces actives d'électrodes limitées (de quelques centimètres carrés seulement [Ishikawa JPS 2007] [Shanghai Ge 2007] [Hou IJHE 2007]). Les travaux menés sur des empilements aux dimensions différentes sont plus rares. Dans [Wang JPS 2007], deux monocellules (ayant des surfaces actives de 4 et 128 cm²) sont démarrées à températures négatives par Hongwei Wang. Des tensions négatives sont appliquées aux bornes de la pile et leurs effets sur l'AME et sur le démarrage à froid sont étudiés.

Si un nombre conséquent d'études est maintenant mené sur des monocellules aux dimensions modestes, les expériences réalisées sur des stacks de plus fortes puissances, plus compatibles avec les applications transport, sont encore bien peu nombreuses (pour des raisons de coût et encore une fois, du fait de la plus grande complexité des moyens expérimentaux à mettre en œuvre pour réaliser les essais nécessaires) ou peu évoquées dans la littérature académique. Pourtant, c'est l'expérimentation de ces stacks, soumis à des contraintes climatiques issues de l'environnement transport, qui peut permettre de mettre en évidence certains points durs spécifiques aux grands assemblages de cellules PAC. Ainsi, dans une ambiance froide, des distributions de température non homogènes peuvent apparaître au sein de l'empilement. La température au centre du stack peut être plus élevée qu'au niveau des plaques terminales [Oszcipok JPS 2006]. En fait, il faut reconnaître qu'un nombre limité d'équipes de recherche travaille sur des stacks [Oszcipok JPS 2006] [Schießwohl JPS 2009]. Dans [Oszcipok JPS 2005] [Oszcipok JPS 2006] [Oszcipok FC 2007], Oszcipok et ses collègues ont étudié le démarrage à froid d'un stack doté de 6 cellules destiné à des applications portables / nomades. Dans [Schießwohl JPS 2009], des paramètres jugés significativement influents ont été étudiés dans le but d'améliorer les capacités de démarrage à froid d'un système PAC. Différentes expériences ont été menées grâce à un banc de test placé dans une enceinte climatique. Le stack étudié était pourvu de 60 cellules, dotées de plaques en graphite, et sa puissance électrique maximale était de 2.6 kW. Datta et al. [Datta JPS 2002] ont quant à eux publié sur un démarrage et fonctionnement à froid (sur une période de 10 jours à -35°C) d'une PAC de type PEM de puissance 500 W. Peu d'informations ont néanmoins été communiquées sur le système de contrôle de la PAC. Par ailleurs, au-delà des niveaux de puissance des PAC investiguées, il est également utile de noter que nombre d'expériences de démarrage à froid sont réalisées dans des conditions dites isothermales [Oszcipok JPS 2005] [Oszcipok JPS 2006] [Oszcipok FC 2007] [Tajiri JPS 2007] [Kagami 2002] [Pinton JPS 2009] qui, si elles sont particulièrement nécessaires pour accéder à une meilleure compréhension des mécanismes physiques, ne sont pas forcément représentatives des conditions d'usage réel liées aux applications véhicules et aux stratégies réelles de démarrage des PAC.

Les impacts des différents auxiliaires liés aux conditionnements des fluides et des énergies sur le fonctionnement du stack doivent également être évalués. Les travaux doivent donc alors être menés au niveau du système. Il devient de ce fait nécessaire de considérer le pilotage de ces auxiliaires et les stratégies de gestion des gaz, du caloporteur de la pile, des énergies au niveau du générateur complet

[Oszcipok JPS 2006]. La conception du système, le contrôle des organes périphériques sont très importants pour maîtriser les phases d'arrêt et de démarrage de générateurs PAC placés dans des ambiances froides. On pourra d'ores et déjà évoquer ici la conception du circuit de contrôle de la température dans la PAC et le contrôle de la pompe liée à ce circuit. Dans [Schießwohl JPS 2009], la stratégie d'arrêt d'un système PAC est identifiée par Volkswagen comme étant l'un des aspects les plus importants pour assurer ensuite le démarrage à froid de la PAC.

VI.3.2 Description d'un moyen d'essai de la plateforme de Belfort

Le moyen d'essai concerné est celui qui a été développé et mis en œuvre au cours du projet CELINA. Il faut indiquer que le banc de test avait été initialement développé dans le cadre du projet GENEPAC [François 2005] et que, suite à CELINA, le banc a été remanié pour le programme SPACT80 [De Bernardinis Lucerne 2009]. Une partie de l'expérience acquise au cours de CELINA, en termes de conception de moyen d'essai climatique, a également pu être mise à profit par le FC LAB lors du projet MEPHISTO [Bégot FC8-1 2008] [Bégot FC8-2 2008].

- La PAC

Elle est a été conçue et réalisée par IRD, fabricant danois [IRD]. Sa conception n'a en fait pas été spécifiquement prévue pour des essais climatiques (ni vibratoires, d'ailleurs). Elle est dotée de 52 cellules résultant d'assemblages de membranes et de GDLs commerciales, de plaques bipolaires en graphite (« graphite compound »). Les conditions nominales de cette pile sont les suivantes : température de pile de 60°C, alimentation en hydrogène et air humidifiés à 90% (à 60°C), FSA / FSC = 1.5 / 2.5. Suivant la pression, atmosphérique ou 1 bar rel., la puissance électrique résultant de la PAC varie entre 2.5 kW et 3.5 kW.

- Le banc

Le banc d'essai conçu et réalisé en interne au FC LAB est composé de deux parties. La première, et la principale en termes de volume et de place occupée, supporte les sous-systèmes de conditionnement des gaz (contrôles des débits, des pressions, des humidités), la charge électronique, les appareillages électriques. La seconde, et la plus petite, est un châssis déportable autorisant le test d'une pile en fonctionnement dans une enceinte climatique ou sur la table vibrante de la plateforme de Belfort. Ce petit module supporte la pile, son circuit primaire (caloporteur) qui permet de maîtriser la température de la PAC. Suivant les conditions et la température à atteindre, le circuit peut venir apporter ou venir évacuer de la chaleur vers ou hors du stack. Ce circuit de contrôle de la température comprend un organe « réchauffeur » (une résistance électrique), un échangeur de chaleur (associé à un circuit d'eau froide à 10°C), des actionneurs (une pompe pour faire circuler le fluide caloporteur, une vanne trois voies pour mélanger le fluide caloporteur chauffé et refroidi), des capteurs de température et de pression aux entrées et sorties de stack. Le module / châssis déportable supporte aussi les capteurs de température, de pression sur les lignes de gaz (placés aux entrées et sorties de pile), ainsi que des hygromètres (en entrée et sortie de pile côté cathode, seulement en entrée de pile côté anode).

Un schéma simplifié du banc de test est présenté Figure VI.9. Le banc et en particulier le petit module déportable inséré dans l'enceinte climatique peut être observé sur la Figure VI.10. Le stack IRD, disposé verticalement sur le petit châssis, peut être aperçu sur la droite de la photo. La partie principale du banc est visible sur la partie gauche de l'image. Des conduites de gaz, le circuit d'eau froide ainsi que des câbles électriques sont connectés entre les deux parties du banc d'essai.

Chapitre VI

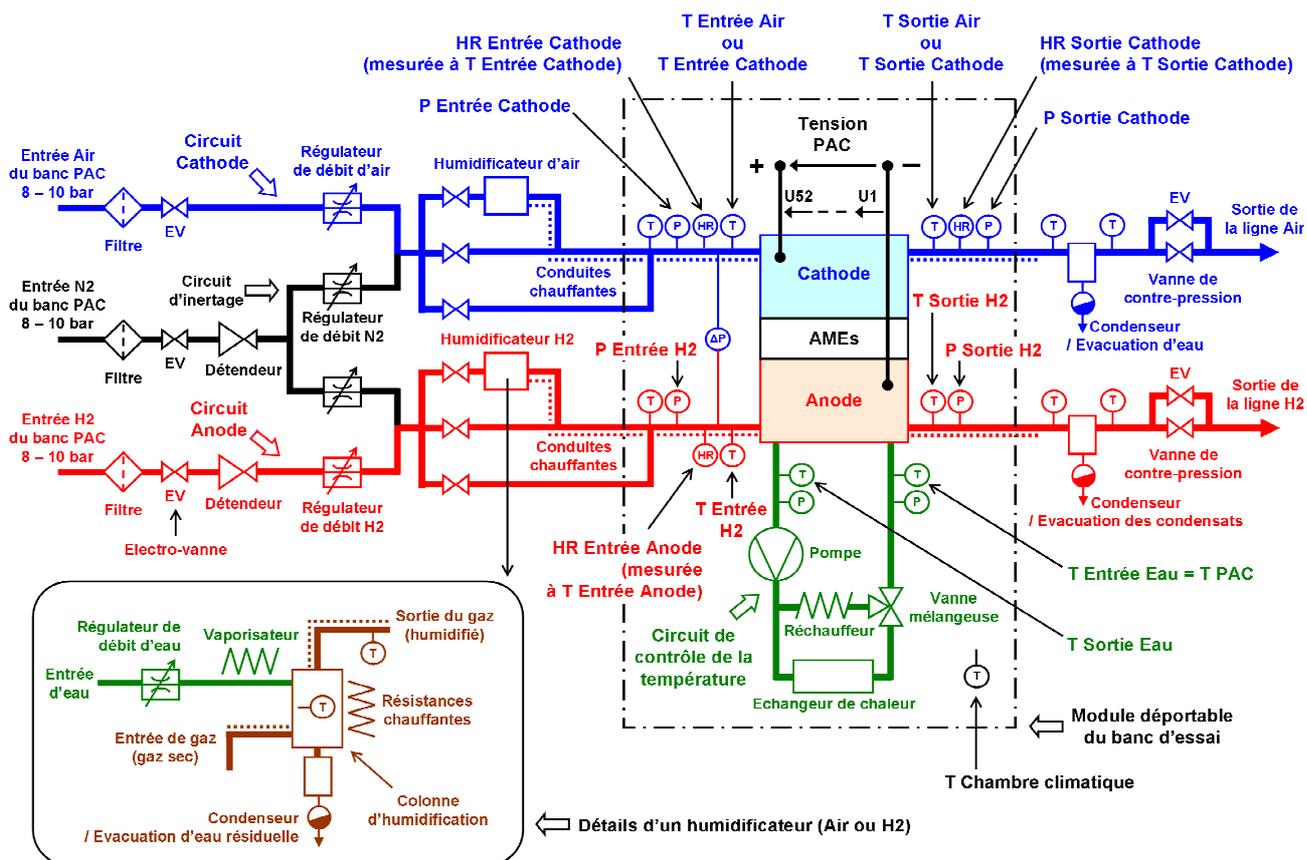


Figure VI.9 : Schéma simplifié du banc d'essai ayant servi au projet CELINA.

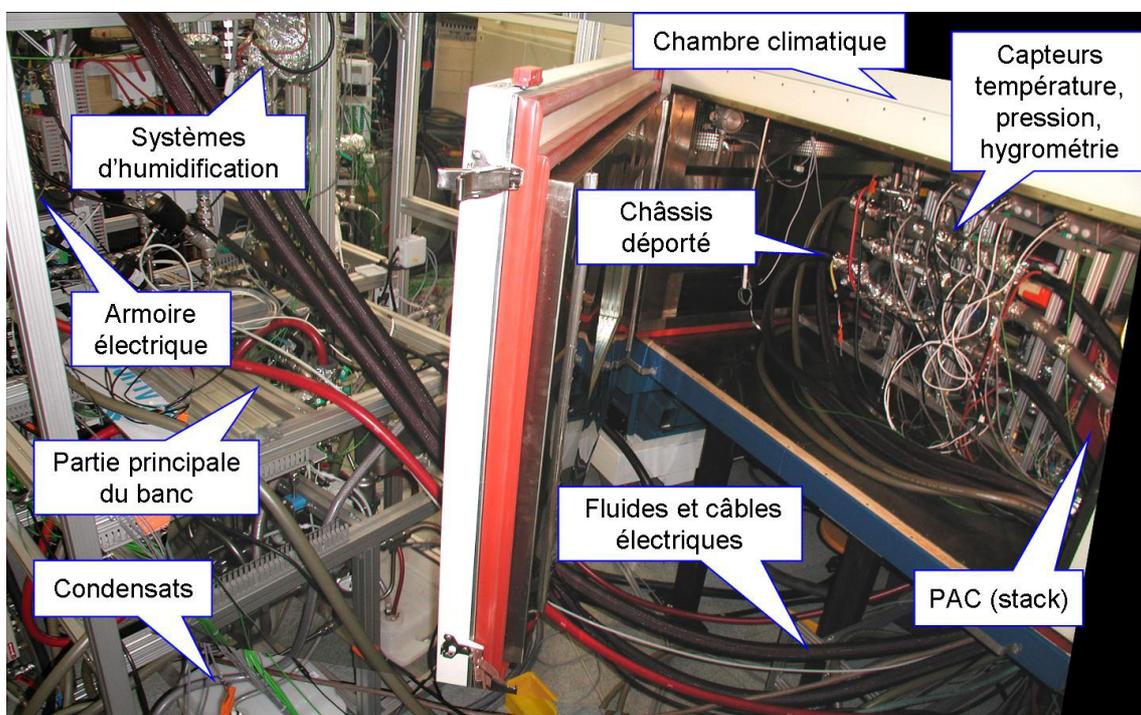


Figure VI.10 : Essais climatiques sur la plateforme PAC de Belfort. Le banc principal est situé sur la gauche de la photographie. Le châssis déporté supportant la pile est placé dans l'enceinte (photo prise au cours du projet CELINA, en novembre 2006).

VI.3.3 Types de tests réalisés lors du projet CELINA

Durant la phase de CELINA correspondant aux essais climatiques, quatre types d'expériences ont été réalisés. Les expériences ont été imaginées et conçues à la fois sur la base d'essais classiques permettant d'évaluer le comportement, les performances d'une PAC (via des relevés de courbes de polarisation), et sur des scénarios spécifiques liés aux applications de type aviation.

Les quatre types d'expériences qui ont été envisagées sont les suivants :

- **tests de référence.** Ces essais correspondent aux conditions de fonctionnement habituelles d'une PAC placée dans un environnement à +15°C. Ils sont essentiellement constitués de deux courbes de polarisation « montante » et « descendante ». Ces mesures servent de base à des comparaisons.

- **tests de fonctionnement à basse température.** Ces essais sont destinés à évaluer le comportement d'une PAC opérant tout d'abord dans une ambiance habituelle (PAC à la température de l'enceinte climatique, proche de +20°C), et progressivement « plongée » dans un environnement aux températures négatives. Il est important de noter que dans cet essai, c'est aussi la réponse au niveau du système PAC qui est évaluée, du moins en partie, dans la mesure où plusieurs organes et capteurs du banc de tests (pompe du circuit caloporteur, capteurs de température, de pression, d'humidité relative, vannes... du module déporté) sont situés dans l'enceinte et donc sollicités également par des températures basses. Bien que le banc d'essai soit dédié à la caractérisation de PAC et qu'il ne puisse pas être considéré comme un générateur autonome, intégré, certaines parties de son architecture (le circuit de contrôle de la température dans la PAC par exemple) et certains organes périphériques / auxiliaires ont des topologies / structures proches de celles qui peuvent être trouvées au sein d'un générateur embarqué.

- **test de stockage et démarrage d'un système PAC à basse température (« Ground survival »).** Cet essai permet l'étude du comportement d'une PAC, inactive et plongée dans un environnement froid pendant quelques heures, puis redémarrée en ayant préalablement chauffé la pile par une source externe de chaleur, via son circuit caloporteur, jusqu'à +15°C (ce type d'essai de peut être qualifié de démarrage assisté).

- **essai de démarrages à froid.** Les essais permettent d'évaluer la capacité de la PAC à démarrer seule, sans apport de chaleur externe, à des températures négatives. Dans ce cas, on peut parler de démarrage réalisé suivant une méthode passive [Oszipok JPS 2006], ou bien encore d'auto-démarrage [Ahluwalia JPS 2006].

Nous ne décrivons ici que l'essai de type « fonctionnement à basse température ». Par rapport à l'essai de démarrage à froid où la PAC parvient à fournir du courant sans apport de chaleur externe, cet essai peut ne pas apparaître comme le plus « spectaculaire », mais il permet cependant de bien mettre en exergue les problématiques qui se posent au niveau du système PAC, et des protocoles opératoires nécessaires à employer dans ces conditions. Il suggère également bien l'importance des phénomènes de dégradation susceptibles d'être rencontrés, et cela quelle que soit la méthode employée pour démarrer la pile (avec ou sans apport d'énergie extérieure).

Les résultats d'essais les plus probants ont par ailleurs été publiés dans un article assez détaillé [Bégot ECM 2010] et une synthèse des différents essais climatiques de CELINA sera proposée en conclusion de cette partie consacrée aux essais climatiques de PAC.

VI.3.4 Cas du stockage et démarrage d'un système PAC à basse température

Différents essais de stockage et démarrage d'un système PAC à basses températures (« Ground survival ») ont été réalisés à Belfort durant le projet CELINA. L'un d'eux a été réalisé à un niveau de température dans l'enceinte climatique de -20°C. L'essai s'est déroulé en différentes étapes (Figure VI.11), selon le protocole suivant.

- Au début du test, une procédure de purge / assèchement à l'azote a tout d'abord été appliquée de manière à évacuer de l'eau résiduelle présente dans la pile et dans les conduites anode et cathode situées au sein de l'enceinte climatique. Ces procédures de purge sont considérées comme des éléments clés permettant les démarrages à froid des PAC [Schießwohl JPS 2009] [Cho 2003]. Ici, des débits d'azote (valeurs comprises entre 0 et 100 NI·min⁻¹) ont pu être appliqués jusqu'à ce que l'humidité relative mesurée en sortie cathode soit inférieure à 10%. Ces purges à l'azote ont bien sûr

Chapitre VI

eu aussi pour conséquence d'inertier le stack et d'entraîner une baisse des niveaux des tensions cellules.

- Les purges effectuées, la température de l'enceinte climatique a été abaissée à -20°C et laissée à ce niveau pendant trois heures. La PAC demeurant inactive à ce stade.
- A l'issue des trois heures, la température de la PAC a ensuite été portée à $+15^{\circ}\text{C}$ au moyen du circuit de contrôle de température de la pile, et en particulier grâce à son organe « réchauffeur ». Durant cette montée en température progressive (de -13°C à $+15^{\circ}\text{C}$ en une heure), aucune puissance n'a alors été demandée à la PAC.
- Lorsque la température de pile a atteint les $+15^{\circ}\text{C}$, des tests de fuite (cf [Chapitre IV](#)) ont été réalisés de manière à vérifier l'intégrité de la PAC et notamment l'absence de perméation anode – cathode.

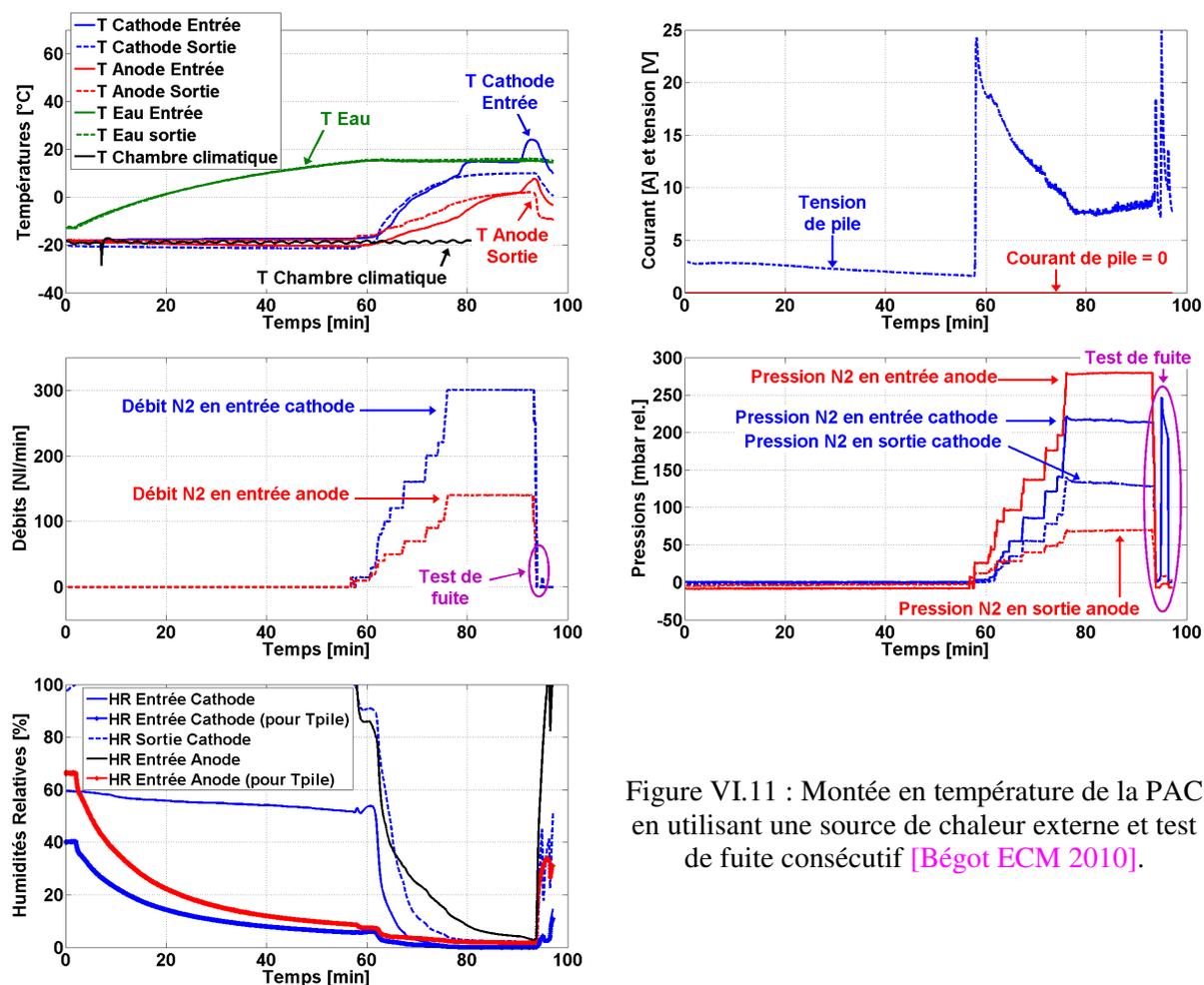


Figure VI.11 : Montée en température de la PAC en utilisant une source de chaleur externe et test de fuite consécutif [Bégot ECM 2010].

- Après les tests de fuite, la stack a été alimenté en air et hydrogène secs (Figure VI.12). A partir d'une température de gaz supérieure à $+5^{\circ}\text{C}$ mesurée en sortie de pile, les réactifs ont été humidifiés et le courant de charge a été augmenté progressivement. Une température de consigne de $+60^{\circ}\text{C}$ a été donnée à la PAC. Au final, le courant a atteint les 100 A tandis que la température dans l'enceinte était voisine de -20°C . Les performances obtenues (une puissance légèrement supérieures à 3 kW) ont été proches de celles relevées pour une température ambiante ordinaire de $+20^{\circ}\text{C}$.

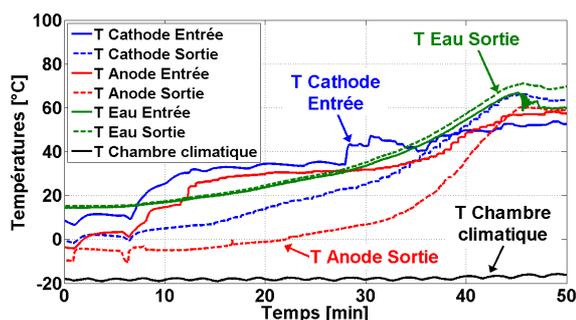
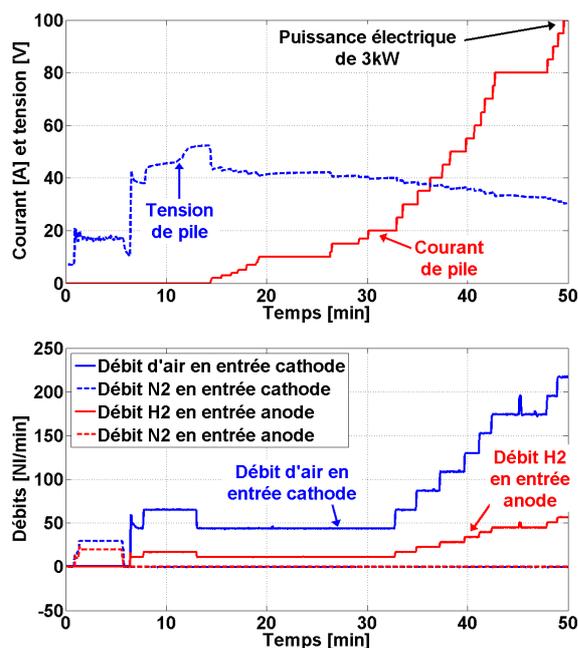


Figure VI.12 : Augmentation graduelle du courant de charge de 0 à 100 A. Démarrage de la charge à une température de pile de +15 °C. Température dans l'enceinte proche de -20°C [Bégot ECM 2010].

Ce type d'essai montre bien l'importance des aspects systèmes dans l'obtention de bonnes performances au niveau du stack. Le dimensionnement des éléments périphériques au stack (celui du « réchauffeur » par exemple) et le contrôle des actionneurs / organes auxiliaires doivent être pensés de manière adéquate. Si une procédure de démarrage d'un générateur PAC suivant une phase de stockage à basse température doit être appliquée dans le futur, des temps de démarrages courts seront probablement attendus. Le réchauffeur devra donc être conçu et géré de manière à fournir la puissance thermique adéquate au circuit de contrôle de température de la PAC. L'inconvénient de cette méthode de démarrage de la PAC dite « active » est évidemment qu'elle nécessite un apport de chaleur externe (via le réchauffeur) et qu'elle induit par conséquent le besoin d'un organe de stockage tampon d'énergie supplémentaire (des batteries par exemple). Si la source de chaleur externe doit faire l'objet d'une conception et d'un contrôle appropriés, c'est en fait toute l'architecture du circuit de contrôle de température de la pile qui est concernée. L'objectif global à retenir en vue d'optimiser ce circuit consisterait à minimiser le volume du fluide caloporteur à chauffer pour raccourcir la phase du démarrage. Dans [Schießwohl JPS 2009], deux circuits de contrôle de la température sont implantés dans le système PAC décrit ("Mini-Loop" et "Maxi-Loop"). Le circuit court passe par la pile, la pompe et le système de chauffe. Il est utilisé de manière spécifique pour assurer les démarrages à froid. Le volume du fluide caloporteur est alors limité, et la capacité thermique de la boucle complète incluant les organes est réduite à un tiers de celle correspondant au circuit long ("Maxi-Loop").

Il faut signaler qu'aucun problème particulier n'a été rencontré au niveau du stack durant ce type de test lors du projet CELINA. Cependant, la question de la fiabilité et de la durée de vie de la pile dans de telles conditions opératoires (induisant des cycles consécutifs gels / dégels) répétées x fois demeure posée. Comme cela a été suggéré dans l'introduction, le problème le plus important susceptible d'être rencontré dans ce type de test est lié à la formation et à la présence de gel au sein de l'assemblage PAC. Le gel peut endommager les AME en causant des craquelures dans les membranes [Guo JPS 2006] ou en entraînant éventuellement une délamination de la couche catalytique [Yan JPS 2006]. La dégradation physique de différentes AME soumises à 30 cycles gels / dégels entre -40°C et 70°C a été étudiée par Kim et al [Kim JPS 2007] [Kim JPS 2008]. La délamination de la couche catalytique, en particulier dans les canaux des plaques de distribution des réactifs, a pu être observée par SEM (Scanning Electron Microscopy). Il apparaît évident que diminuer le contenu en eau des AME peut s'avérer une méthode très efficace pour éviter que le stack soit soumis à de tels facteurs de dégradation. Néanmoins, le comportement des AME actuelles durant les phases successives d'assèchement et d'hydratation doit être mieux évalué en termes de durée de vie. Le stress mécanique des membranes induit par les phases multiples de gonflement / rétrécissement peut aussi conduire à la

formation de craquelures ou de trous (« pinholes »). Pour cette raison, il est très intéressant d'évaluer précisément les méthodologies possibles à mettre en œuvre pour l'arrêt des générateurs PAC. Des travaux à caractères plus fondamentaux pourraient être menés à dessein, avec l'objectif d'étudier les impacts des différents facteurs liés aux méthodes de purges. L'assèchement du stack peut par exemple être réalisé quand le stack se trouve à des températures élevées, et il peut être plus efficace dans ces conditions. La durée de la purge est un autre paramètre à prendre en compte influençant la performance du fonctionnement / démarrage à froid. D'autres facteurs (températures des gaz en entrées de PAC, valeurs des réactifs) doivent aussi entrer en ligne de compte. Le problème sous-jacent est lié à la sélection d'un critère approprié permettant de déterminer avec efficacité le contenu en eau / humidité dans la PAC. La mesure des humidités relatives des gaz (et / ou le calcul des températures de rosée des gaz) peut être utilisée à cette fin mais les capteurs actuellement utilisés sur les bancs d'essais sont chers et sans doute peu adaptés à des systèmes embarqués devant être compétitifs en termes de coût. Une mesure de l'impédance du stack, réalisée avec un courant de charge haute fréquence (1 – 10 kHz), pourrait s'avérer être une solution plus intéressante pour estimer le contenu en eau des membranes [Bégot FC8-1 2008]. Dans leurs travaux expérimentaux [Ge EA 2007] [Ge JES 2007], Ge et Wang ont étudié le processus de démarrage complet de PAC incluant les phases de purges, la baisse de la température, le démarrage à des températures négatives et la montée en température finale du circuit caloporteur. L'impédance de la PAC a été mesurée à une fréquence de 1 kHz et une durée de purge optimale a été déterminée. Dans des études futures, la méthode des plans d'expériences (Chapitre V) pourrait être mise en œuvre pour, à partir de telles mesures d'impédance, estimer les effets des différents facteurs physiques liés à la purge et préparer des processus de purge optimisés.

Des tentatives pour réaliser des essais de stockage et démarrage d'un système PAC à basses températures à des températures ambiantes plus basses (entre -37°C et -20°C) ont également été réalisées. Mais des problèmes liés à une trop faible viscosité du fluide caloporteur ont été rencontrés (fluide trop pâteux à ces niveaux de température). Lors des expériences réalisées, la pompe avait des difficultés à tourner correctement. Il faut noter que certaines stratégies de démarrage à basses températures envisagent la désactivation de la rotation de la pompe, pour accélérer les démarrages [SchieBwohl JPS 2009]. Mais il reste là encore à évaluer l'impact d'un tel choix sur la durée de vie de la PAC (quid de l'homogénéité des températures dans la pile dans ces conditions opératoires ?).

Un test supplémentaire a été réalisé à une température ambiante de -22°C. Du fait de la difficulté du fluide caloporteur (trop pâteux) à circuler, des températures élevées ont été mesurées à proximité du réchauffeur appelé à fonctionner dans cette méthode de démarrage assisté. Une modification a alors dû être apportée au contrôle de l'organe réchauffeur, en faisant en sorte de limiter l'action de chauffe durant cette phase particulière du démarrage à froid.

Par ailleurs, du fait sans doute des assez fortes variations de température au cours de ces essais, des problèmes d'apparition de bulles d'air dans le circuit caloporteur (bruit de la pompe, débit variable !) ont aussi été rencontrés.

VI.3.5 Synthèse des différents essais climatiques réalisés durant CELINA

L'aptitude d'un stack PEM (entouré d'une partie de ses organes auxiliaires) à fonctionner et à démarrer dans un environnement aux températures négatives a été analysée dans le projet CELINA, en menant des expérimentations de différentes natures. Les niveaux de contraintes en température et les scénarios conduisant à imposer ces contraintes au cours du temps ont été définis en tenant compte à la fois d'un cahier des charges aéronautique et des possibilités techniques offertes par les moyens d'essai de la plateforme de Belfort. Avant de revenir plus en détails sur les différents types d'essais et les résultats obtenus, nous pouvons indiquer que la pile investiguée s'est globalement bien comportée sur l'ensemble de la campagne expérimentale CELINA.

- Conclusions sur les tests de fonctionnement à basse température

La PAC a tout d'abord pu fonctionner de manière très convenable dans un environnement basse température avec un démarrage du stack réalisé à température ambiante (+20°C environ) et dans des conditions opératoires habituelles (température de pile de 60°C, réactifs humidifiés à 90%), démarrage suivi d'une diminution progressive de la température dans l'enceinte climatique jusqu'à -35°C environ

et d'un fonctionnement en stabilisé à cette température. Quelques problèmes, que l'on peut qualifier de mineurs, ont cependant été décelés au niveau système. Il n'a ainsi pas été possible de maintenir des températures de réactifs à 65°C, du fait du froid relativement intense entourant les canalisations de gaz. Ces problèmes ont été induits par un calorifugeage et/ou un traçage thermique insuffisants des conduites en amont et aval de la pile assurant l'amenée et l'évacuation des réactifs vers et hors de la PAC. Une telle réduction de la température des réactifs en entrée de pile peut éventuellement occasionner des phénomènes légers de condensation si les niveaux d'eau injectés par les humidificateurs sont maintenus à des valeurs constantes. Il est aussi possible de moins humidifier les gaz, mais une baisse des performances du stack peut en découler (assèchement des membranes). Ce type d'essai met en évidence l'importance à accorder à la sélection, au dimensionnement et à la fiabilité des éléments périphériques tels que les traceurs thermiques, les dispositifs de calorifugeage (« thermal packaging »). A des niveaux de température bas (-35°C environ), ces éléments sont critiques pour éviter des phénomènes de condensation, voire de gel dans les circuits de réactifs en amont et en aval de la PAC, phénomènes qui peuvent entraîner une baisse des performances de la pile, éventuellement un arrêt complet et un endommagement du stack. Les éléments du circuit assurant le contrôle de la température de la pile (la pompe par exemple) sont eux aussi concernés. Les capteurs et l'électronique (mesure des tensions cellules ou électronique associée aux capteurs) doivent aussi être protégés contre le froid.

- Conclusion sur les tests de stockage / entrepose et démarrage d'un système PAC à basse température (« Ground survival »)

Les essais s'apparentent à des démarrages à froid assistés, par l'utilisation d'une source externe de chaleur (réchauffeur) disposée sur le circuit de contrôle de la température de la pile.

Ce type de test, décrit plus haut avec davantage de détails, n'a pas non plus engendré de problème majeur. Il a néanmoins mis en exergue différentes problématiques technologiques telles que l'importance du packaging / isolation thermique au niveau du système, et l'intérêt d'avoir un circuit caloporteur réduit en taille / volume pour réussir des démarrages dans des temps courts. Des procédures de pure / assèchement ont dû être développées et appliquées. Il apparaît que la connaissance de l'impédance à haute fréquence de la pile témoignant de la teneur en eau des membranes apporterait un avantage conséquent dans la maîtrise de ce type d'essais et dans la détermination de l'état de santé de la PAC. Une question plus fondamentale a trait à l'impact des phases successives d'assèchement / hydratation des AME du point de vue de la durée de vie des PAC. Des problèmes technologiques ont été rencontrés au niveau du circuit caloporteur pour des niveaux de température dans l'enceinte inférieurs à -20°C. Ces difficultés peuvent être attribuées d'une part à un fluide caloporteur présentant une viscosité trop forte, et d'autre part à des gradients de température relativement importants dans le circuit, cela sur des intervalles de temps assez brefs. Tous ces problèmes technologiques identifiés n'ont pu être résolus que partiellement au cours du projet. Cependant, les procédures de test et le logiciel de contrôle-commande du banc d'essai PAC ont été adaptés pour éviter par exemple des déviations, des excursions trop importantes de certaines températures (à proximité de l'organe réchauffeur par exemple).

- Conclusions sur les essais de démarrages à froid non-assistés

Le problème du démarrage non assisté ou passif, c'est-à-dire sans apport supplémentaire de chaleur à la PAC, a également été abordé au cours de CELINA. L'intérêt d'une telle procédure réside bien sûr dans la consommation énergétique limitée au niveau des organes périphériques, conduisant à un meilleur rendement système. Contrairement au type d'essai précédent (« Ground survival »), le réchauffeur du circuit de contrôle de la température est en effet rendu inactif durant toute la durée d'une telle expérience. Dans ce cas, la montée en température de la pile est assurée par les pertes thermiques liées au fonctionnement du stack. Eventuellement, il faudrait aussi considérer dans le processus de réchauffement du stack la chaleur apportée à la PAC par les gaz réactifs. L'effet de cet apport de chaleur, sans doute limité par rapport à celui lié au fonctionnement du stack, reste à évaluer.

Ce type de démarrage non-assisté à température négative s'est en fait avéré assez complexe à réaliser et les conditions opératoires ont été jugées difficiles, voire sévères, vis-à-vis de la pile et du maintien de son intégrité physique. Un tel démarrage a cependant été réalisé avec succès durant CELINA [Bégot ECM 2010]. Une puissance électrique stable de 980 – 990 W a pu être obtenue après un

fonctionnement à courant constant de 25 A sur 40 minutes. Des courbes de polarisation enregistrées dans des conditions de référence ont montré que la PAC continuait à offrir des niveaux de performances équivalents à ceux observés avant le démarrage à froid.

Durant ce type d'essai, des problèmes liés au calorifugeage et au traçage insuffisants ont aussi été rencontrés. Il a ainsi été difficile de maintenir des températures de réactifs à 60°C dans les conduites de gaz avant les entrées de pile, en particulier côté anodique où les débits sont plus faibles.

Dans ce genre d'essai, la maîtrise du niveau d'hydratation des membranes et des réactifs est apparue cruciale. Durant les phases de purge / assèchement : un assèchement trop prononcé peut endommager les membranes. Un assèchement insuffisant de la PAC ne permet pas d'évacuer l'eau dans la pile et celle-ci en gelant peut endommager la PAC. Après le démarrage, et aux températures positives, une bonne réhumidification des AME doit être assurée. Le moment auquel la ré-humidification des réactifs doit avoir lieu est difficile à apprécier. Normalement, en dessous de 0°C, les réactifs doivent être secs pour ne pas amener de l'eau vers le stack susceptible de geler. Ce qui engendre cependant des conditions potentiellement difficiles pour le stack.

A la suite de ces essais, il est apparu nécessaire d'étudier différents points afin d'assurer une plus grande fiabilité / durée de vie des PAC soumises à des démarrages à froid. Peuvent être considérés par exemple :

- l'effet de la densité de courant initiale sur le démarrage, qui produit de l'eau susceptible de geler (travaux de Kagami et al. [Kagami 2002]),
- le rôle de la chaleur apportée par les réactifs [Yan JPS 2006],
- l'impact des débits [Oszcipok JPS 2005] [Oszcipok JPS 2006] [Oszcipok FC 2007],
- le rôle des matériaux de pile (plaques graphite / composite ou acier), le design des plaques bipolaires, la nature de l'AME, la largeur de la membrane [Kim JPS 2007] [Kim JPS 2008].

De manière plus générale...

La série complète des essais climatiques a montré d'une part que de nombreux points restaient à traiter à notre niveau pour envisager une application réelle de PAC dans des systèmes de transport, et d'autre part que les aspects systèmes devaient absolument être pris en compte pour obtenir de bons résultats. Tous ces essais réalisés dans un environnement transport contraignant ont aussi mis en évidence le rôle majeur des organes auxiliaires, au niveau du banc, et l'importance de leur pilotage pour parvenir à réaliser convenablement les essais demandés.

Plusieurs constructeurs automobile (Volkswagen, Nissan, Général Motors, Mercedes, Ford, Hyundai, Honda, Toyota) affichent maintenant des potentiels de démarrage de leur prototypes ou véhicules de présérie à des températures comprises entre -20°C et -30°C. En général, dans le domaine très concurrentiel de l'automobile, peu d'informations précises sont données par les constructeurs quant à la manière d'atteindre ces performances. De nombreux brevets ont été déposés et, dans la majeure partie des cas, les solutions mises en œuvre font appel à des sources d'énergie extérieures pour satisfaire le démarrage. Cela laisse à penser qu'il existe donc vraisemblablement dans ce contexte, un potentiel d'optimisation et de développement technologique important des générateurs PAC.

Des travaux récents réalisés au FC LAB dans le cadre du projet ANR MEPHISTO ont prouvé par la réalisation de nombreux essais qu'il était possible de démarrer une PAC de type PEM à partir de -20°C sans apport d'énergie extérieure [Bégot Mephisto 2009]. Suite à ce projet, il est aussi apparu que certains points devaient être approfondis au niveau de la compréhension fine des phénomènes mis en jeu, notamment dans l'optique de démarrages à partir de -30°C. L'expérience enregistrée durant MEPHISTO a par ailleurs montré qu'il existait un facteur d'échelle et des comportements sensiblement différents entre une cellule de PAC unitaire et un stack.

A présent, pour atteindre le double objectif suivant :

- amélioration de la fiabilité et augmentation de la durée de vie des PAC dans un environnement basses températures ou cycles de températures (avec ou sans apport d'énergie extérieure pour les démarrages),
- diminution du niveau de température auquel il est possible de démarrer,

l'utilisation de méthodes de mesure de type électrochimique (spectroscopie d'impédance, voltamétrie [Ge JES 2007] [Harel EPJAP 2011]) et de visualisation intrusive ou pas (fibroscopie, méthodes optiques, thermographie infrarouge) est à envisager pour appréhender plus précisément les mécanismes de formation du gel et l'impact du froid sur la dégradation des matériaux de pile.

VI.4 Essais vibratoires

Dans l'optique d'implanter des générateurs PAC au sein des véhicules du futur, il apparaît nécessaire d'accéder à de meilleures compréhension et maîtrise des comportements mécaniques des piles placées dans un environnement vibratoire. A Belfort, des contraintes mécaniques issues de conditions d'usage transport peuvent être dupliquées en laboratoire grâce à la table vibrante dont dispose la plateforme PAC. L'équipe de Willy Charon et Philippe Lesage (laboratoire M3M de l'UTBM) est en charge du développement scientifique et de l'exploitation technique de cette installation expérimentale très spécifique [Site Web Charon 2012]. Les travaux de l'IFSTTAR en rapport avec les aspects mécaniques des PAC bénéficient ainsi des compétences et de l'expertise développée par cette équipe autour du comportement dynamique des PAC, vues comme des systèmes mécaniques, et de leur expérimentation. Dans cette partie du chapitre, des résultats obtenus durant le projet CELINA et publiés dans [Rouss IJHE n°22 2008] [Rouss IJHE n°21 2008] seront présentés à titre d'exemple.

En vol dit de croisière, des contraintes mécaniques s'exercent sur la structure des avions et les moteurs de propulsion engendrent aussi des vibrations à bord des appareils. Des vibrations aux impacts plus spécifiques peuvent aussi être rencontrées durant les phases particulières de décollage et d'atterrissage. A côtés des enjeux de coût, des problématiques liées aux conditions climatiques, l'amélioration de la fiabilité des systèmes PAC vis-à-vis des sollicitations mécaniques doit donc impérativement être visée pour envisager une application possible des générateurs PAC dans les avions du futur.

Au cours du projet CELINA, un stack de type PEM a été caractérisé suivant les trois axes géométriques de la plateforme vibrante du FC LAB. Les impacts sur le stack d'excitations sinusoïdales à différentes fréquences et amplitudes ont été étudiés. Des tests de fuite ont également assurés pendant le déroulement des essais vibratoires dans le but de vérifier que des dysfonctionnements mécaniques n'interviennent pas au niveau de l'assemblage.

Dans la suite, la problématique des essais vibratoires sera abordée plus en détail. Les moyens d'essai et les protocoles expérimentaux mis en œuvre lors du projet CELINA vont être décrits. Des exemples de résultats issus de la caractérisation mécanique (diagrammes fréquence – accélération) seront montrés et analysés. Des conclusions seront données sur le comportement du stack investigué et nous verrons que les essais ont donné lieu au laboratoire M3M à une modélisation neuronale du comportement mécanique de l'assemblage.

VI.4.1 Contexte et problématique

En comparaison avec un moteur à combustion, un stack de PAC peut apparaître à première vue comme un système intrinsèquement fiable du fait de sa conception modulaire et de la quasi-absence de pièces en mouvement en son sein. Mais un stack peut aussi être considéré comme un système à la structure mécanique plutôt complexe, en particulier parce qu'il est composé d'éléments présentant des disparités très importantes en termes de matériaux, de dimensions (Chapitre II). Un stack est composé de plusieurs cellules connectées en série électriquement et hydrauliquement d'un point de vue fluidique. Chaque cellule est elle-même un assemblage mécanique de différents composants : deux électrodes entourant une membrane électrolyte, des joints disposés sur le périmètre de l'AME, de couches de diffusion (GDLs) et de plaques bipolaires. Les joints ont généralement deux fonctions : prévenir les fuites de réactifs et du caloporteur de l'intérieur de la PAC vers l'extérieur de l'assemblage, prévenir les fuites internes entre compartiments (anode, cathode, caloporteur). Tous ces différents éléments sont maintenus ensemble par des tirants, dont le rôle est d'exercer des pressions uniformes sur les surfaces des cellules à partir des plaques terminales. Pour assurer le maintien, des valeurs de couple sont appliquées au montage de la pile sur les tirants et sur les systèmes vis – écrou – rondelles qu'ils supportent (exemple : 8 Nm sur les piles ZSW 100 cm², avec un serrage à effectuer progressivement par pas de 2 Nm). Des précautions doivent être prises lors de l'assemblage car le couple appliqué a une incidence sur les résistances de contact qui existent entre les différents composants du stack, et par là même, sur les performances électriques de la pile [Lee JPS 1999]. Il

faut veiller par ailleurs à ne pas exercer de pression localisée excessive pour éviter la formation de perforations dans la membrane, perforations éventuellement causées par des irrégularités présentes à la surface des interfaces électrodes – membrane, également pour éviter que des parties de l'AME soient extrudées dans les canaux des plaques bipolaires [Laconti 2003]. La pression exercée sur les éléments du stack peut aussi être impactée par les variations de température lors du fonctionnement de la pile. Bien sûr, on peut aussi supposer que les couples exercés sur les tirants peuvent être modifiés par les vibrations / chocs mécaniques subis par la pile.

Encore relativement peu de travaux portent sur la caractérisation mécanique des PAC et peu de résultats scientifiques ont fait l'objet de publications dans la littérature académique. Cependant, il est clair que l'intérêt porté aux aspects mécaniques des PAC est grandissant. Les ingénieurs et les chercheurs portent de plus en plus d'attention aux réponses mécaniques et aux mécanismes de dégradation dans l'AME [Collier IJHE 2006] soumises à différentes conditions opératoires telles que les cycles d'humidité et de température [Kusoglu JPS 2007] [Solasi JPS 2007]. Les caractérisations mécaniques d'autres composants de stack tels que les GDL et les plaques bipolaires sont aussi concernées [Li IJHE 2005]. Le comportement mécanique des GDL et l'influence de ces composants sur les performances de PAC ont été étudiés par différents laboratoires [Escribano JPS 2006] [Nitta JPS 2007]. Le développement actuel de plaques bipolaires composites ou métalliques nécessite également de mener d'importantes études mécaniques [Cho JPS 2004] [Heinzel JPS 2004]. Néanmoins, il n'existe qu'un nombre très réduit de résultats d'études portant précisément sur les impacts des vibrations mécaniques au niveau des PAC. Dans [Fowler 2003], M. Fowler et al. indiquent que les stacks de type PEM ont passé des tests de choc et de vibration. Deux références traitant d'applications de PAC dans des navires sont mentionnées [Privette 1999] [Schmal1998]. Les joints sont considérés comme une source potentielle de défaut, qui peut induire des fuites significatives d'hydrogène, ou entraîner le mélange d'hydrogène et d'oxygène au sein du stack. Les joints dans les PAC sont soumis à des phénomènes de dégradation [Husar JPS 2007] [Tan 2007] même quand aucune sollicitation vibratoire n'est appliquée à la PAC (dans ce cas, c'est tout de même un stress mécanique qui peut s'appliquer à la PAC ; ce stress étant lié aux différentiels de pression anode – cathode). A côté des fines membranes (épaisseurs généralement comprises entre 25 et 150 μm), les joints constituent aussi à coup sûr des points faibles dans un stack sujet à des vibrations ou à des chocs.

VI.4.2 Banc d'essai vibratoire

Le banc de test vibratoire utilisé au cours de CELINA se composait de la plateforme vibratoire, du stack étudié et de ses fixations, du système d'acquisition de données et d'un dispositif de surveillance de taux de fuite pour la pile. Il permettait d'accéder à une meilleure connaissance des comportements mécaniques de la pile étudiée, d'en déterminer les principales propriétés (comme les non-linéarités [Rouss Thèse 2008]) et aussi de se faire une idée de son aptitude à résister au stress mécanique. La campagne d'essais vibratoires avait aussi pour objectif d'évaluer l'aptitude de la PAC à survivre à différents ordres de fréquence et d'amplitude vibratoire.

- La plateforme vibratoire du FC LAB

La plateforme vibratoire du FC LAB est découplée du bâtiment par un massif antivibratoire et des boîtes à ressorts [Rouss Thèse 2008]. Elle se compose de deux tables différentes : une pour les excitations mécaniques suivant un plan horizontal (direction X) et l'autre pour les sollicitations verticales (direction Z) (Figure VI.13). La rotation de 90° du système étudié sur la surface de la table horizontale permet l'essai suivant la direction Y. Le pot vibratoire peut être tourné soit pour assurer des mouvements de la table à l'horizontal, soit pour faire bouger la seconde table suivant Z. La plateforme vibratoire a les caractéristiques suivantes : fréquence de 6 à 3 kHz, déplacements maximaux de la table (pic à pic) de 50 mm, vitesse maximale de déplacement de 1.8 m/s, et force maximale de 35.6 kN. Au moyen d'un logiciel de contrôle adapté, il est possible de contrôler les excitations et leurs formes : sinusoïdales, de type chocs, ou bien encore aléatoires [Site Web Charon 2012] [Rouss Thèse 2008].

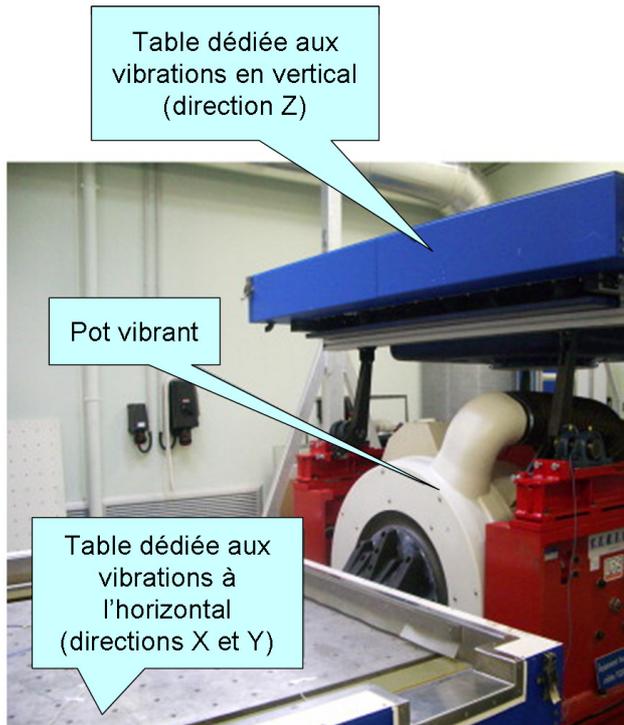


Figure VI.13 :
La plateforme vibratoire
du FC LAB
(sans la pile)
[Rouss IJHE n°22 2008].

- La PAC étudiée dans le cadre de CELINA et ses fixations

Les investigations ont été menées sur une pile existante de type PEM délivrée par IRD [IRD] et qui n'a pas été particulièrement conçue pour subir des tests vibratoires (la pile était d'ailleurs à l'origine plutôt réservée à des applications stationnaires). La pile avait 5 cellules dotées de membranes (surfaces actives de 156 cm²) et de couches de diffusion issues du commerce, de plaques de distribution des réactifs en graphite usiné. Dans les expériences réalisées, la pile a été considérée comme un système mécanique à étudier et un des objectifs importants était de collecter des données témoignant de son comportement mécanique non linéaire. A cet effet, la pile était maintenue sur la table vibrante par des fixations qui avaient été spécifiquement conçues au FC LAB pour ces essais. Ces fixations devaient être aussi rigides et symétriques que possible.

L'ensemble des photos de la Figure VI.14 donne un aperçu d'une expérience menée. D'autres aperçus sont disponibles dans [Rouss IJHE n°22 2008] et [Rouss Thèse 2008]. Différents types d'accéléromètres piézoélectriques ont été utilisés pour effectuer les mesures : capteurs une dimension (1D) et trois dimensions (3D). L'accéléromètre de pilotage, utilisé pour le contrôle, était placé directement sur la surface de la table vibrante tandis que les accéléromètres 1D et 3D étaient disposés judicieusement sur la surface de la pile : au sommet d'une plaque terminale (capteur 3D), sur la surface d'une semelle / embase (« sole plate ») (3D), sur la surface de la plaque bipolaire au milieu stack (3D), sur la surface de la plaque bipolaire du milieu : côtés gauche (1D) et droit (1D). Des informations supplémentaires sur les accéléromètres employés (position, type, sensibilité) peuvent être trouvées dans [Rouss IJHE n°22 2008].

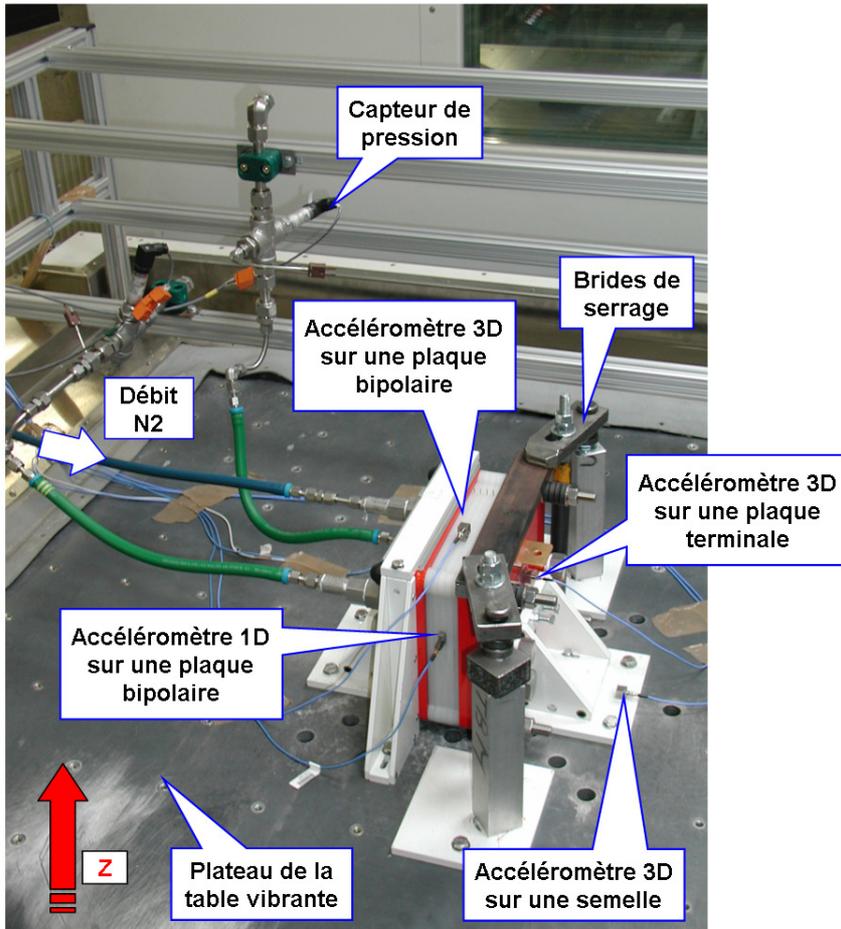


Figure VI.14 :
Emplacement des
accéléromètres sur la pile
[Rouss IJHE n°22 2008]
(CELINA, juillet 2007).

- Le système d'acquisition des données

Deux systèmes d'acquisition ont été mis en œuvre. Le premier, un système LMS industriel [Site Web Charon 2012], était destiné à la collecte des paramètres mécaniques, à leur traitement et à leur affichage sous forme de spectres par exemple. Le second, davantage orienté recherche, permettait d'accéder aux données brutes des signaux mécaniques (données non filtrées) ainsi qu'à l'enregistrement des données fluidiques (pressions et débits).

- Le suivi du taux de fuite sous contrainte vibratoire

L'un des objectifs technologiques des essais menés consistait à savoir si les vibrations mécaniques exercées pouvaient induire des dommages dans la pile, tels que des ruptures ou des déchirures dans les AME, dans les joints, ou bien encore entraîner le déplacement de certains composants au sein de l'assemblage (joints par exemple). A cette fin, un débitmètre et trois capteurs de pression ont été utilisés pour assurer les tests de fuite simultanément aux sollicitations mécaniques. L'anode seule était pressurisée à l'azote à une pression de 300 mbar rel. (via le contrôle d'un détendeur), tandis que les autres compartiments (cathode et circuit de refroidissement) étaient isolés à pression ambiante. Les niveaux de pressions dans les compartiments faisaient l'objet d'une surveillance dans le but de détecter une éventuelle fuite entre compartiments. Par ailleurs, le débitmètre était utilisé pour mesurer l'éventuel débit d'azote vers le compartiment anodique (du fait de la régulation de pression mise en place). Dans la configuration adoptée, le débitmètre donnait en fait une indication globale portant sur deux types de fuite : interne au stack ou externe (des compartiments vers l'extérieur). Des informations techniques sur les capteurs de débit et de pression utilisés ont été données dans [Rouss IJHE n°22 2008].

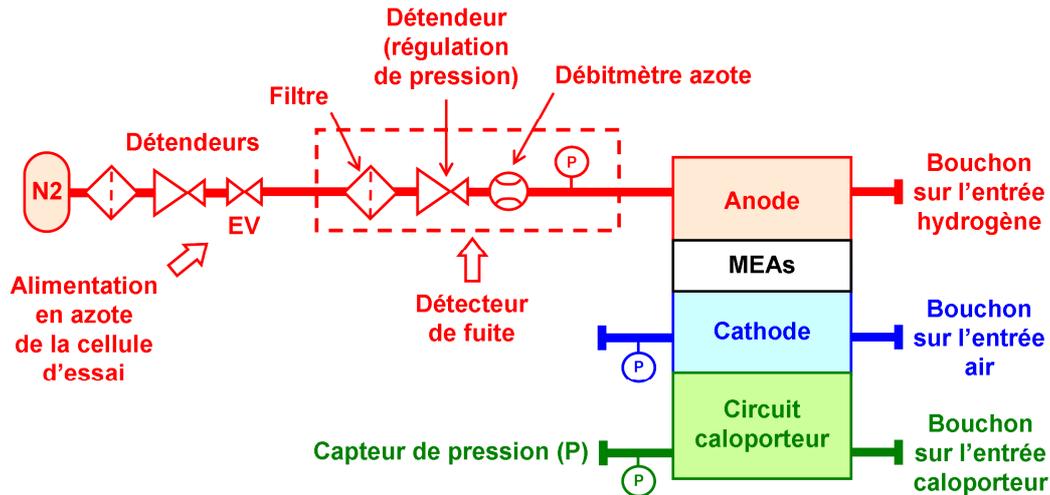


Figure VI.15 : Schéma fluidique du système permettant le suivi des évolutions des pressions dans les compartiments de la PAC et du débit de fuite [Rouss IJHE n°22 2008].

VI.4.3 Procédure de test

Un profil vibratoire de référence nous a été communiqué par Airbus Deutschland. Ce profil était constitué de seize cycles vibratoires donnés pour différents niveaux d'accélération (de 1 g à 16 g par pas de 1 g) [Rouss Thèse 2008]. Les sollicitations mécaniques à appliquer étaient de type sinusoïdal. Les diagrammes vibratoires de références spécifiaient, pour les différents niveaux d'accélération et en fonction de la fréquence, les amplitudes du déplacement du système sur la table vibrante. Le système devant être étudié tour à tour sur chacun des trois axes (X, Y et Z), les essais réalisés ont donc donné lieu à trois jeux de données. Chaque cycle correspondant à un profil d'accélération spécifique durait entre 10 and 30 minutes, suivant la vitesse de balayage et la largeur de la bande de fréquence investiguées.

Avant que chaque cycle vibratoire lié à un niveau d'accélération soit appliqué, un test court préliminaire était réalisé en appliquant un échantillon de sollicitations aléatoires. L'objectif était principalement de vérifier la bonne tenue de la pile et de ses fixations avant la réalisation du cycle.

Des détails sur le profil d'essai vibratoire peuvent être trouvés dans [Rouss IJHE n°22 2008].

Il faut aussi indiquer que pour les fréquences naturelles (et en particulier pour celles de la table vibrante), qui avaient des impacts forts sur les amplitudes des accélérations mesurées par les capteurs, la table vibrante et son système de contrôle ne pouvaient pas être mis en œuvre. En effet, une procédure de sécurité, incluse dans le logiciel de contrôle de la table et entraînant l'arrêt du pot vibrant, évitait de donner lieu à de trop larges amplitudes. De ce fait, certains intervalles de fréquence, en particulier à hautes fréquences, n'ont pas pu être explorés et les expériences ont dû être segmentées sur plusieurs intervalles de fréquence.

VI.4.4 Résultats d'essai

Des exemples de résultats d'essais obtenus sur l'axe Y sont d'abord présentés sous la forme de diagrammes accélération – fréquence. Des commentaires plus généraux, relatifs aux trois axes, seront ensuite proposés. Des informations sur les résultats obtenus au niveau du suivi des taux de fuite seront aussi données.

VI.4.4.1 Exemple de résultat obtenu suivant la direction Y

Les expériences sur l'axe Y ont pu être réalisées pour des accélérations allant de 1 g à 9 g. Comme cela a évoqué précédemment, les fortes accélérations (ici supérieures à 9 g) induisaient de nombreuses sollicitations excessives et conduisaient par conséquent à un trop grand morcèlement des essais. A cause de la fréquence naturelle de la table en position horizontale, le profil n'a pas pu être joué autour de 700 Hz. A noter que pour les axes X et Z, les expériences ont pu être réalisées jusqu'à 9 et 12 g

respectivement. La [Figure VI.16](#) montre, pour une accélération de 5 g, les spectres liés à l'accéléromètre 3D disposé sur la semelle / embase (« sole plate »). La [Figure VI.17](#) montre pour la même accélération les spectres liés aux trois capteurs placés sur les plaques bipolaires (un capteur 3D et deux capteurs 1D). La fréquence naturelle de la table qui avait lieu autour de 700 Hz est observable sur la [Figure VI.16](#). Le capteur placé sur l'embase était en effet plus sensible aux fréquences naturelles de la table, l'embase étant proche de celle-ci et fixée à elle par des vis. A noter que les fréquences naturelles de la table ont aussi été mesurées par les capteurs placés sur le stack (à observer par exemple sur la [Figure VI.17](#) à 700 Hz).

Chaque partie de la pile avait des réponses dynamiques différentes. Le stack ne se comportait donc pas comme un corps rigide et il avait un comportement élastique du fait :

- des propriétés mécaniques des composants de la pile (matériaux des composants, rigidités),
- des contraintes liées aux différents couples de serrage appliqués sur les tirants du stack,
- des différentes positions des capteurs dans le référentiel X, Y et Z.

Par conséquent, les fréquences naturelles mesurées sur différents points de la surface de la pile (plaque bipolaire, plaque terminale) n'étaient pas identiques. Ces fréquences, mesurées par les accéléromètres sur la plaque bipolaire et sur la plaque terminale, ont été répertoriées dans un tableau et publiées dans [\[Rouss IJHE n°22 2008\]](#). Remarque : les fréquences naturelles de la table sont à extraire car elles ne sont pas imputables au stack.

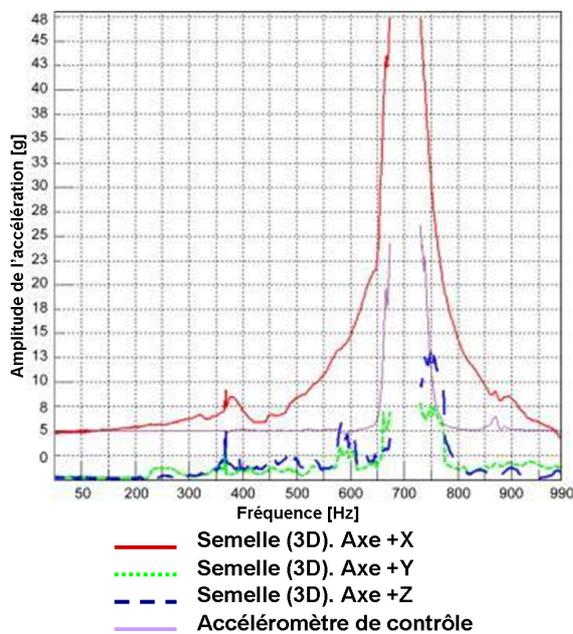


Figure VI.16 : Spectres de l'accéléromètre 3D placé sur l'embase (la semelle, « sole plate ») pour des mesures effectuées sur l'axe Y (accélération de 5g).

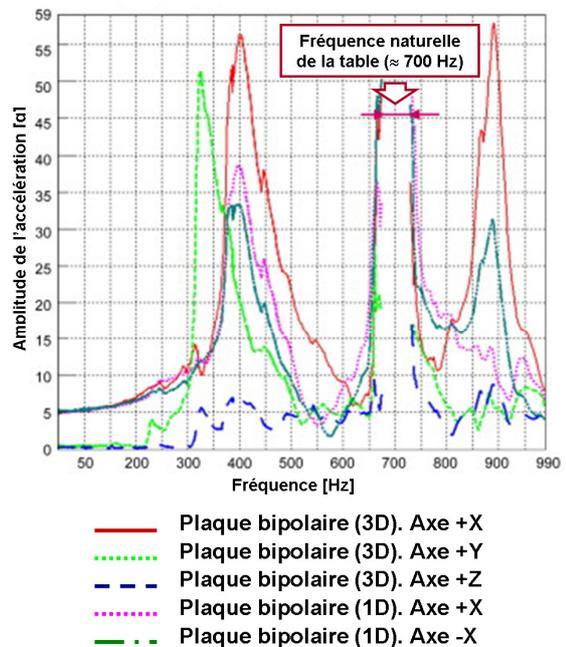


Figure VI.17 : Spectres des trois accéléromètres placés sur la plaque bipolaire pour des mesures effectuées sur l'axe Y (accélération de 5g).

Une autre constatation importante a pu être faite lors des essais : faire vibrer la table suivant la direction Y induisait des fréquences de résonance dans toutes les directions, mais en particulier suivant X. Les mesures faites suivant X et Y sont apparues comme étant fortement corrélées (interdépendantes). Ce qui laissait à penser que des mouvements de rotation au niveau de la plaque bipolaire pouvaient intervenir (mode mécanique non-rigide) [\[Rouss IJHE n°22 2008\]](#).

VI.4.4.2 Observations concernant les trois directions

Les observations faites sur l'axe Y étaient similaires à celles qui avaient pu être faites sur les autres axes (X et Z). Faire vibrer le système par exemple suivant l'axe Y entraînait l'apparition de fréquences naturelles non seulement sur l'axe Y mais aussi suivant les autres axes (et réciproquement). Les fréquences mesurées sur la plaque bipolaire et sur la plaque terminale de la pile étaient légèrement

différentes, en particulier à hautes fréquences. Les mesures laissaient bien apparaître le stack comme un assemblage de différents sous-systèmes dont les réponses en résonance étaient couplées.

Chaque capteur lié à une partie différente de la pile peut avoir des réponses dynamiques similaires ou différentes.

- Similaires : il existe alors des modes généraux, globaux de vibration. Si une vibration n'est pas mesurée avec un capteur spécifique, cela peut être dû à un nœud à cet endroit.

- Différentes : il existe alors des modes vibratoires locaux. En général, avec une masse réduite en vibration ou dans un domaine fréquentiel complètement différent de celui des modes globaux.

Il n'est pas possible à ce stade de distinguer complètement les modes de vibration locaux et globaux. Seule une comparaison entre des résultats expérimentaux et obtenus grâce à un modèle numérique pourrait permettre d'apporter des réponses. Dans cette optique, une analyse plus poussée a été développée par Vicky ROUSS (FC LAB - M3M) et un modèle mécanique de la pile a été proposé à base de réseaux de neurones [Rouss IJHE n°21 2008] [Rouss Thèse 2008]. Il permet de disposer d'un modèle temporel unique prédisant le comportement mécanique de la PAC suivant les trois axes X, Y et Z.

VI.4.4.3 Quelques observations relatives au test de fuite

Quelques commentaires peuvent être faits au sujet des évolutions des pressions à l'intérieur des trois compartiments durant les tests de vibration avec l'anode de la pile sous pression. Le point principal est qu'aucune fuite importante n'a été détectée pendant les essais. Le débitmètre d'azote (cf. schéma de la Figure VI.15) qui permet aussi de détecter une éventuelle fuite n'a pas indiqué de valeur de débit supérieure à 1 NI/min. l'enregistrement d'une telle valeur aurait témoigné d'un réel problème au sein de l'assemblage. Aucune augmentation de pression à la cathode, liée à une rupture dans une membrane ou à un joint déplacé, n'a été détectée : la cathode est restée à pression ambiante. Le niveau de pression indiqué par le transmetteur lié au compartiment du circuit de refroidissement est aussi resté constant durant la série de tests (pression ambiante). Une légère diminution de la pression à l'anode a cependant été détectée : environ 25 mbar / heure. Mais cette valeur correspondait en fait à celle qui avait déjà été observée durant les phases d'essais où la pile n'était pas sollicitée en vibrations. Ce faible taux de fuite peut être attribué à de possibles fuites externes, de l'anode vers l'extérieur, avec des fuites principalement localisées au niveau des raccords d'alimentation des fluides. Une faible inétanchéité a été probablement rencontrée à ces endroits du fait de l'utilisation de Téflon entre les différentes surfaces des raccords fluidiques. Néanmoins, aucune diminution importante et soudaine de la pression, causée par une rupture ou un déplacement de composant dans la pile, n'a été observée.

A noter que lors de futurs tests et dans le but de mieux détecter des fuites mineures, des capteurs de pressions et débit aux gammes de mesure adaptées (plus réduites) et aux niveaux de précisions plus élevés doivent être employées.

Un autre problème de nature technologique en rapport avec le maintien de l'intégrité du stack sous sollicitations vibratoires concerne les raccords externes dédiés aux alimentations des fluides (réactifs et caloporteur). Les raccords utilisés dans cette expérience étaient d'assez longues dimensions et lourds (car en acier). Comme cela a déjà été indiqué, aucun défaut particulier n'est apparu lors des expériences. Cependant, il est utile de mentionner que ces raccords auraient pu endommager la pile, en particulier au niveau de ses entrées / sorties fluidiques, du fait de « balourds » mécaniques engendrés par la taille et la masse des raccords. Les tuyaux souples de type « push on », employés pour raccorder les entrées / sorties fluidiques du stack aux capteurs, ont été positionnés et fixés sur un cadre (Figure VI.14) de manière à réduire les contraintes exercées sur les raccords de la pile. L'utilisation de raccords alternatifs, plus compacts et plus légers, ainsi qu'une nouvelle conception des plaques terminales et des embouts filetés supportant les raccords, permettraient de réduire les risques de bris et de fuites de réactifs et/ou de caloporteur.

VI.4.5 Synthèse des essais vibratoires réalisés lors du projet CELINA

Pour étudier le comportement de PAC sujettes à différentes charges mécaniques, des procédures de test ad-hoc et innovantes doivent être développées. Dans le projet CELINA, un travail de caractérisation mécanique d'une pile PEM a été entrepris et des fréquences naturelles propres à l'assemblage ont été déterminées. L'analyse des signaux temporels issus de capteurs accéléromètres de type 1D et 3D, et les spectres en résultant, ont aussi conduit aux observations suivantes.

Tout d'abord, il a été possible d'affirmer que le stack étudié a eu un comportement mécanique de type multi-corps, 3D et non linéaire. Cela nous amène à considérer que, pour piloter et contrôler de manière optimale les essais vibratoires, il apparaît utile de disposer de modèles performants et fins, capables de fonctionner en conditions statiques et dynamiques. Pour aller dans ce sens, le comportement mécanique de la pile a déjà fait l'objet d'une modélisation neuronale [Rouss IJHE n°21 2008] [Rouss Thèse 2008].

Ensuite, il convient d'indiquer que le stack investigué ne s'est pas détérioré mécaniquement sous l'effet des sollicitations appliquées. Aucun problème de déchirure / rupture de membrane, ni autre mal fonction du type joint abîmé ou déplacé n'a été décelé. A noter cependant, que dans la mesure où les résultats issus du projet CELINA concernent un stack court (composé de quelques cellules uniquement), il faut s'attendre à ce que des résultats qui seraient obtenus à partir d'un stack plus long (nombre de cellules élevé) soient sensiblement différents. Une moins grande rigidité, une plus grande flexibilité mécanique du stack long pourrait entraîner des vibrations, venir diminuer de temps à autres les forces de contact entre deux cellules adjacentes et ainsi donner lieu à des inétanchéités fluidiques. Dans ce contexte, des investigations concernant le comportement mécanique de stacks identiques mais plus ou moins longs (ayant plus ou moins de cellules) seraient intéressantes à mener. En particulier pour déterminer jusqu'à quel point l'association de stacks courts (ou empilements limités) serait préférable, en termes de fiabilité mécanique, à l'utilisation d'un stack long. Si une redondance peut être réalisée de cette manière, la fiabilité / disponibilité au niveau du système complet peut s'en trouver améliorée. Bien sûr, l'étude de l'association de piles sur un plan électrique et fluide représente un travail corollaire à ces recherches (Chapitres III et VII).

Il resterait aussi évidemment à étudier le comportement de la pile sous réactifs et en fonctionnement réel (avec de la puissance électrique délivrée, des variations de température au niveau de l'assemblage...). Au FC LAB, des travaux ont été menés dans cette optique dans le cadre du projet FISYPAC par une équipe de recherche UTBM composée de membres des laboratoires SET et M3M. Il serait à présent intéressant et possible de combiner la plateforme vibratoire et des instruments de diagnostic tel que la spectrométrie d'impédance électrochimique pour déceler par exemple une éventuelle meilleure diffusion des réactifs dans la pile soumise à des vibrations.

Le problème de la durée de vie et de la fatigue rencontrée par la pile en ambiance vibratoire est un autre problème sérieux à appréhender et à maîtriser en vue de l'utilisation de PAC dans les véhicules du futur. En effet, idéalement, les impacts des vibrations sur la pile devraient être étudiés sur des périodes longues, plus représentatives des conditions d'usage. Le modèle neuronal développé par Vicky ROUSS pourrait s'avérer très utile dans ce contexte en offrant la possibilité de « monitorer » les essais d'endurance.

VI.5 Conclusion et perspectives

L'intégration d'un système à PAC à bord d'un véhicule, d'un avion par exemple, apparaît comme une tâche complexe et pleine d'enjeux scientifiques et techniques difficiles à relever. Les générateurs PAC de technologie PEM doivent être adaptés à des conditions de fonctionnement transport souvent assez sévères. Ils doivent être conçus pour répondre à des sollicitations qui se caractérisent généralement par de fortes composantes dynamiques. Que ce soit au niveau du profil de charge électrique demandé, avec un courant de pile amené à varier sur différentes plages de fréquences (des fréquences hautes engendrées par l'utilisation de convertisseurs de puissance électroniques aux fréquences plus basses liées au profil de mission temps - véhicule et aux régulations des variables physiques : courant, débits, pressions, températures, humidités...). Ou bien encore occasionnées par les environnements climatique (avec des gradients de températures parfois élevés) et mécanique (vibrations, chocs). Dans ce contexte, l'impact de polluants (CO par exemple) ou la dilution des réactifs par d'autres gaz (azote par exemple) pourrait aussi être évoqué. Si ce point n'a pas été abordé dans ce chapitre, c'est qu'il n'a encore été qu'assez peu traité sur la plateforme de Belfort [Candusso Rapport CELINA essais altitude 2007]. Mais des communications sur des résultats de travaux très intéressants obtenus par des laboratoires partenaires peuvent être consultées à ce sujet [Boillot 2006] [Bonnet 2010] [Franco EA 2009].

Chapitre VI

Pour relever tous ces défis et aboutir à une intégration réussie de groupe électrogène à PAC dans les véhicules, les recherches doivent être menées au niveau du système complet et en adoptant nécessairement une approche multidisciplinaire et à forte composante expérimentale. Le développement et l'utilisation de moyens d'essais conséquents (bancs d'essais ou démonstrateurs / plateformes roulantes telles que le locomoteur SNCF LHYDIE du projet PLATHEE – SPACT80) permettant des essais en dynamique de courant, des tests climatiques et mécaniques sont nécessaires pour mener à bien les investigations. Cela va bien sûr de pair avec le déploiement de moyens de caractérisation et d'acquisition de données ([Chapitre IV](#)), de traitement de l'information, des méthodes d'essais et de préparation d'essais spécifiques (plan d'expériences, cf. [Chapitre V](#)), et des modélisations associées. L'objectif étant de mieux comprendre les phénomènes physiques rencontrés dans les conditions d'usage transport, d'être en mesure de proposer des topologies électriques et fluidiques, des lois de commande en vue de l'optimisation énergétique des générateurs PAC pour les applications embarquées.

Pour conclure ce chapitre, il apparaît important d'insister sur le fait que ce type de recherche ne peut être mené qu'à condition de bénéficier de moyens matériels adaptés, souvent onéreux et obtenus par le biais de contrats, et que ces programmes de recherche ne peuvent eux-mêmes être réalisés que dans un cadre idoine (à l'instar de la plateforme PAC de Belfort soutenue par différents organismes et collectivités).

Pour proposer une transition vers le chapitre suivant, on peut indiquer que dans un environnement transport particulièrement exigeant, les générateurs PAC doivent par ailleurs offrir des garanties maximales en termes de disponibilité, de fiabilité et de durée de vie.

VI.6 Références

[Ahluwalia JPS 2006]	Ahluwalia R K, Wang X. Rapid self-start of polymer electrolyte fuel cell stacks from subfreezing temperatures. J Power Sources 2006;162(1):502-512.
[André 1997]	M. André. Driving patterns analysis and driving cycles - European Development of Hybrid Technology approaching efficient Zero Emission Mobility (HYZEM). INRETS Report, LEN 9709 (1997), Bron, France.
[Bégot ECM 2010]	S. Bégot, F. Harel, D. Candusso, X. François, M-C. Péra, S. Yde-Andersen (juillet 2010). Fuel cell climatic tests designed for new configured aircraft application. Energy Conversion and Management. Vol. 51, n°7, pp. 1522-1535. Ed. Elsevier.
[Bégot FC8-1 2008]	S. Bégot, F.Harel, J-M.Kauffmann. Design and validation of a 2kW-fuel cell test bench for subfreezing studies . Fuel Cells From Fundamentals to Systems 2008;8(1):23-32.
[Bégot FC8-2 2008]	S. Bégot, F.Harel, J-M.Kauffmann. Experimental Studies on the Influence of Operational Parameters on the Cold Start of a 2 kW Fuel Cell . Fuel Cells From Fundamentals to Systems 2008;8(2):138-150.
[Bégot Mephisto 2009]	Bégot S., Harel F., 2009. Rapport sur la mise au point de nouvelles stratégies de démarrage et d'arrêt et essais associés – MEPHISTO.
[Boblet 2009]	Sébastien Boblet. Résumé et éléments de bilan : SPACT-80. Présentation au séminaire Pan-H à Tours les 6 & 7 Avril 2009. http://www-anr-panh.cea.fr/home/liblocal/docs/Seminaire2009/Fiches%20et%20%20avril%202009/PANH_05_spact_Tours%202009.pdf
[Boillot 2006]	M. Boillot, C. Bonnet, N. Jatroudakis, P. Carré, S. Didierjean, F. Lopicque. Effect of Gas Dilution on PEM Fuel Cell Performance and Impedance Response. Fuel Cells. Volume 6, Issue 1, Date: February, 2006, Pages: 31-37.
[Bonnet 2010]	Caroline Bonnet, Ludivine Franck-Lacaze, Sara Ronasi, Serge Besse, François Lopicque. PEM fuel cell Pt anode inhibition by carbon monoxide: Non-uniform behaviour of the cell caused by the finite hydrogen excess. Chemical Engineering Science, Volume 65, Issue 10, 15 May 2010, Pages 3050-3058.
[Bonnet JPS 2008]	C. Bonnet, S. Didierjean, N. Guillet, S. Besse, T. Colinart, P. Carré. Design of an 80 kWe PEM fuel cell system: Scale up effect investigation. Journal of Power Sources. Volume 182. N°2. 1er août 2008. Pages 441-448.
[Bouayad DEA 2005]	Youssef BOUAYAD. Etude statique et dynamique du conditionnement des fluides réactifs alimentant un système pile à combustible. Rapport de stage de Masters Recherche et Prof. PROTEE. Durée : mars 2005 – juillet 2005. Soutenance au L2ES Belfort le 19/07/2005.
[Candusso Celina livrable test ref 2007]	D. Candusso, S. Bégot, X. François, F. Harel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (2007). Livrable D3.3.2 : Test data and report of reference test results. Projet européen CELINA (L2ES – FC LAB). 46 pages + annexes.

Chapitre VI

[Candusso FDFC 2004]	D. Candusso, F. Harel, X. François, A. De Bernardinis, M-C. Péra, D. Hissel (29 novembre - 2 décembre 2004). Experimental study of a 5kW PEM fuel cell for transportation applications. 2 nd France–Deutschland Fuel Cell Conference (FDFC). Belfort. Vol. 2, pp. 355-360. ISBN 2914279-16-7.
[Candusso IJHE n°31 2006]	D. Candusso, F. Harel, A. De Bernardinis, X. François, M.C. Péra, D. Hissel, P. Schott, G. Coquery, J-M. Kauffmann (juillet 2006). Characterisation and modelling of a 5kW PEMFC for transportation applications. Int. J. of Hydrogen Energy. Vol. 31, n°8, pp. 1019-1030. Ed. Elsevier.
[Candusso Rapport CELINA essais altitude 2007]	D. Candusso, S. Bégot, X. François, F. Harel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (2007). Livrable D3.3.3 : Test data and report of atmospheric simulation test results. Projet européen CELINA (L2ES – FC LAB). 29 pages + annexes.
[Candusso Thèse 2002]	Denis Candusso. Hybridation du groupe électrogène à pile à combustible pour l'alimentation d'un véhicule électrique. Thèse de Doctorat INPG Génie Electrique, Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble, 29/11/2002. 168 pages + annexes.
[CELINA DoW 2005]	Projet EU CELINA. Description of Work. Version du 5 avril 2005. 140 pages.
[Chnani DEA 2004]	Moussa CHNANI. Etude de l'incidence des actionneurs et des organes de conditionnement des fluides sur le comportement d'un système pile à combustible. Rapport de stage de DEA PROTEE. Durée : mars 2004 – sept. 2004. Soutenance au L2ES Belfort le 31/8/2004.
[Cho 2003]	Cho EA, Ko JJ, Ha HY, Hong SA, Lee KY, Lim TW, Oh IH. Characteristics of the PEMFC repetitively brought to temperatures below 0°C. J Electrochem Soc 2003;150(12):A1667-A1670.
[Cho JPS 2004]	Cho EA, Jeon US, Hong SA, Oh IH, Kang SG. Performance of a 1kW-class PEMFC stack using TiN-coated 316 stainless steel bipolar plates. Journal of Power Sources 2004;142:177-183.
[Collier IJHE 2006]	Collier A, Wang H, Zi Yuan X, Zhang J, Wilkinson DP. Degradation of polymer electrolyte membranes. International Journal of Hydrogen Energy 2006;31:1838-1854.
[Datta JPS 2002]	Datta BK, Velayutham G, Prasad Goud A. Fuel cell power source for a cold region. J. Power Sources 2002;106(1-2):370–376.
[De Bernardinis Lucerne 2009]	A. De Bernardinis, F. Harel, L. Girardot, D. Candusso, D. Hissel (29 juin – 2 juillet). Experimental Dynamic Behavior of a 30kW 90Cell PEFC Prototype under Transportation Load Cycle Constraints. European Fuel Cell Forum 2009. Lucerne, Suisse, 16 pages.
[Doc RCTA 2004]	Document RTCA/DO-160E (Radio Technical Commission for Aeronautics Document), Environmental Conditions and Test Procedures for Airborne Equipment. International standard for environmental testing of commercial avionics. RTCA, Inc. 9 décembre 2004.
[Escribano JPS 2006]	Escribano S, Blachot JF, Ethève J, Morin A, Mosdale R. Characterization of PEMFCs gas diffusion layers properties. Journal of Power Sources 2006;156:8-13.

Chapitre VI

[Fowler 2003]	Fowler M, Mann RF, Amphlett JC, Peppley BA, Roberge PR. Reliability issues and voltage degradation. In: Vielstich W, Gasteiger HA, Lamm A, editors. Handbook of fuel cells - fundamentals technology and applications, Fuel cell technology and applications, Wiley & Sons, Inc, New York, 2003. p. 663–677.
[Franco EA 2009]	Alejandro A. Franco, Magalie Guinard, Benoit Barthe, Olivier Lemaire. Impact of carbon monoxide on PEFC catalyst carbon support degradation under current-cycled operating conditions. <i>Electrochimica Acta</i> , Volume 54, Issue 22, 1 September 2009, Pages 5267-5279.
[François 2005]	X. François, F. Harel, S. Bégot, J-M. Kauffmann. LOT B : Conception Pile et validation sur une pile prototype, Tâche 4.3 : Tests de validation de la pile en ambiance extrême. Projet PACo GENEPAC, (L2ES – FC LAB), mai 2005, 29 pages.
[Fuel cell bulletin N°9 2006]	Aircraft fuel cell team targets certification. <i>Fuel Cells Bulletin</i> . N°9. Septembre 2006. Page 2.
[FUERO 2003]	FUERO Specification of Tests Procedures for PEM Fuel Cell Stacks. Draft version 3, prepared by the FUERO Consortium with Volvo as principal author. Mars 2003.
[Ge EA 2007]	Ge S, Wang CY. Characteristics of subzero startup and water/ice formation on the catalyst layer in a polymer electrolyte fuel cell. <i>Electrochim. Acta</i> 2007;52(14):4825–4835.
[Ge JES 2007]	S. Ge et C.Y. Wang. Cyclic voltammetry study of ice formation in the PEFC catalyst layer during cold start. <i>Journal of the electrochemical society</i> , vol 154 n°12, pp B1399/B1406, (2007).
[Guo JPS 2006]	Guo Q, Qi Z. Effect of freeze-thaw cycles on the properties and performance of membrane-electrode assemblies. <i>J Power Sources</i> 2006;160(2):1269-1274.
[Harel EPJAP 2011]	F. Harel, S. Bégot, S. Wasterlain, D. Candusso (mai 2011). Electrochemical characterisation of fuel cell stack during cold start. Accepté le 14/09/2010 dans <i>The European Physical J. Applied Physics</i> . (EPJAP). Vol 54, n°2 - article 23402, 10 pages. Ed. EDP Sciences.
[Harel FC 2007]	F. Harel, X. François, D. Candusso, M-C. Péra, D.Hissel, J-M. Kauffmann (avril 2007). PEMFC durability test under specific dynamical current solicitation linked to vehicle road cycle. <i>Fuel Cells from Fundamentals to Systems</i> . Vol. 7, n°2, pp.142-152. Ed. Wiley-VCH Verlag GmbH.
[Harel FDFC 2008]	F. Harel, A. De Bernardinis, L. Girardot, X. François, D. Candusso, D. Hissel, G. Coquery (10 – 12 décembre 2008). Experiments of a 30kW 90 cell PEMFC under transportation load cycle constraints. <i>FDFC 2008</i> . Nancy, 10 pages.
[Harel Rapport INRETS LTE n°3 2008]	Harel F., 2008. Expérimentations de piles à combustible en approche système embarqué - Rapport INRETS-LTE N°0802.
[Heinzel JPS 2004]	Heinzel A, Mahlendorf F, Niemzig O, Kreuz C. Injection moulded low cost bipolar plates for PEM fuel cells. <i>Journal of Power Sources</i> 2004;131:35-40.
[Hou IJHE 2007]	Hou J, Yi B, Yu H, Hao L, Song W, Fu Y, Shao Z. Investigation of resided water effects on PEM fuel cell after cold start. <i>Int J Hydrogen Energy</i> 2007;32(17):4503-4509.

Chapitre VI

[Hou JPS 2006]	Hou J, Yu H, Zhang S, Sun S, Wang H, Yi B, Ming P. Analysis of PEMFC freeze degradation at -20 C after gas purging. J Power Sources 2006;162(1):513-520.
[Husar JPS 2007]	Husar A, Serra M, Kunusch C. Description of gasket failure in a 7 cell PEMFC stack. Journal of Power Sources 2007;169:85-91.
[IRD]	Web site of IRD Fuel Cell Technology: http://www.ird.dk , 2009.
[Ishikawa JPS 2007]	Ishikawa Y, Morita T, Nakata K, Yoshida K, Shiozawa M. Behavior of water below the freezing point in PEFCs. J Power Sources 2007;163(2):708-712.
[Kagami 2002]	Kagami F, Ogawa T, Hishinuma Y, Chikahisa T. Therm Sci Eng 2002;10(3):25-33.
[Kauffmann CVELEC'02]	J.M. Kauffmann, G. Rey, X. François. Plate-forme nationale d'essais de piles à combustible pour des applications transports. CVELEC'02. Grenoble. 25-26 juin 2002. Pages 55-65.
[Kim JPS 2007]	Kim S, Mench MM. Physical degradation of membrane electrode assemblies undergoing freeze/thaw cycling: Micro-structure effects. J Power Sources 2007;174(1):206-220.
[Kim JPS 2008]	Kim S, Ahn BK, Mench MM. Physical degradation of membrane electrode assemblies undergoing freeze/thaw cycling: Diffusion media effects. J Power Sources 2008;179(1): 140-146.
[Kusoglu JPS 2007]	Kusoglu A, Karlsson AM, Santare MH, Cleghorn S, Johnson WB. Mechanical behavior of fuel cell membranes under humidity cycles and effect of swelling anisotropy on the fatigue stresses. Journal of Power Sources 2007;170:345-358.
[Laconti 2003]	Laconti AB, Hamdan M, Mc Donald RC. Mechanisms of membrane degradation. In: Vielstich W, Gasteiger HA, Lamm A, editors. Handbook of fuel cells - fundamentals technology and applications, Fuel cell technology and applications, Wiley & Sons, Inc. New York, 2003. p. 647-662.
[Lee JPS 2007]	Lee C, Mérida W. Gas diffusion layer durability under steady-state and freezing conditions. J Power Sources 2007;164(1):141-153.
[Lee JPS 1999]	Lee W, Chien-Hsien H, Van Zee J, Murthy M. The effects of compression and gas diffusion layers on the performance of a PEM fuel cell. Journal of Power Sources 1999; 84:45-51.
[Lefèvre Thèse 2004]	Guillaume Lefèvre, Conception de convertisseurs statiques pour l'utilisation de la pile à combustible. Université Joseph-Fourier - Grenoble I (26/11/2004).
[Li IJHE 2005]	Li X, Sabir I. Review of bipolar plates in PEM fuel cells: Flow-field designs. International Journal of Hydrogen Energy 2005;30:359-371.
[Mac Donald FC 2004]	Mac Donald RC, Mittelsteadt CK, Thompson EL. Effects of Deep Temperature Cycling on Nafion 112 Membranes and Membrane Electrode Assemblies. Fuel Cells From Fundamentals to Systems 2004;4(3):208-213.
[Nitta JPS 2007]	Nitta I, Hottinen T, Himanena O, Mikkola M. Inhomogeneous compression of PEMFC gas diffusion layer, Part I. Experimental. Journal of Power Sources 2007;171:26-36.

Chapitre VI

[Oszcipok FC 2007]	M. Oszcipok, A. Hakenjos, D. Riemann, C. Hebling. Start Up and Freezing Processes in PEM Fuel Cells. <i>Fuel Cells From Fundamentals to Systems</i> 2007;7:135-141.
[Oszcipok JPS 2005]	Oszcipok M, Riemann D, Kronenwett U, Kreideweis M, Zedda M. Statistic analysis of operational influences on the cold start behaviour of PEM fuel cells; <i>J Power Sources</i> 2005;145(2):407-415.
[Oszcipok JPS 2006]	Oszcipok M, Zedda M, Hesselmann J, Huppmann M, Wodrich M, Junghardt M, Hebling C, Portable proton exchange membrane fuel-cell systems for outdoor applications. <i>J Power Sources</i> 2006;157(2):666-673.
[Oszcipok JPS 2006]	Oszcipok M, Zedda M, Riemann D, Geckeler D: Low temperature operation and influence parameters on the cold start ability of portable PEMFCs; <i>J Power Sources</i> 2006;154(2):404-411.
[Pinton JPS 2009]	Pinton E, Fourneron Y, Rosini S, Antoni L. Experimental and theoretical investigations on a proton exchange membrane fuel cell starting up at subzero temperatures. <i>J Power Sources</i> 2009;186(1):80-88.
[Privette 1999]	Privette RM. PEM Fuel Cell Evaluation for Navy Surface Ship Applications. In: 34 th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference, Vancouver, Canada, 1999.
[Rouss IJHE n°21 2008]	Vicky Rouss, Denis Candusso, Willy Charon. Mechanical behaviour of a fuel cell stack under vibrating conditions linked to aircraft applications part II: Three-dimensional modelling. <i>International Journal of Hydrogen Energy</i> , Volume 33, Issue 21, November 2008, Pages 6281-6288.
[Rouss IJHE n°22 2008]	Vicky Rouss, Philippe Lesage, Sylvie Bégot, Denis Candusso, Willy Charon, Fabien Harel, Xavier François, Viktor Selinger, Christine Schilo, Steen Yde-Andersen. Mechanical behaviour of a fuel cell stack under vibrating conditions linked to aircraft applications part I: Experimental. <i>International Journal of Hydrogen Energy</i> , Volume 33, Issue 22, November 2008, Pages 6755-6765.
[Rouss Thèse 2008]	Vicky Rouss. Expérimentation en dynamique de systèmes mécaniques complexes pour le transport terrestre. Thèse UTBM (FC LAB - M3M), Belfort, 2008.
[Schießwohl JPS 2009]	Schießwohl E, Von Unwerth T, Seyfried F, Brüggemann D. Experimental investigation of parameters influencing the freeze start ability of a fuel cell system. <i>J Power Sources</i> 2009;193(1):107-115.
[Schmal 1998]	Schmal D, Kluiters CE. Development of a Polymer Fuel Cell System for Naval Surface Ship Applications. In: <i>Fuel Cell Seminar</i> , Palm Springs, FL., USA, 1998.
[Shanghai Ge 2007]	Shanghai Ge, Chao-Yang Wang. Cyclic Voltammetry Study of Ice Formation in the PEFC Catalyst Layer during Cold Start. <i>J Electrochem. Soc.</i> 2007;154, B1399.
[Site Web Charon 2012]	Page personnelle internet de Willy Charon. 2012. http://mecatronique3m-sma.pagesperso-orange.fr/index.html
[Solasi JPS 2007]	Solasi R, Zou Y, Reifsnider K, Huang X, Condit D. On mechanical behavior and in-plane modeling of constrained PEM fuel cell membranes subjected to hydration and temperature cycles. <i>Journal of Power Sources</i> 2007;167:366-377.

Chapitre VI

[Summary CELINA 2008]	Summary of the CELINA project on the Web site of the European Commission. http://ec.europa.eu/research/transport/projects/article_3684_en.html , 2008.
[Tajiri JPS 2007]	Kazuya Tajiri, Yuichiro Tabuchi, Fumio Kagami, Shinichi Takahashi, Koudai Yoshizawa, Chao-Yang Wang. Effects of operating and design parameters on PEMFC cold start. Journal of Power Sources, Vol 165 (2007) 279-286.
[Tan 2007]	Tan J, Chao YJ, Van Zee JW, Lee WK. Degradation of elastomeric gasket materials in PEM fuel cells. Materials Science and Engineering: A 2007;445-446:669-675.
[Trigui 2004]	Trigui R., Jeanneret B., Badin F. (2004) Modélisation systémique de véhicules hybrides en vue de la prédiction de leurs performances énergétiques et dynamiques - Construction de la bibliothèque de modèles VEHLIB. Recherche Transports Sécurité, (83), 129-150. ISSN 0761-8980.
[Wang JPS 2007]	Wang H, Hou J, Yu H, Sun S. Effects of reverse voltage and subzero startup on the membrane electrode assembly of a PEMFC. J Power Sources 2007;165(1):287-292.
[Yan JPS 2006]	Yan Q, Toghiani H, Lee Y W, Liang K, Causey H, Effect of sub-freezing temperatures on a PEM fuel cell performance, startup and fuel cell components. J Power Sources 2006;160(2):1242-1250.
[Yun Wang 2007]	Yun Wang. Analysis of the Key Parameters in the Cold Start of Polymer Electrolyte Fuel Cells. J Electrochem. Soc. 2007;154, B1041.

VII	Fiabilité, durée de vie, robustesse et diagnostic des générateurs PAC de type PEM.....	219
VII.1	Défauts et mécanismes de dégradation des générateurs PAC PEM....	222
VII.1.1	Phénomènes de dégradation et modes de défaillance au niveau de l'empilement	222
	- Mécanismes de dégradation affectant les couches actives et les catalyseurs dans les électrodes.....	223
	- Modes de vieillissement des membranes perfluorosulfonées.....	223
	- Autres modes de dégradation des éléments présents dans les cellules de PAC	223
VII.1.1.1	Dégradation liée à la gestion de l'eau.....	224
	- Suite aux noyages.....	224
	- Suite aux assèchements.....	225
VII.1.1.2	Dégradation liée à un contrôle inadapté des débits, pressions de réactifs.....	225
VII.1.1.3	Dégradation liée à la qualité des réactifs	225
VII.1.1.3	Modes « naturels » de vieillissement.....	225
VII.1.1.4	Récapitulatif des défauts affectant l'empilement.....	225
VII.1.1.5	Les dégradations occasionnées sur un profil de mission véhicule.....	226
VII.1.2	Défauts et dégradation au niveau des auxiliaires et du système complet.....	227
VII.1.3	Un exemple de problématique système en lien avec le vieillissement occasionné par des conditions d'usage transport	228
VII.2	Quelques exemples de résultats d'essais d'endurance	229
VII.2.1	La convention DRIRE Franche-Comté et l'ACI VITAPAC	229
	- Rappel des objectifs généraux.....	229
	- Travaux réalisés à Belfort	230
VII.2.2	Suivi du point de fonctionnement en endurance	230
VII.2.3	Caractérisations par courbes de polarisation et spectrométrie d'impédance.....	231
VII.2.4	Synthèse des premiers résultats d'essai de vieillissement. Perspectives.....	234
VII.3	Méthodes de diagnostic pour les générateurs PAC.....	238
VII.3.1	Le contexte PAC et les principales approches.....	238
VII.3.1.1	La problématique du diagnostic et du contrôle-commande des systèmes pile à combustible.....	238
VII.3.1.2	Stratégies de diagnostic.....	239

Chapitre VII

VII.3.1.3	Collecte / prélèvement des informations : incontournables protocoles expérimentaux et instruments de caractérisation	240
VII.3.1.4	Diagnostic basé sur l'utilisation de modèles analytiques	241
VII.3.1.4	Diagnostic basé sur le traitement du signal et de l'information	241
	- Principe général de la reconnaissance de forme	242
VII.3.2	Exemples de protocoles expérimentaux pour le diagnostic : focus sur le problème particulier des fuites de réactifs dans les piles	242
VII.3.2.1	Problématique	242
VII.3.2.1	Travaux réalisés.....	243
	- Fuites anode - cathode.....	243
	- Fuites anode – compartiment caloporteur.....	245
VII.3.3	Apport des techniques de traitement du signal et de l'information au diagnostic des PAC	246
VII.3.3.1	Résumé du projet DIAPASON.....	247
VII.3.3.2	Un exemple de travail : classification de conditions opératoires par une approche probabiliste	248
	- Qu'est-ce qu'un réseau bayésien ?	248
	- Mise en œuvre d'un réseau bayésien	249
	- Evaluation des performances du classifieur bayésien développé et résultats	251
VII.3.3.3	Evaluation de différentes stratégies visant à la classification des états de fonctionnement d'une PAC	252
	- But du diagnostic.....	252
	- Type de mesures.....	253
	- Description des signaux / extraction de caractéristiques.....	253
	- Réduction de dimensionnalité.....	253
	- Classifications	253
	- Avantages / inconvénients des méthodes investiguées	253
VII.4	Solutions autorisant des fonctionnements de PAC en mode dégradé	254
VII.4.1	Couplages de PAC et dispositifs de « by-pass »électroniques.....	254
VII.4.2	Procédures d'arrêt sur défaut et dispositifs de « by-pass »électroniques	255
VII.4.3	Intégration d'une électronique dans les PAC. Concepts	256
VII.5	Conclusions et perspectives.....	257
VII.6	Références.....	259

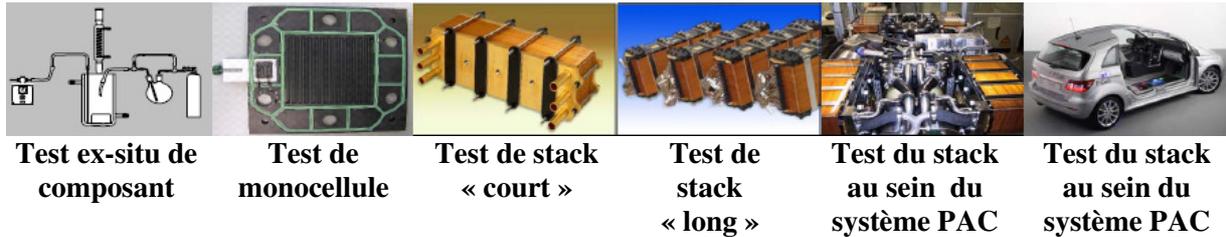
VII Fiabilité, durée de vie, robustesse et diagnostic des générateurs PAC de type PEM

Les progrès réalisés sur les Groupes Electrogènes (GE) à PAC, des années 90 jusqu'à nos jours, ont permis d'entrevoir des utilisations potentielles dans de nouveaux domaines, tels que ceux des ordinateurs portables, des cogénérateurs stationnaires et des véhicules. Cependant, ces différents objets demeurent encore bel et bien des prototypes et leur viabilité industrielle à grande échelle pose encore actuellement question. Des interrogations essentielles portent notamment sur les performances que peuvent offrir les générations actuelles de PAC de type PEM, en termes de durée de vie, de fiabilité et de robustesse. La durée de vie (« durability » ou « lifetime » en anglais) caractérise la période pendant laquelle le générateur PAC est en mesure de fonctionner, dans des conditions opératoires données (point(s) de fonctionnement, environnement définis), sans qu'une forte dégradation de son rendement ne soit observée. La fiabilité (« reliability » en anglais) fait référence à la probabilité que le générateur a de pouvoir assumer ses fonctions, dans des conditions opératoires et sur une période de temps données, sans rencontrer de défaut. La robustesse renvoie quant à elle au niveau de sensibilité des performances du système pile vis-à-vis des différentes conditions opératoires observées.

La durée de vie et la fiabilité des GE à PAC sont bien sûr sujettes aux conditions d'utilisation de la pile et de ses auxiliaires, conditions qui peuvent s'avérer particulièrement contraignantes dans le cadre d'une application véhicule. Les PAC sont en effet soumises à des dynamiques de charge et elles doivent être en mesure de faire face à quelques 17000 cycles arrêts / démarrages [Motupally UTC Crête 2007]. Elles doivent par ailleurs endurer des sollicitations climatiques et vibratoires (Chapitre VI). Dans ces conditions d'usages liées aux applications embarquées, les PAC doivent atteindre une durée de vie d'au moins 5000 heures pour l'automobile (soit 250000 km à une vitesse moyenne de 50 km/h) et de 20000 à 40000 heures dans le cas des transports en commun. Les exigences liées à la filière automobile apparaissent particulièrement fortes car, aux contraintes de performances, de durée de vie et de fiabilité, viennent s'ajouter des impératifs de coûts associés aux productions de masse du type « grand public ». Ce domaine très concurrentiel rend nécessaire une **analyse très fine des causes de dégradation et de défaillance des systèmes PAC dès leur phase de conception**. Il impose impérativement une connaissance approfondie du vieillissement et une **maîtrise du cycle de vie complet du générateur** (concepts d'éco-conception). L'ambition est alors de disposer d'objets dont la durée de vie est identifiée et optimisée sur la base de l'usage réel attendu. La connaissance comportementale approfondie du vieillissement devient nécessaire non seulement pour atteindre les meilleures performances en fiabilité pour la durée de vie ciblée, mais aussi pour la **mise en œuvre d'une maintenance prédictive** probablement incontournable pour les systèmes complexes que sont les générateurs à PAC.

Pour améliorer les performances des générateurs pile en termes de fiabilité et de durée de vie, des travaux scientifiques et techniques de différentes natures visant à mieux comprendre les phénomènes de vieillissement, les modes de défaillances des GE à PAC sont réalisés dans les laboratoires de recherche et par les industriels (de la chimie et des procédés, de la PAC et de l'automobile essentiellement). Des investigations très variées sont menées à la fois ex-situ et in-situ, et à différentes échelles : depuis les matériaux de PAC jusqu'aux véhicules et flottes de démonstration (faisant office de plateformes expérimentales roulantes), en passant par les éléments constitutifs de pile, des monocellules, de petits empilements (stacks « pilotes »), des stacks aux puissances plus substantielles pour répondre aux besoins des applications visées, au GE à PAC tout entier. Chaque niveau d'étude possède bien sûr son intérêt et ses spécificités propres sur un plan expérimental (Figure VII.1).

Chapitre VII



Identification précise des mécanismes physiques de dégradation :

Essais sélectifs vis-à-vis de conditions et types particuliers de dégradation :

Contrôle fin de l'environnement et des conditions opératoires :

Fonctionnement en mode dynamique :

Prédiction de la durée de vie en conditions d'usage :

Quantité de données :

Coûts de la campagne d'essai :

Figure VII.1 : Différentes étapes permettant l'évaluation de la durée de vie de GE à PAC destinés aux applications embarquées. D'après [Finsterwalder Daimler Crête 2007].

L'exercice de recherches sur la durée de vie, la fiabilité et le diagnostic des PAC implique des moyens et une organisation conséquente. Sur la plateforme PAC de Belfort, dans un premier temps, il est d'abord apparu nécessaire d'acquérir progressivement une maîtrise de la duplication des conditions d'usage sur bancs d'essais en endurance (savoir-faire consistant par exemple à pouvoir répliquer sur plusieurs centaines d'heures des dynamiques de courant de charge liées à des profils de mission temps – vitesse des véhicules).

D'un point de vue système, l'objectif principal est alors de rechercher et d'assurer pour l'empilement des conditions de fonctionnement favorables, conduisant tant à des rendements élevés au niveau du système qu'à une fiabilité et à une longévité accrues. Dans cette optique, les choix technologiques concernant les divers auxiliaires nécessaires (organes de conditionnement des réactifs, convertisseurs électroniques, éléments de stockage tampon de l'énergie...) doivent être évalués et adaptés afin de placer la pile dans le meilleur environnement opérationnel possible.

Lors d'un essai de vieillissement, du fait des contraintes exercées sur la PAC ou sur le système pile, des dégradations des performances (tension de pile plus basse pour un même courant de charge), des défauts de natures différentes peuvent apparaître au niveau du cœur de pile, du stack, mais également sur les organes auxiliaires périphériques. Ces différents problèmes appellent alors le développement et la mise en place de méthodes expérimentales de diagnostic, d'indicateurs permettant le suivi précis des évolutions des performances, la qualification des défauts et une compréhension accrue des modes de défaillances. Un panel de techniques de caractérisation électriques / électrochimiques a déjà été décrit au [Chapitre IV](#) et des outils d'organisation des essais (méthode des plans d'expériences) ont été présentés au [Chapitre V](#). Toutes ces techniques sont aussi utilisées pour l'étude du vieillissement des PAC. Il n'en demeure pas moins que l'action de caractérisation doit nécessairement être ensuite complétée par un traitement adéquat des signaux de mesures et des informations contenues. Au final, des stratégies plus globales de diagnostic, voire de pronostic, doivent être développées [Brunet Hissel

2009]. Dans le secteur des transports, de hauts niveaux de disponibilité sont en effet attendus et les périodes de maintenance doivent être écourtées au possible. Dans ce contexte, des procédures de maintenance prédictive / préventive doivent donc être définies et mises en œuvre. Des approches basées modèles (de types analytique, semi-empirique ou boîte noire) ou des méthodes faisant appel à des techniques de traitement de l'information (statistique, logique, probabiliste, mesure(s) idoine(s)) peuvent être mises à profit.

Sur la plateforme de Belfort, nous le verrons dans ce chapitre, le parti pris a été de conduire des essais d'endurance généralement sur des périodes de 1000 heures environ et à partir de petits empilements, de trois à cinq cellules. Aujourd'hui, si l'on peut estimer que les monocellules à faibles surfaces actives peuvent déjà satisfaire aux critères de durée de vie énoncés plus haut, les empilements de type PEM, développés pour les applications transport, présentent quant à eux une espérance de durée de vie moyenne plus réduite, souvent de l'ordre de 2500 heures environ [Bonnet JPS 2008] [Escribano CEA Lucerne 2005] [Wahdame IJHE n°32 2007]. Un constructeur comme Daimler / Mercedes considère à présent que ses systèmes PAC sont fiables ; il reconnaît aussi cependant qu'ils ne présentent pas encore des caractéristiques suffisantes en termes de durée de vie [Finsterwalder Daimler Crête 2007]. C'est qu'en fait la durée de vie, et la fiabilité, dépendent aussi de la taille de l'empilement [Finsterwalder Daimler Crête 2007]. Les stacks prévus pour équiper les véhicules sont dotés de plusieurs centaines de cellules individuelles. Un défaut rencontré sur l'une d'entre elles peut entraver, voire empêcher, le fonctionnement du stack complet. Une approche théorique faisant appel à des notions de statistiques (emploi de distributions de Weibull) et développée par Daimler / Mercedes suggère que la durée de vie d'un stack a plus de chances d'être courte dès lors qu'il comporte un nombre de cellules plus élevé [Finsterwalder Daimler Crête 2007]. A contrario, et toujours d'un point de vue statistique, un nombre plus élevé de cellules couplées à des mesures de tensions unitaires permet de mieux prédire la durée de vie de l'empilement et de programmer des phases éventuelles de maintenance.

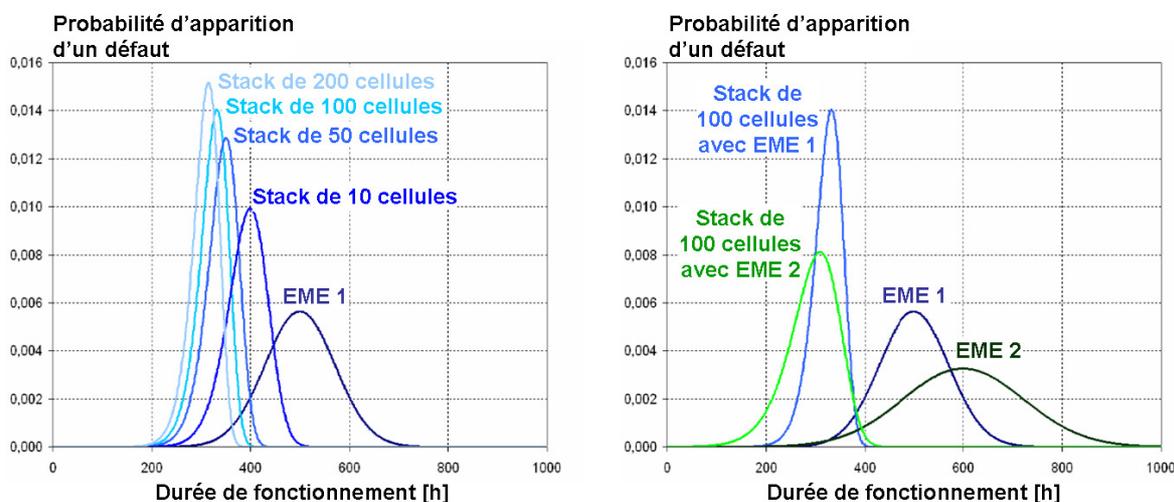


Figure VII.2 : Approche statistique développée par Daimler / Mercedes permettant d'illustrer le rapport entre la fiabilité d'un empilement et son nombre de cellules unitaires [Finsterwalder Daimler Crête 2007].

L'accroissement de la durée de vie et de la fiabilité des GE à PAC passe certainement avant tout par la réalisation de progrès notables sur les composants du système, en particulier sur les cellules de la pile, sur une conception et un contrôle plus abouti du générateur. Mais en complément de ces améliorations, que l'on pourrait qualifier d'intrinsèques, nous verrons qu'il est aussi envisageable de réfléchir à des solutions techniques autres permettant d'augmenter la disponibilité de fonctionnement et la fiabilité des générateurs PAC.

Dans la prochaine section, des informations sont données à la fois sur quelques mécanismes de dégradation jugés importants et sur les conditions opératoires qui favorisent l'apparition des défauts les plus couramment rencontrés au niveau des PAC.

VII.1 Défauts et mécanismes de dégradation des générateurs PAC de type PEM

Les défauts et les phénomènes de vieillissement affectent la pile ; c'est très probablement l'élément le plus sensible et fragile du générateur, mais les problèmes de durée de vie et de fiabilité concernent aussi les organes auxiliaires de la PAC et donc le système complet. Des publications scientifiques, ou certains documents, tel que le « Premier appel à projets de recherche et d'innovation » du Plan d'Action National sur l'Hydrogène et les piles à combustible (PAN-H), recensent déjà les principales causes de dégradation des systèmes piles et leurs objets [Texte AAP PAN-H 2006].

VII.1.1 Phénomènes de dégradation et modes de défaillance au niveau de l'empilement

Les défauts qui surviennent au niveau de l'empilement peuvent être classés de bien différentes manières. Par exemple, en considérant la nature physique des phénomènes occasionnant une dégradation : origines mécanique, thermique, ou électrochimique... Mais souvent, pour ne pas dire généralement, les phénomènes présentent un fort caractère multi-physique. Les défauts peuvent aussi être appréhendés à l'aune de leur degré de gravité : dégradation réversible des performances mettant en cause la stabilité des performances (une modification adéquate des conditions opératoires s'avère suffisante pour retrouver les performances électriques initiales), ou dégradation provoquant une baisse de performance irréversible (accompagnée d'une modification physique et structurelle définitive des matériaux), ou bien encore : impossibilité de fonctionner induisant des problèmes de fiabilité du groupe électrogène. L'origine des dégradations peut en outre être attribuée à un vieillissement naturel du système et de ses composants ou bien encore à une utilisation inadéquate, un mauvais contrôle du système PAC. Un défaut dans l'empilement peut par exemple être induit par une température de fonctionnement trop élevée. La rapidité, la dynamique avec laquelle se déroule la dégradation est aussi un autre critère de classification des différents défauts [LaConti 2003] [Wilkinson 2003]. Pour passer en revue les différents types de dégradation possibles au niveau de l'empilement, il est également possible de considérer chacun des composants de la PAC : plaques bipolaires, joints d'étanchéité, couches de diffusion, couches actives. Cette approche a été adoptée par Sébastien Wasterlain dans son mémoire de thèse pour présenter de manière détaillée les différents mécanismes de dégradation susceptibles d'être rencontrés dans une PAC [Wasterlain Thèse 2010]. On peut aussi, à l'instar de Nadia Steiner [Steiner Thèse 2009], s'attacher à décrire les défauts les plus couramment rencontrés avec une pile PEM dans les conditions d'usage, qui occasionnent une baisse des performances (défauts liés à la gestion de l'eau [Steiner JPS 2008] [Steiner Thèse 2009]) et viennent restreindre la durée de vie de la PAC (défauts liés à une mauvaise gestion des débits de gaz réactifs [Steiner JPS 2009] [Steiner Thèse 2009]).

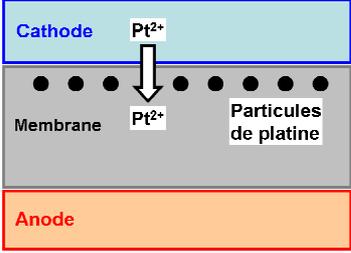
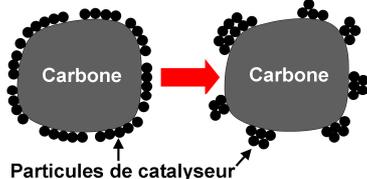
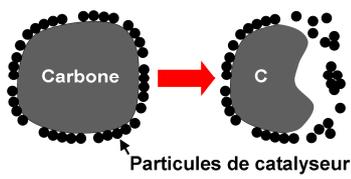
Ces dernières années, un certain nombre de mécanismes physiques précis, responsables des dégradations et des défaillances de piles PEM, a pu être mis en évidence, en général par des chercheurs issus des domaines de la chimie, de l'électrochimie et des sciences des matériaux [Motupally UTC Crête 2007] [Friedrich DLR Crête 2007] [Finsterwalder Daimler Crête 2007] [Steiner JPS 2009]. Quelques mécanismes, souvent présentés dans la littérature comme les plus importants, comme de sévères verrous, et en rapport avec les électrodes et la membrane (Cf. Chapitre II), sont décrits ci-dessous de façon synthétique. Des informations plus précises relatives à ces mécanismes conduisant à une altération irréversible des performances peuvent notamment être trouvées dans [Steiner Thèse 2009] [Wasterlain Thèse 2010]. Les conditions d'usage dans lesquelles ces phénomènes physiques sont susceptibles de se dérouler seront présentées juste à la suite.

- Mécanismes de dégradation

affectant les couches actives et les catalyseurs dans les électrodes

Trois types de mécanismes sont généralement mentionnés : la dissolution du platine, l'agglomération des grains de platine et la corrosion du carbone assurant le support des grains de platine. Ces modifications dans la microstructure de l'électrode conduisent à une perte de sites catalytiques actifs et à une diminution de la surface électro-active. Les réactions chimiques sous-jacentes à ces phénomènes sont conditionnées par les conditions opératoires : potentiel, présence d'eau, pH du milieu acide... Les effets des contaminants sur la couche active ne seront pas explicités ici mais des informations peuvent être trouvées à ce sujet dans [Steiner Thèse 2009] [Wasterlain Thèse 2010].

Tableau VII.1 : Exemples de mécanismes dégradant les électrodes des piles PEM.

Dissolution du platine des électrodes	Agglomération des grains de platine	Corrosion du substrat en carbone
<p>La dissolution du platine peut être expliquée en considérant des diagrammes de Pourbaix (exprimant le potentiel en fonction du pH). La dissolution du platine a lieu aux potentiels élevés (0.9 – 1.2 V) et pour des pH négatifs. Il peut en résulter une présence de platine dans la membrane.</p> 	<p>Ce phénomène apparaît parfois sous le nom d'« Ostwald Ripening ». Les grains de platine peuvent se dissoudre dans l'ionomère ou dans un liquide aqueux aux électrodes puis se redéposer sur d'autres particules accrochées à la surface du substrat en carbone ; cf. représentation schématique ci-dessous :</p> 	<p>La corrosion du substrat en carbone se déroule selon la réaction suivante :</p> $C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 4H^+ + 4e^-$ <p>La corrosion est favorisée par la présence d'eau, par des appauvrissements en réactifs et par des potentiels élevés.</p> 

- Modes de vieillissement des membranes perfluorosulfonées

Tableau VII.2 : Exemples de modes de vieillissement des membranes.

Stress mécanique	Stress chimique	Stress chimique
<p>Ce stress est occasionné par des phases successives de contractions et de gonflements de la membrane. Il peut se traduire par une délamination de la membrane et donner lieu à terme à une perméation de réactifs. La pression exercée par les GDLs, les joints et les plaques bipolaires a aussi son effet.</p>	<p>Ce stress entraîne une réduction de la largeur de la membrane. Des perforations (« pinholes ») peuvent alors apparaître, en particulier quand la membrane s'assèche. Des composés chimiques contenant du fluor peuvent être retrouvés dans les effluents sortant de la pile.</p>	<p>La formation de peroxyde d'hydrogène (H₂O₂) est favorisée par les potentiels faibles.</p> $O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O_2$ <p>Le peroxyde « attaque » chimiquement la membrane.</p>

- Autres modes de dégradation des éléments présents dans les cellules de PAC

Les autres éléments composant le stack subissent aussi des dégradations non négligeables au cours du temps [Steiner Thèse 2009] [Wasterlain Thèse 2010].

Les joints assurant les étanchéités entre compartiments anode, cathode, caloporteur peuvent s'abîmer. Le milieu acide du cœur de pile, les températures élevées (80°C) et les forces de compression peuvent conduire à des détériorations de leurs matériaux constitués à base de silicone ou de caoutchouc fluoré. Il peut en résulter au final des fuites entre compartiments ou bien avec le milieu extérieur.

Les couches de diffusion constituées de PTFE ainsi que de carbone sont soumises à des attaques chimiques. La dégradation de la couche microporeuse de la GDL influe sur la résistance électrique, se traduit par une perte d'hydrophobicité et de tenue mécanique. La compression mécanique des couches de diffusion peut provoquer la rupture des fibres de carbone réduisant de ce fait la conductivité électrique de la GDL.

Les plaques bipolaires étant principalement constituées de graphite ou d'acier galvanisé, l'amplitude et l'éventuelle différence entre les couples de serrage sur les tirants peuvent conduire à des déformations ou à des fêlures. Ces défauts se trouvant accentués en ambiance vibratoire. Le milieu acide et humide de la PAC de type PEM, associé à certaines tensions d'électrodes, entraîne la corrosion des plaques métalliques et une augmentation des résistances électriques.

VII.1.1.1 Dégradation liée à la gestion de l'eau

Comme déjà évoqué, la gestion de l'eau dans les piles PEM est une problématique à la fois complexe et cruciale [Steiner Thèse 2009] [Steiner JPS 2008]. Elle a des conséquences fortes en termes d'obtention de performances élevées et stables. La gestion de l'eau dans la pile est dépendante du design du stack. Elle est aussi très dépendante du design système et de son contrôle. Une gestion du GE à PAC mal prévue, ou bien encore des conditions opératoires difficiles (transitoires, températures basses) peuvent donner lieu à deux types de défauts antagonistes : les noyages et les assèchements.

- Suite aux noyages

Un noyage est généralement localisé dans quelques cellules et gêne l'accès des gaz réactifs aux interfaces où se déroulent les réactions chimiques. Il entraîne alors des fluctuations et des dispersions sur les tensions cellules du stack, souvent soudaines et difficilement prévisibles, et engendre donc une instabilité des performances de la pile en particulier aux fortes densités de courant. Le noyage peut généralement être résorbé et les performances initiales retrouvées en agissant sur le système : en diminuant l'humidification des réactifs (soit en jouant sur l'écart entre les températures dans la pile et dans le (ou les) humidificateur(s) des gaz), en procédant à des purges (avec des réactifs en excès pendant quelques secondes), en changeant de façon pilotée le gradient de pression entre l'anode et la cathode. Les noyages répétés peuvent cependant donner lieu à des fonctionnements en sous-stœchiométries (appauvrissements en réactifs). Même localisés, ceux-ci peuvent avoir à moyen et long terme des conséquences fâcheuses sur la dégradation des éléments constituant les cœurs de pile (phénomènes de corrosion dans les électrodes par exemple).

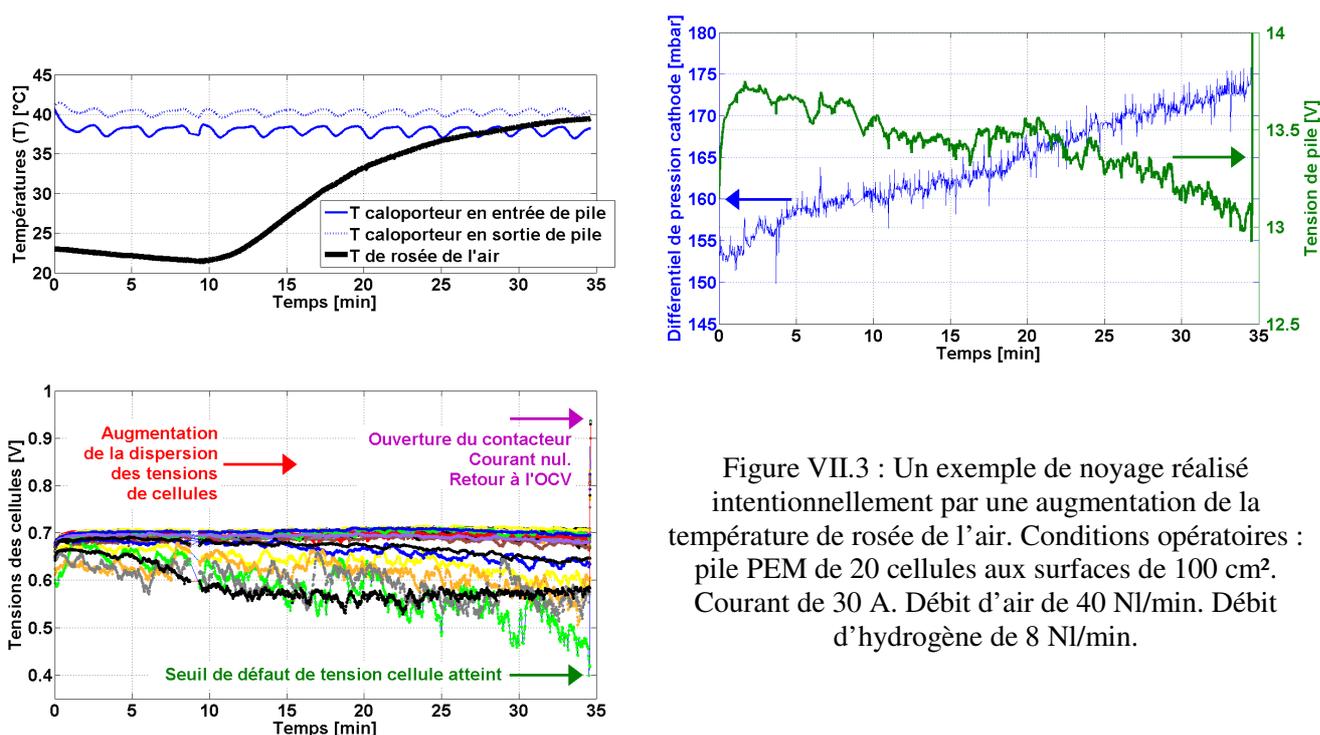


Figure VII.3 : Un exemple de noyage réalisé intentionnellement par une augmentation de la température de rosée de l'air. Conditions opératoires : pile PEM de 20 cellules aux surfaces de 100 cm². Courant de 30 A. Débit d'air de 40 NI/min. Débit d'hydrogène de 8 NI/min.

- Suite aux assèchements

A contrario, une insuffisance dans l'humidification des réactifs, des températures de pile trop élevées peuvent conduire à des assèchements des membranes et à des diminutions de leurs conductivités (Cf mesures d'impédances présentées aux [Chapitres II, IV et V](#)). Si ces assèchements ne sont pas trop longs, ni récurrents, les performances des cellules peuvent normalement être rétablies en retrouvant une hydratation correcte dans les membranes. Néanmoins, les cycles assèchements / hydratations constituent des conditions de fonctionnement particulièrement difficiles. Ils réduisent de manière sensible la fiabilité, la durée de vie des empilements par des stress mécaniques et par la formation de points chauds au niveau des cœurs de piles.

Les paramètres système qui permettent le contrôle de la charge en eau des cœurs de pile sont sensiblement les mêmes que ceux décrits pour le cas du noyage.

VII.1.1.2 Dégradation liée à un contrôle inadapté des débits, pressions de réactifs

Si ces défauts se déroulent au sein d'un empilement de type PEM, ils ont souvent un rapport étroit avec le système, son architecture et son contrôle. Ainsi, une mauvaise maîtrise des gradients de pression anode – cathode peut-elle endommager mécaniquement les membranes qui sont des dispositifs fragiles de par leurs faibles épaisseurs (25 – 100 μm). Des débits de gaz réactifs mal ajustés occasionnent des sous-stœchiométries. Des fonctionnements avec des transitoires à faibles densités de courant voire à courant nul (à l'OCV – « Open Current Voltage ») impactent la durée de vie (possible formation de peroxyde d'hydrogène, éventuels phénomènes de corrosion dans les cœurs de pile).

La maîtrise des paramètres physiques est plus particulièrement délicate dès lors que des cycles d'usages dynamiques (fortes variations de courant, de débits, de gradients de températures et de pressions) sont appliqués au système PAC.

VII.1.1.3 Dégradation liée à la qualité des réactifs

La qualité des réactifs en termes de pureté par rapport à des contaminants tels que le monoxyde de carbone est un autre élément important à prendre en compte pour l'obtention d'une durée de vie et de performances importantes (sont tolérés au maximum environ 10 à 50 ppm de CO). Une présence trop forte de contaminants conduit à des diminutions des surfaces électro-actives dans les assemblages membrane - électrodes. Ces baisses de l'activité catalytique peuvent être en partie jugulées par l'application de mécanismes de purges adaptés [[Wasterlain Thèse 2010](#)] [[Steiner Thèse 2009](#)].

VII.1.1.3 Modes « naturels » de vieillissement

Une pile placée dans des conditions opératoires nominales et stables subit également les effets du vieillissement, au niveau des composants tels que les couches de diffusion, les électrodes, les membranes, les joints. Les essais d'endurance mettent généralement en évidence une diminution des propriétés liées aux transports des espèces réactives des plaques bipolaires vers les interfaces réactionnelles, des diminutions de l'activité catalytique au cours de la durée de fonctionnement, des phénomènes de corrosion sur les plaques bipolaires métalliques, l'apparition d'inétanchéités entre les compartiments anode – cathode – circuit de refroidissement.

VII.1.1.4 Récapitulatif des défauts affectant l'empilement

Le [Tableau VII.3](#) récapitule les dégradations principales qui peuvent intervenir au sein des différents composants d'une PAC de type PEM. Les causes, les conséquences et les niveaux de gravité y sont indiqués.

Chapitre VII

Tableau VII.3 : Principales dégradations intervenant dans une PAC de type PEM [Wasterlain Thèse 2010].

Composants	Dégradations	Causes	Conséquences	Gravité
Plaque bipolaire	Déformations / fêlures	Couple de serrage	- Fuites des réactifs	Irréversible
	Obstruction des canaux	- Gel (eau) - Accumulation d'eau	- Accès des réactifs - Surpression locale (sur la membrane)	Réversible (généralement)
		Corrosion	Fragilisation	Irréversible
Joint d'étanchéité	Perte d'étanchéité	- Exposition à l'H ₂ - Milieu corrosif	- Dissolution du joint -↓ Conductivité membrane - Mélange H ₂ / O ₂	Irréversible
Couche de diffusion	Corrosion du carbone	- Radicaux libres - Potentiel électrodes	-↑ Résistance électrique -↓ Rigidité mécanique	Irréversible
	Dissolution du PTFE	- Faible humidité	- Accumulation d'eau	
	Ruptures des fibres de carbone	- Couple de serrage	-↑ Résistance électrique	Irréversible
Couche active	Corrosion du carbone	- Potentiel d'électrode	-↓ Surface active -↑ Résistance électrique	Irréversible
	Dissolution / agglomération du Pt	- Cyclage en tension - Appauvrissement en réactifs	-↓ Surface active	
	Empoisonnement	Réactifs contenant des impuretés, des polluants		Dépend des espèces
Membrane	Assèchement	Mauvaise gestion hydrique	-↑ Résistance électrique - Fragilisation de la membrane	Réversible
	Empoisonnement	Réactifs contenant des impuretés, des polluants	-↓ Conductivité de la membrane	Irréversible
	Perforations	- Formation de H ₂ O ₂ - Mélange H ₂ / O ₂ - Imprégnation du catalyseur	Rupture de la membrane	

VII.1.1.5 Les dégradations occasionnées sur un profil de mission véhicule

Un cycle dynamique temps – courant issu d'un profil transport temps – vitesse du véhicule est représenté [Figure VII.4](#) ; différents mécanismes de dégradation pouvant toucher la PAC y sont reportés. Cette figure permet de bien montrer que les conditions d'usage d'un véhicule donnent lieu à une assez grande variété de phénomènes physiques dégradant, et suggère par là-même la complexité du vieillissement qui en résulte. L'utilisation de ce genre de cycle se révèle tout indiquée pour évaluer les performances réelles en durée de vie d'une technologie de PAC destinée à une application embarquée. Un essai d'endurance a d'ailleurs été réalisé sur la plateforme de Belfort à partir de ce type de sollicitation dynamique ([Section VI.2 de ce Chapitre](#)). Mais compte tenu de la multiplicité des mécanismes de dégradations impliqués et de leurs imbrications / couplages, on peut aussi penser que, dans une optique plus phénoménologique, il est aussi nécessaire de procéder à une déconvolution des phénomènes en étudiant de manière plus séparée et ciblée différents aspects. Les effets de cycles arrêts / démarrages peuvent ainsi être étudiés plus précisément [[Escribano CEA Crête 2007](#)] et un mécanisme de corrosion des supports en carbone dans les électrodes peut être mis en évidence [[Hao Tang JPS 2006](#)] [[Motupally UTC Crête 2007](#)] [[Steiner JPS 2009](#)].

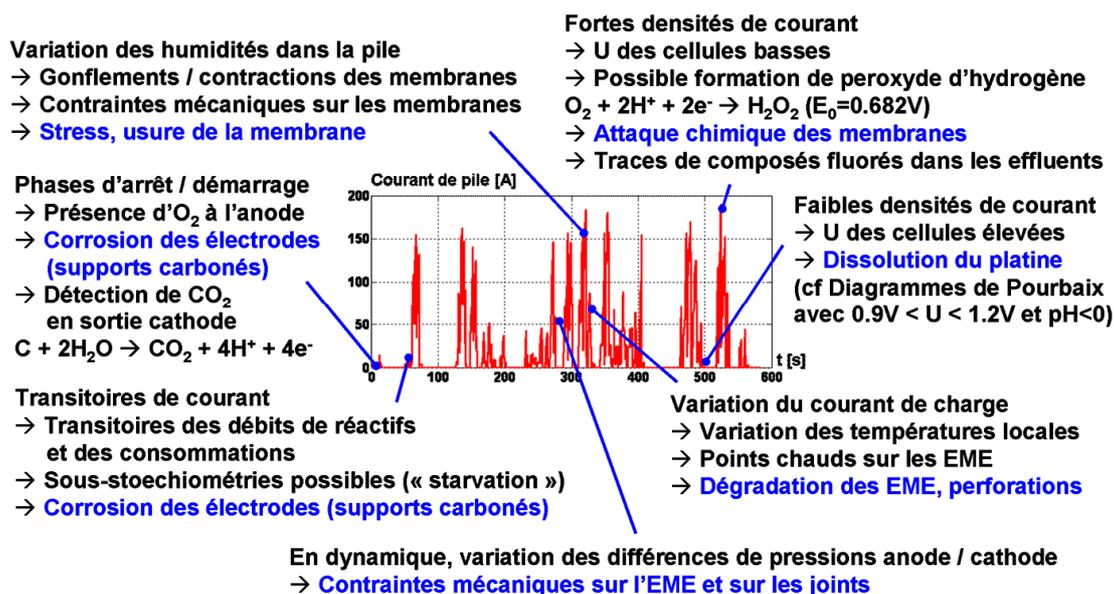


Figure VII.4 : Exemples de dégradations possibles au niveau d'une PAC de type PEM soumise à un cycle de courant issu d'un profil de mission transport.

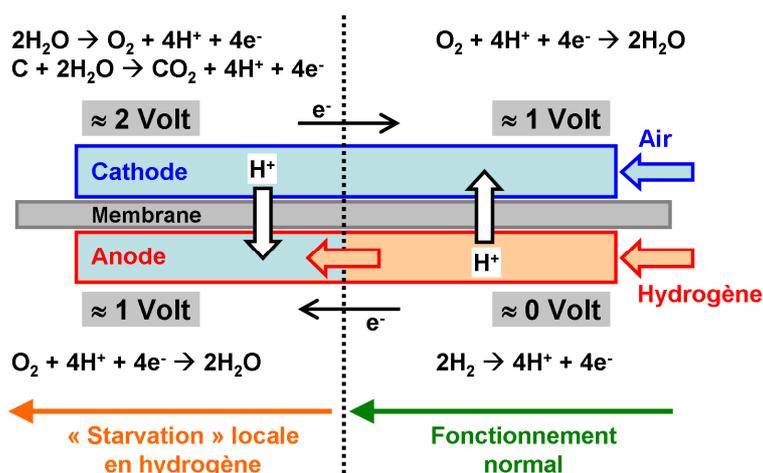


Figure VII.5 : Focus sur un mode de dégradation des électrodes lors des démarrages de PAC de type PEM. De l'air est présent à l'anode lors du démarrage et avec l'introduction d'hydrogène, un front hydrogène / air se forme. Le fonctionnement en appauvrissement de combustible (« fuel starvation ») engendre de la corrosion dans les électrodes [Hao Tang JPS 2006].

VII.1.2 Défaits et dégradation au niveau des auxiliaires et du système complet

A ce stade et en complément de ce qui vient d'être évoqué, il est aussi important de mentionner que sur les prototypes actuels de systèmes PAC, les auxiliaires peuvent aussi représenter des sources de dysfonctionnement. Dans la pratique, les arrêts intempestifs et les périodes correspondant à des impossibilités d'utilisation ne sont pas imputables qu'aux seuls cœurs de pile... loin s'en faut (Figure VII.6) !

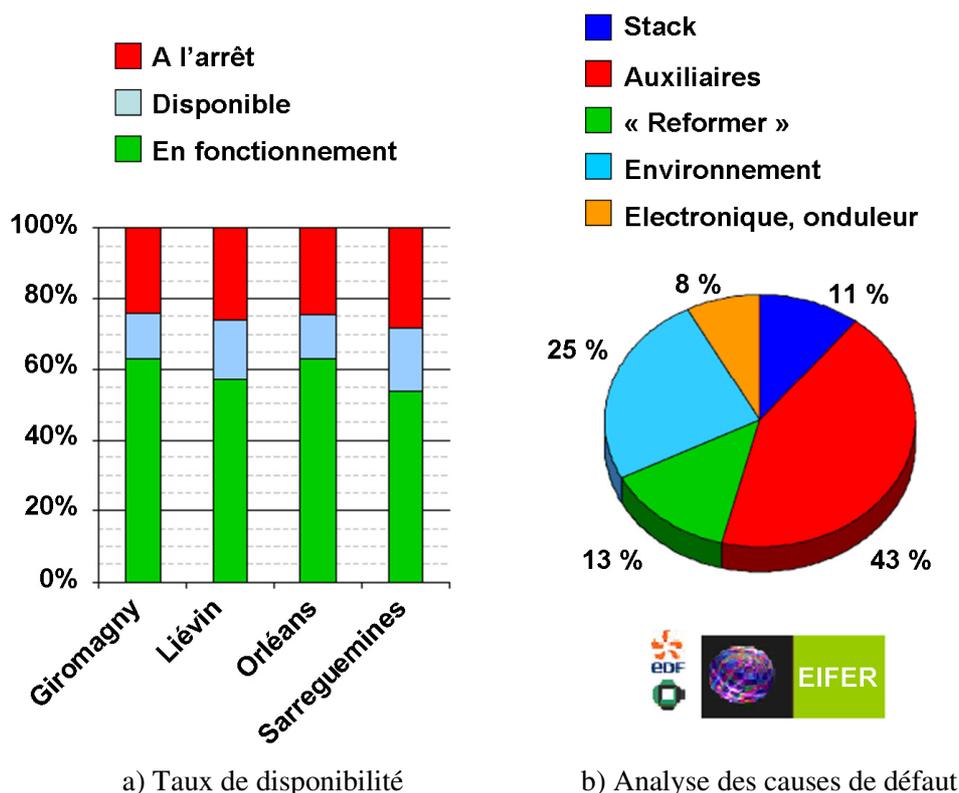


Figure VII.6 : Résultats d'une campagne d'essais de générateurs PAC autonomes par EDF – Eifer Karlsruhe. Communication datant de septembre 2007. D'après [Moçotéguy EIFER Crête 2007].

VII.1.3 Un exemple de problématique système en lien avec le vieillissement occasionné par des conditions d'usage transport

L'optimisation de générateurs PAC opérant en dynamique sur des profils de mission transport doit être réalisée au niveau système en prenant en compte les aspects durée de vie et fiabilité.

La dynamique de puissance, liée aux besoins énergétiques exprimés par le groupe motopropulseur sur des profils de mission transport temps – vitesse est un élément à prendre absolument en considération dans la définition et la gestion du système car elle peut avoir des impacts forts d'une part sur la consommation de combustible, et d'autre part sur la durée de vie et la fiabilité des systèmes PAC. Les recherches et expérimentations déjà menées par l'INRETS sur des piles PEM ont ainsi permis de mettre en évidence quelques problèmes susceptibles d'apparaître en endurance. Ils peuvent être liés par exemple aux phases critiques des démarrages brusques, aux contraintes mécaniques subies par les cœurs de pile, à l'humidification des gaz réactifs en régime dynamique. La définition de topologies électrique / fluide, de lois de commande avantageuses pour le générateur PAC en terme de rendement et de durée de vie sur des cycles d'usage dynamiques pourrait être menée et envisagée plus particulièrement vis à vis du concept d'hybridation du groupe électrogène à PAC par des dispositifs de stockage tampon de la puissance (supercondensateurs et convertisseurs électroniques associés) (Chapitre III), concept qui permet potentiellement de réduire les contraintes et sollicitations exercées sur la pile en dynamique, d'accroître ainsi sa durée de vie, sa fiabilité et d'améliorer aussi les performances énergétiques du générateur.

Le travail à réaliser peut porter sur le choix des organes de conditionnement des fluides réactifs et sur leur pilotage. Le dispositif générant une contre-pression en aval de la pile, sa technologie et son contrôle, peuvent ainsi faire l'objet d'une étude intéressante (Chapitre VI). Le mode d'utilisation de l'organe dans un environnement opératoire de type transport peut alors être traité par des travaux originaux. Le problème initial, posé tout d'abord dans un cadre très concret, pratique et technologique, peut déboucher sur des questions et des recherches de nature théorique. Sur des profils de mission transport temps - vitesse du véhicule, la mise en place d'une gestion optimale des gaz réactifs doit

permettre d'aboutir à des consommations en hydrogène limitées et à des performances élevées, en ne prenant en considération dans l'étude que le stack dans un premier temps puis en tenant compte de l'intégration du système complet par la suite. Le mode régulation de pression, et la possibilité qu'il offre d'engendrer un gradient de pression contrôlé entre les compartiments anode - cathode, pourraient même être étudiés lors de recherches plus exploratoires visant d'une part à diminuer un éventuel taux de fuite interne (membrane percée ou joint défectueux) et d'autre part à mieux maîtriser l'humidification des cœurs de pile. Le sujet posé peut aboutir à des problèmes d'optimisation sous contraintes multiparamétriques et multi-objectifs. Ces problèmes peuvent être complexes à traiter, par les deux voies de l'expérimentation et de la modélisation. Dans le premier cas, la méthode des plans d'expériences et l'utilisation de ses techniques ([Chapitre V](#)) peuvent constituer une aide permettant à la fois de définir au mieux les différents essais à réaliser et de déterminer les paramètres liés à une gestion optimale des gaz réactifs (choix des niveaux de débits et de pressions sur un cycle donné, connu ou pas a priori). Dans le second cas, le recours à des modélisations fluidiques monophasiques et diphasiques peut être envisagé via des analogies électriques ([Chapitre IV](#)). La résolution du problème fait alors appel à des notions de génie électrique, d'automatique, de mécanique des fluides, voire de mathématique.

VII.2 Quelques exemples de résultats d'essais d'endurance

Quelques résultats obtenus lors d'essais de vieillissement de PAC de type PEM sont présentés ici, à titre d'exemple. Les expérimentations considérées ont été menées sur la plateforme de Belfort dans le cadre de différents projets soutenus par la région Franche-Comté (Convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02), par le CNRS (VITAPAC - Action Concertée Incitative CNRS L2ES - LSGC) ou bien encore par l'ANR (SPACT80). Les outils développés dans ces projets continuent actuellement à être mis au point et à servir au FC LAB d'autres programmes de recherche portant sur la durée de vie des PAC. Les objectifs originels de la Convention DRIRE Franche-Comté et de VITAPAC ainsi qu'une petite synthèse des travaux menés à Belfort sont donnés ci-après. Pour mémoire, un bref résumé du projet SPACT80 avait déjà été proposé au [Chapitre VI](#).

VII.2.1 La convention DRIRE Franche-Comté et l'ACI VITAPAC

Les travaux de recherche portant sur le vieillissement des PAC ont été initiés à Belfort dans le cadre de la convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02 (proposition déposée en 2001 par le L2ES). L'ACI VITAPAC a permis de poursuivre les travaux engagés. Ces premiers projets liés à l'étude du vieillissement des PAC PEM ont permis l'acquisition et la mise au point de moyens d'essais (spectromètre d'impédance électrochimique Zahner, banc PAC 1 kW), le développement de protocoles de tests en vue de la caractérisation des PAC PEM en endurance (suivi de points de fonctionnement, relevés de courbes de polarisation et de spectres d'impédance).

- Rappel des objectifs généraux

Des paramètres tels que le courant de charge, la température, la qualité de l'air ont sur la durée de vie des PAC une influence potentielle qu'il convient d'analyser et de quantifier. Sur des profils de mission transport, le générateur PAC doit délivrer des courants possédant des dynamiques plus ou moins fortes, correspondant aux phases d'accélération et de freinage du véhicule. Les variations de débits de gaz réactifs engendrées peuvent provoquer des fatigues mécaniques au niveau du cœur de pile mais également sur les organes actifs de régulation et sur les auxiliaires. De plus, la pile est sollicitée par des courants pouvant posséder des dynamiques hautes fréquences liées au fonctionnement des convertisseurs électroniques embarqués. L'impact de ces courants sur la durée de vie des piles demeure à ce jour inconnu. Les PAC de type PEM sont également très sensibles à un certain nombre de contaminants, en particulier au monoxyde de carbone contenu dans l'air. Cette sensibilité à la pollution doit être analysée. Une solution permettant de réduire les phénomènes d'empoisonnement par le monoxyde de carbone consiste à élever la température de fonctionnement de la pile ; des premiers seuils de 100 et 120°C peuvent faire figure d'objectif. Néanmoins, ces températures plus

élevées ne sont pas sans avoir des effets sur les performances du stack. La charge en eau des membranes de type GORE en usage au laboratoire est plus difficile à maintenir à des températures élevées. Alimentée en hydrogène sec et en air humide (température de rosée de 25°C), les piles ZSW testées voient leur résistance interne augmenter avec la température dès 65°C. Une hydratation insuffisante de la membrane peut conduire à la formation de porosités et à des perforations de membranes. D'une manière plus générale, la sensibilité des générateurs PAC vis-à-vis des modifications des conditions internes et externes de température (basses et hautes) est à étudier, en termes de durée de vie et de fiabilité. Plusieurs équipements spécifiques de la plateforme sont ou vont être mis en œuvre dans le cadre de cette thématique durée de vie et fiabilité (banc de test 1 kW, impédancemètre, chambre à atmosphère contrôlée, station de mixage des gaz...). Enfin, des méthodes et des protocoles d'évaluation standardisés, des procédures de vieillissement accéléré doivent être développés.

- Travaux réalisés à Belfort

Trois essais de vieillissement ont été réalisés à partir de 2004 sur des piles PEM du constructeur ZSW, dotées de trois cellules (membranes GORE MESGA Primea Series 5510) et d'une surface active de 100 cm² chacune. Les essais d'endurance de PAC PEM ont été réalisés pendant 1000 h environ sur de petits empilements, ces 1000 h ne correspondant pas à la durée de vie maximale des piles étudiées mais à des durées de test déterminées en fonction de la disponibilité des bancs d'essais.

Lors d'un premier test de référence, la pile a opéré à son point de **fonctionnement nominal sur une durée de 1000 h**. Lors d'un deuxième essai, une pile a été soumise à un **cycle de courant dynamique issu d'un profil de mission transport pendant 800 h** environ (cycle de la [Figure VII.4](#) avec un courant moyen de 12.5 A et des pointes de courant maximales de 70 A ; gestion des réactifs décrite dans le [VI.2.2.1](#)). L'élévation du niveau de cette température étant une condition indispensable pour un développement large des applications PAC, un troisième essai d'endurance a donc été réalisé : une pile a fonctionné pendant **un millier d'heures à courant constant de 50 A et à une température de 65°C, soit 10°C au-dessus de la température nominale** (entraînant de facto une hygrométrie plus basse dans la pile).

Quelques détails concernant la façon dont se sont déroulés les essais (les modes opératoires retenus, les techniques de caractérisation mises en œuvre, les différentes modalités de valorisation des expérimentations) sont donnés ci-dessous.

VII.2.2 Suivi du point de fonctionnement en endurance

Lors de chaque essai de vieillissement, un suivi du point de fonctionnement (courant, températures, pressions...) a été assuré et l'évolution des performances de la pile investiguée en fonction du temps a notamment ainsi pu être observée. L'exemple de la [Figure VII.7](#) fait apparaître la variation de la tension du stack testé lors du premier essai d'endurance réalisé à Belfort en conditions nominales. La dégradation des performances observée en termes de tension de pile est d'environ -10%, -15% sur 1000 h. Sur la [Figure VII.7](#), sont également présentés : des taux de dégradation de la tension et un modèle polynomial (certes un peu complexe mais qui rend notamment compte de la légère amélioration des performances pendant les 100 premières heures du vieillissement). Le même type de tracé, présentant la tension de pile ou les tensions des cellules en fonction du temps, peut être trouvé avec ses commentaires dans [\[Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004\]](#) [\[Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005\]](#) [\[Wahdame IJHE n°32 2007\]](#) [\[Harel Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007\]](#) et [\[Wahdame JPS n°182 2008\]](#) pour les autres essais réalisés ultérieurement.

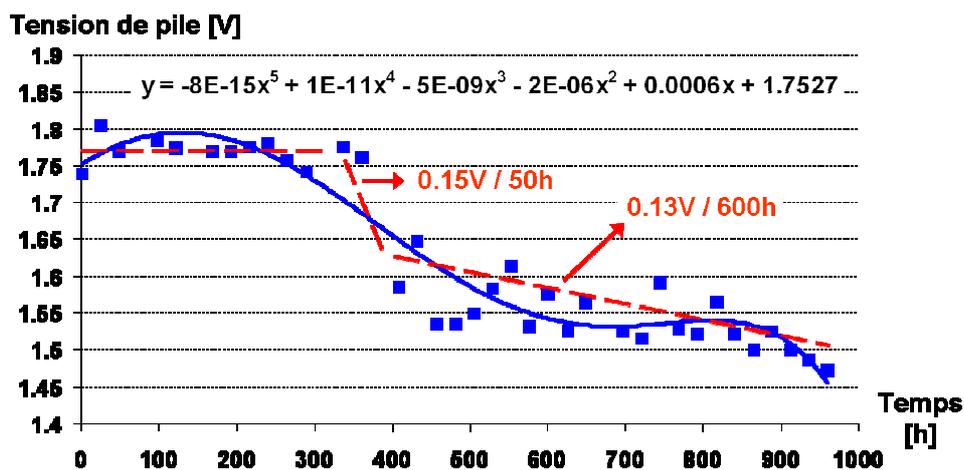


Figure VII.7 : Evolution de la tension de pile au cours du temps dans le cas d'un fonctionnement nominal d'un PAC PEM de 3 cellules sur 1000h [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Harel FDFC 2004] [Advances in Fuel Cells 2005] [Wahdame JPS n°182 2008].

VII.2.3 Caractérisations par courbes de polarisation et spectrométrie d'impédance

Lors des vieillissements, en plus de la surveillance (« monitoring ») des paramètres physiques assurée tout au long des essais, des caractérisations électrochimiques ont été réalisées régulièrement (à raison de deux fois par semaine), à la fois par relevés de courbes de polarisation et par Spectrométrie d'Impédance Electrochimique (SIE).

L'ensemble des courbes de polarisation relevées pendant chaque vieillissement, pour un jeu de surstoéchiométries anode/cathode (FSA/FSC) donné, a pu être affiché en fonction du temps sur différents types de graphes, notamment sous la forme de nappes 3D et de tracés 2D faisant apparaître des lignes de niveaux équipotentielles (Figure VII.8 relative au premier essai d'endurance). Ce mode de représentation graphique a été mis à profit pour analyser les essais de vieillissement qui ont suivi [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005] [Wahdame IJHE n°32 2007] [Harel Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007] et [Wahdame JPS n°182 2008]. L'affichage en 2D, grâce à l'emploi de lignes de niveaux « tension de pile », de l'ensemble des relevés de courbes de polarisation fait apparaître, dans le plan Temps – Courant, une amélioration des performances de la pile pendant les 100 premières heures de fonctionnement. Les 200 heures suivantes correspondent à une période de stabilisation des performances. C'est entre la 300^{ème} et 400^{ème} heure de fonctionnement qu'apparaît une dégradation du rendement de tension de la pile (visible également sur la Figure VII.7). Celle-ci s'effectue de manière plutôt régulière. Les petits pics présents sur les lignes de niveaux « tension de pile » peuvent quant à eux être attribués aux impacts des séquences de caractérisation réalisées, voire aussi à quelques arrêts forcés de la procédure de vieillissement qui ont eu lieu suite à des problèmes techniques rencontrés soit au niveau du banc de test, soit au niveau de l'équipement de la plateforme. Les parties non colorées qui apparaissent sur la nappe 2D de la Figure VII.8 sont dues au fait que des courbes de polarisation n'ont pas pu être enregistrées jusqu'à leur terme, c'est-à-dire jusqu'à une valeur maximale de courant égale à 70 A. Ces absences d'enregistrement proviennent dans ce cas d'un arrêt de la procédure d'enregistrement automatique du banc d'essai, suite à un passage d'une tension cellule sous un seuil bas fixé à 380 mV. Avec la Figure VII.8, obtenue pour le couple FSA/FSC le plus bas, on s'aperçoit que le vieillissement des performances de la pile est plus visible aux fortes densités de courant. Ce qui peut témoigner d'une dégradation progressive de la capacité de la pile à faire accéder les charges et les espèces réactives vers les interfaces réactionnelles dans les électrodes.

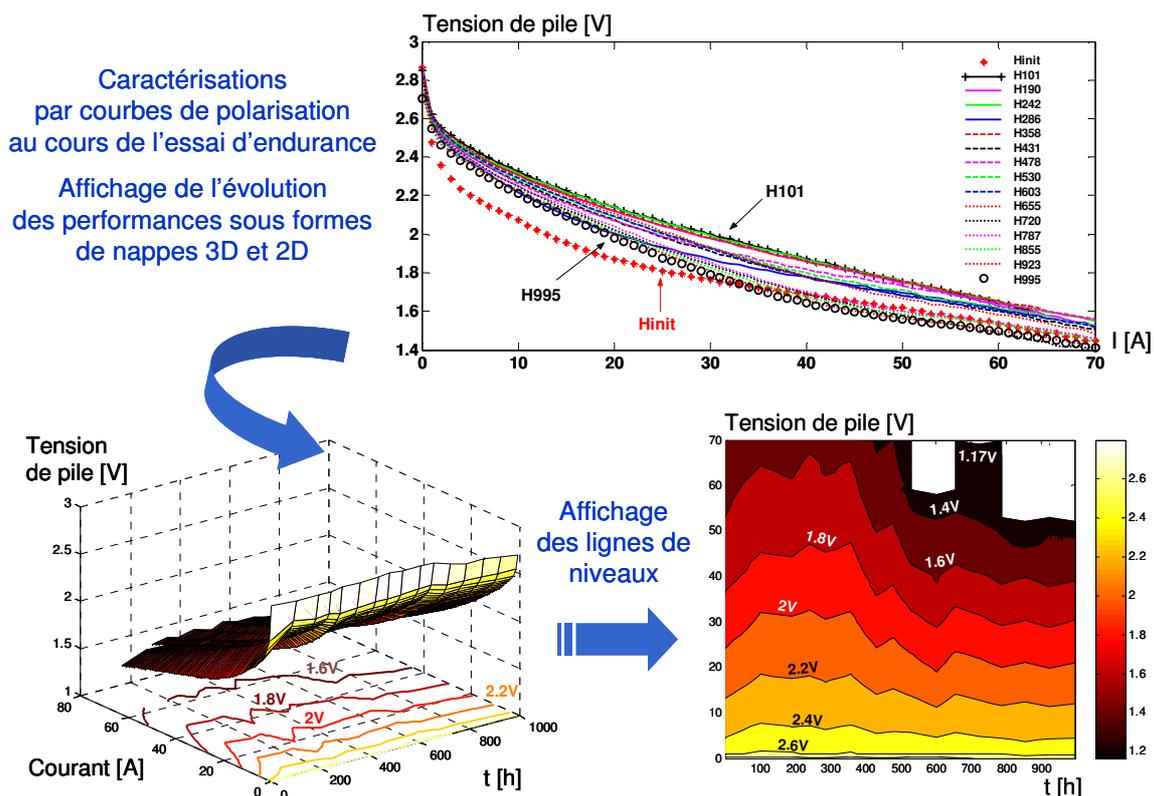


Figure VII.8 : Résultats des caractérisations statiques réalisées lors du premier essai d'endurance mené sur une pile dotée de 3 cellules durant 1000 heures et dans des conditions nominales (courbes de polarisations relevées ici avec FSA/FSC = 1.5/3.5) [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Harel FDFC 2004].

L'ensemble des spectres d'impédance enregistrés a aussi pu être affiché (cf. [Figure VII.9](#) relative au premier essai d'endurance réalisé en conditions nominales). L'interprétation physique des graphes d'impédance peut être faite en complément de celle des courbes de polarisation, et à partir des informations déjà fournies sur les techniques de spectrométrie au [Chapitre IV](#). On aperçoit, sur la [Figure VII.9](#), une augmentation graduelle de la taille des arcs basses et hautes fréquences qui confirme que le transport de matière et le transfert de charges s'effectue de plus en plus difficilement au cours du temps. Les évolutions de certains points caractéristiques des spectres (résistance interne des membranes, résistance de polarisation, lieux des sommets des arcs hautes et basses fréquences) ont pu être tracées en fonction de la durée de fonctionnement. A titre d'exemple, les valeurs des résistances internes et de polarisation ont été représentées en fonction du temps [Figure VII.10](#). La résistance haute fréquence (3 – 5 kHz), liée essentiellement à la conductivité des membranes, reste stable témoignant d'une charge en eau sensiblement constante dans le polymère. Quant à la résistance de polarisation, on peut trouver une correspondance, ce qui est normal, entre la variation de sa valeur et l'évolution des lignes de niveaux visibles sur la nappes 2D de la [Figure VII.8](#).

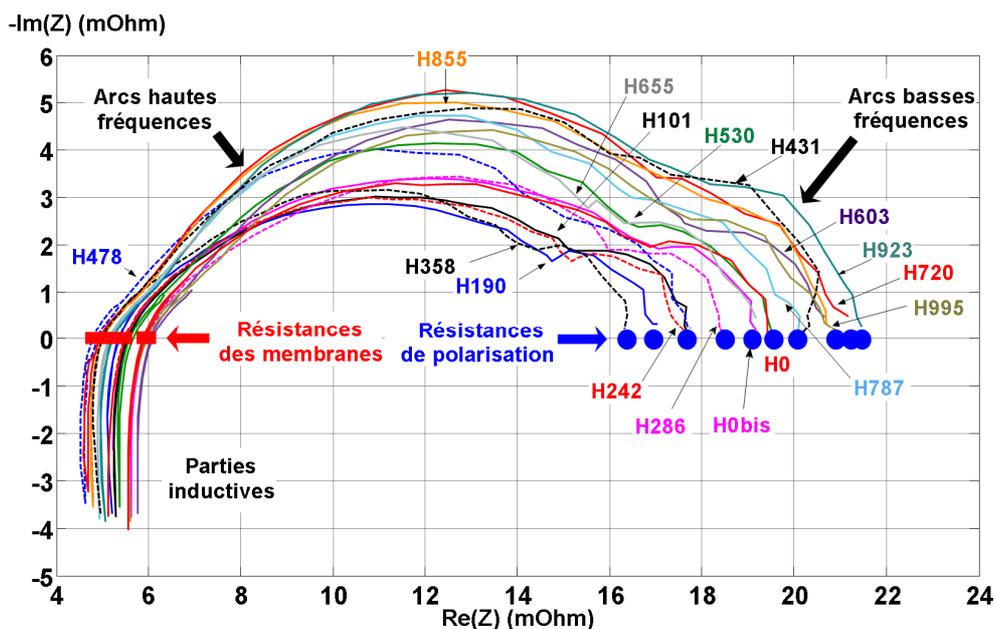


Figure VII.9 : Résultats des caractérisations dynamiques (spectrométrie d'impédance) réalisées lors du premier essai d'endurance mené durant 1000 heures et dans des conditions nominales [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004].

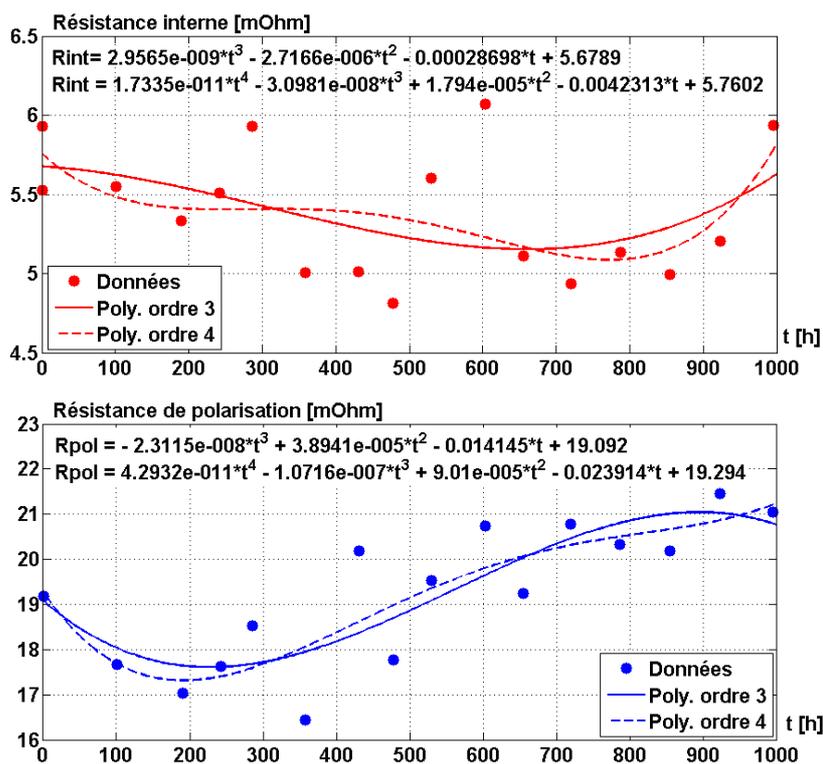


Figure VII.10 : Cas du premier essai d'endurance mené durant 1000 heures et dans des conditions nominales. Evolution de la résistance interne des membranes du stack et de sa résistance de polarisation [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Advances in Fuel Cells 2005].

Le troisième essai de vieillissement mené dans le cadre de la Convention DRIRE Franch-Comté et de VITAPAC, toujours réalisé sur le même type de pile, a mis en évidence la baisse de performances occasionnée par les basses hygrométries (liées à une température de pile plus élevée pour une même humidification des réactifs), que ce soit au niveau des rendements de tension plus faibles ou bien de la fiabilité entamée des cellules du stack [Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005] [Wahdame JPS n°182].

2008]. Ce troisième essai a en effet induit une rupture de membrane vers la 450^{ème} heure de fonctionnement, ce qui nous a conduits à poursuivre l'essai avec le stack doté des deux seules cellules restantes. On peut ainsi observer, sur la **Figure VII.11**, les deux phases du test d'endurance occasionnées par le passage de 3 à 2 cellules. D'une manière générale, lors ce troisième essai réalisé à 65°C, la dégradation physique de la pile au cours du temps n'est pas apparue de manière si prononcée sur les différents graphes présentant l'évolution temporelle des tensions de pile et de cellules [Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005] [Wahdame JPS n°182 2008]. Le problème sur la cellule 3 n'est apparu que de façon relativement soudaine, après 400 heures de fonctionnement environ. Des études plus fines des relevés effectués pendant les séquences de caractérisation et lors des procédures de conditionnement les précédant ont néanmoins permis d'observer des disparités entre le comportement de la cellule 3 et ceux des deux autres cellules. Ainsi, pour des surstœchiométries anodiques basses (jeux FSA/FSC = 1.5/3.5 et 1.5/4), le comportement singulier de la cellule 3 a pu être mis en évidence après le début du vieillissement. Les graphes temporels (tel que celui de la **Figure VII.11**) montrent clairement que la tension de pile subit une sorte de « baisse réversible » consécutive à chaque séquence de caractérisations à 55°C (H62 ... H1028, correspondant aux relevés de courbes de polarisation et aux mesures par SIE) : une diminution rapide tout d'abord lors de la première heure du fait des augmentations du courant jusqu'à 50 A et de la température jusqu'à 65°C, puis plus lente et légère les heures qui suivent. Cette dernière baisse est provoquée par un assèchement progressif des membranes.

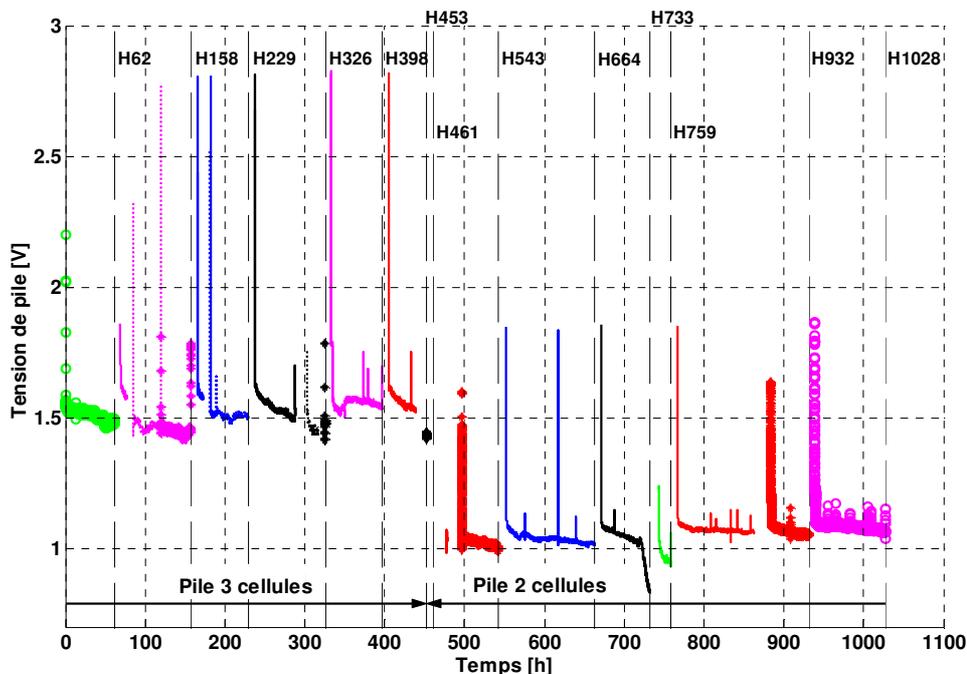


Figure VII.11 : Evolution de la tension de pile dans le cas d'un fonctionnement nominal sur 1000 h [Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005] [Harel FDFC 2004] [Wahdame JPS n°182 2008].

VII.2.4 Synthèse des premiers résultats d'essai de vieillissement. Perspectives

Les deux premières expériences réalisées (essai d'endurance au fonctionnement nominal sur une durée de 1000 h et essai d'une pile soumise à un cycle de courant dynamique issu d'un profil de mission transport pendant 800 h) et les comparaisons effectuées entre les essais nous laissent à penser d'une part que les piles a priori semblables peuvent présenter des performances sensiblement différentes (du fait des modes actuels « préindustriels » de production) et d'autre part que la quantité de charges électriques (exprimée en Coulomb) délivrée par les piles peut constituer, à côté des dynamiques de courant et de débits de gaz, un facteur influent pour le vieillissement [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Wahdame IJHE n°32 2007]. Pour autant, ne serait-ce que par la disparité potentielle existant au niveau des performances entre deux stacks a priori identiques, des tests supplémentaires et

Chapitre VII

d'autres comparaisons seront nécessaires pour pouvoir juger plus finement des importances relatives de l'effet du courant moyen sur un cycle correspondant à un profil de mission transport et de l'impact de la dynamique de courant (associée à une gestion particulière des gaz réactifs). Et puis, comme cela a été évoqué plus haut, notamment au regard de la [Figure VII.4](#), il semble aussi indispensable d'envisager une déconvolution des phénomènes physiques pour parvenir à mieux comprendre les différents modes de dégradation et de défaillance.

Le troisième essai de vieillissement a montré toute la difficulté qu'il peut y avoir à faire fonctionner une PAC PEM à membranes perfluorosulfonées à un niveau de température supérieur au point nominal. Les essais d'impédancemétrie, et plus particulièrement les mesures de la résistance interne à hautes fréquences, ont notamment mis en évidence le problème majeur des membranes utilisées dans l'essai : leur charge en eau est très difficile à maintenir dès que des températures supérieures à 60°C sont dépassées (pour les conditions de pressions et d'humidifications des gaz réactifs adoptées dans le test). Comme indiqué plus haut, l'essai de vieillissement ne s'est d'ailleurs pas déroulé sans problème. La pile a notamment dû être ouverte et, suite à la détection d'une fuite interne au stack, nous avons procédé à l'enlèvement d'une des trois cellules. Ce type d'opération n'avait alors pas encore été réalisé sur la plateforme de Belfort. Nous avons par ailleurs profité de cet essai pour effectuer des observations intéressantes lors des défauts rencontrés et des nouvelles procédures expérimentales de diagnostic ont pu être mises en place ([Chapitre IV et paragraphe VI.3.2 de ce chapitre](#)).

Les moyens expérimentaux et les protocoles d'essais en endurance développés dans le cadre de la Convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02 et de l'ACI VITAPAC ont ensuite été mis en œuvre et adaptés aux besoins exprimés dans le cadre du projet SPACT80. Les essais ont alors été réalisés sur de petits empilements HELION par Laurent Dumercy (IR contractuel L2ES), Fabien Harel, Bouchra Wahdame (IR contractuel FC LAB/L2ES), Xavier François (IR L2ES), Ellie Laffly (doctorant L2ES – LSGC Nancy) et ils ont concerné l'étude de l'impact de la composante alternative haute fréquence du courant de charge (composante liée aux structures des convertisseurs électroniques) sur le vieillissement des PAC [[Rapport vieillissements SPACT80 2006](#)] [[Wahdame ISIE 2008](#)]. Une première étude avait déjà été menée lors du projet SPACT sur l'influence de la forme d'onde du courant (amplitude ΔI et fréquence du signal) au niveau de la pile ([Chapitre VI](#)). Cette étude faite sur les plages de ΔI et de fréquence disponibles n'avait pas permis de constater une amélioration ou une dégradation notable du rendement de la pile en fonction des paramètres considérés. A ce jour, les essais menés en endurance lors du projet SPACT80 n'ont pas non plus permis d'observer un impact significatif de la composante alternative haute fréquence du courant sur le vieillissement de la PAC. Des recherches sur ce sujet sont toujours en cours au FC LAB.

Sur un plan pratique, les premiers essais d'endurance se sont avérés relativement peu évidents à réaliser et ils ont nécessité un suivi soutenu au niveau expérimental. La fiabilisation des fonctionnalités et des automatismes du banc d'essai 1 kW ne s'est faite que progressivement. Les protocoles de caractérisations ont quant à eux évolué sensiblement au cours et suite à cette campagne expérimentale. Après les deux premiers essais, il est ainsi apparu intéressant de procéder à des relevés d'impédancemétrie non plus sur un seul point de fonctionnement mais dans différentes conditions opératoires (avec d'autres niveaux de stœchiométrie pour le troisième test de vieillissement ; avec d'autres niveaux de courant de polarisation pour les essais menés dans le cadre de SPACT80). Cela a permis d'une part de mieux mettre en évidence les phénomènes physiques liés à la dégradation et d'autre part de donner lieu à une exploitation plus aisée des résultats expérimentaux par la méthode des plans d'expérience. Plus tard, il est aussi apparu que la fréquence des séquences de caractérisation par courbes de polarisation et SIE pouvait être réduite à une par semaine. Progressivement, il a semblé par ailleurs nécessaire de diversifier et de compléter les méthodes de caractérisation, par exemple par l'usage de la voltamétrie ([Chapitre IV](#)), technique introduite au FC LAB en 2007-2008. On a aussi vite constaté que la durée des essais d'endurance réalisés (1000 h généralement) entraînait de fait une sorte de « monopolisation » du banc 1 kW et pour cette raison, le FC LAB envisage à présent de se doter d'un banc supplémentaire plus spécifiquement destiné aux tests d'endurance.

Les différents essais réalisés ont largement été analysés, exploités, valorisés et cela de bien différentes manières. Le [Tableau VII.4](#) offre une synthèse des différents essais réalisés au cours de la Convention DRIRE Franche-Comté, de VITAPAC et de SPACT80. Les conditions de vieillissement et de caractérisation, les modalités d'exploitation et de valorisation des résultats y sont reportées.

Chapitre VII

Tableau VII.4 : Synthèse des essais d'endurance menés lors de la Convention DRIRE Franche-Comté, de VITAPAC et de SPACT80.

Premier vieillissement (2004) réalisé dans la Convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02. Pile ZSW de type PEM de 3 cellules 100 cm² (durée de 1000 h).	
Conditions du vieillissement :	Proches des conditions nominales : courant de 50 A, alimentation en hydrogène/air, pression atmosphérique, FSA/FSC = 2/4, hydrogène sec, température de rosée de l'air de 25°C, température de pile de 55°C.
Caractérisations par courbes de polarisation :	Courant croissant de 0 à 70 A (0.7 A/cm ²). Quatre jeux FSA/FSC ont été retenus : 2/5, 2/4, 2/3 et 1.5/3.5. En deçà de 20 A, les débits des gaz sont maintenus constants.
Caractérisations par spectrométrie d'impédance :	Courant de polarisation de 35 A (mode galvanostat) et perturbations sinusoïdales de faible amplitude (1 A). Plage de fréquence : de 30 kHz à 10 mHz. Relevés effectués pour FSA/FSC = 2/5, à une température de pile de 55°C, avec de l'hydrogène sec et de l'air à la température de rosée de 25°C.
Types d'exploitation et modes de valorisation des essais :	<ul style="list-style-type: none"> - Analyse expérimentale : [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Rapport VITAPAC 2005] [Harel FDFC 2004] [Harel Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007] [Advances in Fuel Cells 2005]. - Modélisation par des réseaux de neurones du vieillissement par Samir JEMEÏ : [Jemeï ISIE 2005]. - Application de la reconnaissance de formes au diagnostic des PAC par Daniel HISSEL : [Hissel IEEE TVT 2007]. - Analyse via des outils issus de la méthodologie des plans d'expériences par Bouchra WAHDAME : [Wahdame Thèse 2006] [Wahdame IJHE n°32 2007] [Wahdame ISIE 2006] [Wahdame IECON 2006]. - Estimation de la durée de fonctionnement par Raïssa ONANENA : [Onanena IJHE 2010].
Second vieillissement (2004) réalisé dans la Convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02. Pile ZSW de type PEM de 3 cellules 100 cm² (durée de 800 h).	
Conditions du vieillissement :	Sur cycle temps - courant issu du profil de mission véhicule temps – vitesse Hyzurb HURBANC (Figure VII.4). Amplitude maximale du courant de pile de 70 A environ. Valeur moyenne du courant sur le cycle de 12.5 A. La gestion des réactifs a été décrite dans le VI.2.2.1.
Caractérisations par courbes de polarisation :	Courant croissant de 0 à 70 A (0.7 A/cm ²). Quatre jeux FSA/FSC ont été retenus : 2/5, 2/4, 2/3 et 1.5/3.5. En deçà de 20 A, les débits des gaz sont maintenus constants.
Caractérisations par spectrométrie d'impédance :	Courant de polarisation de 35 A (mode galvanostat) et perturbations sinusoïdales de faible amplitude (1 A). Plage de fréquence : de 30 kHz à 10 mHz. Relevés effectués pour FSA/FSC = 2/5, à une température de pile de 55°C, avec de l'hydrogène sec et de l'air à la température de rosée de 25°C.
Types d'exploitation et modes de valorisation des essais :	<ul style="list-style-type: none"> - Analyse expérimentale : [Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004] [Rapport VITAPAC 2005] [Harel Lucerne 2005] [Harel Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007]. - Application de la reconnaissance de formes au diagnostic des PAC par Daniel HISSEL : [Hissel IEEE TVT 2007]. - Analyse via des outils issus de la méthodologie des plans d'expériences : [Wahdame IJHE n°32 2007]. - Estimation de la durée de fonctionnement par l'utilisation de régressions et de variables latentes : [Onanena IJHE 2010].

Chapitre VII

Troisième vieillissement (2005) réalisé dans la Convention DRIRE Franche-Comté 01 Y 0044-02 et lors de VITAPAC. Pile ZSW de type PEM de 3 puis 2 cellules 100 cm² (durée de 1000 h).	
Conditions du vieillissement :	Conditions identiques au premier essai d'endurance hormis pour la température de pile (65°C), supérieure de 10°C à la température nominale.
Caractérisations par courbes de polarisation :	Courant croissant de 0 à 70 A (0.7 A/cm ²). Cinq jeux FSA/FSC ont été retenus : 2/5, 2/4, 2/3, 1.5/3.5 et 1.5/4. En deçà de 20 A, les débits des gaz sont maintenus constants.
Caractérisations par spectrométrie d'impédance :	Courant de polarisation de 35 A (mode galvanostat) et perturbations sinusoïdales de faible amplitude (1 A). Plage de fréquence : de 30 kHz à 10 mHz. Relevés effectués pour différents couples de surstoechiométries FSA/FSC (2/5, 2/4, 2/3, 1.5/3.5 + quelques relevés effectués à la fin du vieillissement pour le jeu 1.5/4), à une température de pile de 55°C, avec de l'hydrogène sec et de l'air à la température de rosée de 25°C.
Types d'exploitation et modes de valorisation des essais :	- Analyse expérimentale : [Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005]. - Analyse via des outils issus de la méthodologie des plans d'expériences : [Wahdame Thèse 2006] [Wahdame JPS n°182 2008].
Essai d'endurance réalisé dans le cadre de SPACT80, à courant constant. Avec une pile Hélon de type PEM de 5 cellules (surface active de 340 cm², membranes Gore). Durée de 1000 h.	
Conditions du vieillissement :	Courant constant de 250 A, alimentation en hydrogène/air, pression de 1.6 bar, FSA/FSC = 2/2, hydrogène sec, air humide (humidité relative de 70%), température de pile de 70°C.
Caractérisations par courbes de polarisation :	Courbe de polarisation « descendante », de 250 à 0 A (pas de courant de 5 A). La stoechiométrie des gaz est maintenue constante de 250 A à 50 A (FSA/FSC=2/2). En deçà de 50 A, les débits des gaz sont maintenus constants.
Caractérisations par spectrométrie d'impédance :	Mêmes conditions que pour les courbes de polarisation. Courants de polarisation de 70, 150 et 250 A (mode galvanostat) et perturbations sinusoïdales en courant de ±10%.
Types d'exploitation et modes de valorisation des essais :	- Analyse expérimentale : [Rapport vieillissements SPACT80 2006] [Wahdame ISIE 2008]. - Prise en compte du vieillissement dans un modèle de pile basé sur la description de son impédance électrochimique [Laffly ISIE 2007].
Essai d'endurance réalisé dans le cadre de SPACT80, avec une sollicitation en courant haute fréquence. Avec une pile Helion de type PEM de 5 cellules (surface active de 340 cm², membranes Gore). Durée de 1000 h.	
Conditions du vieillissement :	Courant de 250 A avec une composante haute fréquence (5 kHz) de ±10%, alimentation en hydrogène/air, pression de 1.6 bar, FSA/FSC = 2/2, hydrogène sec, air humide (humidité relative de 70%), température de pile de 70°C.
Caractérisations par courbes de polarisation :	Courbe de polarisation « descendante », de 250 à 0 A (pas de courant de 5 A). La stoechiométrie des gaz est maintenue constante de 250 A à 50 A (FSA/FSC=2/2). En deçà de 50 A, les débits des gaz sont maintenus constants.
Caractérisations par spectrométrie d'impédance :	Mêmes conditions que pour les courbes de polarisation. Courants de polarisation de 70, 150 et 250 A (mode galvanostat) et perturbations sinusoïdales en courant de ±10%.
Types d'exploitation et modes de valorisation des essais :	- Analyse expérimentale : [Rapport vieillissements SPACT80 2006] [Wahdame ISIE 2008]. - Prise en compte du vieillissement dans un modèle de pile basé sur la description de son impédance électrochimique [Laffly ISIE 2007].

En France, peu de laboratoires ont entrepris des expérimentations sur le vieillissement des stacks de PAC. On peut citer le CEA LITEN à Grenoble, le LSGC à Nancy, HELION à Aix-en-Provence, AXANE à Sassenage. Parmi les organismes de recherche en Europe qui mènent des travaux sur ce thème, nous pouvons citer les plus proches de nous géographiquement : le Fraunhofer Institut de Freiburg en Allemagne, le Paul Scherrer Institut de Villingen en Suisse et Eifer (EDF) à Karlsruhe. Les approches et les méthodologies de tests retenues sont à la fois voisines et complémentaires des nôtres : les essais sont menés dans d'autres conditions, parfois sur des durées plus longues mais en effectuant moins de caractérisations (Fraunhofer), l'analyse chimique de l'eau produite par la pile permet d'établir un diagnostic sur l'état des membranes (CEA), l'imagerie médicale (IRM) est mise en œuvre par PSI pour observer les distributions hydrauliques dans les piles...

VII.3 Méthodes de diagnostic pour les générateurs PAC

Une description d'approches possibles pour assurer le diagnostic des PAC de type PEM sera d'abord proposée dans cette partie du chapitre. Un exemple de **procédures expérimentales non-intrusives à la finalité pratique, technologique, permettant la localisation et la qualification de défauts dans des empilements**, sera ensuite donné. Nous verrons ensuite, à travers différents exemples de travaux quel peut être **l'apport des techniques de traitement du signal et de l'information dans le domaine du diagnostic des PAC**. Ce seront essentiellement des **stratégies de diagnostic à base de reconnaissance de formes** qui seront évoquées ici. Certains des outils mathématiques / statistiques de modélisation et d'analyse mis en œuvre dans ces stratégies (réseaux de neurones, Analyse en Composantes Principales - ACP par exemple) ont déjà été évoqués au **Chapitre IV**.

VII.3.1 Le contexte PAC et les principales approches

VII.3.1.1 La problématique du diagnostic et du contrôle-commande des systèmes PAC

D'une manière générale, effectuer un diagnostic consiste à rechercher les états de composants responsables des symptômes observés, comme les pannes chez le mécanicien ou les maladies chez le médecin. La définition donnée par l'Association Française de Normalisation (AFNOR) [AFNOR 1998] est la suivante : « Le diagnostic est l'identification de la cause probable de la (ou des) défaillance(s), à l'aide d'un raisonnement logique fondé sur un ensemble d'informations provenant d'une inspection, d'un contrôle ou d'un test de maintenance ».

Une stratégie de diagnostic permet d'envisager sur un système :

- **un gain de sécurité** en détectant des anomalies afin d'éviter les incidents (voire des accidents),
- **un gain de productivité** en réduisant le temps d'indisponibilité et en limitant les arrêts inutiles et les maintenances. Ce qui contribue à minorer le coût d'exploitation,
- **une augmentation de la durée de vie**, par l'accroissement de la fiabilité.

Pour les générateurs à PAC, le diagnostic précoce doit constituer un des moyens nécessaires pour prévenir les lourdes conséquences d'une défaillance et de ce fait atteindre les objectifs de fiabilité, de coût et de durée de vie déjà mentionnés. **La définition et la mise en place de méthodes de diagnostic peuvent et doivent déboucher à terme sur des procédures de maintenance préventive / prédictive.**

Dans la communauté des scientifiques travaillant sur les PAC, le terme « diagnostic » correspond souvent à une notion assez diffuse qui peut aller de la compréhension des modes de défaillance (domaine de la physique - chimie, faisant éventuellement intervenir des analyses matériaux) au contrôle-commande des systèmes (domaines de l'automatisme, du traitement du signal, de l'informatique). Aujourd'hui, les méthodes de diagnostic utilisées sur les prototypes de systèmes PAC font essentiellement appel d'une part à la surveillance de différents paramètres jugés importants (i.e. la température de pile, les pressions des gaz aux entrées du stack...) et d'autre part à l'observation de la réponse en tension des cellules individuelles pour évaluer en temps réel leurs états de fonctionnement (« state-of-health »). Des gammes de fonctionnement, des gabarits sont définis pour chacun des

paramètres et le contrôle du générateur est réalisé à partir de différents seuils critiques semi-empiriques (par exemple : seuil de tension minimal au niveau des tensions de l'empilement). Une diminution de la tension d'une cellule permet par exemple d'identifier un éventuel empoisonnement de la cellule par du CO lors d'un fonctionnement avec reformat, une éventuelle déshydratation des membranes, ou un noyage de cellule... Le système de contrôle est alors appelé à pallier ces problèmes en agissant sur les différents auxiliaires (sous-système de traitement du combustible, circuit de refroidissement de la pile et/ou humidificateurs...) et en commandant différentes procédures (diminution ou mise à zéro de l'intensité du courant de charge, arrêt des débits de gaz réactifs, déclenchement d'une purge à l'azote...). La difficulté liée à de tels contrôles réside dans le fait que les informations collectées ne sont pas obligatoirement discriminantes quant à l'origine du défaut, qu'elles ne permettent pas non plus toujours d'anticiper suffisamment l'apparition d'une anomalie.

Pour faire face à ce problème, on pourrait imaginer d'implanter davantage de capteurs au sein du système PAC de manière à mieux déceler tout écart aux conditions de fonctionnement normal. Une telle approche conduirait cependant à des problèmes au niveau de la conception du cœur de pile et du système complet (générateur plus coûteux, mais aussi plus complexe et donc a priori potentiellement moins fiable). D'autres stratégies de diagnostic doivent donc être envisagées et pour cela, un travail de réflexion doit être mené sur la façon de collecter, de représenter et traiter les informations, sur la manière de prendre des décisions.

VII.3.1.2 Stratégies de diagnostic

De nombreuses stratégies de diagnostic existent, car une communauté scientifique pluridisciplinaire apporte sa contribution à leur développement (automaticiens, statisticiens, informaticiens...). Le choix de la méthode de diagnostic à mettre en œuvre est dicté par la quantité et le type de connaissances dont on dispose, ainsi que par les contraintes du problème de diagnostic posé. Les méthodes peuvent être classées différemment selon la discipline et le contexte dans lesquels elles sont utilisées. Dans son mémoire consacré au diagnostic des applications ferroviaires [Aknin HDR 2008], Patrice Aknin distingue trois différentes approches de diagnostic : à base de modèles analytiques, par reconnaissance des formes et par systèmes experts. A l'instar de Nadia Steiner [Steiner Thèse 2009], nous n'en distinguerons que deux : celles basées sur la modélisation des systèmes et celles qui s'appuient sur des techniques de traitement du signal et de l'information. **De l'examen de la situation à l'établissement d'une conclusion, on peut en tout cas distinguer différentes phases distinctes dans l'action du diagnostic.** L'instrumentation, **la mesure** et la collecte de données expérimentales constituent un point d'entrée pour toutes les stratégies de diagnostic : avec ou sans modèle. Viennent ensuite **la détection** de la présence éventuelle d'un ou de plusieurs défaut(s), puis **l'identification** de la cause du ou des dysfonctionnement(s) (classification des types de défauts) et **la localisation** des problèmes. Dans une approche globale qualifiée par les automaticiens de « supervision » du système, les termes anglais « Fault Detection & Isolation (FDI) » sont utilisés pour faire référence à cette étape du diagnostic [Yang 2009]. A noter que la détection et l'identification peuvent être réalisées simultanément dans certaines approches de diagnostic (reconnaissance de forme). Après l'identification du ou des défaut(s), des alarmes sont déclenchées, soit pour donner lieu à **des opérations de maintenance**, soit pour entraîner **des actions de correction automatiques** qui agissent contre les défauts, afin de maintenir le fonctionnement du système en mode normal. En anglais, on parle alors de « Fault Tolerant Control (FTC) ».

La **Figure VII.12** offre la synthèse d'une démarche de supervision du générateur PAC avec deux stratégies possibles pour le diagnostic : avec modèle ou par reconnaissance de formes (davantage de détails seront donnés un peu plus loin sur ces deux types d'approches). Par ailleurs, des états de l'art détaillés portant sur les stratégies de diagnostic appliquées aux systèmes PAC ont été proposés dans [Steiner Thèse 2009] et [Wasterlain Thèse 2010].

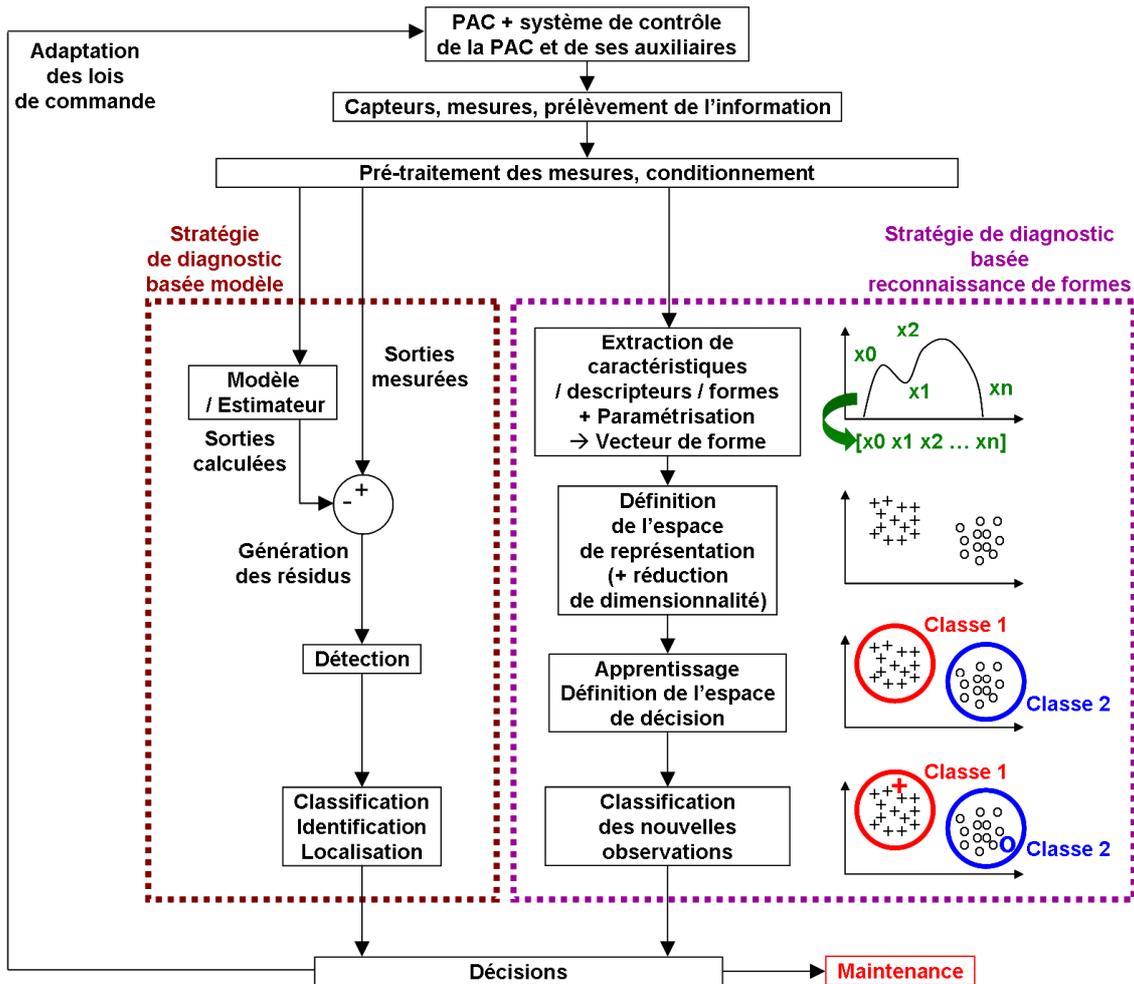


Figure VII.12 : Schéma général présentant une démarche de diagnostic, avec ici 2 options possibles : une stratégie basée sur l'utilisation d'un modèle ou bien une méthode mettant en œuvre des techniques de reconnaissance de forme. Figure adaptée de schémas présentés dans [Steiner Thèse 2009].

VII.3.1.3 Collecte / prélèvement des informations : incontournables protocoles expérimentaux et instruments de caractérisation

Pour évaluer l'état de santé des PAC, il est d'abord nécessaire de définir un ensemble d'indicateurs de dysfonctionnement tels que des signatures électriques ou électrochimiques particulières pouvant être rattachées à une dégradation, un défaut ou une défaillance. Si la mise en place sur bancs d'essais de procédures expérimentales permettant des caractérisations fines de PAC est incontournable pour accéder à une meilleure compréhension de leur comportement (Chapitre IV), la définition d'outils de diagnostics à visées plus applicatives est également nécessaire. Certaines des méthodes de caractérisation fines en vigueur dans les laboratoires peuvent être adaptées ou en partie utilisées pour surveiller et contrôler des générateurs stationnaires ou embarqués. Dans l'optique spécifique du diagnostic, des procédures expérimentales ad-hoc, efficaces et simplifiées au possible, doivent être définies pour permettre la localisation du défaut au sein des générateurs PAC embarqués, la détermination des causes du défaut, la conduite à tenir (arrêt du dispositif, mise en œuvre éventuelle d'une opération de régénération des performances, et / ou fonctionnement en mode dégradé). Ainsi, si l'intérêt de la technique de l'impédancemétrie est manifeste en laboratoire, son utilisation sur des systèmes réels, embarqués par exemple, est plus délicate. Certaines sollicitations en courant, liées aux convertisseurs électroniques permettant le conditionnement et l'utilisation de l'énergie électrique issue des PAC, peuvent alors être mises à profit pour réaliser des mesures d'impédance, en particulier des membranes, voire pour contrôler des systèmes d'humidification et maintenir des charges en eau adéquate dans les électrolytes [Schindele EVS 2005] [Narjiss EPE-

PEMC 2008] (Chapitre IV). Autre exemple, déjà évoqué dans le Chapitre IV : l'application de créneaux de débits de réactifs ou de légères variations de pression anode – cathode, couplée à une surveillance des tensions de cellules à vide, permet de détecter les cellules défaillantes au sein des empilements [Tian JPS 2008]. Nous y reviendrons (Paragraphe VI.3.2).

VII.3.1.4 Diagnostic basé sur l'utilisation de modèles analytiques

Dans le diagnostic à base de modèle, issu de la communauté des automaticiens, le raisonnement s'appuie sur un modèle explicite, qualitatif ou quantitatif. Ce modèle, plus ou moins abstrait, décrit le fonctionnement correct ou fautif du système (généralement le fonctionnement normal du système) [Aknin HDR 2008].

Différentes approches de modélisation envisageables dans le domaine des PAC ont déjà été évoqués au Chapitre IV. L'utilisation d'un **modèle physique ou de connaissance** décrivant les phénomènes par des formulations mathématiques présente l'intérêt d'une prise en compte explicite de la causalité dans la modélisation même du système. Le processus de diagnostic s'en trouve ainsi souvent simplifié mais avec en contrepartie la complexité éventuelle liée à ce type de modélisation et des temps de calculs parfois rétroactifs pour une approche temps réel [Hernandez Thèse 2006]. Le **modèle comportemental** (type boîte noire, basée par exemple sur l'utilisation de réseaux de neurones, sur des relations mathématiques multi-paramètres dont les coefficients sont déterminés par des techniques de régression) est sans doute plus facile à bâtir dans mesure où il est lié de manière bien plus directe aux essais expérimentaux réalisés sur le système [Fouquet JPS 2006] [Hissel IEEE TVT 2007]. Cependant, dans ce cas, l'absence de causalité explicite rend plus difficile l'étape relative à la localisation des défauts. Une solution intermédiaire consiste naturellement à mettre en œuvre un **modèle boîte grise ou semi-empirique**, éventuellement issu de la simplification d'un modèle mécanistique.

Une fois le modèle physique ou comportemental défini (à partir d'une série d'essais expérimentaux, statiques et dynamiques, en mode de fonctionnements normal et dégradé), il reste à l'implanter dans un ordinateur, à l'utiliser en temps réel en comparant les sorties de ces modèles (tensions des cellules par exemple) aux valeurs mesurées sur le système en fonctionnement : on parle dans ce cas de « **diagnostic en ligne** » et de « **redondance analytique** ». Des **résidus** sont alors générés et sur chacun d'entre eux est généré un test d'hypothèse afin de distinguer l'écart à zéro d'un niveau de bruit ou de légères erreurs de modélisation. La génération de résidus robustes constitue d'ailleurs sans doute la principale difficulté relative à cette approche de diagnostic à base de modèles analytiques.

Ce type d'approche a été mis en œuvre par Nadia Steiner pour détecter des phases de noyage dans une PAC [Steiner Thèse 2009]. Le principe de la détection du noyage des électrodes d'une PAC, à partir d'un modèle de pertes de charge cathodique (basé sur un réseau de neurones) et d'un calcul de résidu [Steiner IMACS 2008], a déjà évoqué Chapitre IV. A noter aussi que ce travail a ensuite été complété par la prise en compte supplémentaire de l'évolution de la tension de pile dans le processus de diagnostic de phases de noyages et d'assèchements (entraînant donc la génération d'un second résidu) [Steiner IJHE 2011].

VII.3.1.4 Diagnostic basé sur le traitement du signal et de l'information

L'utilisation de modèles boîtes noires, d'outils tels que les réseaux de neurones peut en définitive confiner à des stratégies de diagnostic que l'on peut qualifier de « sans modèle ». Ce n'est plus une représentation analytique du système qui est alors considérée, mais ce sont des techniques issues du domaine du traitement du signal (dont la transformée en ondelettes par exemple) et de l'information (reconnaissance de forme, systèmes experts par exemple) qui sont essentiellement mises en œuvre. En règle générale, on a recours à ce type d'approche lorsqu'aucun modèle décrivant les relations de cause à effet n'est disponible ou quand celui-ci s'avère trop coûteux à élaborer au vu des enjeux. Il existe en fait tout un corpus de méthodes « sans modèle » permettant d'assurer un diagnostic de PAC : parmi lesquelles des **méthodes logiques** (logique floue par exemple [Hissel JPS 2004] ou bien encore les arbres de défaillance [Steiner JPS 2008]), **statistiques** (e.g. recours à des notions de moyenne, d'écart-type...), **stochastiques** (utilisation de distributions [Hernandez Thèse 2006],[Hernandez ISIE 2006]), **probabilistes** (emploi des réseaux bayésiens [Riascos JPS 2007] [Riascos IAC 2006] [Riascos JPS 2008]). Ces méthodes apparaissent bien adaptées au diagnostic du système complexe qu'est un générateur PAC. Elles reposent sur une bonne connaissance du comportement réel de ce dernier. Elles

peuvent bien sûr être combinées entre elles et peuvent d'autre part être associées à des approches de type analytique.

- Principe général de la reconnaissance de forme

Le diagnostic par reconnaissance (statistique) de forme vise d'abord à **identifier des classes** (ou motifs) à partir de données brutes prélevées sur le système étudié. Il a ensuite pour finalité d'**attribuer une classe à un objet**, celui-ci étant décrit par un ensemble de paramètres appelés « descripteurs », « variables », « attributs », « paramètres », « caractéristiques » ou « formes » formant un espace de représentation [Steiner Thèse 2009]. A noter que si cet espace possède une taille très importante, il convient de l'optimiser, de le réduire aux caractéristiques les plus pertinentes au sens de la discrimination. Dans un contexte supervisé, on connaît à l'avance les K classes ($\Omega_1 \dots \Omega_K$) dans lesquelles les différentes observations doivent être classées. Les vecteurs appartenant à une même classe forment un nuage de points occupant une zone de l'espace. Afin de classifier une nouvelle observation, la stratégie de diagnostic par reconnaissance de forme délimite les zones, en déterminant une frontière de séparation entre les différentes classes, grâce à un ensemble d'observations connues, appelées base d'« apprentissage ». Cette étape permet la caractérisation des classes et la définition de l'espace des décisions. Une fois les classes définies, l'algorithme peut être exploité pour classifier de nouvelles observations. Ces différentes étapes apparaissent dans la **Figure VII.12**. Le diagnostic par reconnaissance de forme utilise tous les outils connus des statisticiens (Analyse par Composantes Principales – ACP, K plus proches voisins – Kppv, arbres... [Steiner Thèse 2009]), éventuellement dans un cadre bayésien (discrimination probabiliste [Wasterlain Thèse 2010]), et il bénéficie des développements de la communauté de l'apprentissage statistique et des méthodes dites connexionnistes (réseaux de neurones par exemple) [Aknin HDR 2008].

VII.3.2 Exemples de protocoles expérimentaux pour le diagnostic : focus sur le problème particulier des fuites de réactifs dans les piles

Pour mettre en exergue le besoin et l'intérêt de mettre au point des **protocoles expérimentaux spécifiques au diagnostic des PAC**, nous allons évoquer ici des recherches portant sur **la détection et la localisation de problèmes d'étanchéité interne au stack**, liée en particulier à des **perforations de membranes** électrolytiques. Ces recherches ont été entreprises à Belfort lors du stage post-doctoral de Guangyu Tian de l'Université de Tsinghua d'octobre 2004 à août 2005 [Tian JPS 2008]. Les travaux se sont poursuivis à la fois dans le cadre du Master d'Issame Endichi [Endichi Master 2007] et pendant la thèse de Sébastien Wasterlain [Wasterlain Thèse 2010]. Une méthodologie combinant **expérimentations et outils statistiques simples pour assurer le traitement des informations collectées** a été imaginée afin de mettre en évidence des **fuites entre le compartiment anode et le circuit de refroidissement** (hydrogène à l'anode et eau déionisée ou mélange glycolé dans le circuit permettant le contrôle de la température de PAC) [Tian IJHE 2010].

VII.3.2.1 Problématique

Nous l'avons vu au début de ce chapitre, les cœurs de piles PEM sont sans doute les éléments les plus sensibles et les plus vulnérables du système PAC opérant dans des conditions de fonctionnement transport, avec des contraintes fortes, d'origines mécaniques et thermiques. Les recherches menées sur les matériaux et composants de PAC PEM doivent aboutir à terme à des fonctionnements fiables et à des durées de vie correspondant aux cahiers des charges des applications visées. Le développement de nouvelles membranes va actuellement dans ce sens. Néanmoins, la tendance à faire décroître l'épaisseur des membranes pour réduire les coûts et obtenir des résistances ioniques plus faibles (membrane type Nafion 115 possédant une épaisseur de 127 μ m; Nafion 112 : 51 μ m; plus récemment Nafion 211 ou Nafion 111 : épaisseurs de 25 μ m), fait que les phénomènes de perméation des réactifs à travers l'électrolyte (« crossover ») sont encore observés durant des essais d'endurance (cas du troisième essai de vieillissement évoqué au VI.3.1).

Des différences trop importantes entre les pressions des compartiments anodique et cathodique peuvent entraîner une rupture ; une mauvaise hydratation de la membrane et des inhomogénéités hydrauliques à sa surface peuvent faire apparaître des « points chauds », donner naissance à des trous qui mettent en présence directe l'hydrogène de l'anode avec l'air de la cathode. La présence de ces

porosités ou perforations peut a priori s'avérer critique en termes de performances pour la pile, voire de sécurité pour les personnes. Avec le développement de membranes plus résistantes et plus fiables, avec l'adoption de conditions de fonctionnement plus propices pour la durée de vie de la pile (par exemple grâce à des auxiliaires plus performants et mieux pilotés, via l'hybridation par des supercondensateurs qui prennent en charge une partie des dynamiques de courant), le risque d'apparition de ce type de défaut devra être réduit au possible. Néanmoins, au laboratoire, des problèmes d'étanchéité ont d'ores et déjà été rencontrés sur plusieurs technologies de piles PEM, après des durées de fonctionnement et des conditions d'utilisation variables. Ils ont pu se traduire par des tensions très faibles au niveau d'une ou plusieurs cellules du stack et conduire à interrompre les expériences en cours (cf. VI.3.1).

Dans ce contexte, il semble particulièrement intéressant et nécessaire d'imaginer des procédures visant à la détection d'un tel défaut et à sa localisation spatiale sur le stack. Une fois le diagnostic effectué, il s'agit aussi de déterminer la conduite à tenir, sur le banc de test en laboratoire et à terme sur le véhicule. En 2004, seules de rares informations sur ces sujets étaient disponibles dans la littérature ; les constructeurs de pile avec lesquels nous étions en contact n'avaient pas ou peu d'expérience dans ce domaine. Ils savaient certes détecter un problème d'étanchéité interne ou externe au stack, au moyen d'un test en pression à l'azote, mais ne disposaient pas de procédure particulière pour localiser spatialement le défaut (Chapitre IV). Celui-ci peut d'ailleurs provenir d'une membrane défectueuse mais aussi d'un joint, situé entre les plaques distribuant les gaz, endommagé ou déplacé.

VII.3.2.1 Travaux réalisés

- Fuites anode - cathode

Un premier défaut d'étanchéité interne avait été détecté au laboratoire lors du deuxième essai d'endurance, réalisé en 2004 sur une pile ZSW trois cellules soumise à un cycle de courant dynamique issu d'un profil de mission transport. L'origine première du problème est un dysfonctionnement du local de test, qui a d'abord eu des répercussions négatives sur le banc d'essais puis sur le stack lui-même. L'essai avait alors été interrompu après 800 heures de vieillissement (cf. VI.3.1). Par précaution, nous n'avons pas réalimenté la pile en gaz réactifs. Un autre défaut d'étanchéité interne avait été décelé en 2004 sur un stack 5 kW. La provenance de ce défaut est plus difficile à déterminer. Le problème peut vraisemblablement être imputé à des dysfonctionnements occasionnels du banc de test qui se sont traduits par des différences intempestives de pressions anode – cathode, mais peut-être aussi à une hydratation insuffisante de la PAC dans certaines conditions. M. Guangyu Tian a pu exploiter et analyser les enregistrements des données expérimentales disponibles effectués lors des essais considérés.

Deux autres problèmes d'étanchéités internes sont apparus sur un stack trois cellules lors du troisième essai d'endurance réalisé au premier semestre 2005 à une température de fonctionnement égale à 65°C. Des tests de pression à l'azote permettant de mettre en évidence une fuite interne et de juger de l'importance de celle-ci ont alors été réalisés avec Guangyu Tian. Nous avons ensuite cherché à localiser le défaut et à mettre en place des procédures ad-hoc. Un test spécifique (dit du « créneau de gaz réactif ») a été défini. Décrit au Chapitre IV, il consiste à alimenter la pile en gaz réactifs à courant de charge nul, en mode ouvert puis à interrompre de façon soudaine les débits d'air et d'hydrogène [Tian JPS 2008] [Wasterlain Thèse 2010]. L'observation des tensions de cellules à l'abandon nous renseigne alors sur le numéro de la cellule défectueuse. En effet, à courant nul et après arrêt des débits, une cellule normale de pile conserve une tension relativement stable à ses bornes pendant une durée supérieure à la minute ; cette tension résiduelle est due aux volumes tampons des gaz réactifs contenus dans les électrodes. Lors du test considéré, la cellule défectueuse voit sa tension chuter de façon très rapide. En outre, des essais réalisés en mode régulation de pression ont montré que la création, pendant une durée déterminée, d'un gradient de pression entre les compartiments anode et cathode pouvait avoir une influence sur le niveau de fuite observé [Tian JPS 2008]. Le défaut d'étanchéité rencontré sur la pile soumise à l'essai de vieillissement était tel qu'il nous empêchait de caractériser la pile et de continuer l'essai d'endurance. La cellule posant problème a alors été enlevée et l'essai s'est poursuivi avec un stack de deux cellules. Ces premières observations une fois effectuées sur une pile de faible puissance (100 W), un travail expérimental de diagnostic a été entrepris sur le stack 5 kW doté de 42 cellules. Les procédures mises en place sur la petite pile ont été adaptées au stack sous

Chapitre VII

investigation, en prenant en compte l'architecture fluide particulière du banc d'essai 10 kW. Des gradients de pressions modérés (≈ 5 à 6% de la pression de pile relative) ont été appliqués sur la pile tandis les tensions des cellules à vide étaient mesurées. Par précaution, au début des essais, de l'azote a été ajouté à l'hydrogène au moyen de la station de mixage des gaz de la plateforme de Belfort. La mise en place de débits d'hydrogène faibles à l'anode (quelques NI/min) et de débits d'air importants à la cathode (200 NI/min) a permis d'assurer une sorte de ventilation dans le stack et de cette manière, les risques de combustion ont été minimisés. Lors des différents essais réalisés, des cellules défectueuses ont ainsi pu être localisées par l'observation de leur tension et par la détection des signatures électriques correspondant aux défauts [Stumper JPS 2010]. On constate à la vue de la Figure VII.13 que les cellules 19, 21 et 27 sont très sensibles aux variations de pression engendrées par la régulation du banc d'essai. Ces comportements singuliers sont relatifs à des cellules présentant un défaut d'étanchéité important.

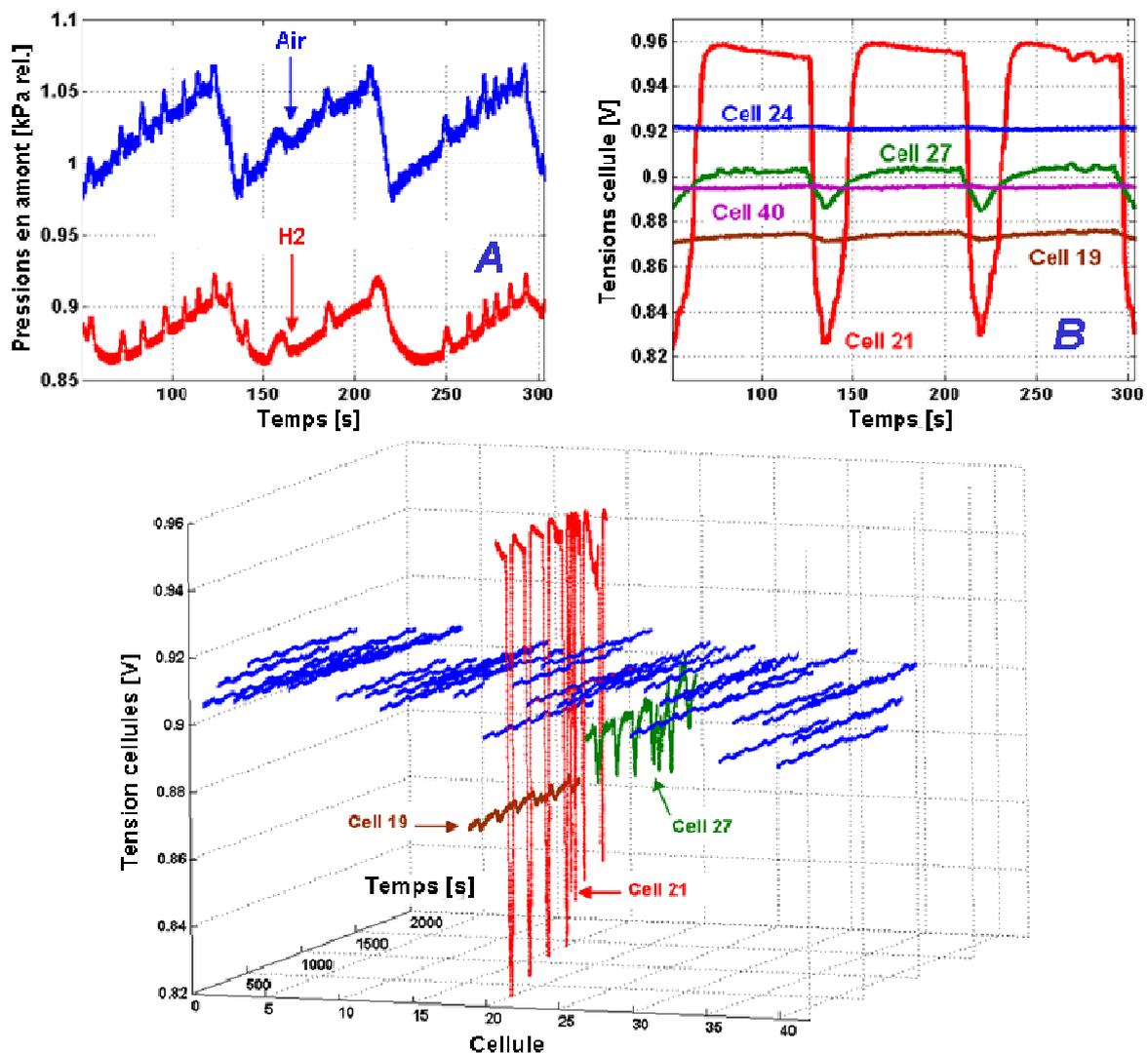


Figure VII.13 : Profil des pressions appliquées en entrée de la PAC et évolution des tensions de cellules de la pile 5 kW à courant de charge nul.

Les travaux ont été poursuivis d'abord lors du Master d'Issame Endichi, avec le développement de modèles simples permettant de retrouver par la simulation les relevés expérimentaux (Chapitre IV), puis dans le cadre de la thèse de Sébastien Wasterlain. Le test dit du « créneau de gaz réactif », permettant le suivi des OCV à l'abandon des tensions cellules et la localisation d'une cellule défaillante (Chapitre IV.3.1), a été appliqué à une PAC 20 cellules ne présentant pas des cellules aussi dégradées que la pile 3 cellules déjà investiguée. Quand une cellule de pile présente une inétanchéité

importante, la simple observation de l'évolution de sa tension à l'abandon lors de la réalisation dit du « créneau de gaz réactif » permet de détecter le défaut. C'est par exemple le cas pour la cellule 3 dans l'essai correspondant à la Figure IV.11 au Chapitre IV. Mais quand les fuites, les taux de perméation sont plus faibles, la localisation des cellules défaillantes devient plus difficile à réaliser. Les cellules ne présentent en effet pas des comportements aussi fortement disparates lors de l'application du « créneau de gaz réactif ». **Un outil statistique tel qu'une courbe de probabilité normale peut alors être mis à profit pour réaliser le diagnostic et aboutir à une discrimination des cellules les plus endommagées** (Figure VII.16) [Wasterlain Thèse 2010] [Tian IJHE 2010].

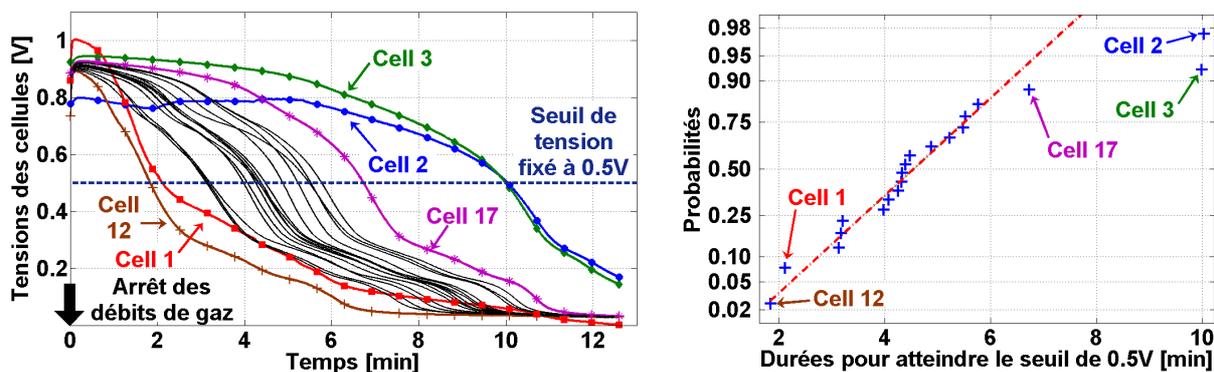


Figure VII.14 : Observation des tensions de cellules à l'abandon et courbe de probabilité normale établie à partir des durées mises par les cellules pour atteindre le seuil de 0.5 V [Tian IJHE 2010].

- Fuites anode – compartiment caloporteur

Des différents travaux précédents a ensuite été déduit un protocole d'essai original, à la portée pratique, permettant la localisation de cellules présentant des inétanchéités entre les compartiments anode – caloporteur. Une défaillance de ce type a été rencontrée en 2008 au FC LAB sur une pile PEM 20 cellules. La première alerte a été donnée par la présence de bulles de gaz dans le circuit d'eau lié au contrôle de la température de pile. Nous avons ensuite observé que les bulles, ainsi qu'une légère élévation du niveau d'eau dans le vase d'expansion du circuit caloporteur, se manifestaient suite à des variations du débit anode. Nous avons alors vérifié qu'il n'existait pas de fuite entre le circuit de refroidissement et l'extérieur (air ambiant), ni de traces d'eau sous les conduites du circuit caloporteur. Ce qui nous a conduits à penser que nous avions affaire à des bulles d'hydrogène ! Il nous fallait alors tenter de détecter l'emplacement de la fuite dans l'empilement. La surveillance des tensions cellules (OCV) toujours couplée à des variations du débit d'hydrogène nous a alors suggéré que la cellule 2 présentait une inétanchéité (Figure VII.15).

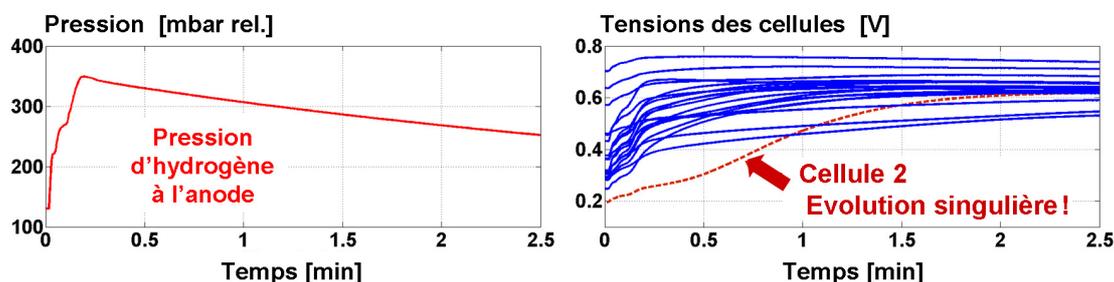


Figure VII.15 : Variation de la pression d'hydrogène à l'anode et évolution des tensions de cellules de la pile 20 cellules à courant de charge nul.

Pour s'assurer que la fuite se situait bien au niveau de la cellule 2, la démarche suivante a été adoptée. Le circuit caloporteur a d'abord été vidé de son liquide, puis pressurisé sous hydrogène. L'évolution des OCV des tensions cellules a ensuite été observée. Une élévation rapide de la tension de la cellule 2 s'est alors produite ! (Figure VII.16) [Tian IJHE 2010] [Candusso Présentation CNRS Janvier 2009].

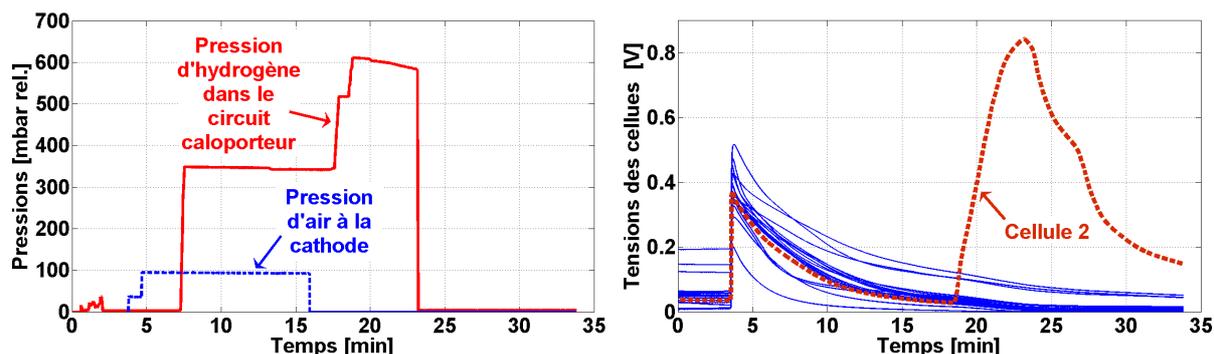


Figure VII.16 : Variation de la pression d’hydrogène à l’anode et évolution des tensions de cellules de la pile 20 cellules à courant de charge nul.

Si, pour déceler une telle fuite dans un empilement, la méthode consistant à vider puis à pressuriser le circuit caloporteur à l’hydrogène peut être mise en œuvre en laboratoire (Figure VII.16), elle semble naturellement peu adaptée aux applications embarquées. Dans ce dernier cas, on pourra plus facilement conserver l’alimentation en fluides traditionnelle de la pile, se contenter d’engendrer des variations de la pression anode et observer les OCV des tensions cellules (Figure VII.15). Leurs évolutions pourront au besoin être modélisées par une fonction multi-paramètres idoine (Equation VII.1) et les coefficients de cette dernière, associés à chacune des cellules, examinés au moyen d’une procédure statistique adaptée (Figure VII.17) [Tian IJHE 2010].

$$U_{cell} = a_1 + a_2 \cdot t + a_3 \cdot t^2 + a_4 \cdot t^3 + a_5 \cdot PH_2 + a_6 \cdot PH_2^2 + a_7 \cdot PH_2^3 + a_8 \cdot t \times PH_2 + a_9 \cdot t \times PH_2^2 + a_{10} \cdot t^2 \times PH_2 + a_{11} \cdot \ln(PH_2) + a_{12} \cdot t \times \ln(PH_2) \quad (VII.1)$$

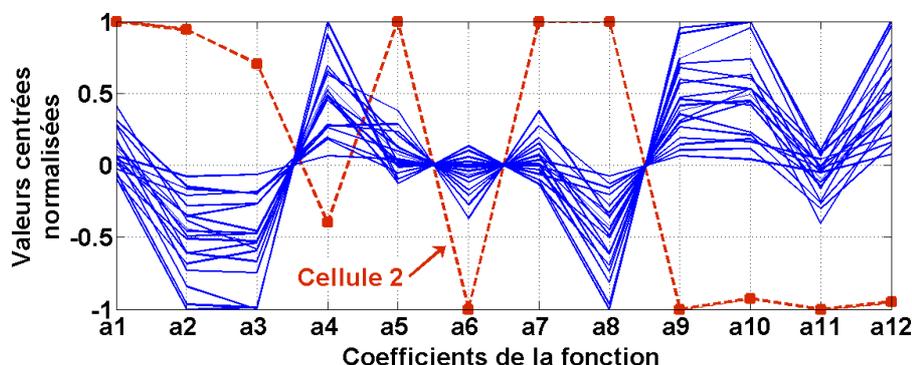


Figure VII.17 : Affichage des valeurs centrées réduites des coefficients de la fonction (VII.1) et mise en évidence de la singularité des valeurs relatives à la cellule 2 [Tian IJHE 2010].

VII.3.3 Apport des techniques de traitement du signal et de l’information au diagnostic des PAC

Dans le domaine des générateurs PAC, encore assez peu de travaux sont menés sur des méthodes de diagnostic faisant essentiellement intervenir des techniques de traitement du signal et de l’information. Cela peut s’expliquer par un degré de maturité technologique des PAC qui fait que les recherches se sont, à juste titre, prioritairement portées jusqu’à présent sur les aspects matériaux, composants et conception de pile. Les modélisations proposées ont souvent elles aussi été majoritairement pensées dans des optiques phénoménologiques et d’aide à la conception des empilements. Avec l’apparition progressive de générateurs PAC complets satisfaisant de mieux en mieux à des cahiers des charges réels, au moins pour les marchés de niches (« early markets »), les thématiques de recherches « plus systèmes » (contrôle-commande, automatique) prennent de l’essor. Les contraintes de durée de vie et

de fiabilité devenant aussi de plus en plus prégnantes, le sujet du diagnostic, forcément corollaire à ces enjeux, prend de l'importance.

L'approche du diagnostic à base de modèles analytiques reste difficile car la modélisation d'un générateur PAC est complexe et pas forcément compatible non plus avec des diagnostics en ligne. Hormis sur quelques sous-systèmes particuliers du générateur PAC, les diagnostics à base de règle (systèmes experts) apparaissent eux aussi assez difficilement utilisables. Une PAC entraîne en effet une multitude d'états de fonctionnement et il semble peu évident d'employer des variables binaires (de type « bon état » ou « hors service ») pour les qualifier. Dans ce contexte, un recours à des approches par reconnaissance des formes (dont le principe apparaît [Figure VII.12](#)) peut apparaître très approprié car celles-ci ne présupposent pas de structure de classe de fonctionnement. Elles impliquent en revanche un travail préalable conséquent sur les bases de données qui doivent être les plus vastes possibles, contenir des variables pertinentes issues d'indicateurs de l'état de santé performants et être bien étiquetées. De la qualité de ces bases de données dépendra l'aptitude à l'apprentissage de l'outil de diagnostic et par voie de conséquence, sa capacité à présenter un caractère générique [[Aknin HDR 2008](#)].

Les travaux sur le diagnostic par reconnaissance de forme ont été initiés à Belfort par Daniel Hissel [[Hissel IEEE TVT 2007](#)]. L'INRETS y a été associé en particulier dans le cadre des thèses de Nadia Steiner et Sébastien Wasterlain. Les collaborations se poursuivent actuellement avec l'INRETS Marne-la-Vallée et l'équipe de Patrice Aknin - Latifa Oukhellou (thèse de Raïssa Onanena [[Onanena Thèse](#)]).

Un exemple de diagnostic à base de reconnaissance de forme, réalisé dans un cadre bayésien, sera donné (travaux de thèse de Sébastien Wasterlain). Une synthèse d'autres travaux menés par Nadia Steiner sera ensuite proposée. Ces différentes recherches ont été réalisées dans le cadre du projet DIAPASON, présenté ci-suit.

VII.3.3.1 Résumé du projet DIAPASON

Le projet ANR DIAPASON (Méthodes de DIAgnostic pour Piles à combustible pour les applications Automobile et Stationnaire sans instrumentatiON) s'est déroulé de décembre 2006 à mai 2010. Les partenaires impliqués étaient le CEA, EDF-EIFER, FC LAB, Héliion et l'INRIA. Coordonné par EDF-EIFER, le programme a eu pour objectif de développer un outil de diagnostic de défauts liés aux PAC de type PEM en ayant recours à une instrumentation minimale (i.e. celle existant déjà au sein d'un générateur PAC) [[Rapport de clôture DIAPASON 2010](#)].

Après inventaire de différentes conditions opératoires potentiellement dégradantes, des défauts apparaissant les plus fréquemment dans une PAC PEM [[Steiner Thèse 2009](#)] [[Wasterlain Thèse 2010](#)], le projet s'est focalisé sur ceux associés à une mauvaise gestion de l'eau (assèchement, noyage) et à un empoisonnement au monoxyde de carbone. Sur ces bases, deux techniques de caractérisation de pile ont été privilégiées : la spectroscopie d'impédance électrochimique et la réponse en tension à des créneaux de courant. Dans ce but, un spectromètre haute tension, multi-cellules capable de mesurer des spectres d'impédances sur des stacks de puissances élevées (avec des tensions et des courants de pile allant jusqu'à 700 V et 450 A respectivement) a été développé par le FC LAB ([Chapitre IV](#)). Cet instrument permet l'acquisition simultanée des spectres du stack complet et d'une cellule individuelle (ou d'un groupe de cellules) logée au sein de l'empilement. Afin de constituer une base de données expérimentale suffisante pour développer, valider les modèles et s'assurer du caractère générique de l'algorithme de diagnostic développé, des stacks issus de trois fournisseurs différents (Héliion, CEA et 3M) ont été caractérisés par trois partenaires du projet (Héliion, FC LAB et EDF-EIFER) en conditions normales et défaillantes, selon les deux méthodes expérimentales choisies. Pour développer l'algorithme de diagnostic, deux approches complémentaires ont été choisies :

- la modélisation physique multi-échelles (aussi bien en temps qu'en espace) du stack, qui tient notamment compte de problèmes en rapport avec la diffusion des réactifs, avec la gestion de l'eau et de l'empoisonnement au CO dans la pile (une tâche INRIA essentiellement).
- la modélisation boîte noire, incluant deux démarches : [l'approche probabiliste par réseaux bayésiens \(VII.3.3.2\)](#) [[Wasterlain Thèse 2010](#)] et [les méthodes de classification par reconnaissance](#)

de formes (VII.3.3.3) [Steiner Thèse 2009]. Les deux stratégies de diagnostic élaborées ont permis de classifier avec une bonne précision les défauts observés sur les stacks investigués durant le projet. Finalement, un premier banc de mesures de tensions individuelles, basé sur des GMR (magnétorésistance géante), a été développé par le CEA. La carte d'acquisition a été interfacée avec succès grâce à une première version d'un algorithme de diagnostic reposant sur des modèles de type boîte noire développés par Nadia Steiner.

Il faut souligner que le projet DIAPASON a aussi été proposé dans le but de mettre en évidence et favoriser des synergies sur les spécifications techniques et fonctionnelles des applications transport et stationnaire (micro-cogénération) de manière à faire jouer au mieux la réduction des coûts des composants PAC en fonction du volume de production. La technologie PEMFC fonctionnant à basses températures (60 – 80°C) s'avère aujourd'hui plus adaptée aux applications stationnaires de faible et moyenne puissance. Le marché français des sites isolés est considéré comme un marché de niche avec un taux de renouvellement de 1000 sites par an alors que le marché de la micro-cogénération est déjà plus important sur la base d'un renouvellement annuel de 800 000 chaudières. On considère souvent que le déploiement des PAC sur le marché du stationnaire, considéré comme moins exigeant en termes de cahier des charges, permettra à la fois de valider les performances des PAC, de rassurer le marché et de créer des filières industrielles qui permettront de préparer le déploiement de cette technologie en vue des applications transport.

VII.3.3.2 Un exemple de travail : classification de conditions opératoires par une approche probabiliste

Un outil de diagnostic de PAC global, basé sur des enregistrements par Spectrométrie d'Impédance Electrochimique (SIE) et sur leur analyse par un Réseau Bayésien (RB), a été proposé par Sébastien Wasterlain dans le cadre de sa thèse et du projet DIAPASON [Wasterlain Thèse 2010] [Wasterlain VPPC 2010]. Il s'agissait d'analyser les données issues de spectres d'impédance relevés dans différentes conditions opératoires définies dans le cadre du projet DIAPASON par la méthode des plans d'expérience.

- Qu'est-ce qu'un réseau bayésien ?

Les RB doivent leur nom aux travaux de Thomas Bayes qui a vécu au XVIII^{ème} siècle et qui est l'auteur de la formule qui porte son nom. Néanmoins, ce n'est que beaucoup plus tard, dans les années 1990, que les RB passent du statut de technique faisant l'objet de recherche à celui de méthode aux applications concrètes. Aujourd'hui, les RB sont utilisés pour le diagnostic (médical et industriel), l'analyse de risques, la détection des « spams » et le « data mining ». Les RB sont basés sur des méthodes probabilistes et non pas déterministes. Ce la signifie que l'observation d'une cause ou de plusieurs causes n'entraîne pas systématiquement l'effet ou les effets qui en dépendent, mais modifie seulement la probabilité de les observer. Les RB sont à la fois des modèles de représentation des connaissances et des « machines à calculer » les probabilités conditionnelles. Les RB s'appuient sur des graphes traduisant par leurs nœuds les variables dans l'espace de représentation choisi et par leurs arcs, l'existence de liaisons de causalité directes entre ces variables (modélisation qualitative des connaissances) (Figure VII.).



Figure VII.18 : Exemple d'une relation causale [Naïm 2007].

Pour construire un RB, il faut établir le graphe du modèle et définir les tables de probabilité de chaque variable, conditionnellement à ses causes. La structure du modèle et ses paramètres peuvent être fournis par des experts, ou calculés à partir de données. Mais, le plus souvent, la structure est définie par un / des expert(s) et les paramètres sont issus de données expérimentales.

L'approche bayésienne est particulièrement adaptée aux domaines où l'incertitude, la décision et le raisonnement sont problématiques. Les RB permettent de tenir compte simultanément de connaissances a priori d'experts (contenue dans la structure du graphe) et de l'expérience issue des

Chapitre VII

données. Les RB ont le mérite de bien mettre en évidence la relation de causalité intégrale qui existe entre les variables. Ils permettent par ailleurs de travailler avec des bases de données parfois incomplètes (du fait de la présence de mesures aberrantes, de pannes de capteurs...). Enfin, un avantage de taille offert par les RB réside dans l'évolution possible du réseau et dans sa potentielle adaptation progressive à de nouvelles données d'apprentissage.

Les RB ne semblent néanmoins pas adaptés aux applications pour lesquelles les données expérimentales ne sont pas très fournies.

- Mise en œuvre d'un réseau bayésien

Dans les travaux de thèse de Sébastien Wasterlain, l'analyse par RB a été mise en œuvre suivant cinq étapes successives et au moyen du logiciel BayesiaLab [BayesiaLab 2010]. Les informations essentielles relatives à chacune de ces étapes sont données ci-dessous. Plus de détails sont disponibles dans le mémoire de thèse [Wasterlain Thèse 2010].

Etape 1) La sélection des variables par l'expert. Comme indiqué précédemment, une base de données a initialement été établie à partir d'un plan d'expérience consistant à relever des spectres d'impédance sur une PAC (de type PEM avec 20 cellules), pour une densité de courant de 0.5 A/cm² et dans différentes conditions de fonctionnement. Les spectres d'impédance sont des signatures électriques intéressantes à étudier car ils permettent une discrimination des différents processus physico-chimiques ayant des constantes de temps distinctes au sein d'une PAC. Décrite au Chapitre IV, la méthode des plans d'expériences permet d'organiser de manière rationnelle une campagne d'essai. Les essais réalisés pour deux humidités relatives à l'anode et à la cathode (HRA et HRC), facteurs de stœchiométrie (FSA et FSC), température de pile (T) sont récapitulés dans le Tableau VII. Durant chaque essai, une caractérisation de stack complet a été réalisée (un relevé de SIE sur chacune des 20 cellules avec simultanément, une mesure effectuée aux bornes de l'empilement complet). A noter que la mesure n'a pas toujours été possible et qu'à contrario, quelques enregistrements supplémentaires et redondants ont aussi été faits.

Tableau VII.5 : Plan fractionnaire établi à partir de cinq facteurs à deux niveaux (X : mesure réalisée. * : une ou des tension(s) de cellules étaient trop instable(s) ou trop faible(s) pour qu'un enregistrement par SIE soit réalisable) [Wasterlain Thèse 2010] [Wasterlain VPPC 2010].

Essai n°	HRA [%]	HRC [%]	FSA	FSC	T [°C]	SIE
1	35	35	1.8	2	80	*
2	35	35	1.8	3	60	*
3	35	35	3	2	60	X
4	35	35	3	3	80	*
5	35	75	1.8	2	60	X
6	35	75	1.8	3	80	X
7	35	75	3	2	80	X
8	35	75	3	3	60	X
9	75	35	1.8	2	60	X
10	75	35	1.8	3	80	*
11	75	35	3	2	80	X
12	75	35	3	3	60	*
13	75	75	1.8	2	80	X
14	75	75	1.8	3	60	X
15	75	75	3	2	60	X
16	75	75	3	3	80	X

Six points seulement sur chaque spectre d'impédance relevé aux bornes du stack investigué (parties réelles et imaginaires des points répartis à raison d'une fréquence par décade : 5 kHz, 500 Hz, 50 Hz, 5 Hz, 775 mHz, 50 mHz) ont été retenus pour l'analyse de façon à entrevoir une possible minimisation du temps d'acquisition et un diagnostic plus rapide (Figure VII.). Au total, 12 variables ont donc initialement été considérées.

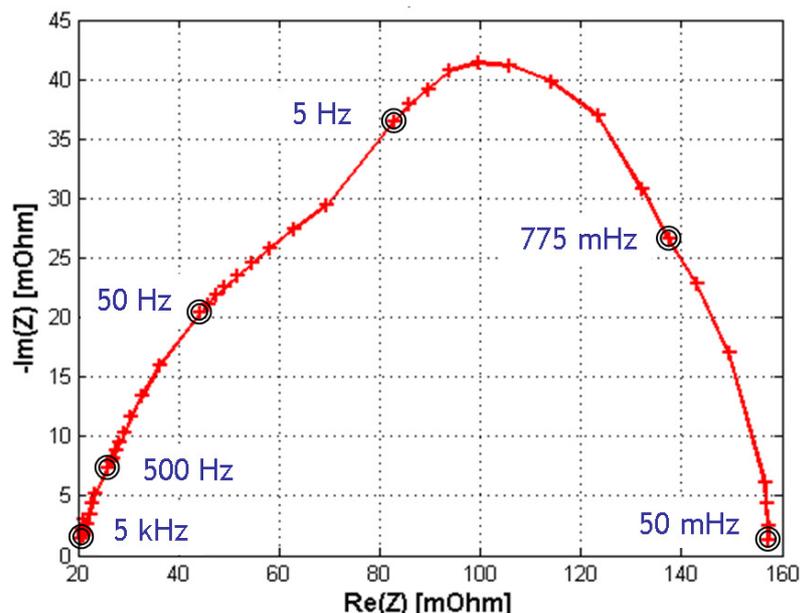


Figure VII.19 : Positionnement des variables d'entrées du RB sur un spectre d'impédance [Wasterlain Thèse 2010] [Wasterlain VPPC 2010].

Etape 2) La discrétisation des variables continues sélectionnées. Il s'agit d'une étape de prétraitement des données assez lourde mais nécessaire pour aboutir à une bonne performance du réseau (en termes de précision, de rapidité de calcul). Plusieurs méthodes ont été envisagées pour obtenir un **nouvel espace de représentation** (définition des « classes » et de leurs intervalles) : a) une méthode « manuelle » consistant à introduire la notion de « spectre d'impédance moyen » relatif à une expérience de référence, b) l'usage d'un algorithme de classification (« clustering ») non supervisé (K-means), c) la mise en œuvre d'une méthode de classification supervisée (arbre de segmentation).

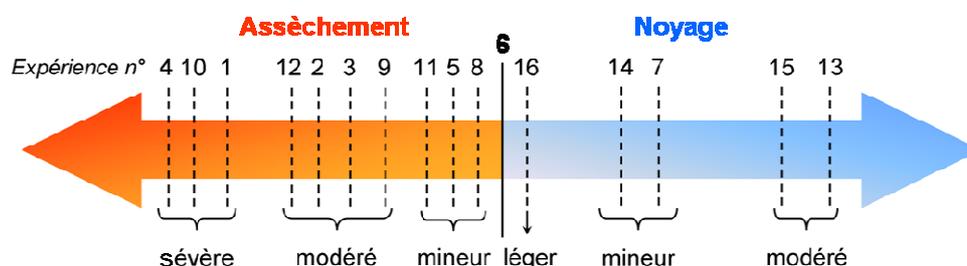


Figure VII.20 : Détermination des différentes classes de fonctionnement [Wasterlain Thèse 2010].

Etape 3) La vérification des données disponibles par l'expert. Il s'agit de s'assurer que les spectres obtenus lors des expériences contiennent bien les données nécessaires à l'analyse. Les données manquantes identifiées ont été précisées dans le **Tableau VII** et au final, l'analyse s'est appuyée sur 11 expériences (231 spectres + 52 spectres enregistrés en doublon).

Etape 4) La recherche de la structure maximale ou des paramètres maximaux. Suivant les données expérimentales disponibles (complètes, incomplètes) et les connaissances des experts, on peut rechercher soit la structure qui traduira au mieux les relations encodées dans la base de données (découverte d'association), soit les paramètres (poids) dans ces mêmes relations mais à partir d'une structure prédéfinie (estimation des probabilités, caractérisation du nœud cible). Cette étape ne nécessite pas forcément la connaissance d'un expert. Dans l'étude considérée, c'est la méthode de l'apprentissage des paramètres maximaux qui a été retenue. Parmi les structures existantes permettant la classification, la structure naïve de Bayes a été choisie pour sa plus grande simplicité (**Figure VII**). Ce classifieur, utilisé depuis longtemps en reconnaissance des formes statistiques, dispose d'un réseau

bayésien à architecture contrainte dans laquelle le nœud cible (défaut) est le père de tous les autres nœuds et où toutes les variables sont discrètes. Cette structure stipule donc que la variable cible est la cause directe de toutes les autres variables et que la connaissance de sa valeur rend chaque nœud indépendant des autres.

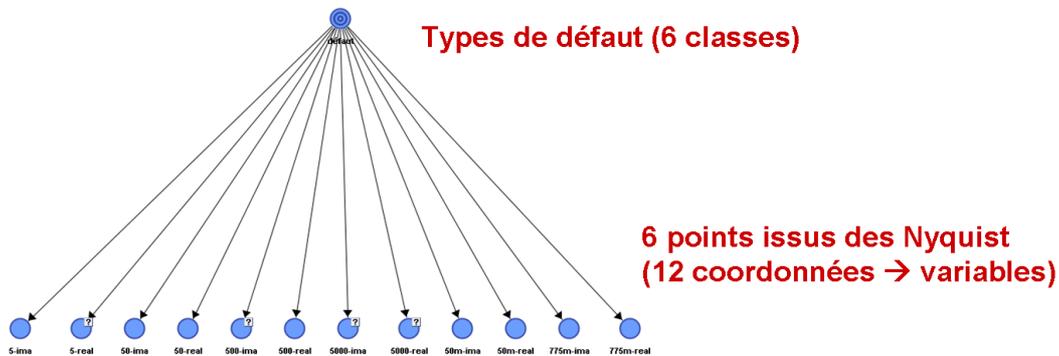


Figure VII.21 : Réseau bayésien naïf classique adopté dans l'étude [Wasterlain Thèse 2010].

Etape 5) L'optimisation du RB constitué. Lorsque le RB est construit, il est encore possible de modifier sa structure pour la simplifier, la rendre plus pertinente, pour éliminer des éventuelles incohérences physiques entre certaines variables qui seraient apparues lors de la création du RB. Comme pour toute optimisation, il est préférable que ce soit un expert qui réalise cette étape. Ici, afin de minimiser les mauvaises classifications, il a été décidé dans cette étude d'écarter les mesures à certaines fréquences (5 kHz, 50 mHz) jugées trop perturbées ou trop peu sensibles aux conditions opératoires. Ecarter les mesures à 50 mHz permettait aussi d'envisager à terme un diagnostic à la durée plus courte.

- Evaluation des performances du classifieur bayésien développé et résultats

Les travaux menés ont conduit à quelques remarques préliminaires :

- La taille de la base de données d'apprentissage joue un rôle important. Elle ne doit pas être trop restreinte sous peine d'aboutir à une très mauvaise précision, ni trop grande pour préserver une base de tests. Consacrer 75% de la base de données à l'apprentissage apparaît ici comme un bon compromis.
- La méthode de discrétisation des variables continues joue également un rôle. Même si les méthodes automatiques apparaissent comme les plus performantes (meilleurs taux de classification), la discrétisation manuelle s'avère tout à fait possible.
- La qualité des données expérimentales peut aussi impacter la précision obtenue. Retirer les mesures à 5 kHz et 50 mHz, précédemment jugées peu pertinentes, a permis d'améliorer très sensiblement la précision.
- La suppression de variables jugées pas ou peu importantes permet aussi de gagner en précision.

Pour estimer les performances de notre RB, le classifieur a été soumis à une base de test comprenant 68 échantillons issus de la base de données entière (six échantillons correspondant à un fonctionnement normal, dix échantillons liés à un assèchement modéré, vingt-sept échantillons en assèchement mineur, cinq en noyage léger, dix en noyage mineur et dix en noyage modéré). Le taux de bonne détection / classification obtenu sur la base de test a atteint 98,53% (67 des 68 échantillons considérés ont été correctement classés). Un échantillon sensé correspondre à un assèchement modéré a été mal classé, i.e. détecté comme appartenant à la classe des noyages modérés (Tableau VII).

Chapitre VII

Tableau VII.6 : Précision globale et matrice de confusion obtenues pour le réseau bayésien « optimal » (résultat issu de l'utilisation du logiciel BayesiaLab) [Wasterlain Thèse 2010].

Cible : défaut						
Précision globale : 98,53%						
Occurrences						
Valeur	Normal (6)	Assèchement modéré (10)	Assèchement mineur(27)	Noyage léger (5)	Noyage mineur (10)	Noyage modéré (10)
Normal (6)	6	0	0	0	0	0
Assèchement modéré (9)	0	9	0	0	0	0
Assèchement mineur(27)	0	0	27	0	0	0
Noyage léger (5)	0	0	0	5	0	0
Noyage mineur (10)	0	0	0	0	10	0
Noyage modéré (11)	0	1	0	0	0	10
Fiabilité						
Valeur	Normal (6)	Assèchement modéré (10)	Assèchement mineur(27)	Noyage léger (5)	Noyage mineur (10)	Noyage modéré (10)
Normal (6)	100%	0%	0%	0%	0%	0%
Assèchement modéré (9)	0%	100%	0%	0%	0%	0%
Assèchement mineur(27)	0%	0%	100%	0%	0%	0%
Noyage léger (5)	0%	0%	0%	100%	0%	0%
Noyage mineur (10)	0%	0%	0%	0%	100%	0%
Noyage modéré (11)	0%	9,09%	0%	0%	0%	90,91%
Précision						
Valeur	Normal (6)	Assèchement modéré (10)	Assèchement mineur(27)	Noyage léger (5)	Noyage mineur (10)	Noyage modéré (10)
Normal (6)	100%	0%	0%	0%	0%	0%
Assèchement modéré (9)	0%	90%	0%	0%	0%	0%
Assèchement mineur(27)	0%	0%	100%	0%	0%	0%
Noyage léger (5)	0%	0%	0%	100%	0%	0%
Noyage mineur (10)	0%	0%	0%	0%	100%	0%
Noyage modéré (11)	0%	10%	0%	0%	0%	100%

L'outil de diagnostic proposé, basé sur des mesures d'impédance et l'utilisation d'un réseau bayésien, apparaît donc particulièrement efficace pour déterminer le mode de fonctionnement d'une PAC. Si le classifieur développé ici ne peut pas s'appliquer directement à d'autres PAC (autres technologies de PAC, autres modes d'alimentation en réactifs, performances sensiblement différentes...), l'approche globale devrait néanmoins pouvoir être reconduite pour assurer le diagnostic d'une autre pile. Pour vérifier la portabilité de l'outil, il suffira alors de réaliser un nouvel apprentissage ou peut-être plus simplement, de réajuster les relations causales entre les variables suivant l'importance des hétérogénéités relevées dans le comportement de la nouvelle PAC étudiée.

VII.3.3.3 Evaluation de différentes stratégies visant à la classification des états de fonctionnement d'une PAC

Dans ses travaux de thèse, Nadia Steiner a entrepris de mettre au point un outil de diagnostic de l'état de santé d'une PAC de type PEM à partir de signatures électriques dynamiques : réponse temporelle à des créneaux de courant et réponse fréquentielle (spectre d'impédance). Ces travaux ont été décrits dans le chapitre 4 – Partie 2 de la thèse [Steiner Thèse 2009]. La démarche retenue correspond à celle de la reconnaissance de forme présentée plus haut (Paragraphe VII.3.1.4 et Figure VII.12). Des informations sur les différentes méthodes de traitement de l'information utilisées (réduction de dimensionnalité, classification) peuvent également être trouvées au Chapitre 2 de cette même thèse.

- But du diagnostic

Il s'agissait d'établir, à partir de réponses dynamiques électriques, un diagnostic des états de santé de la PAC liés à la problématique de la gestion de l'eau (i.e. du noyage à l'assèchement) et à l'empoisonnement par le monoxyde de carbone. De nombreuses stratégies de traitement de l'information ont été envisagées dans le cadre d'une approche par reconnaissance de forme, à la fois pour établir un choix des variables à considérer, pour réduire la dimension de l'espace de représentation défini par ces variables et pour effectuer la classification proprement dite.

- Type de mesures

Les signaux choisis sont la tension et le courant de PAC (réponses en tension à des créneaux de courant et spectres d'impédance).

- Description des signaux / extraction de caractéristiques

Deux voies différentes ont été considérées :

- une approche heuristique basée sur l'observation de signaux et suivie de la définition de « formes types » et de « vecteurs de formes » liés d'une part à la réponse temporelle dynamique de la PAC (créneaux de courant) et d'autre part à la réponse fréquentielle de l'empilement (spectres d'impédance),

- une approche basée soit sur des modèles issus du calcul d'une fonction de transfert liée à la réponse temporelle de la PAC, soit sur l'utilisation d'un modèle électrique équivalent en rapport avec la signature fréquentielle de la pile.

A la fin de cette étape, les différentes données disponibles ont été fusionnées au sein de deux matrices : l'une étant liée à la réponse temporelle et l'autre à la réponse fréquentielle.

- Réduction de dimensionnalité

Les variables prises en compte définissant un espace de représentation de trop grande taille, différentes méthodes ont été déployées dans l'objectif de réduire la dimension de l'espace de représentation :

- l'optimisation de l'espace de représentation a ainsi pu être réalisée en construisant un nouvel espace de représentation réduit, à l'aide de combinaisons linéaires des paramètres de départ. L'Analyse en Composantes Principales (ACP) a été mise en œuvre pour cela.

- la méthode de sélection par le calcul du critère de Fisher a également été utilisée. Elle permet d'ordonner les paramètres selon leur capacité à séparer les classes entre elles. Chaque classe est alors séparée tour à tour de toutes les autres (considérées à chaque fois comme représentant une classe unique). Plus le critère de Fisher est élevé, plus les sous-ensembles correspondant aux classes sont compacts et leurs centres de gravité éloignés. Par conséquent, meilleure est la qualité de la séparation.

- des méthodes de recherche séquentielle de sous-ensembles (SFS et SBS) ont aussi été testées [Steiner Thèse 2009].

- Classifications

Sept classes d'états de fonctionnement de la PAC ont été considérées : l'état normal, cinq états de fonctionnement en défauts (assèchement anodique, assèchement cathodique, noyage anodique, noyage cathodique, empoisonnement), un état de « récupération » des performances de la PAC faisant suite à l'un de ces cinq défauts et considéré comme un état intermédiaire. Les six premières classes permettent de caractériser un défaut et de le localiser (à l'anode ou à la cathode) tandis que la définition de la dernière classe doit permettre une détection anticipée des défauts, pour envisager rapidement des actions correctives.

L'approche adoptée ici : la fusion de sous-classifieurs indépendants

Pour la stratégie 1 parmi K, la classification d'une observation donnée fait opérer les 7 sous-classifieurs (dédiés chacun à la séparation d'une classe des autres) en parallèle, indépendamment l'un de l'autre. Chaque observation est donc ainsi traitée par les différents sous-classifieurs. Ensuite, un algorithme de fusion calcule sa probabilité d'appartenance à une classe en fonction des résultats obtenus avec chacun des classifieurs.

Dans cette étude, différents classifieurs ont été envisagés :

- la règle des k plus proches voisins (kppv),
- les Réseaux de neurones / perceptrons (avec les approches « 1 parmi K » et « multiclassés »),
- les Machines à Vecteurs Supports (SVM).

- Avantages / inconvénients des méthodes investiguées

Les limitations et atouts des différentes méthodes envisagées dans le cadre de ce travail de diagnostic basé sur l'approche par reconnaissance de forme ont été discutés dans [Steiner Thèse 2009]. Au final, de bons résultats de classification des états de fonctionnement de la PAC ont été obtenus. La qualité des résultats a été estimée par une méthode de validation croisée de type « leave one out » adaptée aux bases d'apprentissage de faibles dimensions. Appliqués aux données considérées, les kppv et les SVM

se sont avérés être les meilleurs classifieurs, les plus robustes vis-à-vis des paramètres considérés. La relative insensibilité des SVM à la réduction de dimensionnalité a aussi été observée.

Il aussi est apparu au cours de ce travail que la généralisation de la méthode envisagée restait grandement dépendante de la qualité des signaux utilisés et du pouvoir discriminant des caractéristiques extraites.

Il est important de noter que d'autres travaux ont encore été réalisés par Nadia Steiner dans ce même esprit de la reconnaissance de forme, mais avec une variante « originale » au niveau de l'étape de la description des signaux (Chapitre 5 du mémoire de thèse [Steiner Thèse 2009]). **L'évolution de la tension de pile a en effet pu être décrite à l'aide de transformées en ondelettes discrètes et paquets d'ondelettes** [Steiner IJHE 2011] [Steiner Brevet 2009].

VII.4 Solutions autorisant des fonctionnements de PAC en mode dégradé

VII.4.1 Couplages de PAC et dispositifs de « by-pass » électroniques

Les recherches menées dans le même temps sur les matériaux et les composants de piles, sur la conception optimisée des empilements et des générateurs PAC, sur les procédures de supervision, de diagnostic et de maintenance préventive doivent aboutir à terme à des fonctionnements plus fiables et à des durées de vie correspondant mieux aux cahiers des charges des applications visées.

Pour autant, et en complément de toutes ces recherches visant à une amélioration de la fiabilité et de la durée de vie des PAC que l'on pourrait qualifier d'« intrinsèque », il est aussi d'ores et déjà possible d'imaginer des **solutions autorisant des fonctionnements en mode dégradé**, voire **une continuité de service** au niveau des générateurs PAC embarqués. Cette problématique de recherche répond d'ailleurs clairement à des enjeux très importants dans le domaine des transports où une haute disponibilité de service est requise au niveau des systèmes utilisés. Dans cette perspective, **l'association de piles, le couplage de générateurs PAC, la mise en commun de certains organes auxiliaires au profit de plusieurs stacks** peuvent apporter des solutions et offrir une redondance au niveau du système global (Chapitre III). Le couplage de PACs doit dans ce cas être envisagé aux niveaux fluide et électrique (via une électronique de puissance adaptée). Le banc de la plateforme de Belfort, dit « bi-piles » et développé initialement dans le cadre de la thèse de James Garnier [Garnier Thèse 2006], constitue potentiellement une bonne illustration de travaux de recherche visant à définir des architectures et des contrôles possibles en vue d'un couplage de deux PAC (Chapitre IV). Dans ce même contexte, des travaux principalement expérimentaux ont aussi été menés sur la plateforme belfortaine pour étudier les possibilités offertes par l'association stack - diode de puissance montée en anti-parallèle. Une pile PEM dotée de deux cellules a ainsi été placée en série électriquement avec une alimentation de tension continue, simulant la présence d'un second stack (ou d'un autre générateur électrochimique comme une batterie). Des scénarios relatifs à l'arrêt du stack endommagé ont été imaginés. Les conditions de la mise en conduction de la diode en anti-parallèle et l'influence de cette électronique sur le comportement physique de la pile (exemple : dans le cas des sous-stœchiométries occasionnées, « starvation ») ont été étudiées, notamment par le recours à la technique de l'impédancemétrie [Candusso ECM n°49 2008]. Un exemple de schéma électrique considéré dans cette étude ainsi que des formes d'ondes liées à cette même topologie sont données **Figures VII.22 et V.23**. L'expérience a consisté ici à générer volontairement un défaut au niveau de la pile (arrêt des débits de réactifs), à commander l'ouverture du contacteur en série avec la PAC sur un seuil de tension défaut (tension de cellule à 380 mV) et à observer la dérivation du courant issu du second générateur sain (source de tension 5 V) par la diode en anti-parallèle [Candusso ECM n°49 2008]. Les différentes évolutions des grandeurs électriques et fluidiques principales ont pu être retrouvées et expliquées en proposant à nouveau un modèle relativement simple essentiellement basé sur une analogie électricité – fluide, comparable à celui présenté au Chapitre IV. Les résultats de ces travaux ont ensuite été étendus au cas d'empilements plus conséquents (avec l'expérimentation d'une pile dotée de 20 cellules) [De Bernardinis ECM 2010].

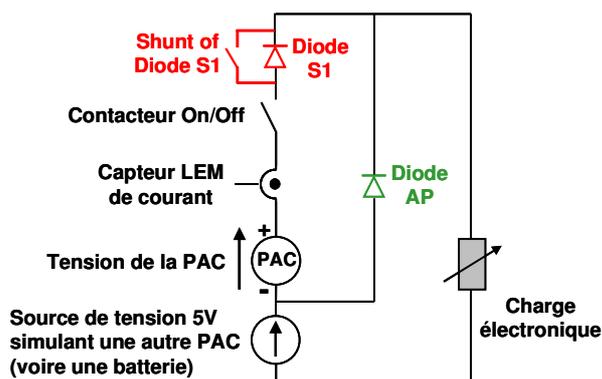


Figure VII.22 : Schéma électrique retenu pour l'étude portant sur l'association de stacks et sur l'intérêt d'une diode de puissance montée en anti-parallèle (AP) par rapport à la PAC.

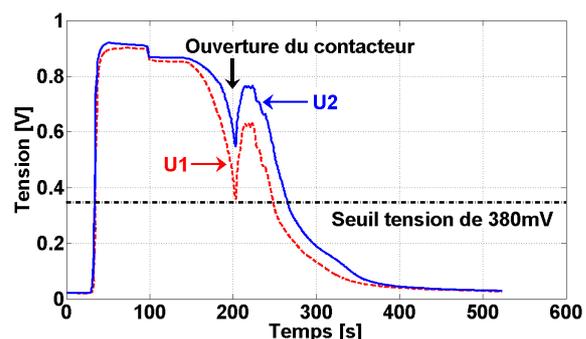
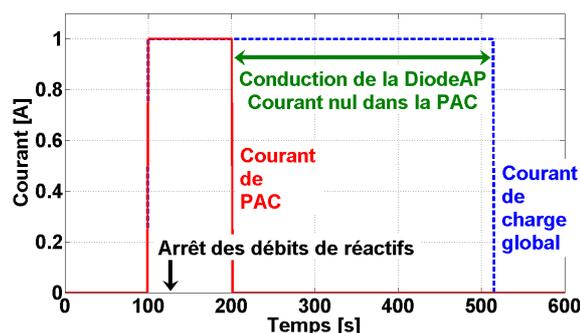
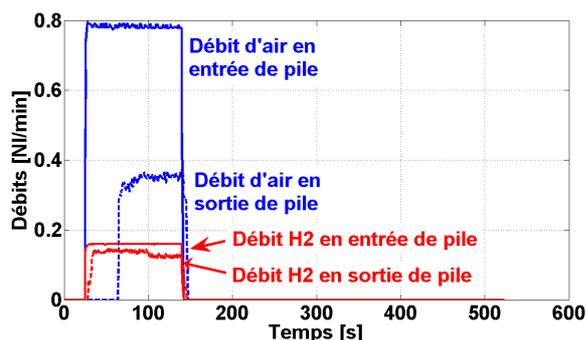


Figure VII.23 : Formes d'ondes générées à partir de la topologie électrique précédente. Scénario consistant à déclencher l'ouverture du contacteur en série avec la PAC sur un seuil de tension cellule en défaut occasionné par l'arrêt des débits de réactifs [Candusso ECM n°49 2008].

VII.4.2 Procédures d'arrêt sur défaut et dispositifs de « by-pass » électroniques

Pierre Coddet, dans le cadre de son Master Recherche et Professionnel PROTEE au FC LAB (de mars à juillet 2006), a également travaillé sur cette problématique en menant des recherches à caractère exploratoire [Coddet Master 2006] [Coddet ISIE 2007]. L'objectif initial de son stage était d'établir **des stratégies d'arrêt sur incident susceptibles d'assurer la sauvegarde du stack et d'éviter des dégradations irréversibles**. Les travaux menés concernaient également l'étude d'un système de génération d'énergie composé de plusieurs piles PEM. Ce type de dispositif électrochimique convertit en continu l'énergie issue de la réaction chimique combustible - comburant en énergies électrique et thermique. Les réactifs sont renouvelés et les produits évacués en permanence, ce qui signifie qu'il y a production d'énergie électrique aussi longtemps que le système est convenablement alimenté. Dans un tel système de génération d'énergie, et en cas d'apparition d'un problème au niveau de l'une des piles, il est nécessaire d'éliminer ou de diminuer le risque de réaction vigoureuse entre l'hydrogène restant dans le circuit anodique et l'oxygène afin d'assurer un niveau de sécurité maximal. Le rapport de Master recense d'abord les principaux problèmes pouvant entraîner un défaut de fonctionnement au niveau du système et propose un moyen permettant d'assurer une continuité de service du générateur. Dans le contexte d'un système basé sur l'association de PACs, l'apparition d'un problème au niveau de l'une des cellules de l'un des stacks nécessite de mettre en œuvre un moyen permettant de préserver l'intégrité du système et d'assurer un niveau de sécurité maximal. L'analyse des solutions proposées dans la littérature a fait ressortir l'intérêt potentiel du principe proposé par Sadamoto et al. [United States Patent 20040247964] consistant à « by-passer » de manière adaptée (par l'intermédiaire d'un

Chapitre VII

transistor MOS) les cellules défaillantes du stack afin d'assurer la continuité de service du système. Ce principe assurant un fonctionnement en mode dégradé a donc fait l'objet d'une modélisation réalisée à l'aide du logiciel SABER (modélisation électrique de la pile et fluide via une analogie électricité – fluide, modélisation du circuit électronique assurant le court-circuit et la surveillance). Le modèle généré a permis de montrer que la réalisation d'un court-circuit par le système de détection commandant un MOS de puissance engendrait l'apparition d'un pic de courant susceptible de provoquer des dommages irréversibles à la pile. Un scénario d'arrêt a donc été proposé en complément. Il consiste à réaliser un arrêt d'urgence en deux étapes : dans un premier temps, une décharge du potentiel de réaction est effectuée par l'arrêt de la fourniture en gaz réactifs et dans un second temps, le court-circuit des cellules défaillantes est obtenu par l'utilisation d'un transistor MOS de puissance. La modélisation proposée a donné des premiers résultats de simulation intéressants. Elle a aussi permis de soulever un certain nombre de questions vis-à-vis du comportement physique des piles dans des conditions de fonctionnement particulières liées à la mise en œuvre d'une électronique de puissance (problématiques de la dégradation et de la sûreté). Ainsi, le niveau de tension bas aux bornes d'une cellule de pile permettant d'assurer un niveau de sécurité suffisant doit-il être déterminé de manière plus précise et en fonction de l'application prévue. Des améliorations au niveau de la commande (pour une remise en route automatique du système suite à une action « réparatrice » au niveau des fluides) et du système de détection (au niveau des cellules) pourraient également être réalisées lors d'une mise en œuvre pratique du système de protection et plus généralement de la stratégie de sauvegarde proposée.

VII.4.3 Intégration d'une électronique dans les PAC. Concepts

Dans la lignée des expériences réalisées avec la diode en anti-parallèle, est née l'idée d'intégrer des composants d'électronique de puissance dans, sinon au plus proche, des stacks PEM, toujours avec le même objectif principal : augmenter la disponibilité de fonctionnement et la fiabilité de PAC. Des solutions ont été imaginées d'une part en vue d'obtenir une **continuité de service des empilements même en présence de cellules défaillantes**, d'autre part dans le but d'**aboutir à des répartitions de densités de courant plus homogènes sur les surfaces des électrodes**. La possibilité d'introduire des mini-actionneurs obturant les canaux d'entrées des cellules défaillantes est aussi été envisagée avec le laboratoire M3M de l'UTBM [Noguer Thèse].

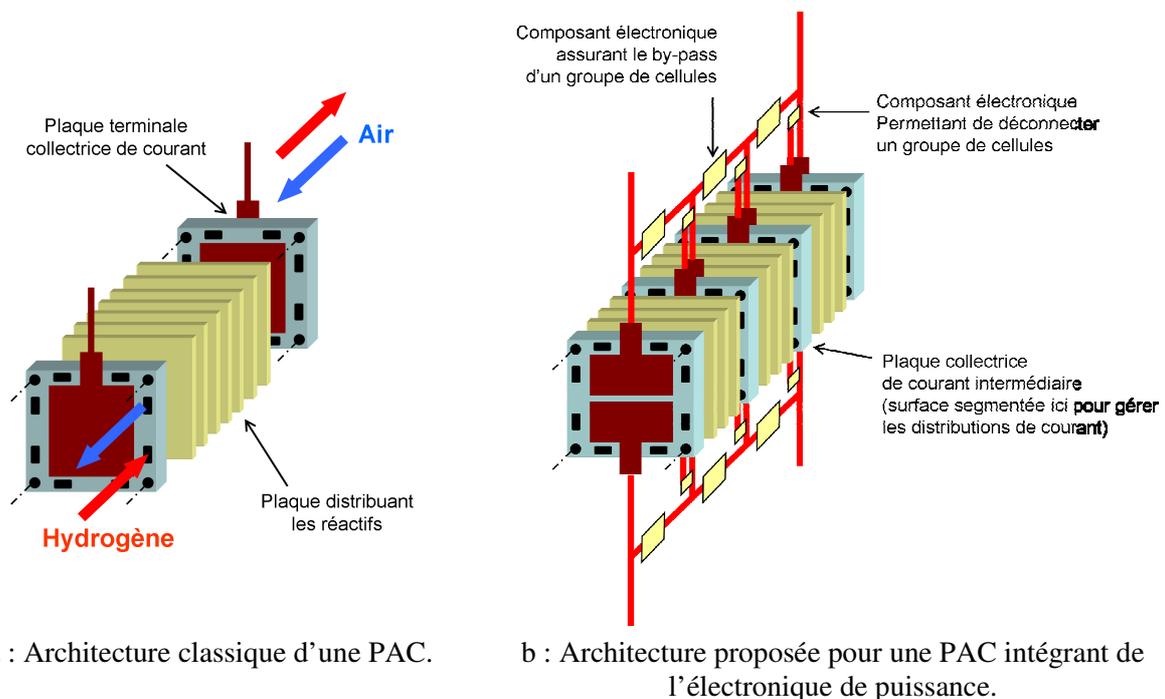


Figure VII.24 : Concept de PAC électronique (e-fuel cell !). Schémas issus d'un document scientifique proposé à l'appel à projet ANR JCJC 2008.

VII.5 Conclusions et perspectives

Un déploiement commercial plus large des générateurs PAC n'est envisageable que si des progrès significatifs peuvent être enregistrés sur les stacks en termes de durée de vie et de fiabilité. Dans ces domaines, les performances des systèmes PAC expérimentés à Belfort n'apparaissent en effet pas (ou pas systématiquement) à la hauteur des critères requis pour les applications concernées, qu'elles soient de type stationnaire ou transport. En régime stabilisé, dans des conditions opératoires très bien contrôlées, la durée de fonctionnement d'une voire de quelques cellules de PAC de type PEM peut sans doute atteindre plusieurs milliers d'heures. En conditions d'usage réel, cette durée est communément appelée à être divisée par plusieurs facteurs. Ce sont les phases transitoires, les arrêts - démarrages, des alimentations en réactifs pollués, et aussi les incidents « systèmes » qui sont en bonne partie responsables de cet écart notable. **La durée de vie des PAC apparaît donc comme un point central à étudier en amont. A coupler d'une part avec la mise au point de stratégies de supervision et diagnostic efficaces (ex : travaux réalisés dans le cadre du projet ANR DIAPASON), et d'autre part avec des analyses de sûreté de fonctionnement de générateurs PAC pré-industriels (ex : participation à des démarches de type AMDEC - Analyse des Modes de Défaillance, de leurs Effets et de leur Criticité - dans le cadre du projet F-City H2, évoquées dans le Chapitre I, paragraphe I.5.6).**

Une synthèse des différents types de dégradations rencontrés dans des PAC de type PEM a été proposée au début de ce chapitre. Dans un contexte de recherche, il paraît bien sûr nécessaire d'accéder progressivement à de meilleures connaissances et compréhensions des mécanismes de dégradation, des phénomènes physiques entraînant des défauts et des défaillances. Cette phase importante des travaux passe à la fois par une collecte d'un ensemble de connaissance a priori (études bibliographiques) et par des expérimentations en endurance de PAC (avec à la fois d'une part des essais « longue durée » réalisés dans des conditions d'usage pour l'évaluation d'une technologie et d'autre part des tests ciblés sur un phénomène physique lié à un contexte opératoire particulier dans une approche plus phénoménologique). **La mise en place de moyens d'essais et de caractérisation performants et fiables, la mise au point de protocoles expérimentaux dédiés, la définition d'indicateurs de défaillances, de signatures électrochimiques, la réalisation d'analyses ante-experimentum et post-mortem des matériaux et composants de pile menant au diagnostic des états de santé des PAC en constituent les principaux jalons.** Dans ce contexte, ce sont sans conteste les « analyses matériaux » (techniques de microscopies, de visualisation, analyses chimiques, etc) à mener autour de la durée de vie et du diagnostic des générateurs PAC qui mériteraient d'être mieux intégrées à nos recherches sur la plateforme de Belfort, via des collaboration avec des laboratoires, des organismes de recherche compétents dans le domaine. La mise au point de protocoles de tests accélérés est un autre sujet d'étude sur lequel il nous reste beaucoup à faire, tant d'un point de vue pratique (mise en place des moyens d'essais ad-hoc) que théorique (appréhension des outils méthodologiques, statistiques notamment, liés aux problèmes des vieillissements accélérés).

En plus des évaluations des performances de PAC en durée de vie, des recherches menées à caractère / visée phénoménologique et dans la perspective d'un débouché applicatif, il apparaît aussi important de penser à élaborer des stratégies de surveillance des systèmes PAC si l'on veut améliorer leur fiabilité, leur disponibilité, leur durée de vie et par là-même aussi, diminuer les coûts. La particularité des générateurs PAC destinés aux applications embarquées nous a conduit à privilégier des équipements de contrôle non-destructeurs, des outils de diagnostic ne nécessitant qu'une instrumentation non intrusive, minimale et simple à mettre en place (telles que des mesures de courant, de tensions, voire de pertes de charge par pressostat) ; les outils de diagnostic à proposer doivent en outre présenter si possible un caractère générique par rapport aux autres types d'applications possibles (stationnaires, réseaux intelligents / « smart grids »). Sur cette base, l'éventail des méthodes de diagnostic disponibles apparaît néanmoins encore très varié, à l'image des disciplines et des communautés de chercheurs, d'ingénieurs qui les proposent. Deux types de méthodes de diagnostic ont été investiguées avec pour finalité la supervision du générateur PAC : d'une part celles basées sur l'utilisation de modèles analytiques de type boîte noire / boîte grise (souvent plus simples et plus compatibles avec des applications temps réel potentielles que les modèles de connaissance), et d'autre part celles qui

reposent sur les principes de la reconnaissance de forme (« Pattern classification »). Différents exemples de travaux ont été évoqués dans ce chapitre mais l'accent a été mis sur le second type de méthode (la reconnaissance de forme) et sur les différentes étapes qu'elle comporte : le prélèvement d'information, la mise au point de descripteurs et d'espaces de représentation adéquats, la classification des défaillances ou états de fonctionnement de la PAC. Dans la tâche du traitement de l'information issue des générateurs PAC, les enjeux à prendre en compte sont principalement : la localisation des défauts dans les stacks (un problème multi-composants et multi-défauts), la mise en évidence des effets et des causes des mécanismes de dégradation (classification des défauts), l'évaluation de la sensibilité des diagnostics aux conditions de fonctionnement et à leurs variations, en vue de l'élaboration de stratégies de contrôle (diagnostic embarqué lié au système de régulation) et de diagnostic différé, lors d'opération de maintenance des stacks. L'avantage le plus évident de l'approche basée sur la reconnaissance de forme réside dans le fait qu'elle permet de s'affranchir d'une modélisation, potentiellement complexe, du fonctionnement de la PAC. Sa mise en œuvre dans un cadre supervisé (classes / types de défauts, d'états de fonctionnement connus, définis à l'avance), repose néanmoins sur un solide retour d'expérience et sur des bases de données expérimentales, décrivant l'état de fonctionnement « normal » ainsi que les défauts à diagnostiquer, qui doivent être aussi vastes que possible, contenir des variables pertinentes et être bien étiquetées. De ce fait, certaines difficultés liées à la constitution de ces bases peuvent être rencontrées : coût engendré par la réalisation des campagnes expérimentales, mauvaise connaissance des signatures des défauts et difficulté à généraliser les algorithmes de diagnostic entre stacks d'un même fabricant (en particulier, en cas de changement d'échelle), a fortiori issus de différents fabricants.

Les futurs travaux à mener, en collaboration avec des chercheurs travaillant dans le champ des Sciences et Technologies de l'Information et de la Communication (STIC), doivent permettre de proposer des approches intégrées de diagnostic en s'appuyant sur les champs de l'analyse de données, de l'apprentissage et des tests statistiques pour le suivi temporel. Des travaux ont déjà été initiés dans cette optique avec l'ex-équipe Diagnostic du LTN (intégrée aujourd'hui à l'IFSTTAR GRETTIA) qui effectue par ailleurs ses recherches sur l'utilisation d'outils d'analyse de données et d'apprentissage à des fins de diagnostic de composants utilisés dans les systèmes de transport. Ces travaux sont menés dans le cadre de la thèse de Raïssa Onanena [Onanena Thèse]. L'idée est d'abord de proposer des outils permettant une estimation de la durée de fonctionnement, des modèles paramétrés de vieillissement en vue à la fois du diagnostic différé (« off line ») et du diagnostic embarqué (« on line ») [Onanena IJHE 2010]. On peut en effet estimer que la contrainte de la durée de vie pourrait être atténuée si l'on optait pour des procédures de maintenance préventive qui permettraient de prédire des défaillances suffisamment en amont de la panne et pouvoir ainsi changer certains organes sensibles du système PAC. Dans un premier temps, des essais en endurance avaient été réalisés sur des cycles de fonctionnement représentatifs de l'application transport, dans des conditions normales et dégradantes. Des identifications statique et dynamique des paramètres de la PAC avaient été réalisées au moyen de méthodes expérimentales adaptées, en particulier dans le domaine fréquentiel grâce à la spectroscopie d'impédance. Le suivi de l'évolution de certains paramètres de fonctionnement, issus des signatures fréquentielles des stacks, en fonction des conditions opératoires est apparu constituer un point d'entrée très intéressant pour la mise au point des stratégies de diagnostic innovantes (intégrant la mise en place de gabarits et d'indicateurs, couplés à la définition de seuils). Les travaux de Raïssa Onanena trouvent actuellement un prolongement dans la thèse de doctorat entreprise par Idriss Rabaoui [Rabaoui Thèse].

En corolaire aux actions de diagnostic, ce sont les architectures à tolérance de panne et la problématique des protocoles d'arrêt sur défaut qui doivent faire l'objet de travaux. Ces aspects ont été succinctement évoqués à la fin de ce chapitre [Noguer Thèse].

Chapitre VII

VII.6 Références

[Motupally UTC Crête 2007]	Sathya Motupally (UTC Power). Degradation Mechanisms in Transportation PEM Fuel Cells. Présentation de 23 diapositives. International workshop on degradation issues in fuel cells. Du 19 au 21 septembre 2007. Hersonessos, Grèce.
[Finsterwalder Daimler Crête 2007]	Florian Finsterwalder (Daimler Chrysler). PEFC Stack Durability in Automotive Applications. Présentation de 20 diapositives. International workshop on degradation issues in fuel cells. Du 19 au 21 septembre 2007. Hersonessos, Grèce.
[Brunet Hissel 2009]	D. Hissel, D. Candusso, M-C. Péra (2009). Problématiques du stockage d'énergie. Sous la direction de Yves Brunet. Chapitre 7 : Piles à combustible : aspects système. Pages 205 – 227. Traité EGEM. Editeur Hermès Lavoisier. 320 pages. ISBN 978-2-7462-2053-9.
[Bonnet JPS 2008]	C. Bonnet, S. Didierjean, N. Guillet, S. Besse, T. Colinart, P. Carré. Design of an 80 kWe PEM fuel cell system: Scale up effect investigation, Journal of Power Sources, Volume 182, Issue 2, 1 August 2008, Pages 441-448.
[Escribano CEA Lucerne 2005]	S. Escribano, A. Morin, S. Solan, B. Sommacal, P. Capron, I. Rougeaux, G. Gébel. Study of MEA degradation in operating PEM fuel cells, 3rd European PEFC Forum, Lucerne, 2005.
[Wahdame IJHE n°32 2007]	B. Wahdame, D. Candusso, X. François, F. Harel, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann. Comparison between two PEM fuel cell durability tests performed at constant current and under solicitations linked to transport mission profile. International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 32, Issue 17, Décembre 2007, pages 4523-4536.
[Texte AAP PAN-H 2006]	Appel à Projets de Recherche et d'Innovation 2006. Plan d'Action National sur l'Hydrogène et les piles à combustible (PAN-H). 2006. http://www.agence-nationale-recherche.fr/documents/aap/2006/aap-panh-2006.pdf
[LaConti 2003]	A.B. LaConti, M. Hanndan, R.C. McDonald, in: W. Vielstich et al, eds., 2003, Handbook of Fuel Cells, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England, 3, p. 647.
[Wilkinson 2003]	D. P. Wilkinson, J. St-Pierre, 2003, Durability, Handbook of Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Applications, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England, 3, pp. 611-626, Chap. 47.
[Wasterlain Thèse 2010]	Sébastien Wasterlain (2010). Approches expérimentales et analyse probabiliste pour le diagnostic de pile à combustible de type PEM. Thèse UFC / FEMTO-ST/ENISYS, soutenue le 4 février 2010. 298 pages.
[Steiner Thèse 2009]	Nadia Steiner (2009). Diagnostic non intrusif de groupes électrogènes à piles à combustible de type PEMFC. Thèse UFC / FEMTO-ST/ENISYS / Eifer-EDF, soutenue le 3 décembre 2009. 205 pages.
[Steiner JPS 2008]	N. Yousfi-Steiner, Ph. Moçotéguy, D. Candusso, D. Hissel, A. Hernandez, A. Aslanides. A review on PEM voltage degradation associated with water management: Impacts, influent factors and characterization. Journal of Power Sources, Volume 183, Issue 1, 15 August 2008, Pages 260-274.

Chapitre VII

[Steiner JPS 2009]	N. Yousfi-Steiner, Ph. Moçotéguy, D. Candusso, D. Hissel. A review on polymer electrolyte membrane fuel cell catalyst degradation and starvation issues: Causes, consequences and diagnostic for mitigation. Journal of Power Sources, Volume 194, Issue 1, 20 October 2009, Pages 130-145.
[Friedrich DLR Crête 2007]	K. A. Friedrich (DLR). Degradation Mechanisms of PEFC Electrodes. Présentation de 34 diapositives. International workshop on degradation issues in fuel cells. Du 19 au 21 septembre 2007. Hersonessos, Grèce.
[Escribano CEA Crête 2007]	Sylvie Escribano, Arnaud Morin, Laure Guetaz, Ludovic Rouillon. Characterization of MEAs degradation. Présentation de 32 diapositives. International workshop on degradation issues in fuel cells. Du 19 au 21 septembre 2007. Hersonessos, Grèce.
[Hao Tang JPS 2006]	Hao Tang, Zhigang Qi, Manikandan Ramani, John F. Elter. PEM fuel cell cathode carbon corrosion due to the formation of air/fuel boundary at the anode. Journal of Power Sources, Volume 158, Issue 2, 25 August 2006, Pages 1306-1312.
[Moçotéguy EIFER Crête 2007]	Philippe Moçoteguy, Boris Al-Nasrawi, Antoine Aslanides. Field testing of Vaillant EURO 2 PEM Fuel Cell. Heating Appliance for micro-CHP in residential application. Présentation de 15 diapositives. International workshop on degradation issues in fuel cells. Du 19 au 21 septembre 2007. Hersonessos, Grèce.
[Rapport 1 Convention DRIRE FC 2004]	D. Candusso, F. Harel, X. François, D. Hissel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (août 2004). Influence de l'environnement sur le comportement de générateurs à pile à combustible. Rapport L2ES pour la DRIRE Franche-Comté, convention 01 Y 0044-02. 74 pages.
[Rapport 2 Convention DRIRE FC 2005]	D. Candusso, B. Wahdame, F. Harel, X. François, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (octobre 2005). Essai d'endurance sur une pile à combustible PEM pour une température de fonctionnement supérieure à la température nominale. Rapport interne L2ES. 129 pages.
[Harel Fuel Cells from Fundamentals to Systems 2007]	F. Harel, X. François, D. Candusso, M-C. Péra, D.Hissel, J-M. Kauffmann (avril 2007). PEMFC durability test under specific dynamical current solicitation linked to vehicle road cycle. Fuel Cells from Fundamentals to Systems. Vol. 7, n°2, pp.142-152. Ed. Wiley-VCH Verlag GmbH.
[Wahdame JPS n°182 2008]	B. Wahdame, D. Candusso, F. Harel, X. François, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (août 2008). Analysis of a PEMFC durability test under low humidity conditions and stack behaviour modelling using experimental design techniques. J. Power Sources. Vol. 182, n°2, pp.429-440. Ed. Elsevier.
[Harel FDFC 2004]	F. Harel, X. François, D. Candusso, D. Hissel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (29 novembre - 2 décembre 2004). First experimental results of PEMFC durability under constant power solicitation constraint. 2nd France – Deutschland Fuel Cell Conference 2004 (FDFC). Belfort. Vol. 2, pp. 365-370. ISBN 2914279-16-7.
[Advances in Fuel Cells 2005]	D. Hissel, M-C. Péra, D. Candusso, F. Harel, S. Bégot (2005). Characterization of polymer electrolyte fuel cells for embedded generators. Test bench design and methodology, dans l'ouvrage Advances in Fuel Cells, Editeur Xiang - Wu Zhang. pp. 127-148. Research Signpost. ISBN 81-308-0026-8.

Chapitre VII

[Rapport vieillissements SPACT80 2006]	Rapport intermédiaire du projet SPACT 80 intitulé «Vieillessement, Tranche 2, Tâche 2-2». Décembre 2006
[Wahdame ISIE 2008]	B. Wahdame, L. Girardot, D. Hissel, F. Harel, X. François, D. Candusso, M-C. Péra, L. Dumercy (30 juin - 2 juillet 2008). Impact of power converter current ripple on the durability of a fuel cell stack. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Cambridge, Royaume-Uni. 6 pages.
[Rapport VITAPAC 2005]	C. Bonnet, F. Lopicque, G. Valentin, M-C. Péra, D. Candusso, D. Hissel, J-M. Kauffmann (2005). Vieillessement de cœur de piles à combustible à membranes : causes et mécanismes. Rapport d'ACI VITAPAC. Présentation des travaux au colloque Energie à Grenoble les 2 - 4 novembre 2005.
[Jemeï ISIE 2005]	S. Jemeï, F. Harel, X. François, D. Candusso, D. Hissel, M-C. Péra, J-M. Kauffmann (20 - 23 juin 2005). PEM fuel cell modelization including durability considerations. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Dubrovnik, Croatie. Vol. 2, pp. 833-837, ISBN 0-7803-8738-4.
[Hissel IEEE TVT 2007]	D. Hissel, D. Candusso, F. Harel (septembre 2007). Fuzzy Clustering Durability Diagnosis of Polymer Electrolyte Fuel Cells dedicated to Transportation Applications. IEEE Transactions on Vehicular Technology. Vol. 56, n°5, part 1, pp. 2414-2420.
[Wahdame Thèse 2006]	Bouhra Wahdame (2006). Analyse et optimisation du fonctionnement de piles à combustible par la méthode des plans d'expériences. Thèse L2ES - UFC / UTBM, soutenue le 21 novembre 2006. 214 pages + annexes.
[Wahdame IECON 2006]	B. Wahdame, D. Candusso, X. François, F. Harel, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (7 - 10 novembre 2006). Dual Response Surface Approach for the Analysis of a Fuel Cell Durability Test. IEEE Industrial Electronics Conference (IECON). Paris. pp. 4337-4342, ISBN 1-4244-0136-4.
[Onanena IJHE 2010]	R. Onanena, L. Oukhellou, D. Candusso, A. Same, D. Hissel, P. Aknin (août 2010). Estimation of fuel cell operating time for predictive maintenance strategies. International Journal of Hydrogen Energy. Vol. 35, n°15, pp. 8022-8029. Ed. Elsevier.
[Harel Lucerne 2005]	F. Harel, X. François, D. Candusso, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (4 - 8 juillet 2005). PEMFC durability test under specific dynamical current solicitation linked to vehicle road cycle. 3rd European Polymer Electrolyte Fuel Cell Forum (EPEFC). Lucerne, Suisse. 17 pages.
[Wahdame ISIE 2006]	B. Wahdame, D. Candusso, X. François, F. Harel, M-C. Péra, D. Hissel, J-M. Kauffmann (9 - 13 juillet 2006). Analysis of a Fuel Cell Durability Test Using the Response Surface Methodology. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Montréal, Canada. pp. 2007-2012, ISBN 1-4244-0497-5.
[Laffly ISIE 2007]	E. Laffly, M-C. Péra, D. Hissel (4 - 7 juin 2007). Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell Modelling and Parameters Estimation for Ageing Consideration. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Vigo, Espagne. pp. 180 - 185.

Chapitre VII

[AFNOR 1998]	AFNOR. Maintenance industrielle. Recueil de normes françaises. 1988.
[Aknin HDR 2008]	Patrice Aknin. De la mesure à sa représentation et sa discrimination. Application au diagnostic des infrastructures ferroviaires. Habilitation à Diriger des Recherches soutenue le 18 décembre 2008 à l'ENS Cachan.
[Yang 2009]	Q. Yang, A. Aitouche, B. Ould Bouamama (2009). Structural Analysis for Fault Detection and Isolation in Fuel Cell Stack System. Sustainability in Energy & Buildings: pp. 239-254, Springer, Berlin Heidelberg, ISBN 9783642034541. http://www.ellibs.com/fi/book/9783642034541
[Schindele EVS 2005]	L. Schindele, J. Scholta, H. Späth, PEM-FC Control using power-electronic quantities, Electric Vehicle Symposium, Monaco (2005).
[Narjiss EPE-PEMC 2008]	A. Narjiss, D. Depernet, D. Candusso, F. Gustin, D. Hissel (1 - 3 septembre 2008). Online diagnosis of PEM fuel cell. 13th International Conference on Power Electronics and Motion Control (EPE-PEMC). Poznan, Pologne. 6 pages. ISBN 978-1-4244-1742-1.
[Tian JPS 2008]	G. Tian, S. Wasterlain, I. Endichi, D. Candusso, F. Harel, X. François, M-C. Péra, D. Hissel, J-M.Kauffmann (août 2008). Diagnosis methods dedicated to the localisation of failed cells within PEMFC stacks. J. Power Sources. Vol. 182, n°2, pp. 449-461. Ed. Elsevier.
[Hernandez Thèse 2006]	Hernandez, A., « Diagnostic d'une pile à combustible de type PEFC », Thèse de Doctorat de l'Université de Technologie de Belfort-Montbéliard, n°55, 2006.
[Fouquet JPS 2006]	N. Fouquet, C. Doulet, C. Nouillant, G. Dauphin-Tanguy, B. Ould-Bouamama, Model based PEM fuel cell state-of-health monitoring via ac impedance measurements, Journal of Power Sources, Vol. 159, Issue 2, Septembre 2006, pages 905-913.
[Steiner IMACS 2008]	N. Yousfi-Steiner, D. Candusso, D. Hissel, P. Moçoteguy, A. Aslanides (octobre 2010). Model-based diagnosis for proton exchange membrane fuel cells. Mathematics and Computers in Simulation (IMACS). Vol. 81, n°2. Ed. Elsevier. (suite à la conférence ELECTRICMACS 2008).
[Steiner IJHE 2011]	N. Yousfi Steiner, D. Hissel, Ph. Moçotéguy, D. Candusso (février 2011). Diagnosis of Polymer Electrolyte Fuel Cells Failure Modes (Flooding & Drying out) by Neural Networks Modeling. International Journal of Hydrogen Energy. Vol. 36, n°4, pp. 3067-3075. Ed. Elsevier.
[Hissel JPS 2004]	D. Hissel, M. C. Péra, J. M. Kauffmann. Diagnosis of automotive fuel cell power generators (avril 2004). J. Power Sources, Vol. 128, n°2, pp. 239-246. Ed. Elsevier.
[Hernandez ISIE 2006]	A. Hernandez, D. Hissel, R. Outbib, Fuel cell fault diagnosis: A stochastic approach. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). 2006. Vol.3, pp. 1984-1989.
[Riascos JPS 2007]	L.A.M. Riascos, M.G. Simoes, P.E. Miyagi (2007). A Bayesian network fault diagnostic system for proton exchange membrane fuel cells, J Power Sources, Vol. 165, pp. 267-278.

Chapitre VII

[Riascos IAC 2006]	L.A.M Riascos, F.G. Cozman, P.E. Miyagi, M.G. Simoes (2006). Bayesian Network Supervision on Fault Tolerant Fuel Cells. Industry Applications Conference, Vol. 2, pp. 1059-1066.
[Riascos JPS 2008]	L.A.M. Riascos, M.G. Simoes, P.E. Miyagi (2008). On-line fault diagnostic system for proton exchange membrane fuel cells, J Power Sources, Vol. 175, pp. 419-429.
[Endichi Master 2007]	Issame Endichi (juillet 2007). Etude et modélisation de problèmes liés à l'étanchéité interne des piles à combustible PEM. Rapport de stage de Masters Recherche et Professionnel PROTEE. Belfort.
[Tian IJHE 2010]	G. Tian, S. Wasterlain, D. Candusso, F. Harel, D. Hissel, X. François (avril 2010). Identification of failed cells inside PEMFC stacks in two cases: anode / cathode crossover and anode / cooling compartment leak. Int. J. Hydrogen Energy (suite au HyForum 2008). Vol. 35, n° 7, pp. 2772-2776. Ed. Elsevier.
[Stumper JPS 2010]	J. Stumper et al. OCV profiling as diagnostic tool during PEMFC stack lifetime testing. Journal of Power Sources 195(15) 4928–4934 (1 August 2010).
[Candusso Présentation CNRS Janvier 2009]	D. Candusso, S. Wasterlain, F. Harel, X. François, D. Hissel, M.C. Péra, W. Charon, P. Lesage, G. Tian, A. De Bernardinis, G. Coquery (8 et 9 janvier 2009). Méthodologies expérimentales pour identifier les cellules défailtantes dans les stacks PEM - Cas des fuites de réactifs. Journées CNRS Système PAC – Thème diagnostic. Délégation CNRS de Paris A, Ivry-sur-Seine.
[Onanena Thèse]	Raïssa Onanena Guelan. Thèse de doctorat INRETS – UFC – FC LAB en cours. Thème : diagnostic de PAC. Période prévue : octobre 2009 à octobre 2012.
[Rapport de clôture DIAPASON 2010]	Partenaires du projet DIAPASON (FC LAB) (Août 2010). Rapport de clôture du projet DIAPASON (ANR PAN-H 06-004) HN-43/10/054. 74 pages.
[Wasterlain VPPC 2010]	S. Wasterlain, D. Candusso, F. Harel, X. François, D. Hissel. Diagnosis of a Fuel Cell Stack Using Electrochemical Impedance Spectroscopy and Bayesian Networks. IEEE Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC), 1 – 3 septembre 2010, Lille. 6 pages.
[Naïm 2007]	P. Naïm, P.H Wuillemin, P. Leray, O. Pourret, A. Becker (2007). Réseaux bayésiens, Editions Eyrolles. 424 pages.
[BayesiaLab 2010]	Site internet de la société Bayesia commercialisant le logiciel BayesiaLab (2010). http://www.bayesia.com/
[Steiner IJHE 2011]	N. Yousfi Steiner, D. Hissel, Ph. Moçotéguy, D. Candusso (janvier 2011). Non intrusive diagnosis of polymer electrolyte fuel cells by wavelet packet transform. International Journal of Hydrogen Energy. Vol. 36, n°1, pp. 740-746. Ed. Elsevier.
[Steiner Brevet 2009]	N. Steiner, P. Moçoteguy, L. Gautier, D. Hissel, D. Candusso (déposé le 25 juin 2009 auprès de l'INPI). Détection de défaut dans un dispositif électrochimique. Dit aussi Ondelettes. Brevet référence EDF B2232. Demande FR 09 54357.
[Garnier Thèse 2006]	James Garnier. Association en parallèle de générateurs pile à combustible PEMFC. Thèse de Doctorat de l'UTBM et de l'UFC. Belfort. Juin 2006.

Chapitre VII

[Candusso ECM n°49 2008]	D. Candusso, A. De Bernardinis, M.C. Péra, F. Harel, X. François, D. Hissel, G. Coquery, J-M. Kauffmann (avril 2008). Fuel cell operation under degraded working modes and study of a diode by-pass circuit dedicated to multi-stack association, Energy Conversion and Management, Vol. 49, n°4, pp. 880-895. Ed. Elsevier.
[De Bernardinis ECM 2010]	A. De Bernardinis, D. Candusso, F. Harel, X. François, G. Coquery (mai 2010). Experiments of a twenty cell PEFC operating under fault conditions with diode by-pass circuit for uninterrupted power delivery. Energy Conversion and Management. Vol. 51, n°5, pp. 1044-1054. Ed. Elsevier.
[Coddet Master 2006]	Pierre Coddet (juillet 2006). Etude des stratégies de sauvegarde de piles à combustible en cas d'arrêt d'urgence. Rapport de stage de Master PROTEE. . Belfort. 57 pages.
[Coddet ISIE 2007]	P. Coddet, M-C. Péra, D. Candusso, D. Hissel (4 – 7 juin 2007). Study of Proton Exchange Membrane Fuel Cell safety procedures in case of emergency shutdown. IEEE International Symposium on Industrial Electronics (ISIE). Vigo, Espagne. pp. 725-730, ISBN 1-4244-0755-9.
[United States Patent 20040247964]	Atsushi Sadamoto, Kawasaki-shi, Nobuo Shibuya, Hiratsuka-shi, Norihiro Tomimatsu, Kawasaki-shi. Protection circuit for fuel cell and fuel cell with the same United States Patent Application Publication. US 2004/0247964 le 09.12.2004.
[Noguer Thèse]	Nicolas Noguer. Titre provisoire : Analyse de la fiabilité d'une pile à combustible et architectures de piles autorisant des fonctionnements en modes dégradés. Thèse de doctorat en cours. Encadrement : W. Charon - Professeur UTBM, G. Coquery - DR IFSTTAR, R. Kouta - MCF UTBM, D. Candusso. Durée : oct. 2011 - sept. 2014.
[Thèse Rabaaoui]	Idriss Rabaaoui. Titre provisoire : Suivis de points de fonctionnement et diagnostics de piles à combustible. Thèse de doctorat en cours. Encadrement : D. Hissel - Professeur UFC, L. Oukhellou - DR IFSTTAR Grettia, S. Jemeï - MCF UFC, D. Candusso. Durée : jan. 2011 - déc. 2013.

Conclusion générale

Par leurs niveaux de performances supérieures (efficacité énergétique élevée, faibles émissions de polluants et de gaz à effets de serre) et par leurs applications potentielles tellement multiples, les PAC sont des technologies de l'hydrogène très prometteuses, sans aucun doute capables d'apporter des réponses très pertinentes à différents niveaux dans le vaste champ de l'énergie. Les PAC peuvent apparaître comme un maillon essentiel permettant d'entrevoir une optimisation du rendement de certaines chaînes énergétiques, une meilleure prise en compte d'aspects logistiques (stockage de l'énergie) qui freinent encore le développement de certaines filières. Les PAC peuvent ainsi participer à une meilleure valorisation des énergies renouvelables (éolien, solaire et peut-être surtout biogaz ?), favoriser le développement de l'électro-mobilité, pour au final assurer une croissance des territoires plus durable, plus « verte ».

La filière du vecteur énergétique hydrogène et des PAC bénéficie déjà en France d'un savoir-faire certain, existant dans un réseau constitué d'entreprises et d'organismes de recherche, qui mérite d'être soutenue par des initiatives s'inscrivant nécessairement dans la durée.

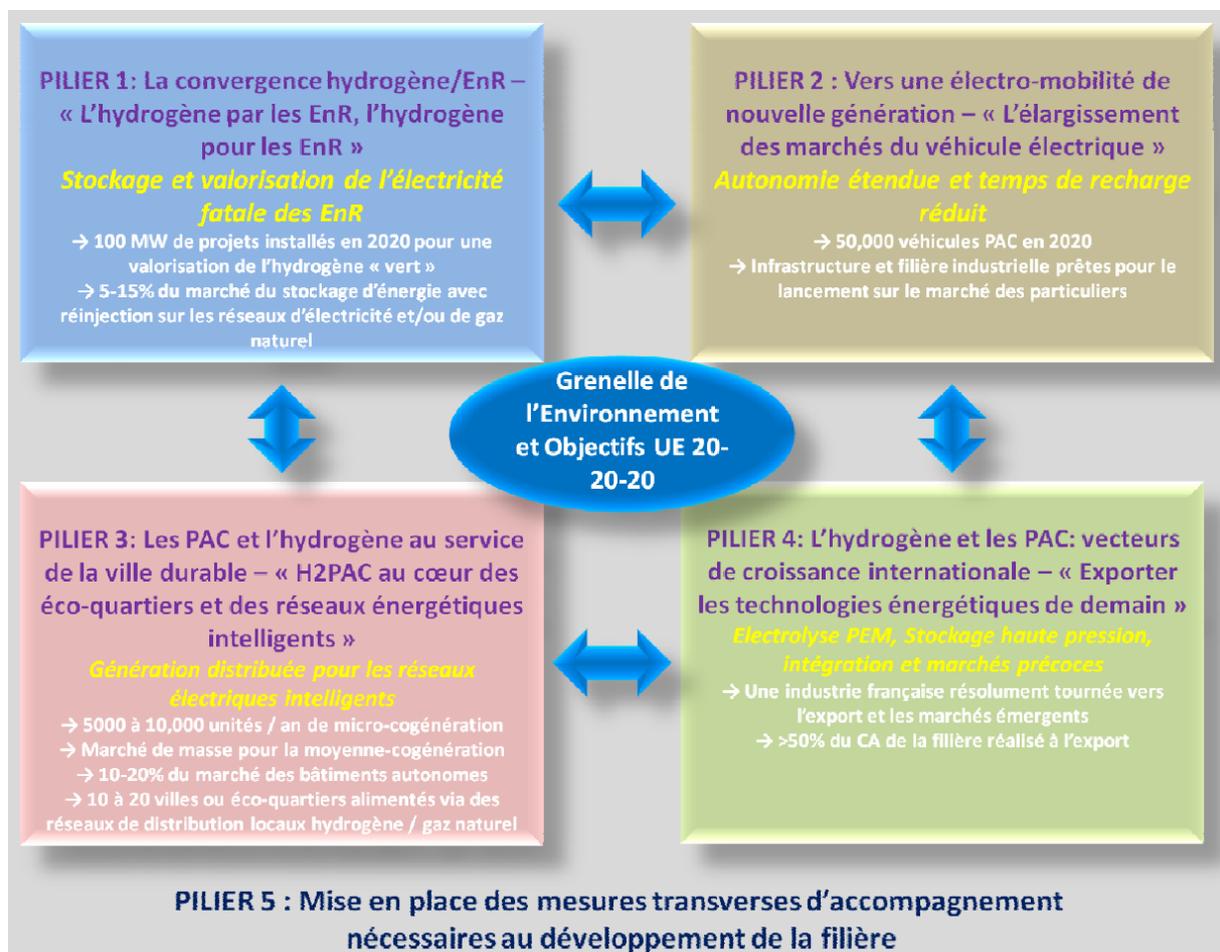


Figure Concl.1 : La vision Hydrogène en France développée par HINICIO pour l'ADEME avec le soutien de l'ensemble des acteurs de la filière [Hinicio 2010 : Patrick Maio, Jean-Christophe Lanoix, Perrine Tisserand. Exercice Feuille de Route Hydrogène et Piles à Combustible. Rapport HINICIO pour l'ADEME. 4 Novembre 2010. 108 pages].

Dans le domaine des transports, et plus particulièrement dans celui des générateurs embarqués destinés aux véhicules électriques, les PAC apparaissent comme des éléments complémentaires aux batteries actuelles (essentiellement de type Lithium). **Les PAC doivent pouvoir permettre de maintenir les atouts essentiels du véhicule électrique (par exemple, pas d'émissions polluantes émises localement), tout en lui conférant par ailleurs une autonomie plus forte (de 400 à 700 km pour**

Conclusion générale

une automobile) et une durée d’approvisionnement en énergie comparable à celle d’un véhicule thermique classique (environ 5 min pour une voiture).

La sévérité des cahiers des charges transports (conditions opératoires exigeantes, couts à atteindre, exigence de fiabilité, de durée de vie, de sécurité, problématiques liées à l’acceptabilité sociétale, aux questions de réglementation) a cependant été soulignée dans ce rapport et bien que l’application automobile « tire » fortement les recherches sur les PAC, un portefeuille d’applications de marchés précoces (ex : flottes captives, transports urbains collectifs légers) devrait d’abord porter la technologie à maturité, soutenir efficacement le développement de la filière et permettre de mieux entrevoir les conditions socio-économiques pour une diffusion plus large. Pour autant, certains acteurs de l’automobile, et non des moindres (comme Toyota), indiquent qu’ils s’apprêtent à commercialiser une auto à PAC fonctionnant à l’hydrogène dès 2015.

L’IFSTTAR s’engage activement dans les domaines de R&D touchant à la mobilité durable avec comme objectif à long terme d’aboutir à une mobilité décarbonée. Les systèmes PAC sont maintenant considérés par l’Institut comme une pièce importante de cette démarche. Ils apparaissent aussi pouvoir être au cœur des solutions à trouver dans le cadre d’une approche systémique de l’intégration énergétique véhicules - habitats - réseaux.

Le potentiel du générateur PAC doit donc continuer à être évalué à l’IFSTTAR en menant des activités scientifiques de recherche à la fois exploratoires et finalisées, novatrices sur un plan académique et potentiellement utiles à l’industrie. L’IFSTTAR tâche aussi de participer aux premiers déploiements et retours technologiques sur des sites pilotes/ modèles français en particulier en Franche-Comté et dans le Grand Est.

Les recherches sont menées à l’IFSTTAR sous l’angle du système (« stack » et auxiliaires) et elles ont pour originalité de privilégier les phases expérimentales sur des PAC aux puissances significatives pour les applications véhicule : caractérisation par des techniques de mesures électrochimiques progressivement adaptées aux objets investigués, analyse du comportement de PAC dans l’environnement transport dupliqué en laboratoire, proposition de solutions techniques permettant une meilleure intégration des PAC dans le véhicule. On soulignera à nouveau dans cette conclusion que les aspects durée de vie et fiabilité en utilisation réelle, que la compréhension des modes de défaillance et la mise au point de méthodes de diagnostic constituent une forme de fil conducteur au LTN et pour toutes les activités de l’IFSTTAR à Belfort. On notera aussi que la forte composante expérimentale de ces préoccupations apparaît très en rapport avec l’intitulé et les thématiques de l’Ecole Doctorale Sciences Pratiques (EDSP) de l’ENS de Cachan.

Si, comme cela a déjà été indiqué, mon activité de recherche s’est jusqu’à aujourd’hui focalisée sur le système PAC de type PEM pour tenter d’obtenir progressivement une expertise assez ciblée sur cet objet (considéré au moins jusqu’à aujourd’hui comme un « point dur », un « verrou »), un élargissement de mes travaux à d’autres types de pile peut être envisagé : piles PEM hautes températures ou piles SOFC par exemple. L’obtention d’une « vision plus globale » pourra aussi être recherchée à l’IFSTTAR par l’entreprise de travaux allant au-delà du seul groupe électrogène PAC, en abordant grâce à des collaborations adéquates des aspects plus en rapport avec l’ensemble de la filière hydrogène et de ses écosystèmes.

Conclusion générale



Figure Concl.2 : Illustration par l'utilisation de mots clés d'une recherche à l'IFSTTAR focalisée sur l'expérimentation des générateurs PAC.

[ANNEXE au CHAPITRE I Paragraphe I.1.2]

I.1 Problématiques actuelles et générales

I.1.2 Liées à l'énergie dans le domaine des transports

La forte préoccupation de notre société vis-à-vis des problèmes liés aux transports et à l'énergie peut aujourd'hui s'expliquer principalement par plusieurs phénomènes différents mais pratiquement concomitants.

- Le premier est **une tendance durable au renchérissement progressif des énergies fossiles, des matières premières**. Le transport en général, routier en particulier, est très dépendant des produits pétroliers. En France, le volume de pétrole destiné au transport routier est de 40 Mtep sur un total importé de 90 Mtep, ce qui représente près de 50% de la facture pétrolière qui atteint environ 40 Mds€/an [Syrota 2008]. Cette situation apparaît économiquement préoccupante car elle participe aux déficits commerciaux et rend plus fragile la position française (risques géopolitiques sur les approvisionnements pétroliers). A l'échelle européenne, on peut aussi rappeler que l'Union importe aujourd'hui comme la France environ 50% de son énergie [Le Monde Dossier Pétrole 2008] [Ravagni HyPAC 2008] [Millet HyForum 2008]. L'évolution des coûts des énergies fossiles et des matières premières est notamment attribuée à la progression de la demande portée par les économies en développement rapide, essentiellement asiatiques, et à des déséquilibres naissants du fait de l'insuffisance de la production pétrolière. Ces thèses du déséquilibre entre l'offre et la demande, du Pic de Production Pétrolier (PPP) font cependant l'objet de débats. Ainsi, pour certains, « le PPP se déplace au fur et à mesure que le temps passe ». Le coût de l'énergie prête lui aussi à discussion. Il « n'a cessé de décroître au cours du siècle passé. Sans cette baisse, jamais le parc automobile ne se serait développé dans de telles proportions » ; « en fait, l'essence est moins chère qu'il y a trente ans. Avec une heure de smic horaire, on peut acheter 4,5 litres en 2008 contre... 3 litres en 1974 » ; « car le pouvoir d'achat a beaucoup plus augmenté que les prix, même si cette évidence n'est plus de mise, depuis quelques années, pour les ménages modestes ». L'augmentation des prix des carburants est « un facteur aggravant les inégalités sociales. La part des dépenses énergétiques dans les budgets des ménages peut varier de 1 à 16 en fonction des revenus et de la commune de résidence » [Le Monde Dossier Pétrole 2008]. Dans la présentation générale du programme de travail du Predit 4 (février 2009), on peut aussi lire à propos du sujet qui nous intéresse que l'importante « place de la mobilité est pour partie liée au faible coût relatif des transports, alors que la contribution de ce secteur aux pollutions locales (polluants réglementés ou non, bruit) et globales (effet de serre) est majeure, et que les problèmes de congestion sur des infrastructures de plus en plus difficiles à financer et à réaliser sont préoccupants pour l'avenir » [PREDIT 4 Programme 2009]. Les coûts du transport apparaissent ainsi complexes à évaluer dès lors qu'une « prise en compte des externalités » est envisagée (effets de la pollution sur la santé des citoyens par exemple).

- Le second phénomène qui vient expliquer l'importance grandissante accordée aux problématiques transport et énergie est **la prise de conscience généralisée de l'incidence de la pollution et du réchauffement climatique**. La pollution a d'abord longtemps été pensée comme un problème essentiellement limité à des zones restreintes, généralement urbanisées et industrialisées. Aujourd'hui, elle est d'avantage perçue comme un phénomène global concernant soit des régions entières (pollutions photochimiques, pluies acides), voire la planète dans son ensemble (diminution de l'épaisseur de la couche d'ozone, accroissement de l'effet de serre). Depuis la fin du 20ème siècle, c'est probablement le changement / réchauffement climatique qui focalise le plus les attentions. Sous l'égide des Nations Unies, d'importantes conférences internationales se déroulent (« Sommets de la terre », comme celui de Rio de Janeiro en 1992) et des accords sont signés (Protocole de Kyoto par exemple, ouvert à ratification en 1998). L'objectif général visé par les parties consiste à vouloir stabiliser puis réduire les émissions de Gaz à Effet de Serre (GES), et tout particulièrement le dioxyde de carbone (CO₂). L'effet de serre apparaît donc comme un problème politique à l'échelle de la planète qui a des répercussions en termes de santé publique, d'aménagement du territoire, de transports et de choix énergétiques. Le Groupe Intergouvernemental d'experts sur l'Evolution du Climat (GIEC, en

anglais : Intergovernmental Panel on Climate Change, IPPC), créé en 1988, publie des rapports qui relaient les connaissances scientifiques sur le changement climatique vers l'opinion publique [GIEC]. En France, le Grenelle Environnement de 2007 a constitué un évènement important qui témoigne également bien d'une prise de conscience observée au niveau national en matière de pollution et d'écologie [Le Grenelle Environnement 2007]. Ce Grenelle a notamment consisté en un ensemble de rencontres politiques visant à prendre des décisions à long terme en matière d'environnement et de développement durable. Le débat a été organisé autour de six groupes de travail rassemblant chacun quarante membres répartis en cinq collèges. Ces collèges avaient pour vocation de représenter les acteurs du développement durable : l'état, les collectivités locales, les ONG, les employeurs et les salariés. Le Groupe 1 a ainsi pu aborder le thème : « Lutter contre les changements climatiques et maîtriser la demande d'énergie » et traiter de la question des « Transports et déplacements » au sein d'un atelier. On peut ainsi lire dans le rapport de synthèse du Grenelle (Groupe 1) que « les étapes des « 3x20 » à l'horizon 2020 [Plan SET 2007], fixées par le Conseil européen : réduction de 20 % des émissions de gaz à effet de serre ou 30 % en cas d'engagements d'autres pays industrialisés, baisse de 20 % de la consommation d'énergie, et proportion de 20 % des énergies renouvelables dans la consommation d'énergie, sont adoptées par le groupe. » [Groupe 1 Rapport de synthèse du Grenelle 2007]. L'IFSTTAR (INRETS) a pris part au débat et a proposé dans sa contribution une hiérarchisation des enjeux environnementaux. Les enjeux forts identifiés étant la consommation de matières premières non renouvelables, dont les énergies fossiles, et les changements climatiques [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007]. Pour l'IFSTTAR (INRETS), les enjeux environnementaux des transports apparaissent caractérisés principalement par leur multiplicité, mais aussi par leur complexité (échelles spatiale et temporelle différentes selon l'impact, chaîne de causalité spécifique, cumuls des impacts, interactions entre impacts...), la diversité des milieux touchés ou cibles, leur disparité géographique mais aussi sociale (inégalité d'exposition), et enfin les coûts importants qu'ils font supporter à la collectivité (plusieurs % du PIB) [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007].

L'impact environnemental des transports est considéré comme significatif, particulièrement dans les pays développés, et qui plus est, en forte croissance. Les transports représentent 13 % des émissions GES dans le monde, avec la plus forte croissance des émissions de CO₂ (progression de +120 % depuis 1970). En Europe, la part de ces dernières était de 22 % en 2005. En France, le transport routier, qui est à la fois le mode prédominant et le secteur émetteur le plus important, a conduit en 2005 à des émissions de 128,2 MtCO₂ sur un total du secteur transport de 136 MtCO₂, avec un accroissement de + 18 % entre 1990 et 2005. Les véhicules particuliers émettent un peu plus de la moitié (55 %) des émissions de CO₂ du secteur du transport routier, les véhicules utilitaires légers 18 % et les poids lourds, incluant les autocars et autobus, 27 % [Syrota 2008]. Les transports aériens ont aussi des impacts unitaires très élevés et leur croissance est très rapide.

- Au-delà des problèmes d'approvisionnement énergétique et de pollution, les grandes villes doivent aussi faire face à **de sévères problèmes de congestion des réseaux de transport**. Les axes routiers en milieu urbain sont probablement les plus touchés, mais les réseaux ferroviaires (tel que le RER parisien) et le ciel sont également concernés. Les embouteillages entraînent des pertes de temps mais également des surconsommations et du gaspillage énergétique. La congestion des grandes agglomérations nécessite certainement l'apparition de nouvelles formes de mobilité individuelle car l'automobile, même électrique ou hybride, peut y devenir un objet particulièrement encombrant, notamment en centre ville. Des gestions de trafic innovantes permettent aussi d'entrevoir une optimisation de l'usage des réseaux qu'ils soient routiers ou ferroviaires.

- Une autre raison de poids vient expliquer la forte attention portée aux secteurs des transports et de l'énergie. Il s'agit du **maintien de l'emploi (en France et dans ses régions) dans un contexte de mondialisation et de concurrence économique accrue**. Car, si les systèmes de transport génèrent des nuisances, il faut toutefois rappeler qu'ils sont aussi des créateurs de richesse et de lien social. Dans la compétition économique mondiale, la performance relative des systèmes de transport des différents pays joue un rôle fort, et on peut considérer que la France bénéficie encore à ce titre d'une très bonne

position, grâce à son industrie, ses infrastructures et ses services. Dans ce contexte, les mesures politiques à prendre (par exemple à l'issue d'un évènement tel que le Grenelle de l'Environnement) « doivent être évaluées, non seulement selon les critères spécifiquement environnementaux, mais aussi en regard de leur efficacité économique – veiller à ne pas dégrader la compétitivité relative de notre système de transport – et de leur impact sur les tissus sociaux – veiller à ne pas accroître les inégalités sociales, voire les exclusions, en regard des besoins de mobilité. Cette évaluation globale, intégrant les trois dimensions de la mobilité durable, implique notamment une revalorisation des valeurs tutélaires environnementales » [Contribution de l'INRETS au Grenelle de l'environnement 2007].

Le territoire français abrite des entreprises liées aux secteurs du transport (public, automobile, aviation...) et de l'énergie qui génèrent des emplois (dans les services, l'industrie). Si des emplois d'opérateurs dans le domaine des transports en commun tels que ceux de conducteur de bus, chargé de maintenance de l'infrastructure routière ou ferroviaire apparaissent difficilement délocalisables, les emplois liés à la conception et à la production de véhicules par exemple sont dans doute davantage soumis à la pression de la concurrence étrangère. Dans ce contexte d'enjeux industriels et de marché mondialisé, l'industrie automobile française apparaît souvent comme un secteur d'activité singulièrement menacé, d'une part par les véhicules « low-cost » produits dans les pays aux économies émergentes, et d'autre part par les automobiles « high-tech » (hybrides japonais par exemples). Après avoir subi différents chocs pétroliers et une crise financière mondiale en 2009, l'industrie automobile française doit aujourd'hui faire face d'une part à de nouvelles normes plus restrictives en termes d'émissions polluantes, et d'autre part à une réduction relative du marché national au profit de marchés lointains aux normes sensiblement différentes [Syrota 2008] [PREDIT 4 Programme 2009]. L'état apporte assez régulièrement des soutiens à la filière automobile par différentes voies (ex : plan « véhicules propres » de 2003, « Pacte automobile » de 2009, plan « véhicule décarboné ») de manière à préserver un secteur considéré comme stratégique pour l'économie et les emplois : « La France ne laissera pas tomber son industrie automobile. Parce que c'est un des secteurs essentiels de l'activité économique et industrielle française, en matière d'emploi (10 % de la population active) et d'innovation (15 % de la R&D en France). Cette industrie a un avenir avec les nouveaux défis environnementaux et la forte augmentation de la demande dans des pays comme l'Inde et la Chine. Dans la bataille à venir, l'industrie européenne a une carte à jouer. Et les constructeurs français sont parmi les mieux placés. » [<http://www.gouvernement.fr/gouvernement/le-pacte-automobile>]. Si les normes anti-pollution adoptées en Europe peuvent être perçues comme une contrainte pour le secteur automobile, elles peuvent être également considérées comme un moyen de protection contre des importations de masse. Dans ce contexte, la recherche, l'innovation et les nouvelles technologies sont aujourd'hui des paramètres majeurs de la compétitivité, donc de l'emploi, et les équipementiers, entreprises importantes ou PME, y prennent une part de plus en plus significative [PREDIT 4 Programme 2009]. La France et l'Europe se doivent donc d'investir dans le « high-tech » et de faire du « green business » (cf Annexe du Plan SET [Plan SET 2007]).

[ANNEXE au CHAPITRE I Paragraphe I.2]

I.2 Une multiplicité de solutions pour une « mobilité 2.0 » ?

Si la vision d'un véhicule électrique et hybride diffusé à grande échelle peut susciter aujourd'hui un engouement fort dans la société, celle-ci fait aussi douter...

La critique du véhicule électrique et hybride repose sur des arguments divers, parmi lesquels :

- Le véhicule électrique peut émettre du CO₂ suivant la nature de la production de l'électricité (et/ou l'adoption ou pas de dispositifs permettant le stockage du CO₂).
- Il ne correspond pas forcément à une solution / filière technologique éprouvée (en particulier au niveau des batteries. Quid de leur durée de vie, des ressources en lithium, des cycles de vie des automobiles ?).
- Il est onéreux. Les constructeurs ne gagnent pas forcément d'argent directement avec eux mais ils se donnent ainsi une bonne image.
- D'une manière plus générale, la multiplicité des plans d'aide accordés par l'Etat à l'industrie automobile (y compris pour permettre l'essor des NTE) peut laisser à penser que celle-ci n'est pas si rentable (en termes économiques et d'emplois générés).
- Il ne répond pas au problème de congestion des grandes agglomérations.
- L'autonomie du véhicule électrique est limitée et le cantonne essentiellement aux agglomérations, justement là où les modes « doux » (marche à pied, vélo) et les transports en commun doivent être utilisés en priorité.

Bien sûr, on pourra lancer quelques objections aux points précédents :

- Les véhicules électriques et hybrides, comparés à leurs homologues purement thermiques, peuvent réduire de manière significative les émissions de CO₂.
- Toyota a vendu plusieurs millions de véhicules hybrides. La Prius est le véhicule le plus vendu au Japon et elle figure aussi souvent en tête de liste des palmarès des véhicules les plus fiables. Mais il est vrai que sa batterie est utilisée en occasionnant des variations de l'état de charge réduites, ce qui ne peut pas être le cas pour un véhicule purement électrique.
- S'il est vrai que bientôt 80% des gens habiteront les villes, on a parfois tendance à penser la mobilité seulement en fonction des zones urbaines. Et cette nouvelle mobilité est d'ailleurs généralement pensée par des personnels habitant les (grandes) villes.
- La recharge de nuit des véhicules électriques ou hybrides rechargeables (« plug-in ») peut éventuellement participer à la régulation des réseaux électriques.

Cette ligne de partage qui traverse la société, et qui a déjà été évoquée plus haut, liée en partie au degré de confiance à accorder aux promesses de développement des nouvelles technologies, se dessine aussi de manière plus ou moins ténue une chez les ingénieurs et chercheurs travaillant dans le domaine des transports et de la recherche, et en particulier à l'IFSTTAR où cohabitent bien sûr des sensibilités différentes. Pour certains chercheurs, la tendance consiste un peu trop à vouloir facilement régler des problèmes concrets et actuels en ne faisant que des paris sur l'avenir : « La recherche est sommée de trouver des solutions technologiques (pour diminuer ou absorber les émissions de GES), donc elle les trouvera ». Evidemment, on notera (avec un petit peu de malice, même si le sujet est sérieux) que cette ligne aura néanmoins plutôt tendance à s'établir entre les personnels qui travaillent dans le champ de la technologie et les autres... Mais les différentes opinions et actions enrichissent la réflexion autour des recherches à mener et élargir le panorama des voies possibles pour une nouvelle mobilité. Par ailleurs, il faut reconnaître que les personnels de la recherche, quel que soit leur domaine d'activité, savent au fond bien faire preuve de sens critique, y compris à l'égard de leurs propres travaux.

Un avis très intéressant sur le fond peut être évoqué ici, celui de Jean-Louis Maupu (Chargé de recherche à l'IFSTTAR et récompensé par le prix La Recherche pour « La ville creuse »).

Annexes

« Les systèmes de transports transforment nos territoires, à travers leurs réseaux. Sans régulation motivée, le système automobile impose son agencement extensif et disqualifie les modes alternatifs. Sa commodité devient une dépendance et engendre une mobilité peu soutenable parce qu'elle gaspille de l'énergie, s'accapare un espace précieux et menace les équilibres de notre milieu de vie (en particulier avec une forte émission de CO2). Il pourrait s'avérer contreproductif de s'en tenir à une vision sectorielle de l'énergie ou du transport et de ne pas prendre en compte les trois sphères économique, sociale et environnementale de notre milieu. Pour éviter la dégradation de nos territoires et les menaces extérieures, il ne suffit pas d'attendre que le système dominant devienne plus économe, plus équitable ou plus propre, il est préférable de les réorganiser autour de réseaux maillés de transports guidés, ayant déjà ces qualités. Rappelons que, comparé à la voiture particulière, un système urbain comme le tramway, "peut" diviser par 10 l'énergie, l'espace, les dépenses et le temps dédiés au transport motorisé... "Selon le contexte" ! Et le meilleur contexte n'est pas la ville transformée par le système automobile, qui l'encombre, la hiérarchise et l'éparpille, gonflant son propre besoin... Déjà, à niveau de vie égal, les agglomérations organisées autour du transport en commun peuvent consommer 5 fois moins que celles organisées autour de la voiture, et dépenser 2 fois moins.

Pour aller plus loin, un modèle d'agencement urbain soutenable, appelé "la ville creuse", illustre les intérêts d'organiser la ville autour de boucles de tramway : proximités favorables à la marche et au vélo ; circulations motorisées des biens et des personnes consommant très peu d'énergie, d'espace et de revenus ; garantie pour tous d'un accès "durable" à tous les lieux fréquentés... Sans sacrifier les autres qualités (densités attractives, espaces publics conviviaux, nature toujours proche, gestion locale facile, bonne attractivité pour les entreprises, assainissement du marché foncier, croissance équilibrée...). Il n'y a pas de verrous techniques ou économiques pour cet agencement qui suppose surtout une gestion cohérente et globale des sols, que pourraient induire l'outil fiscal et la conception des infrastructures qui les valorisent. Et il doit être possible, en s'en inspirant, de réduire de façon significative (besoin d'évaluations) la consommation d'énergie de la mobilité dans un délai de 30 ans (mais l'avons-nous ?), à condition de pouvoir en débattre rapidement... » [\[Maupu 2006\]](#)

[ANNEXE au CHAPITRE I Paragraphe I.3.3]

I.3.3 Nouveaux combustibles et nouveaux moteurs, nouvelles méthodes de conception et de construction, électrification du véhicule

Un véhicule autonome (automobile, bus, train sans captage d'énergie électrique) doit embarquer une certaine quantité d'énergie permettant d'aboutir à une autonomie suffisante. Ce stock doit présenter un poids et un encombrement réduits et, lorsqu'il est épuisé, il doit pouvoir être renouvelé facilement dans de bonnes conditions de sécurité et dans un laps de temps très bref. Dans la plupart des cas, c'est encore l'utilisation du pétrole et de ses dérivés ou d'hydrocarbures qui rend tout cela possible. **Dans le domaine des transports, 95 % des besoins en combustible sont couverts par le pétrole.** Ce qui implique qu'il faudra nécessairement une période de transition assez longue avant de pouvoir changer d'assise énergétique au profit d'autres combustibles, d'autres énergies qui seraient renouvelables et moins polluantes [Galley Gatignol 2001].

Un carburant est un combustible qui alimente un moteur thermique et qui, comme son nom l'indique, contient du carbone. A noter d'ailleurs que, dans le cas de l'hydrogène, on parlera de combustible. Les carburants peuvent être classés de différentes manières : suivant leur forme (liquide ou gazeuse), ou suivant leur origine (fossile ou générés à partir de la biomasse) par exemple.

Le carburant liquide à pression atmosphérique et à température ambiante (essence, diesel) apparaît comme une source d'énergie bien adaptée à la propulsion des véhicules. Il bénéficie également de l'existence d'un réseau de stations-service, des infrastructures nécessaires pour le produire et le distribuer. Le stockage de gaz à haute pression dans le véhicule pose davantage de problèmes de sécurité et il faut mettre en place des infrastructures coûteuses pour alimenter les véhicules. **Le gaz naturel** pose par ailleurs des problèmes géopolitiques de même nature que ceux posés par le pétrole et son prix est lié à ce dernier. L'avantage que ses promoteurs lui donnent pour compenser une partie de ses handicaps est un meilleur rendement de combustion. Le gaz naturel peut raisonnablement se développer dans des pays disposant de ressources en gaz importantes et d'outils de raffinage de pétrole insuffisants, ce qui n'est pas le cas de la France [Syrota 2008].

Parmi les nouveaux carburants, les biocarburants, ou plutôt **les agrocarburants** (ex : bioéthanol, ETBE, biodiesel), représentent une des alternatives envisagées aux carburants d'origine fossile. Obtenus à partir d'une matière première végétale (transformation de déchets organiques...), ils ont souvent l'avantage d'être utilisables dans des moteurs traditionnels (moyennant des modifications en fonction de leur taux d'incorporation dans les carburants fossiles. Ex : moteurs *flex-fuels pour le E85*). [Galley Gatignol 2001] [Beretta 2010]. Les coûts de production des agrocarburants sont supérieurs à ceux des carburants fossiles mais ils bénéficient actuellement d'une détaxe dans de nombreux pays. Ils peuvent permettre de réduire certains niveaux de polluants automobile et d'utiliser à des fins non alimentaires des terres agricoles mises en jachère. En France, ces modes de production sont encore marginaux compte tenu de leur coût de revient. Mais l'état soutient néanmoins le développement de cette filière [Loi n°2005-781 du 13 juillet 2005]. Alors que les objectifs français en matière d'incorporation des agrocarburants dépassent ceux définis par la directive européenne 2003/30/CE et que les agrocarburants de première génération soulèvent de nombreuses critiques [Tissot CR Géosciences 2008], le gouvernement entend maintenant soutenir le développement des agrocarburants de deuxième génération. Ceux-ci doivent permettre de valoriser l'intégralité de la plante pour produire des biocarburants, d'assurer une meilleure complémentarité, et non une concurrence entre les différents usages de la biomasse, en particulier vis-à-vis du secteur alimentaire, tout en limitant les pressions sur l'environnement [ADEME biocarburants 2010].

Un moteur thermique est quant à lui chargé de transformer l'énergie chimique du combustible en énergie mécanique. Aujourd'hui, il semble clair que **le moteur à combustion interne n'a pas encore atteint ses limites de développement.** Selon le [Syrota 2008], les véhicules thermiques actuels peuvent réduire de moitié leur consommation moyennant une optimisation de leurs performances et la réalisation, grâce à des techniques disponibles, de progrès en matière de rendement, de propreté et de flexibilité, ce qui est de nature à leur assurer encore un grand avenir. En matière de motorisation et de dépollution, aux techniques performantes largement utilisées (injection directe, turbo-compression,...)

viendront s'ajouter celles qui commencent à équiper des modèles sur le marché et celles qui sont d'ores et déjà dans les cartons ou en voie de mise au point, notamment chez les équipementiers :

- distribution variable, commande électromagnétique des soupapes, variation du taux de compression en ce qui concerne le moteur à essence ;
- systèmes de combustion à basses émissions d'oxydes d'azote (NOx), filtres à particules et à oxydes d'azote (système DéNOx) pour le moteur diesel ;
- réduction de la cylindrée (« downsizing »), catalyse avancée, micro-hybridation (« stop & start ») pour toutes motorisations.

Toujours selon le [Syrota 2008], la propulsion par moteur thermique alimenté par des carburants liquides dans les conditions usuelles restera donc largement majoritaire d'ici 2030, d'autant plus que leurs substituts ne présentent pas, à performances comparables, d'avantages significatifs en termes de coût, de bilan énergétique et d'émission globale de gaz à effet de serre, ni actuellement, ni à terme, les véhicules actuels disposant d'une marge de progrès considérable, une réduction de consommation de moitié étant largement envisageable. En particulier, des véhicules thermiques de petite taille, ayant une puissance faible (c'est-à-dire des performances routières comparables à celles des véhicules électriques) et donc de consommation très réduite, peuvent prendre une part de marché.

Au-delà de la motorisation, **des progrès généraux de conception et de construction sont enregistrés** et bénéficient au véhicule thermique comme à tout autre type de véhicule : aérodynamisme, allègement des structures, utilisation de matériaux innovants, roulements à très faible friction, pneumatiques à faible coefficient de frottement... L'assistance électronique à l'éco-conduite devrait aussi jouer un rôle de plus en plus important car, si elle est relayée par une évolution sensible du comportement des conducteurs, elle peut être porteuse de réductions de consommation tout à fait significatives (environ 20 %), bien plus importantes et moins coûteuses que celles apportées par les autres postes.

Dans les applications de transport pour lesquelles l'électricité n'est pas l'énergie disponible pour la consommation finale (transport terrestre, aéronautique et maritime), un nombre croissant d'équipements électriques sont installés pour réaliser des fonctions nouvelles, de confort en particulier, ou en remplacement d'autres solutions technologiques. Des actionneurs hydrauliques et/ou pneumatiques sont ainsi remplacés par des actionneurs électriques. Cette démarche du « plus électrique » (avion plus électrique...) apporte un gain de la masse embarquée et donc une réduction significative de la consommation d'énergie primaire [SEEDS Prospective 2009] [HDR Zoubir]. Dans l'automobile, **l'électricité est progressivement introduite dans la chaîne de traction**, de plus en plus hybridée (« stop & start », récupération d'énergie de freinage, contribution à la motricité), avec comme avantage de ne requérir aucune infrastructure nouvelle. En attendant l'avènement sur le marché du véhicule hybride rechargeable (« plug-in »), le véhicule hybride, qui peut s'assimiler à un véhicule thermique à complément électrique, apparaît comme une étape intermédiaire intéressante. Le véhicule hybride rechargeable présenterait un intérêt encore plus tangible si le carburant utilisé par le moteur thermique émettait peu de CO₂ (avec l'emploi de biocarburants de deuxième génération par exemple). Selon le [Syrota 2008], le véhicule hybride rechargeable, qui cumule les avantages du thermique et de l'électricité sans en avoir les inconvénients les plus importants, a toutes les chances d'être le véhicule d'avenir.

Une étude récente (novembre 2010), réalisée par le cabinet MacKinsey [MacKinsey - EU Coalition 2010] pour le compte de 27 grands industriels européens, dresse un état prospectif des différents types de traction pour l'automobile jusqu'en 2050 : motorisations thermiques, hybrides, électriques à batterie et à PAC. Cette étude est basée sur des données industrielles propriétaires et donne des estimations sur l'évolution attendue du coût de la technologie, des investissements nécessaires et des places respectives envisageables pour ces différentes familles de motorisations. D'une manière générale, les auteurs indiquent que **les types de motorisations, de chaînes de traction des automobiles présenteront une hétérogénéité plus grande qu'aujourd'hui**. Le document indique aussi que le véhicule électrique à PAC apparaît comme le plus coûteux à court terme, mais qu'il peut être très compétitif à plus longue échéance.

[ANNEXE au CHAPITRE I Paragraphe I.3.4]

I.3.4 L'électrification des véhicules : une longue histoire

Le but premier ici n'est pas de retracer l'histoire du véhicule électrique. Un nombre croissant de documents traitant du sujet offre déjà une perspective historique [Larroque Griset 2006] [Boursin 2012]. L'objectif ici consiste plutôt à suggérer qu'une rétrospective historique permet d'identifier certains mécanismes freinant la diffusion d'une technologie dans la société, de comprendre les déterminants de l'évolution passée du système de transport et est utile pour mieux penser les futurs systèmes de transport (pour poursuivre cette démarche plus en profondeur, le travail devrait alors être réalisé par des historiens, par un comité d'histoire). A noter que le cas spécifique de l'hydrogène et des PAC sera abordé d'un point de vue historique un peu plus loin dans le Chapitre.

Dans les différentes perspectives historiques liées au véhicule électrique, apparaît bien l'importance du vecteur énergétique et du mode de stockage d'énergie (décrit en termes de disponibilité, de masse et de volume) qui conditionne en bonne partie l'émergence et le développement de nouveaux systèmes de transports. Ainsi, au XIX^{ème} siècle, à l'époque du charbon, c'est la machine à vapeur lourde, volumineuse qui a été à l'origine de la grande mutation des modes de transports. Ce sont donc la navigation et le chemin de fer, plus aptes à admettre cette technologie, qui ont profondément structuré les modes de vie et les paysages européens. Un ambitieux programme de travaux publics, lancé en 1878 par le ministre des travaux publics Charles de Freycinet, tend ainsi à faire en sorte que toutes les sous-préfectures, ainsi qu'un maximum de chefs-lieux de canton, soient reliées au réseau des chemins de fer. Le plan Freycinet prévoit la construction d'environ 8700 km de lignes nouvelles et d'intérêt local qui viennent mailler le territoire français (plan achevé en 1914) [Le Patrimoine de la SNCF 1999] [Picard 1884]. La route, dominée par la traction animale, est quant à elle restée longtemps à l'écart de ces révolutions et, pour les transports et durant la période 1840-1870, c'est plutôt l'électricité qui s'est posée, avant le moteur thermique, comme le véritable concurrent de la vapeur. En 1900 encore, aux États Unis, on construisait plus de véhicules électriques que d'essence et presque autant que de voitures à vapeur [Bourdeau Thèse 1999]. Le moteur thermique ne verra lui véritablement le jour que vers 1860 (l'hippomobile d'Etienne Lenoir est le premier véhicule à moteur à combustion interne à hydrogène - moteur monocylindre [Fruchart 2009]). La rivalité entre véhicule électrique et voiture à pétrole se poursuivra jusqu'au début des années 1890, jusqu'à ce que G. Daimler, K. Benz et W. Maybach réussissent progressivement l'intégration d'un moteur à explosion dans un véhicule routier et à mettre ainsi en place les bases de l'automobile moderne à essence. Face à ce succès, le véhicule électrique particulier, handicapé par une autonomie incertaine, ne peut assumer une concurrence crédible, en dépit de records de vitesse inédits (franchissement, le 1er mai 1899, du seuil symbolique des 100 km/h par la célèbre « Jamais contente » de Camille Jenatzy). Dès cette époque, le véhicule électrique, mal adapté à un réseau routier peu accueillant (tout comme la machine à vapeur), voit son usage se restreindre au rail. Le véhicule électrique autonome (lourdement handicapé par les batteries au plomb, dont les performances progressent beaucoup moins vite que celles des véhicules à essence) reste alors cantonné à quelques usages professionnels bien précis : fiacres et taxis électriques, véhicules de lutte contre l'incendie, véhicules de livraison de proximité, notamment dans l'alimentation, véhicules de collecte des ordures ménagères... En 1899, Porsche, conscient de ces limites, conçoit la première voiture hybride, la Lohner-Porsche, dotée de moteurs roues. Les deux décennies qui encadrent le passage du XIX^{ème} au XX^{ème} siècle sont marquées par un essor considérable de la traction électrique dans le domaine du transport collectif disposant d'infrastructures fixes : le tramway triomphe en Amérique et s'impose, de manière plus contrastée, dans les villes d'Europe (d'Allemagne notamment) [Syrota 2008]. A partir des années 1920, le paysage de la mobilité évolue. La voiture électrique individuelle a pratiquement disparu. Mais l'électricité profite encore aux camions et aux véhicules à utilisation très spécifique tels que les voitures postales. L'hégémonie du tramway électrique en matière de transport collectif urbain est générale, jusqu'à la disgrâce des années 1930-40, sauf pour quelques pays en Europe (Belgique, Allemagne, Suisse, Europe de l'Est...). Durant la même période, en France, les réseaux pourtant denses des chemins de fer d'intérêt local et vicinaux commencent à pâtir sérieusement de la concurrence de la route.

Annexes

Entre la fin du XIX^{ème} siècle et la première moitié du XX^{ème} siècle, différentes voies technologiques alternatives au couple pantographe / caténaire ont été mises en œuvre pour assurer l'alimentation des véhicules du transport guidé (tramway, locomotives). Parmi elles :

- Les tramways et automoteurs à accumulateurs. En mai 1881, un tramway électrique à accumulateurs est testé à Paris entre Montreuil et la Place de la Nation [AMTUIR]. En Allemagne, un nombre substantiel d'automotrices à batteries (« Akku-Triebwagen ») ont été exploitées par la DB [Koschinski 2002].

- Les tramways avec alimentation par le sol. En 1884, le premier tramway électrique circule à Cleveland (USA). La prise de courant se fait par un caniveau ; chaque motrice dispose d'une charrue sous le châssis, qui passe par une fente axiale à la voie et vient en contact avec deux conducteurs souterrains montés dans une conduite en bois [AMTUIR].

- On pourra noter également l'utilisation de tramways à air comprimé (automotrices de l'ingénieur Mékarski exposée à l'Exposition Universelle de 1878 à Paris) [AMTUIR].

Il est plaisant de constater que certaines solutions techniques sont aujourd'hui remises au goût du jour dans les tramways modernes (captation par le sol à Bordeaux, accumulateurs à Nice, projets de systèmes de transport utilisant le principe du « biberonnage »).

Durant la période 1960-1970, des projets de recherche essaient de voir le jour en France autour de la PAC et du véhicule électrique. Dans [Callon 1979], Michel Callon, ingénieur et sociologue, livre une analyse critique de cette période.

A partir des années 1970, une place de plus en plus importante a été accordée à l'énergie électrique dans les véhicules automobiles (commande moteur et auxiliaires). Dans les années 1980, l'électronique embarquée y fait son apparition [Syrota 2008] et les constructeurs prévoient maintenant l'utilisation d'une cinquantaine d'actionneurs à l'horizon 2015 [SEEDS Prospective 2009].

Dans un contexte de pression croissante des réglementations publiques et avec l'apparition de nouveaux types de batteries (Nickel / Cadmium), les années 1990 enregistrent un relatif renouveau commercial du véhicule électrique. En France apparaît en 1995 les premières bornes de recharge sur voie publique et les offres commerciales de PSA et de Renault. En France, on estimait le nombre de véhicules en circulation entre 500 et 1000 éléments en 1994 toutes catégories confondues (particuliers ou utilitaires) [Bourdeau Thèse 1999]. Les véhicules acquis sont pour la plupart des utilitaires, dont la contenance est suffisante pour loger les batteries, à qui l'on ne demande pas de performances élevées en termes de vitesse et d'autonomie et qui sont en général destinés à de courts trajets urbains. On trouve alors cependant de plus en plus de modèles de voitures disponibles en version électrique (AX, Saxo, 106, Clio... Les principaux utilisateurs restent toutefois des collectivités locales ou des entreprises. En effet, les particuliers, compte tenu de la faible autonomie qu'offre cette motorisation (moins de 100 km pour la plupart), y sont encore assez peu réceptifs ; seuls ceux qui ne réalisent que de courts trajets sont susceptibles de s'y intéresser mais exclusivement en remplacement éventuelle d'une seconde voiture. Les mesures incitatives à l'achat prises alors par le gouvernement (offre de 5000 F à chaque acheteur d'un véhicule électrique) n'ont pas permis l'équipement progressif des ménages en voiture électrique [Bourdeau Thèse 1999].

En 2001 apparaît le véhicule hybride Toyota Prius (équipé de batteries Panasonic de type Ni/MH) qui marque à la fois une évolution technologique significative et le début d'une industrialisation et d'une commercialisation véritablement à grande échelle de ce type de véhicule. Par ailleurs, on note l'émergence de cette tendance à l'hybridation entre propulsion thermique, électrique et stockage dans un plus large spectre d'applications liées aux transports automobile, ferroviaire et aéronautique.

En 2009, le véhicule électrique semble retenir à nouveau l'attention des constructeurs, particulièrement celle de Renault [Ravet 2009]. Il semble que certains constructeurs s'orientent aujourd'hui vers des stratégies de commercialisation nouvelles, un peu à l'image de ce qui s'est fait dans la téléphonie mobile. Ce n'est plus tant un produit matériel qui est proposé (l'automobile), plutôt un service (la mobilité automobile). Dans ce nouveau cadre, le client n'est plus nécessairement propriétaire du véhicule et/ou des batteries (location / « leasing » avec forfaits). Argument qui consiste à ne plus voir seulement les batteries comme un réservoir d'énergie : « L'achat des batteries dès l'acquisition de la voiture : c'est un peu comme si vous achetiez tout le pétrole destiné à faire rouler l'auto pendant les dix années où vous allez utiliser le véhicule. ».

Liste des modifications apportées à la version provisoire du mémoire suite à la soutenance d'HDR

Mars 2013

- Présentation des références dans l'ordre alphabétique.

- **Chapitre I**

Réintégration de paragraphes initialement placés dans les annexes et relatifs aux enjeux actuels dans le domaine du génie électrique et au problème majeur du stockage de l'énergie sous forme électrique.

- **Chapitre II**

L'utilisation possible d'oxygène pur pour l'alimentation des piles PEM à la cathode a été évoquée dans le paragraphe II.2 « Les différents types de PAC ».

La notion de rendement faradique a été précisée dans le paragraphe II.4.7.

- **Conclusion générale**

Légère modification du texte initial.