



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du  
**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

**Délivré par :**  
Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

**Discipline ou spécialité :**

Génie Electrique

---

**Présentée et soutenue par :**

Benoît MORIN

**le :** mercredi 13 février 2013

**Titre :**

Hybridation d'une pile à combustible par des supercondensateurs :  
vers une solution passive et directe

---

**Ecole doctorale :**

Génie Electrique, Electronique et Télécommunications (GEET)

**Unité de recherche :**

Laboratoire LAPLACE - UMR 5213

**Directeur(s) de Thèse :**

Christophe TURPIN (Chargé de Recherche CNRS - HDR, LAPLACE, Toulouse)  
Stéphane ASTIER (Professeur à l'Université de Toulouse (INPT), LAPLACE, Toulouse)

**Rapporteurs :**

Daniel HISSEL (Professeur à l'Université de Belfort (UTBM), FCLAB, Belfort)  
Stéphane RAEL (Professeur à l'Université de Lorraine (INPL), GREEN, Nancy)

**Membre(s) du jury :**

Kodjo AGBOSSOU (Professeur à l'UQTR, IRH, Trois-Rivières- Québec)  
Pierre-Louis TABERNA (Chargé de Recherche CNRS, CIRIMAT, Toulouse)  
Olivier VERDU (Ingénieur, HELION Hydrogen Power, Aix-en-Provence)  
Lucien PRISSE (Docteur-Ingénieur, AIRBUS, Toulouse)



## Hybridation d'une pile à combustible par des supercondensateurs : vers une solution passive et directe

La faisabilité des applications à piles à combustible (PAC) a été largement démontrée à travers le monde. Les efforts de recherche portent actuellement sur l'amélioration de la durée de vie des PAC et la diminution de leur coût. A ce jour, une PAC ne tolère pas les variations rapides de charges qui entraînent très souvent son vieillissement prématuré. Pour pallier cette faiblesse, une hybridation avec un composant électrochimique de stockage (typiquement des supercondensateurs) est généralement proposée via un ou deux convertisseurs statiques, nécessitant l'implantation d'une gestion énergétique.

Une partie de ces travaux se situe dans le contexte aéronautique et fait suite au projet européen CELINA piloté par AIRBUS. Le projet européen CELINA (2005-2008) a posé la problématique du remplacement de l'éolienne (RAT) actuelle par une pile à combustible pour le réseau électrique de dernier secours sollicité en cas de perte totale des moteurs ou de la génération électrique. Il alimente les charges essentielles : auxiliaires de puissances presque constantes (calculateurs de bord, ...) et les actionneurs de vol (EHA, EMA) qui constituent les principaux consommateurs à caractères très intermittents. Cette étude a permis une classification de trois architectures, dont la validation expérimentale se situant dans le cadre du projet français ISS ayant débuté en 2010 sera exposée.

L'hybridation directe entre une PAC et des supercondensateurs présente les avantages de ne pas mettre en jeu de convertisseur statique et d'une autogestion énergétique naturelle. Partant du constat que toutes les applications embarquées utilisant des PAC sont hybridées et qu'un développement d'architecture et de stratégies est effectué pour chaque cas (mise au point de convertisseurs, lois de commande, etc.). Ceci représente un travail considérable et systématique, ce qui freine l'implantation des systèmes PAC dans les applications embarquées. L'objectif est alors d'étudier la faisabilité d'un composant hybride unique jouant le rôle de source de puissance et d'énergie dont la gestion énergétique est transparente pour l'utilisateur et ne nécessitant pas l'ajout d'une hybridation supplémentaire pour ces applications. Cette thématique fait l'objet de ces travaux de thèse en collaboration avec la société française HELION Hydrogen Power.

Après une présentation de l'introduction des systèmes PAC en aéronautique centrée autour de l'hybridation directe, la suite des travaux regroupe deux grandes thématiques :

- la première concerne l'étude des interactions entre PAC et supercondensateurs lors d'une association directe selon trois approches : théorique, expérimentale et par simulation.
- La seconde concerne la validation expérimentale de trois architectures d'hybridation d'un système PAC retenues pour un contexte aéronautique lors d'études précédentes au laboratoire : une architecture indirecte pour laquelle le stockage possède son convertisseur, une architecture indirecte avec stockage sur le bus DC et une architecture directe.

L'objectif de ces travaux étant d'augmenter le niveau de maturité technologique de ces concepts, ainsi que de comparer les différents moyens retenus pour parvenir à l'hybridation d'un système PAC suivant des critères précis.

**Mots-clés :**     **Hybridation, Directe, Passive, Indirecte, Pile à Combustible (PAC), Supercondensateur, Stratégie de Gestion Energétique, Partage de Puissance**

## Hybridization of a fuel cell with ultracapacitors: towards a passive and direct solution

The feasibility of fuel cell (FC) applications has been demonstrated throughout the world. Research efforts are currently focused on improving the lifetime of the FC and reducing their cost. Until today, a FC does not tolerate rapid variations of load that cause in most cases lifetime reducing. To reduce this defect, hybridization with electrochemical storage component (typically ultracapacitors) is generally suggested via one or two static converters, requiring the implementation of an energy management.

Aeronautic applications constitute the framework of these studies. They are the prolongation of studies initiated within the European project CELINA piloted by AIRBUS. The CELINA project (2005-2008) dealt with the replacement of the Ram Air Turbine (RAT) which is currently used for the last emergency electrical network in the case of total losses of engines or electrical generation. This emergency network has to supply the essential loads: the piloting auxiliaries (calculators...) consume a quasi-constant power, and the flight actuators (EHA, EMA) which are the main loads whose consumption is very intermittent. This study resulted in a classification of three architectures for which experimental validation in the framework of the French ISS project started since 2010 will be exposed.

The direct hybridization between a FC and ultracapacitors has the advantages of not involving static converter and provide a natural energy management. The statement of facts is that all embedded applications using FC are hybridized, architecture and strategies development is performed for each case (development of converters, control laws, etc.). This represents a significant and systematic work, which limits the implementation of FC in embedded applications. In this work, the objective is to study the feasibility of a single hybrid component acting as a power and energy source for which energy management is transparent to the user and does not require the addition of another hybridization. This work is part of collaboration with the French company HELION Hydrogen Power.

After a presentation of the insertion of FC in aeronautics centered on the direct hybridization, two major themes are approached:

- The first concerns the study of interactions between FC and ultracapacitors in a direct association according to three approaches: theoretical, experimental and simulation.
- The second concerns the experimental validation of three hybridization architectures for FC considered in previous studies in the laboratory: an architecture for which the indirect storage has its converter, an architecture with indirect storage on the DC bus and a direct hybridization architecture.

The objective of this work is to increase the level of technological Readiness level of these concepts, and to compare the different ways considered to achieve the hybridization of a fuel cell system according to specific standards.

**Key-words:** Direct, Passive, Indirect, Hybridization, Fuel Cell (FC), Ultracapacitor, Supercapacitor, Electrical Architecture, Energy Management, Power Sharing

# REMERCIEMENTS

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés au Laboratoire PLAsma et Conversion d'Énergie (LAPLACE) sur le site de l'École Nationale Supérieure d'Électrotechnique, d'Électronique, d'Informatique, d'Hydraulique et des Télécommunications (ENSEEIH) de l'Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT) au sein du groupe Groupe ENergie Électrique et Systémique (GENESYS).

Mes premiers remerciements s'adressent à Monsieur Maurice Fadel, codirecteur du LAPLACE, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et à Monsieur Xavier Roboam, pour m'avoir permis de travailler dans son équipe, -dans de très bonnes conditions.

Je remercie également les membres du jury :

- Monsieur Kodjo Agbossou, Directeur de l'École d'ingénierie et Professeur titulaire du département de Génie Électrique et Génie Informatique à l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR), membre de l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène à l'UQTR, pour avoir présidé le jury d'une manière remarquable.
- Monsieur Daniel Hissel, Professeur à l'Université de Belfort (UTBM), responsable de l'équipe "Systèmes hybrides et systèmes PAC" au FEMTO-ST (Franche-Comté Électronique, Mécanique, Thermique et Optique - Sciences et Technologies) et directeur de la fédération de recherche FCLAB (Fuel Cell Lab), pour avoir accepté la lourde tâche de rapporter ces 282 pages. Merci pour ses remarques pertinentes sur le manuscrit et les travaux et merci pour l'accueil chaleureux dont nous avons pu bénéficier lors de nos venues à Belfort.
- Monsieur Stéphane Raël, Professeur à l'Université de Lorraine (INPL) et chercheur au laboratoire GREEN (Groupe de Recherche en Électrotechnique et Électronique de Nancy), pour avoir été également rapporteur de ma thèse. Merci aussi pour ses idées et les discussions constructives autour de ces travaux.
- Monsieur Pierre-Louis Taberna, Chargé de recherche CNRS dans l'équipe Revêtements et Traitements de Surface (RTS) du CIRIMAT (Centre Interuniversitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux) pour avoir accepté d'examiner cette thèse.
- Monsieur Lucien Prisse, Docteur-Ingénieur à AIRBUS Operations et responsable du projet ISS (Innovative Solutions for Systems) dans lequel s'inscrit une partie de ces travaux, pour avoir été examinateur de ma thèse et pour nous avoir fourni une matière intéressante pour la recherche à travers ce projet ; j'espère que les collaborations et la confiance entre le LAPLACE et AIRBUS perdureront. Merci pour ses encouragements et pour m'avoir mis en confiance avant la soutenance.
- Monsieur Olivier Verdu, Ingénieur à HELION Hydrogen Power (nouvellement nommé AREVA Stockage d'Énergie) pour avoir été examinateur de cette thèse et pour avoir suivi ces travaux, pour nous avoir permis d'explorer toutes les pistes envisagées (même les plus farfelues) et pour s'être rendu disponible pour répondre à mes questions durant ces trois ans. Merci à HELION pour nous avoir fourni les piles à combustible testées

dans ce manuscrit et pour la confiance accordée à notre équipe. J'en profite aussi pour remercier André Rakotondrainibe, Docteur chez HELION, pour nous avoir fait passer une partie de ses grandes connaissances sur les monocellules et pour avoir été là pour changer rapidement les AME des cellules que j'ai pu casser lors de ces travaux. Enfin, je tiens à souligner l'excellent accueil dont nous avons pu bénéficier lors de nos venues à Aix-en-Provence.

- Monsieur Stéphan Astier, Professeur à l'Université de Toulouse (INPT), chercheur dans l'équipe GENESYS du LAPLACE et responsable de la filière Eco-Energie à l'INPT pour avoir co-encadré ces travaux. Merci pour son discours et ses idées toujours très riches, et pour nous transmettre sa passion autour des énergies et de leur impact. Je tiens à saluer la disponibilité dont il a su faire part lors de la relecture du manuscrit, les nuits blanches consacrées en valent la peine !
- Monsieur Christophe Turpin, Chargé de recherche CNRS au sein de l'équipe GENESYS du laboratoire LAPLACE, pour avoir encadré ces travaux. Tout d'abord, je dois le remercier de m'avoir accordé sa confiance dès le début de ces travaux malgré l'image d'une personne "distraite" que j'ai pu donner à l'équipe de recherche lors de mes études. Je voudrais souligner quelques aspects de l'encadrement qui ont permis de rendre ces travaux plutôt agréables et passionnants : d'un point de vue théorique, durant ces 3 années, j'ai toujours pu exprimer mes idées, les discuter longuement et remplir des tableaux jusqu'à trouver une opinion commune ; pour les manipulations, Christophe s'est démené jusqu'au bout pour nous permettre d'avoir des moyens d'essais honorables (et surtout des bâtiments). Enfin, merci pour s'être investi dans ces travaux jusqu'au bout et dans le détail et pour m'avoir transmis une partie de sa rigueur scientifique, sa motivation et sa passion autour des piles à combustible. J'ai échappé à la traditionnelle nuit blanche de relecture chez lui la veille de l'envoi du manuscrit, mais je n'ai pas échappé à plusieurs nuits blanches quand même ! J'ai pris du plaisir à réaliser ces travaux (et surtout à monter les manips), et j'espère que l'on aura l'occasion de retravailler ensemble.

Je voudrais m'excuser vis-à-vis des membres du jury pour le peu de temps que je leur ai laissé pour prendre connaissance et surtout pour rapporter ce manuscrit. *J'ai entendu dire que c'était la dernière fois dans l'équipe qu'un manuscrit sera si long et envoyé si tard...* Malgré tout, merci d'avoir accepté la mission et d'avoir émis des discussions et des rapports riches et plutôt encourageants.

Une grosse part de ces remerciements est dédiée à deux membres du TEF (Tout En Finesse) qui ont participé à l'essentiel des essais : Eric Bru pour la partie électrique et Olivier Rallières pour la partie pile à combustible. Merci pour tout ce qu'ils m'ont appris mais surtout pour la bonne ambiance de travail qui a pu régner à Labège. Merci de m'avoir appris à faire des demandes d'achat et rédiger des bons de commande. J'en profite pour prévenir les cueilleurs de champignons ariégeois : s'il n'y en a plus, il y a ici quelqu'un qui les a tous ramassés (mais j'attends de les voir).

## Remerciements

Un grand merci aussi à ceux qui m'ont aidé à réaliser ces bancs d'essais : Jean-Marc Blaquière, Sébastien Vinnac, Robert Larroche, Franck Mosser, Jacques Luga et l'incontournable Jacques Benaïou (qui est, selon moi, la personne la plus importante dans le labo car sans informaticien, rien ne fonctionne !). Merci à vous pour avoir réalisé des montages, usiné des pièces ou procuré de précieux conseils pour monter les manips.

Egalement merci aux autres membres du labo, qu'ils soient permanents, doctorants, collègues de bureau : André De Andrade, Madiha Charrada, Moustapha Debbou, Julie Egalon, Guillaume Fontès, Frédéric Gailly, Guillaume Gateau, Thomas Génévé, Jules Gillet, Sylvain Girinon, Isabelle Labach, Mathieu Lebolloch, Alexandre Leredde, Aurélien Lessage, Ana Llor, Laurianne Menard, Alaric Montenon, François Pigache, Jérémy Régnier, Rémy Rigo-Mariani, Nicolas Roux, Sébastien Sanchez, Julian Suarez, Hoan Tran, Baptiste Trajin, Nicolas Videau, Marwan Zeidan, et ceux que j'ai pu oublier.

Trois années de thèse ne se réalisent pas sans pause, c'est pourquoi il m'est essentiel de remercier mes compagnons de pause café/clope : d'abord Rémy, toujours fidèle pour la pause (sauf le matin...), puis Isabelle, Jules (tranche de brie), Julian, Thomas, et les autres !

Un mot aussi pour ceux qui m'ont supporté pendant ces trois ans et qui m'ont nourri pendant la rédaction, mes colocataires : Elise, Erwan, Sandra, Cécile, Mathieu, Lucie, Léa, Eléna, Mickaël, Olivier, Eve, et les nombreux squatteurs de l'appartement du 88 JJ... Sans oublier de remercier les amis avec qui j'ai passé beaucoup de temps, parmi eux il y a : les Angevins, les Clémentais, les Toulousains, les anciens de l'Enseeiht, les anciens colocs, les voisins (du 1<sup>er</sup>, du 6<sup>ième</sup>, mais pas ceux d'en dessous...), les cousins, les barbus, les roux, les chauves (ou juste dégarnis), les chômeurs, les actifs, leurs colocs, Rémy (le même que celui des pauses !), ceux/celles qui sont toujours au labo, ceux/celles qui viennent de Figeac ou d'ailleurs, ceux/celles rencontré(e)s par hasard, ceux/celles qui portent des lunettes, ceux/celles qui ont des grands pieds, ceux/celles qui aiment la belle brasseuse, ceux/celle qui ont/a une Clio rouge, ceux qui n'ont plus leur Clio rouge, ceux/celles qui collectionnent les statuette de grenouille...

Enfin, le dernier mot de ces remerciements s'adressera à ma famille, en quelques mots brefs mais pour une part importante : à mon père qui a su cultiver mon sens de la curiosité et du bricolage, à ma mère grâce à qui j'ai goûté aux plaisirs de la cuisine et de la couture, sans oublier mes deux frères. Merci à tous pour votre gentillesse, votre réconfort et pour tous les moments passés et à venir.

Je profite des dernières lignes de ces remerciements pour souhaiter bon courage à Thomas Génévé qui va réutiliser et reprendre une partie des bancs d'essais présentés dans ce manuscrit pour ses travaux de thèse.





# Table des matières

<b>Introduction Générale</b> .....	1
<b>CHAPITRE I : Etat de l’art sur les systèmes hybrides à base de PAC dans un contexte aéronautique</b> .....	7
<b>1.1 Etat de l’art des applications à base de PAC dans l’aéronautique</b> .....	8
1.1.1 Gros avions : piles à combustible multifonctionnelles.....	8
1.1.1.1 AIRBUS .....	11
1.1.1.2 BOEING.....	14
1.1.1.3 Le DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt).....	16
1.1.2 Propulsion électrique des petits avions .....	17
1.1.2.1 Boeing — motoplanneur Diamond HK36TTC Super-Dimona (1 place).....	17
1.1.2.2 Le DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt).....	18
1.1.2.2.1 <i>Antares H2 (1 place)</i>	
1.1.2.2.2 <i>Antares H3</i>	
1.1.2.2.3 <i>HyFish (drone)</i>	
1.1.2.3 Université de Stuttgart - Hydrogenius (2 places) .....	19
1.1.2.4 France - Apache .....	20
1.1.3 Conclusion sur les systèmes PAC pour l’aéronautique : des PAC hybridées .....	20
<b>1.2 Etat de l’art sur l’hybridation des PAC</b> .....	23
1.2.1 Hybridation indirecte des PAC.....	25
1.2.1.1 Méthodes de partage des puissances .....	25
1.2.1.1.1 <i>Méthodes directes de partage de la puissance</i>	
1.2.1.1.2 <i>Méthodes de partage par règles</i>	
1.2.1.1.3 <i>Méthodes de partage par optimisation</i>	
1.2.1.1.4 <i>Partage basés sur d’autres types de commande</i>	
1.2.1.2 Architectures d’hybridation à deux CVS .....	31
1.2.1.2.1 <i>Structure parallèle</i>	
1.2.1.2.2 <i>Structure cascade</i>	
1.2.1.2.3 <i>Conclusion sur les structures à deux CVS</i>	
1.2.1.3 Architectures d’hybridation à un seul CVS.....	34
1.2.1.3.1 <i>CVS associé à la PAC</i>	
1.2.1.3.2 <i>CVS associé aux SC</i>	
1.2.1.3.3 <i>Conclusion sur les structures à un CVS</i>	
1.2.2 Hybridations directes PAC/SC.....	36

1.2.2.1	Brevets ReliOn : présentation.....	37
1.2.2.2	Brevets Nissan : présentation et analyses .....	38
1.2.2.2.1	<i>Connexion PAC et SC</i>	
1.2.2.2.2	<i>Utilisation</i>	
1.2.2.3	Véhicules hybrides et hybridation directe.....	41
1.2.2.4	Association PAC-SC avec régulation de courant par le débit .....	43
1.2.3	Hybridation PAC/Batterie.....	44
<b>1.3</b>	<b>Conclusion.....</b>	<b>45</b>

## **CHAPITRE II : Analyses préliminaires et prospectives en vue de l'hybridation directe .....**

**47**

<b>2.1</b>	<b>Appréhension de phénomènes secondaires en vue de comprendre l'autodécharge d'une PAC hybridée ou non .....</b>	<b>48</b>
2.1.1	Phénomènes de crossover.....	49
2.1.1.1	Description et conséquences.....	49
2.1.1.2	Mesure du crossover d'hydrogène par Voltammétrie à Balayage Linéaire (VBL) ....	51
2.1.2	Réaction secondaire d'oxydation du platine - Potentiel mixte .....	53
2.1.3	Bilan des impacts de la réaction d'oxydation du platine et des phénomènes de crossover sur la tension d'une PAC .....	54
2.1.4	Réaction secondaire de corrosion du carbone .....	55
2.1.4.1	Cas des mises en gaz et arrêts .....	56
2.1.4.2	Conséquences d'appauvrissements en gaz actifs.....	59
<b>2.2</b>	<b>Etudes expérimentales prospectives avec une monocellule PAC H<sub>2</sub>/air (à respiration).....</b>	<b>60</b>
2.2.1	Mesure du crossover d'H <sub>2</sub> par VBL pour la PAC à respiration.....	60
2.2.2	Autodécharge d'une PAC à respiration seule ou hybridée.....	62
2.2.3	Précharge du SC via la PAC à respiration.....	66
2.2.4	Caractérisation fréquentielle de notre PAC à respiration seule ou hybridée avec un SC.....	68
<b>2.3</b>	<b>Etudes expérimentales prospectives avec une monocellule PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> .....</b>	<b>71</b>
2.3.1	Mesure du crossover d'H <sub>2</sub> par VBL pour la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> .....	72
2.3.2	Autodécharge de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> seule ou hybridée.....	73
2.3.2.1	Estimation préalable des fuites extérieures du système PAC.....	73
2.3.2.2	Autodécharge de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> seule .....	75

2.3.2.3	Autodécharge de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> hybridée.....	78
2.3.3	Mise en gaz de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> seule ou hybridée .....	81
2.3.3.1	Mise en gaz de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> seule .....	81
2.3.3.2	Précharge du SC par la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> avec une limitation du débit d'oxygène ou d'hydrogène .....	82
2.3.4	Arrêt de la PAC H <sub>2</sub> /O <sub>2</sub> seule ou hybridée .....	84
2.4	<b>Conclusion</b> .....	85

## **CHAPITRE III : Expérimentation et Analyse d'une hybridation directe.....**

3.1	<b>Etude du comportement d'une Cellule PAC hybridée avec un SC</b> .....	90
3.1.1	Montage Expérimental.....	91
3.1.2	Précharge du SC par la cellule PAC.....	92
3.1.2.1	Précharge du SC via une résistance (PAC sous gaz réactifs) .....	92
3.1.2.2	Précharge du SC via une connexion directe (PAC sous gaz actifs) .....	94
3.1.2.3	Précharge du SC via une montée en gaz lente de la PAC.....	96
3.1.3	Comportement de l'association hybride directe d'une cellule PAC et d'un SC face à des échelons de courant.....	98
3.1.3.1	De l'idée préconçue du partage selon les rapports des résistances électriques des composants au moment de l'échelon .....	99
3.1.3.2	Saut du point de fonctionnement de la PAC au sein de l'ensemble hybridé 1 PAC - 1SC.....	101
3.1.3.3	Régime transitoire au moment de l'échelon lié au condensateur de double couche. ....	105
3.1.3.4	Illustration des deux phénomènes sur des créneaux rapides .....	106
3.1.4	Comportement de l'association hybride 1PAC-1SC face à des Balayages sinusoïdaux en courant de forte amplitude .....	107
3.1.4.1	Impact sur la tension aux bornes de la monocellule PAC .....	107
3.1.4.2	Impact sur le courant de la monocellule PAC.....	109
3.1.5	Plan de Ragone ou diagramme Energie-Puissance.....	110
3.1.5.1	Plan limite de Ragone d'un SC.....	111
3.1.5.2	Application au cas de l'hybridation directe.....	114
3.1.5.3	Reconstitution de l'évolution temporelle de la tension aux bornes de la PAC hybridée.....	115
3.2	<b>Etude du comportement d'une association hybride avec deux cellules PAC et deux SC</b> .....	117

3.2.1	Mise en parallèle fluïdique de cellules PAC .....	117
3.2.2	Architecture électrique d'une hybridation de 2 cellules PAC et 2 SC .....	120
3.2.3	Comportement du point milieu face à différentes excitations électriques .....	121
3.2.3.1	Comportement du point milieu face à des créneaux de courant BF .....	121
3.2.3.2	Comportement du point milieu face à des créneaux de courant HF .....	125
3.2.3.3	Comportement du point milieu face à des excitations de courant sinusoïdales et de forte amplitude .....	125
<b>3.3</b>	<b>Etude du comportement d'une association hybride avec 4 cellules PAC et 2 ou 4 SC .....</b>	<b>126</b>
3.3.1	Mise en œuvre fluïdique et autres .....	127
3.3.2	Mise en œuvre électrique .....	129
3.3.3	Approche énergétique en fonction du nombre de SC .....	131
3.3.4	Précharge des SC .....	132
3.3.4.1	Etude de la précharge des SC dans le cas de 4 PAC associées avec 2 SC .....	133
3.3.4.2	Etude de la précharge des SC dans le cas de 4 PAC associées avec 4 SC .....	140
3.3.5	Caractérisations électriques de l'association de 4 PAC avec 2 SC ou 4 SC .....	141
3.3.5.1	Réponse de l'hybridation de 4 PAC avec 2 ou 4 SC à des échelons de courant .....	142
3.3.5.2	Réponse de l'hybridation de 4 PAC avec 2 ou 4 SC à des balayages en courant sinusoïdaux et de forte amplitude .....	146
3.3.6	Décharge forcée des SC dans une association à 4 PAC et 2 ou 4 SC .....	148
<b>3.4</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>153</b>

## **CHAPITRE IV : Simulation et analyse d'une hybridation directe** ..... 157

<b>4.1</b>	<b>Modélisation et paramétrisation associée d'une cellule PAC .....</b>	<b>158</b>
4.1.1	Rappel du modèle dynamique fort signal d'une PAC et du modèle d'impédance qui en découle .....	158
4.1.2	Procédure de paramétrisation du modèle dynamique fort signal suivie .....	160
4.1.3	Protocole expérimental pour obtenir les données expérimentales nécessaires à la paramétrisation du modèle dynamique fort signal .....	162
4.1.4	Application de la première étape d'identification des paramètres du modèle : approches multispectres d'impédance. ....	163
4.1.4.1	Paramètres à identifier .....	163

4.1.4.2	Influence du nombre de spectroscopies d'impédance utilisées pour la paramétrisation.....	164
4.1.4.3	Paramètres identifiés à l'issue de l'approche multispectre .....	165
4.1.5	Application de la seconde étape d'identification des paramètres du modèle : couplage à la courbe de polarisation.....	168
4.1.6	Implantation du modèle dynamique fort signal d'une cellule PAC.....	169
4.1.6.1	Traitement des puissances non entière.....	170
4.1.6.2	Résistance électrique retenue .....	170
4.1.6.3	Densités de courants limites retenues.....	171
4.1.7	Application de la troisième étape de la procédure d'identification paramétrique : validation du modèle avec des balayages sinus de fortes amplitude .....	172
<b>4.2</b>	<b>Modélisation et paramétrisation d'un supercondensateur.....</b>	<b>174</b>
4.2.1	Limitations du modèle RC classique.....	174
4.2.2	Rapide état de l'art de la modélisation de SC .....	174
4.2.2.1	Modèle de SC à branches capacitives.....	175
4.2.2.1.1	<i>Modèles linéaires</i>	
4.2.2.1.2	<i>Modèles non linéaires</i>	
4.2.2.2	Modèles de SC par ligne de transmission .....	176
4.2.2.2.1	<i>Modèle de F. Belhachemi</i>	
4.2.2.2.2	<i>Modèle de W. Lajnef</i>	
4.2.2.3	Modèles fréquentiels de SC .....	177
4.2.3	Choix d'un modèle de supercondensateur pour nos travaux.....	178
4.2.4	Caractérisation et paramétrisation du modèle retenu pour le SC.....	178
4.2.5	Validation du modèle.....	180
<b>4.3</b>	<b>Modélisation du câblage .....</b>	<b>181</b>
<b>4.4</b>	<b>Conclusion sur la modélisation des différents composants.....</b>	<b>182</b>
<b>4.5</b>	<b>Simulation de l'hybridation directe.....</b>	<b>183</b>
4.5.1	Observation à l'échelle des temps "longs" (qq 10s) du comportement de la simulation .....	183
4.5.2	Observation à l'échelle de temps "courts" du comportement de la simulation..	185
4.5.2.1	Mise en évidence d'une certaine finesse de la modélisation .....	185
4.5.2.2	Rôle des phénomènes de double couche dans le cas hybridé et non hybridé.....	186
4.5.3	Observation à des échelles de temps intermédiaires (qq 10ms à qq 100ms) du comportement de la simulation.....	188
4.5.4	Analyse théorique du système hybride par une approche de linéarisation.....	191
4.5.4.1	Mode dominant lent pour un système hybride 2 PAC/2 SC.....	192
4.5.4.2	Répartition théorique du courant à l'instant de l'échelon .....	192
4.5.5	Influence du point milieu.....	193
4.5.6	Conclusion sur la simulation de l'hybridation.....	195

<b>4.6 Conclusion du chapitre.....</b>	<b>196</b>
----------------------------------------	------------

## **CHAPITRE V : Essais de systèmes hybrides PAC/SC pour le projet ISS à puissances significatives ..... 199**

<b>5.1 Approche théorique, projet ISS.....</b>	<b>200</b>
5.1.1 Contexte de l'étude : projets CELINA et ISS.....	200
5.1.2 Objectifs du projet CELINA .....	204
5.1.3 Résumé de l'étude théorique menée dans CELINA .....	204
5.1.3.1 Descriptif théorique du système.....	205
5.1.3.1.1 <i>Principe de partition fréquentielle de la puissance</i>	
5.1.3.1.2 <i>Définition des architectures</i>	
5.1.3.2 Dimensionnement par simulation .....	211
5.1.3.2.1 <i>Dimensionnement pour un cas idéal, sans pertes</i>	
5.1.3.2.2 <i>Impact des pertes dans le système</i>	
5.1.3.2.3 <i>Conclusion sur le dimensionnement par simulation</i>	
<b>5.2 Mise en œuvre matérielle des essais .....</b>	<b>215</b>
5.2.1 Description des installations, matériels et spécifications.....	215
5.2.1.1 Locaux et installations.....	216
5.2.1.2 Banc d'essais modulaire reconfigurable.....	217
5.2.1.3 Emulations. Supervision. Sécurité.....	219
5.2.1.3.1 <i>Pilotage du banc : supervision</i>	
5.2.1.3.2 <i>Choix d'un profil de mission</i>	
5.2.2 Emuler une PAC .....	224
5.2.3 Précharger le stockage .....	226
5.2.4 Présentation et commande des CVS à haut gain en tension .....	228
5.2.4.1 CVS associé au stockage : CVS-STO.....	229
5.2.4.2 CVS associé à la PAC : CVS-PAC .....	229
5.2.4.3 Compensation des pertes .....	230
5.2.4.4 Pilotages V-I .....	231
5.2.5 Choisir les supercondensateurs de stockage .....	234
5.2.5.1 Choix d'une tension de référence, équilibrage des SC. ....	234
5.2.5.2 Mise en série de modules SC.....	237
5.2.5.3 Mise en parallèle de modules SC .....	238
5.2.6 Conclusion sur la mise en œuvre matérielle.....	239
<b>5.3 Mise en œuvre du pilotage énergétique retenu .....</b>	<b>239</b>
5.3.1 Problématique du démarrage du filtrage fréquentiel .....	240

5.3.2	Compensation des pertes par estimation.....	241
5.3.3	Boucle de recharge par niveaux .....	243
5.3.4	Pilotages modifiés avec compensation des pertes.....	246
5.3.4.1	Architecture n°1-1 : le CVS-PAC régule la tension de bus .....	246
5.3.4.2	Architecture n°1-2 : le CVS-STO régule la tension de bus.....	247
5.3.4.3	Architecture n°2 : le CVS-PAC régule la tension de bus .....	248
5.3.5	Validation expérimentale : tests aux limites .....	248
5.3.5.1	Commutation des filtres lors du démarrage .....	249
5.3.5.2	Régulation de l'état de charge du stockage .....	249
5.3.5.3	Compensation des pertes .....	251
5.4	<b>Essais avec une Pile à combustible réelle</b> .....	253
5.4.1	Architecture n°1-1 : le CVS-PAC régule la tension de bus.....	253
5.4.2	Architecture n°1-2 : le CVS-STO régule la tension de bus.....	257
5.4.3	Architecture n°2 .....	260
5.4.4	Architecture n°3 : hybridation directe .....	262
5.4.4.1	Position optimale de la charge et du stockage .....	262
5.4.4.2	Résultats d'hybridation sur le profil .....	264
5.4.5	Comparatif entre les architectures .....	266
5.5	<b>Conclusion</b> .....	269
	<b>Conclusion Générale</b> .....	271

**Annexe 1 :**

*Modèles d'une PAC*

**Annexe 2 :**

*Protocole expérimental permettant la paramétrisation du modèle dynamique fort signal d'une PAC*

**Annexe 3 :**

*Retour d'expérience sur le stockage dédié au projet ISS*

**Références bibliographiques**

# Introduction générale



La fin pressentie (plus ou moins proche suivant les estimations) de l'ère pétrolière et l'impact de celle-ci sur l'environnement contraignent le monde de la recherche, mais aussi les industriels, à envisager de nouvelles solutions, si possible « durables ». Dans ce contexte l'hydrogène, utilisé en tant que vecteur d'énergie, est de plus en plus à l'ordre du jour. Vu du consommateur, il propose des propriétés similaires à celles offertes par les matières fossiles dans le sens où la réserve d'énergie est un stock transportable, dont l'exploitation peut-être totalement dissociée de la puissance. Si l'hydrogène peut être perçu, dans une certaine mesure, comme un homologue des combustibles fossiles, il s'en distingue notamment par trois traits majeurs : il est gazeux en conditions ambiantes donc moins « commode » à manipuler, mais en contrepartie il peut être transformé directement, via une pile à combustible, en énergie électrique plus facilement exploitable, et peut être produit directement à partir d'énergie électrique via un électrolyseur d'eau. Plus généralement, la nécessité de produire l'hydrogène, non disponible à l'état pur dans la nature, avant de pouvoir l'utiliser, conduit à le classer comme un vecteur énergétique et non comme source primaire d'énergie, au même titre que l'électricité dont il apparait complémentaire. Il est en effet possible de le produire lors d'un surplus de production électrique, puis de le stocker et éventuellement de le transporter, pour le consommer plus tard et/ou ailleurs. Le caractère « écologique » de ce nouveau vecteur énergétique peut être très fort puisque sa consommation émet comme seuls « déchets » de l'eau et de la chaleur, et que sa production peut, elle aussi, être envisagée avec de très faibles émissions de gaz à effet de serre, par exemple par association d'un électrolyseur d'eau aux sources photovoltaïques ou éoliennes. Outre cette empreinte écologique réduite, l'association pile à combustible/réservoir d'hydrogène offre des possibilités de dimensionnement au moins similaires à celles proposées par un assemblage moteur à combustion/réservoir de carburant. Ainsi, pour une application embarquée, il est tout à fait possible de dimensionner la taille du réservoir (d'essence ou d'hydrogène) indépendamment de la puissance du convertisseur (moteur à combustion ou pile à combustible). Pour les applications embarquées, l'hydrogène est le seul vecteur énergétique nouvellement envisagé pour un déploiement de masse offrant ce découplage énergie/puissance de manière aussi forte, contrairement par exemple aux organes de stockage tels que les batteries d'accumulateurs usuelles pour lesquelles les propriétés en énergie et en puissance sont étroitement couplées au sein du même composant.

La faisabilité des systèmes à base de piles à combustible (l'abréviation PAC sera utilisée dans ce document) n'est plus à prouver. Des démonstrateurs allant de la simple cellule à l'empilement de cellules (que l'on appelle stack), de quelques 100mW à quelques MW ont déjà fait leurs preuves. Malgré l'intérêt écologique potentiel et les possibilités de dimensionnement offertes pour un large panel d'applications, des verrous freinent encore le développement effectif des piles à combustible. La durée de vie et le coût des systèmes PAC demeurent les principaux défis.

Bien que ces systèmes atteignent des durées de vie honorables (>10 000 heures) pour des utilisations à régime constant, celles-ci se réduisent notablement dès que l'utilisation devient fluctuante ou intermittente. Par nature, une PAC est en effet très sensible aux conditions opératoires, c'est-à-dire aux pressions, débits, humidités des gaz, températures des cellules... Afin de contrôler ces grandeurs, les systèmes usuels emploient des auxiliaires, conduisant à

relier fortement les dynamiques de charge admissibles sur la PAC à celles de ses auxiliaires. La plupart des applications embarquées requièrent une disponibilité de puissance variable (accélérations rapides, variations de vitesse, freinages pour le cas de l'automobile) qui n'est pas toujours admissible par le système PAC ou alors au détriment de sa longévité. Pour pallier cette difficulté, la majorité de ces applications ont recours à l'hybridation dont le principe consiste à associer un organe supplémentaire de stockage d'électricité (typiquement des supercondensateurs et/ou une batterie d'accumulateurs) à la pile à combustible et à définir une gestion d'énergie permettant un partage avantageux de la puissance électrique entre la PAC et cet organe [TUR-12], [TUR1-12].

Dans ce sens, les travaux de cette thèse visent in fine à contribuer à l'augmentation de la durée de vie des systèmes à PAC via l'hybridation.

Par ailleurs, le monde de l'aéronautique est, lui aussi, fortement interpellé pour réduire ses nuisances (émissions de gaz à effet de serre, nuisances sonores, etc.). A cet égard, l'introduction de systèmes à PAC commence à être envisagée pour différentes applications dans les avions, particulièrement dans le contexte de l'avion plus électrique (« More Electrical Aircraft »), pour lequel les besoins en énergie électrique sont amenés à augmenter.

Un avion peut être soumis à diverses pannes qui doivent rester acceptables. Dans l'A380 notamment, la génération électrique de secours est assurée par une turbine éolienne (RAT-Ram Air Turbine) qui se déploie et assure la production d'électricité en cas de panne. Compte tenu de la production très variable exigée (liée essentiellement aux actionneurs électriques des commandes de vol), une première étude au laboratoire [LAN-06] s'est attachée à étudier l'hybridation de cette RAT par des supercondensateurs. Cette hybridation a pour but de soulager cet organe, mais aussi de permettre une augmentation future de la puissance à fournir par la RAT. En effet, l'hybridation de la RAT permet de ne plus la dimensionner pour la puissance maximale à fournir, mais pour la puissance moyenne. Ou encore, à dimensionnement en puissance égal à l'existant, l'hybridation de la RAT permet de fournir des pics de puissance plus importants.

Plus ambitieux serait de remplacer la RAT par un système PAC hybridée, une question et des réflexions dans lesquelles le laboratoire a été impliqué via les travaux de [GAR-07]. L'application de secours pourrait ainsi constituer une des premières introductions de PAC dans les avions gros porteurs. Plus généralement, l'introduction de PAC dans les avions permet d'envisager de nouvelles fonctions telles que le roulage au sol sans consommation d'énergies fossiles (« green taxi ») ou encore la réutilisation des « déchets » usuels d'un système à PAC comme la chaleur pour le dégivrage des ailes, l'eau produite pour les sanitaires ou l'air appauvri en oxygène pour l'inertage des réservoirs de kérosène.

L'étude [GAR-07] a porté, plus exactement, sur le remplacement de la RAT en proposant trois architectures d'hybridation de PAC par des supercondensateurs (l'abréviation SC sera utilisée dans la suite) à bus continu : une première architecture à deux convertisseurs statiques, une seconde architecture avec les SC directement connectés au le bus continu et une troisième architecture avec les SC placés directement aux bornes de la PAC appelée hybridation

« directe ». Cette dernière solution est très peu répandue dans la littérature et à l'issue de l'étude [GAR-07], plusieurs questions sur la mise en œuvre ont été laissées en suspens, notamment sur l'hybridation directe : partage effectif des puissances, interactions entre les composants, équilibrage entre les cellules, impact sur la durée de vie, etc.

Parallèlement à ces travaux, depuis 2000, le laboratoire LAPLACE s'intéresse de près à la caractérisation et à la modélisation des PAC de type PEM (Proton Exchange Membrane), en particulier pour les PAC alimentées en gaz purs  $H_2/O_2$ . Initiée par [MER-02], une modélisation utilisant notamment les formalismes Bond Graph ou de type circuits électriques a été affinée au fil des années par [SAI-04], puis positionnée clairement en lien avec les phénomènes physiques mis en jeu par [FON-05]. Enfin, d'autres études telles que [ZEI-11] et [RAL1-11] ont étendu ce modèle aux PAC alimentées en  $H_2$ /Air. La généralisation de ce modèle aux électrolyseurs de type PEM, entamée par [TUR-08], [RAB-08], a été approfondie par [RAL1-11].

L'expérience du laboratoire dans la modélisation des PAC et les questionnements sur l'hybridation directe ont ainsi constitué le terreau des travaux de la présente thèse. En effet, il n'est pas facile de percer les fonctionnements internes complexes d'un composant tel qu'une pile à combustible, même si des méthodes existent pour effectuer des études locales ou segmentées. La possibilité de recourir à cette modélisation globale, mais phénoménologique, d'une pile à combustible doit pouvoir nous aider dans la compréhension des phénomènes mis en jeu lors des interactions entre PAC et SC.

Ainsi un premier grand volet des travaux présentés dans ce manuscrit, s'attache à étudier finement les interactions entre les éléments lors d'une hybridation directe en s'appuyant sur l'expérience du laboratoire en matière de modélisation des PAC. Malgré tout, compte tenu de la difficulté de la thématique, l'analyse par l'expérimentation constituera le premier socle de nos travaux.

Le second grand volet est consacré à la validation expérimentale des trois architectures d'hybridation d'une PAC par des SC retenues dans l'étude de [GAR-07], mettant notamment en œuvre une hybridation directe. Un intérêt particulier sera porté à cette dernière en écho au premier volet de ces travaux. Ce second volet permet de faire le lien entre l'expérimentation sur les PAC et les études sur l'insertion de systèmes PAC en aéronautique au laboratoire (qui n'avaient été jusqu'alors que théoriques). De plus, il a permis l'expérimentation sur une PAC d'une puissance supérieure au kW ; ce qui constitue également une première pour les essais dans les locaux du laboratoire.

Conformément aux différents volets traités, ce mémoire de thèse se décompose en cinq chapitres :

- CHAPITRE I : Etat de l'art sur les systèmes hybrides à base de PAC dans un contexte aéronautique.
- CHAPITRE II : Analyses préliminaires et prospectives en vue de l'hybridation directe.

- CHAPITRE III : Expérimentation et analyse d'une hybridation directe.
- CHAPITRE IV : Simulation et analyse d'une hybridation directe.
- CHAPITRE V : Essais de systèmes hybrides PAC/SC pour le projet ISS à puissances significatives.

Ce mémoire (dont la majeure partie est constituée d'expérimentations) s'adresse à un public averti. Ainsi, le principe de fonctionnement d'une PAC, son historique ou encore son état de l'art technologique actuel, qui sont des sujets déjà très largement traités par ailleurs, ne seront pas repris ici. En revanche, l'état de l'art de l'introduction des systèmes PAC en aéronautique est un sujet encore peu courant dans la littérature et introduit bien le contexte de nos travaux : nous lui avons dédié une partie du premier chapitre.

La première partie du chapitre I s'attache donc à expliquer comment et pourquoi l'introduction de systèmes PAC dans les avions semble une étape intéressante dans l'avenir de l'aéronautique. La course pour faire voler des systèmes PAC de plus en plus puissants est déjà lancée ! Un descriptif non exhaustif des moyens mis en œuvre par les industriels, mais aussi par le monde de la recherche, pour faire voler des systèmes PAC allant de l'assistance électrique sur des gros avions à la propulsion de petits avions, est livré.

Partant du constat que toutes ces applications embarquées sont hybridées, la seconde partie du chapitre I portera sur un état de l'art argumenté de l'hybridation des systèmes PAC avec des SC depuis les solutions à plusieurs convertisseurs jusqu'à celles sans convertisseur (hybridation directe).

Les chapitres II, III et IV sont centrés sur les interactions fines entre composants lors d'une hybridation directe. Le support de travail est alors la monocellule qui permet de réaliser des essais à moindres risques et moindres frais qu'avec un stack. Un des objectifs a été, malgré tout, de tendre vers l'émulation d'un stack à l'aide de monocellules en série. Le montage réalisé permet de nombreuses mesures sur chaque cellule et des connexions facilitées par un encombrement qui n'est pas réduit au minimum, ce qui aurait été difficile avec un stack.

Le chapitre II détaille des travaux préliminaires très prospectifs en lien avec l'hybridation directe. Ils ont constitué un premier pas visant à permettre par la suite la mise en œuvre d'essais plus représentatifs. En particulier, les phases précédant (phases de mise en gaz) et succédant (phases d'arrêt) l'hybridation proprement dite sont étudiées. Divers mécanismes tels que les phénomènes de crossover ou d'oxydation du carbone, pouvant jouer un rôle dans l'hybridation directe, sont discutés à travers ce chapitre. En premier lieu, c'est une monocellule à respiration (moins onéreuse et plus simple à mettre en œuvre) qui a servi à la prospection lors de ces essais, puis une monocellule  $H_2/O_2$  identique à celles utilisées dans les chapitres suivants pour permettre une mise en regard plus aisée.

Le chapitre III portera sur l'étude des interactions entre les composants d'une hybridation directe. Cette étude est segmentée en trois étapes allant de la monocellule unique hybridée à l'association série de 4 cellules hybridées en passant par une association série de 2 cellules hybridées. Dans le cas d'au moins deux cellules en série, deux cas d'hybridation ont été évalués : soit un SC par cellule, soit un SC pour deux cellules pile à combustible. Dans chaque

partie, le partage des courants suivant différents profils (échelons, sinus,...) est analysé à différentes échelles de temps (ms ou s), ainsi que les diverses phases d'une hybridation : mise en gaz, utilisation, arrêt. Ce chapitre suit l'évolution temporelle des essais, et donc l'évolution du banc d'essais suite aux conclusions de chaque campagne de tests précédente.

Enfin, le chapitre IV permet de confronter certaines observations du chapitre III avec la simulation. Dans ce chapitre, le modèle développé au laboratoire depuis plus d'une décennie est appliqué aux monocellules utilisées. Une caractérisation et une modélisation des SC sont effectuées plus modestement. En première partie de ce chapitre, le protocole d'identification des paramètres permettant d'arriver à cette modélisation fine de la PAC est explicité, puis appliqué. Ce chapitre a pour but d'une part, d'éprouver ce modèle de pile à combustible dans le cas d'une association directe de deux composants électrochimiques où l'on s'intéresse à plusieurs échelles de temps (de l'ordre de la ms mais aussi de l'ordre de la seconde), et d'autre part, de comprendre la manière dont s'opère le partage des courants entre les composants et d'appréhender les dégradations possibles lors de ces interactions.

Enfin, le projet européen MOET (More Open Electrical Technologies) consistait notamment à imaginer le réseau électrique pour les avions de demain, allant jusqu'à 1MW, ainsi que l'électronique de puissance associée. Le laboratoire s'est d'abord impliqué dans cette thématique avec les travaux de [BAU-09]. Ce projet s'est en partie prolongé en France et a donné lieu au projet ISS (Innovative Solutions for Systems), dont l'ambition est, entre autres, de valider différents éléments pour ce nouveau réseau électrique. Un point particulier du projet ISS est dédié à la mise en œuvre et l'exploitation d'essais expérimentaux autour des architectures d'hybridation de PAC retenues dans l'étude de [GAR-07] menée dans le cadre du projet européen CELINA (fuel CELL application In a New configured Aircraft). Le chapitre V est dédié à ces travaux de validation expérimentale autour des systèmes PAC hybrides.

Le dernier chapitre décrit les moyens mis en œuvre pour permettre ces essais, matériels et logiciels. Sont ainsi décrites la réalisation des architectures retenues et les dimensions des expérimentations compte tenu du matériel disponible. Il s'agit notamment de définir un profil de mission réaliste mais aussi adapté à la capacité de stockage disponible. Il s'agit aussi de permettre le pilotage énergétique souhaité via les différents convertisseurs par une supervision unique. Une telle expérimentation ne peut raisonnablement pas se faire sur une PAC réelle du premier coup ; c'est pourquoi un émulateur de PAC à échelle 1:1 a été déployé pour valider les essais à venir avec la vraie PAC. Enfin, les résultats obtenus pour chaque architecture soumise à un profil de mission identique, avec stack réel, sont présentés et confrontés à ceux des simulations.

Précisons que bien que ce mémoire soit en français, nous avons choisi de rédiger tous les textes des figures en anglais, afin d'en permettre une valorisation plus facile dans le cadre de communications internationales.

# CHAPITRE I

Etat de l'art sur les systèmes  
hybrides à base de PAC dans un  
contexte aéronautique

## **1.1 Etat de l'art des applications à base de PAC dans l'aéronautique**

Selon un rapport de l'Union Européenne [REN-10], le transport aérien est aujourd'hui responsable d'environ 2% des émissions mondiales de CO<sub>2</sub>. Ce chiffre est en augmentation et va probablement atteindre la part de 3,5% d'ici 2020 étant donnée la croissance prévue du trafic aérien (entre 5 et 6% par an). Dans ce contexte, il y a une pression constante sur les avionneurs pour améliorer l'efficacité, notamment énergétique, de leurs avions et réduire leur impact environnemental. Les objectifs environnementaux européens qui ont été fixés par le conseil consultatif pour la recherche aéronautique en Europe (ACARE - the Advisory Council for Aeronautics Research in Europe) d'ici l'horizon 2020 sont [MUL-08] (par rapport à une base des émissions et nuisances de l'année 2000 [ACA-10]) :

- une réduction des émissions de CO<sub>2</sub> de 50%
- une réduction des émissions d'oxydes d'azote NO<sub>x</sub> de 80%
- une réduction des nuisances sonores externes de 50%
- aucune personne impactée par l'aéroport en dehors de ses limites
- fabrication, maintenance et entretien écologiques (« matériaux verts »).

Avec le développement de l'avion plus électrique [WEI-93] notamment porté par le projet Européen MOET (More Open Electrical Technologies), les besoins en énergie électrique d'un avion sont appelés à augmenter principalement grâce aux avancées récentes de l'électronique de puissance [ROS-07]. Ce développement de l'énergie électrique dans l'aéronautique ouvre de nouvelles voies à la réalisation de ces objectifs et notamment à une production d'électricité moins polluante. C'est dans ce contexte que les constructeurs travaillent à l'introduction des piles à combustible (PAC) dans l'aéronautique.

*« Les applications des piles à combustibles sont un point clé de la stratégie environnementale à long terme de l'aviation »*

Joe Breit, Boeing Commercial Airplanes [ROS-12]

*« Les piles à combustible sont un des changements technologiques les plus prometteurs et Airbus voit un potentiel élevé dans leurs applications vers une réduction significative des émissions de gaz, de la consommation et du bruit extérieur »*

Airbus company [ROS-12]

Ce paragraphe présente différentes applications des piles à combustible dans l'aéronautique de la génération électrique pour les auxiliaires à bord des avions de ligne à la propulsion de petits avions.

### **1.1.1 Gros avions : piles à combustible multifonctionnelles**

De nombreux avantages à utiliser des piles à combustible dans les avions de ligne se dégagent. Hormis la génération électrique qui est détaillée plus loin, les sous-produits générés

par des PAC, habituellement considérés comme des « déchets », pourraient trouver leur utilité dans les avions de ligne.

Tout d'abord le rendement moyen des PAC de type PEM (Proton Exchange Membrane) est d'environ 50% en utilisation nominale, c'est-à-dire que la production de chaleur est proche de la puissance électrique. Or à l'heure actuelle, dans la plupart des avions, la chaleur nécessaire à dégivrer les ailes est prélevée sur le réacteur ; celle-ci pourrait être remplacée par celle fournie par la PAC, ce qui représenterait la principale utilisation de cette chaleur. De plus cette chaleur pourrait être, entre autres, utilisée pour réchauffer le kérosène et pour les commodités telles que chauffer l'eau des toilettes, chauffer les boissons ou les fours alimentaires [PRA-11]. L'habitacle a quant à lui, plutôt besoin d'être refroidi compte tenu de la chaleur dégagée par les passagers, celle du compresseur de pressurisation et des faibles déperditions thermiques des avions.

Ensuite, par son principe de fonctionnement, une PAC produit de l'eau qui pourrait être utilisée. Un système PAC pour un gros avion pourrait produire environ 50 litres d'eau par heure [REN-10], production qui pourrait être utilisée pour les toilettes et la climatisation, réduisant ainsi la quantité d'eau qui doit être embarqué dans l'avion. Selon une étude [BRO-11], l'économie d'un kg dans l'équipement permet d'alléger la structure de l'avion et les moteurs et peut permettre une économie de 600g supplémentaire, donc un gain de 1,6kg potentiel pour chaque kg en moins ; ce qui permet une consommation en carburant de l'avion plus faible. Par exemple dans l'étude proposée par [MUL-08] pour chaque 1kg économisé donc également pour chaque 1L d'eau en moins au décollage, l'avion pourrait emporter 0,16kg de kérosène en moins pour réaliser la même mission (Vol commercial de San-Francisco à New-York soit 4139 km avec un Boeing 787-8). L'affranchissement d'un kg supplémentaire dans l'équipement peut conduire à une réduction de coûts d'utilisation d'environ 4500 \$ sur une exploitation de 20 ans d'un avion de moyenne taille [HEI-10].

Enfin, les gaz d'échappement à la cathode d'une pile à combustible  $H_2$ /Air sont constitués d'air appauvri donc essentiellement d'azote. Or actuellement, les réglementations exigent que les avionneurs réduisent les risques d'inflammation des réservoirs [FAA-05]. Ainsi la principale solution mise en place est le remplacement de l'air des réservoirs de kérosène à moitié vides par un gaz inerte (de l'azote), cela afin d'éviter l'allumage des vapeurs de carburant. L'azote peut être embarqué depuis le sol ou plus couramment généré à bord à partir de l'air ambiant avec par exemple un système OBIGGS (OnBoard Inert Gas Generation System) [BUR-04]. Le remplacement de ces systèmes d'approvisionnement en gaz inerte par l'air appauvri en oxygène issu de la PAC pourrait être envisagé.

Cependant l'intégration d'un système pile à combustible dans un avion commercial nécessite de répondre à des caractéristiques spécifiques propres à l'aéronautique [SCH-05]:

- Le traitement du combustible à bord, à savoir le stockage de l'hydrogène s'il est embarqué ou son reformage s'il est produit à partir du kérosène.
- Le respect des normes et exigences aéronautiques
  - Un faible poids du système / densité de puissance élevée.
  - La surveillance et le contrôle de l'installation.
  - Une haute fiabilité et robustesse du système.



- Des conditions d'exploitation liées à l'environnement :
  - Une grande variation des pressions et des températures extérieures, jusqu'à 41,000 ft (soit 12500m) 0,18 bar, -57 ° C
  - Les manœuvres de l'avion (inclinaisons, vibrations, accélérations, etc.).

La puissance électrique installée à bord des avions connaît une croissance importante : de 180kW sur l'A320 à 800kW prévus sur son remplaçant et plus de 1MW sur les future versions de l'A380 et du B787 [PIP-09]. A l'heure actuelle, les ordres de grandeur des puissances des différents systèmes de génération électrique installés dans un avion de moyenne taille (environ 300 passagers pour la gamme A330 A340) sont donnés dans le **Tableau I.1** extrait de [LAN-06].

Systeme	Puissance nominale
Génération principale (somme des IDG - Integrated Drive Generator ou VFG - Variable Frequency Generator)	≈ 300 kVA
Génération auxiliaire (APU - Auxiliary Power Unit)	≈ 150 kVA
Génération secours (RAT - Ram Air Turbine)	≈ 50 kVA
Génération secours (chaque Batterie - 2 à 4)	≈ 40 Ah (24 à 28Vdc)

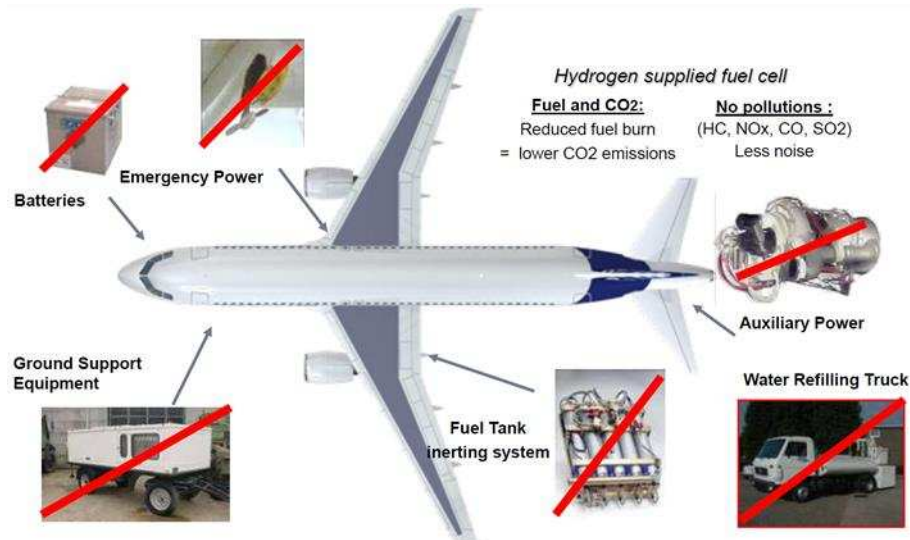
**Tableau I.1** : Puissance approximative des systèmes de génération d'un avion de 300 passagers

Un avion peut être soumis à diverses pannes et notamment une perte totale des moteurs ou de la génération électrique. Ces pannes doivent naturellement rester acceptables [MEH-89]. Dans la majorité des gros avions, une turbine éolienne (RAT- Ram Air Turbine) est alors déployée pour assurer la production d'électricité et alimenter un réseau de secours [BOL-09]. La première idée est de remplacer cette source de secours (qui est le plus faible des systèmes de génération électrique) par une pile à combustible. Cependant l'utilisation d'une pile à combustible en tant que source de dernier secours génère quelques inconvénients, entre autres : nécessité d'inertage pour préserver la durée de vie de la PAC, temps de sortie d'inertage conséquent, difficulté d'exploiter les multifonctionnalités exprimées au paragraphe précédent pour une utilisation en secours, etc. C'est pourquoi les études sur les applications dans l'aéronautique des piles à combustible dépassent le seul cas du groupe de secours [CUR-10]. Une pile à combustible pourrait remplacer la turbine à gaz qui réalise actuellement la fonction APU (Auxiliary Power Unit) qui alimente l'avion en électricité lorsque celui-ci est au sol. Cela permettrait de diminuer le bruit et les émissions en gaz de l'avion au sol. [EID-10] propose un système hybride pile à combustible/batterie pour réaliser cette fonction. Plus prospectivement encore, [RAJ-08] étudie l'hybridation d'une pile à combustible haute température et d'une turbine pour cet APU. En Allemagne, le projet ELBASYS étudie diverses applications autour de piles à combustible [WÖR-09], entres autres : groupe de secours, système pile à combustible multifonctions (électricité, eau, inertage), « green taxi » au sol. L'intégration de nouvelles fonctions telles que les roues avant électriques alimentées par piles à combustible pourrait réduire de 19% les émissions en CO<sub>2</sub> des aéroports : par exemple, les potentielles économies grâce aux roues avant à propulsion électriques sur les Airbus A320 sont estimées à 44 tonnes de

kérosène par jour pour l'aéroport de Frankfurt. La plupart du bruit serait également éliminé durant les phases de roulage [ROS-12].

D'après Boeing et extrait de [SCH-05], l'implantation de systèmes à pile à combustible en remplacement des APU pourrait réduire la consommation en kérosène de 75% au sol et de 40% en vol pour réaliser cette même fonction.

La **Figure I.1** illustre quelques avantages et l'autonomie vis-à-vis des aéroports que les avionneurs pourraient dégager de l'intégration de systèmes à pile à combustible dans les avions.

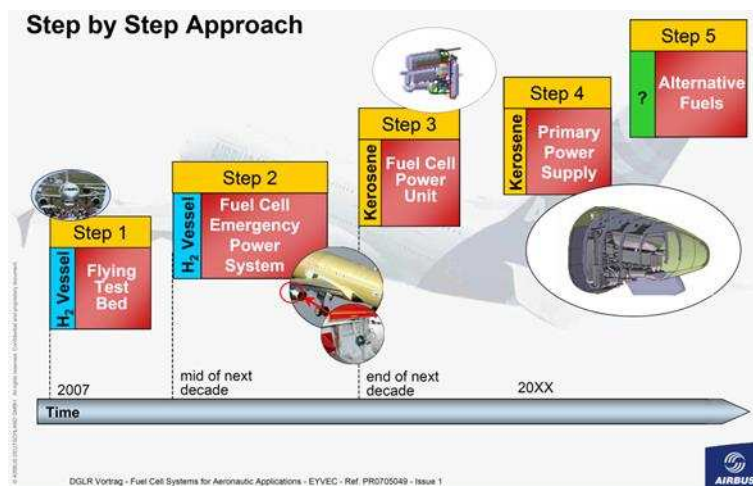


**Figure I.1** : Illustration des intérêts de l'intégration des systèmes pile à combustible dans l'aéronautique [LAV-11]

Un recensement non exhaustif des études concernant l'implantation de systèmes piles à combustible en aéronautique des grands constructeurs est détaillé ci-après.

### 1.1.1.1 AIRBUS

Airbus a lancé un grand plan d'études sur l'intégration des piles à combustible dans les avions à la fois sur les piles de type PEM (Proton Exchange Membrane) et sur les piles de type SO (Solid Oxide) dont la stratégie est donnée en **Figure I.2**. Cette stratégie date de 2006, il est donc possible que les dates et les étapes aient été légèrement modifiées depuis : l'étape n°1 initiée en 2007 a été achevée par le DLR (Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt — "Centre allemand pour l'aéronautique et l'aérospatiale") et Michelin en 2008 [KAL-10] dans le cadre du projet ELBASYS. Etant donnée la concurrence dans ce domaine, il n'est pas étonnant que les constructeurs ne communiquent pas trop sur leurs avancées récentes ; il est en effet difficile de trouver des informations précises sur ce sujet.



**Figure I.2** : Stratégie de développement des systèmes pile à combustible d'airbus [HIE-06]

Les étapes 1 et 2 de l'intégration des systèmes à piles à combustible consistent au développement de piles de types PEM alimentées en H<sub>2</sub>/Air pour lesquelles l'hydrogène serait stocké sous forme gazeux dans des bouteilles.

En ce qui concerne les étapes 3 et 4, des études parallèles sont menées entre PEMFC et SOFC. En effet, bien que la technologie PEM soit plus mature à l'heure actuelle, la technologie SO pourrait offrir des avantages supplémentaires [SCH-05]:

- fonctionnement à plus haute température, meilleure utilisation de la chaleur produite ;
- meilleure tolérance aux résidus (S, CO) inclus dans l'hydrogène obtenu par reformage du kérosène ;
- meilleur rendement ;
- une densité de puissance qui pourrait être équivalente aux PEMFC.

En revanche, le manque de maturité de la technologie SO ne permet pas à l'heure actuelle de faire primer cette technologie sur l'autre.

En parallèle de ces étapes, des études sont menées sur la production d'hydrogène à partir de reformage du kérosène. A l'heure actuelle, l'énergie volumique de l'hydrogène (sous pression ou liquide) ne dépasse pas celle du kérosène bien que son énergie massique soit plus élevée. La production à partir de reformage pourrait être une alternative durant la période de transition selon [SCH-05].

L'étape n°5 vise à remplacer complètement le kérosène comme carburant dans les avions, y compris pour la propulsion.

De nombreux projets ont été lancés par Airbus visant la réalisation de cette stratégie, entre autres ceux cités dans le *Tableau I.2* [HIE-06].

Projet	Objectif	Expérimentation / Simulation
<b>POA</b> Power Optimized Aircraft	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Stratégies d'optimisation de puissance</li> <li>• Système SOFC alimenté par kérosène</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Démonstrateur SOFC fonctionnel (1kW)</li> </ul>
<b>APAWAGS</b> Advanced Power And Water Generation System	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Système PAC alimenté par kérosène</li> <li>• Génération d'eau</li> <li>• Technologies PEM et SO</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Démonstrateurs au sol de type SO et PEM pour la génération d'électricité et d'eau (5kW)</li> </ul>
<b>CELINA</b> Fuel Cell In A New Configured Aircraft	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Système PAC alimenté par kérosène ou hydrogène sous pression</li> <li>• Etude des applications aéronautiques (dont le remplacement de la RAT par une PAC)</li> <li>• Evaluation préliminaire de la sécurité</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Simulation dynamique du système</li> <li>• Tests environnementaux approfondis sur un stack PEM H<sub>2</sub>/Air</li> </ul>
<b>FuCap/FCEPS</b> Fuel Cell Application (Demonstrator) Fuel Cell Emergency Power System	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Système d'alimentation de secours à PAC</li> <li>• technologie H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Démonstrateur en vol de 20kW (2007)</li> <li>• Essais en vol du système</li> </ul>
<b>MOET</b> More Open Electric Technology	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Niveau de génération et distribution électrique</li> <li>• Système SOFC alimenté par kérosène</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Evaluation des architectures</li> <li>• Simulation du système SOFC</li> </ul>
<b>A/C SOFC</b> Aircraft Solid Oxide Fuel Cell	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Système SOFC alimenté par kérosène</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Démonstrateur SOFC de 400kW</li> <li>• Tests et analyses comparatives</li> </ul>
<b>KING</b> Kerosene Reforming	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Développement du reformeur</li> <li>• Désulfuration par adsorption</li> <li>• Reformeur adiabatique</li> <li>• Déshydrogénation du kérosène</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Démonstrateur de déshydrogénation (2006)</li> <li>• Reformeur de 50 à 100 kW (2009)</li> <li>• Reformeur de 400 kW</li> </ul>

**Tableau I.2 :** Aperçu des principaux projets de recherche sur les piles à combustible chez Airbus

Au laboratoire LAPLACE, des études ont été effectuées dans le cadre du projet CELINA [GAR-07] étudiant les architectures électriques possibles pour le remplacement de la RAT par une PAC de type PEM soumis au cahier des charges suivant :

- Réseau  $\pm$  270 Volts
- Durée mission = 4 heures
- Un seul stack
- Anode du stack reliée à la terre

Avec comme objectifs recherchés :

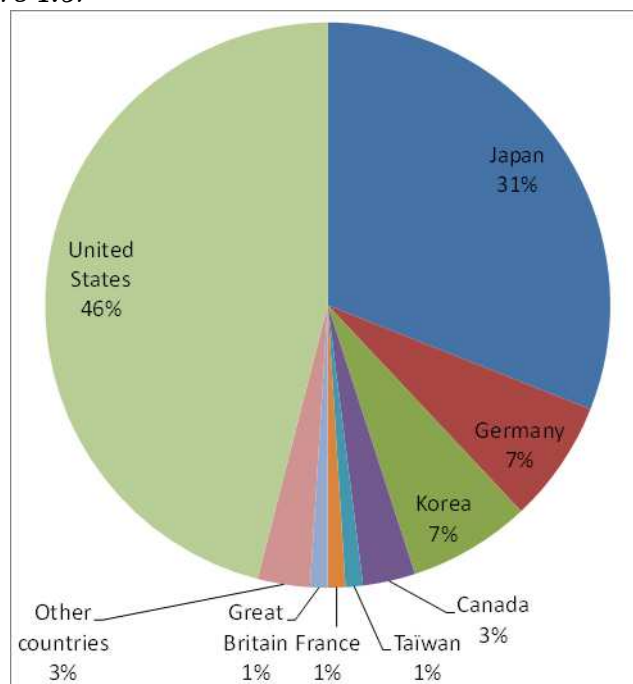
- Dimensionnement du système
- Choix d'une architecture électrique
- Minimisation des poids, volume, coûts et consommation en H<sub>2</sub>
- Conception préliminaire des convertisseurs statiques

Le LAPLACE a ensuite participé au projet MOET qui consistait à définir un nouveau réseau électrique de bord ainsi que l'électronique de puissance associée allant jusqu'à 1MW. Ce projet a donné lieu au projet ISS (Innovative Solutions for Systems) qui a pour ambition, entre autres, de valider les différents éléments de ce nouveau réseau électrique. Dans le cadre de ce projet, des essais expérimentaux ont été effectués sur les architectures pour réseau de secours à

pile à combustible proposées dans CELINA : ils sont présentés et analysés dans le chapitre V de ce mémoire. A cette occasion, une description plus précise de ces projets est également proposée.

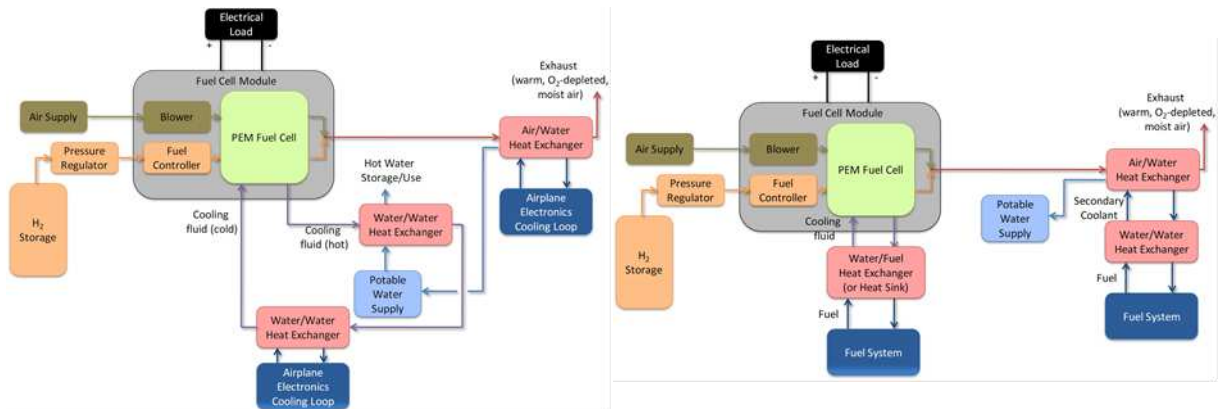
### 1.1.1.2 BOEING

Aux Etats-Unis, la recherche sur les piles à combustible occupe une part importante. A titre d'exemple, les fonds privés investis dans les piles à combustible et l'hydrogène entre 2000 et fin 2010 s'élèvent à 774 millions d'USD aux Etats-Unis pour un total mondial de 1725 million d'USD [DOE-11]. A cela s'ajoutent les implications importantes des départements américains de l'énergie et de la défense (DOE-DOD). Ceci est à l'image de la répartition dans le monde des brevets donnée en **Figure I.3**.



**Figure I.3** : Répartition en pourcentage des brevets relatifs aux piles à combustible dans le monde (2002-2011), source : Cleantech Group of Heslin Rothenberg Farley and Mesiti P.C.

Dans ce contexte Boeing profite des avancées technologiques américaines dans ce domaine et vise une génération électrique de 1,5MW pour les futures générations de 787 Dreamliner [PRA-11] sans prélèvement d'air sur les réacteurs puisque le dégivrage des ailes (auparavant réalisé par soufflage d'air chaud) est désormais électrique [SIN-07]. Ce passage au dégivrage électrique a considérablement modifié la structure des ailes de l'avion et augmenté sa consommation électrique (30 à 85 kW par aile). Pour utiliser la chaleur produite par la pile à combustible pour le dégivrage des ailes (qui représente le principal potentiel d'utilisation de cette chaleur), il faudrait une importante re-conception de ces ailes. Par conséquent cette utilisation de la chaleur est écartée par Boeing [PRA-11]. Onze manières d'exploiter les rejets d'une PAC sont explorées dans le document [PRA-11] dont les plus pertinentes sont données à la **Figure I.4**. Une récupération maximale de la chaleur produite ne serait pas judicieuse puisque l'eau chaude générée ne serait pas raisonnablement utilisée dans les toilettes.



a) Refroidi à l'eau, récupération de chaleur limitée, récupération de l'eau. b) Refroidi avec le carburant, récupération de l'eau.

**Figure I.4 :** Exemples d'architectures d'utilisation des rejets d'une PAC dans un avion [PRA-11]

Avec l'augmentation de la consommation électrique de l'avion, celle-ci étant produite par les réacteurs, la charge des alternateurs sur les réacteurs devient non négligeable. Et particulièrement durant les phases où les réacteurs tournent à faible vitesse (principalement pendant la descente et l'atterrissage). Or, à une vitesse faible et un couple important, une grande variation de la demande de puissance électrique pourrait entraîner une panne du compresseur du réacteur ou un décrochage. C'est pourquoi il serait avantageux d'enlever une partie du fardeau électrique sur les réacteurs durant les phases de faible vitesse (prise en charge par la PAC), cela permettrait d'augmenter la marge de décrochage ou de réduire la taille des moteurs à marge identique.

Une étude [RAJ-08] a regardé la faisabilité du remplacement de l'APU d'une future génération de Boeing 777 plus électrique (305 passagers) par une association d'une pile SO hybridée avec une turbine à gaz pour le cahier des charges suivant :

- Système dimensionné pour une puissance de 440 kW
- Puissance crête du système: 438 kW (en vol), 432 kW (au sol)
- Durée de vie: 40 000 h
- Objectif de poids du système: <880 kg
- Carburant: kérosène commercial.

La solution proposée semble avantageuse car elle présente un rendement de 60,6% au niveau de la mer et 73,7% à 42 000 pieds (12 800m) ce qui est bien mieux que la solution actuelle. Cependant pour la réalisation, des sauts technologiques ont été mis en évidence comme la nécessité de réaliser des stacks de plus de 100 cellules de 25cm x 25cm chacune (625cm<sup>2</sup>), avec une densité de puissance > 1W/cm<sup>2</sup>. Egalement des progrès importants sur le poids du système (PAC et reformeur) et sur la tolérance au soufre seraient nécessaires mais réalisables selon l'auteur.

Enfin, Boeing et le constructeur Japonais IHI Aerospace travaillent sur les PAC réversibles pour l'aéronautique. Les premiers essais en vol ont été réalisés en fin 2012. L'apparition des

premières PAC à bord des avions commerciaux prévue d'ici 2018 engendrera une réduction de la part du carburant utilisé pour la génération électrique de 14% [ROS-12].

### 1.1.1.3 Le DLR (*Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt*)

Dans le cadre du projet ELBASYS, le DLR a pris en charge l'intégration d'un système pile à combustible multifonctionnel dans un avion de ligne pour Airbus. Trois tâches ont été définies dans ce projet [FRI-09], [REN1-10].

- La première tâche (FCEPS - Fuel Cell Emergency Power System, juin 2007 à Août 2008) a consisté à l'intégration d'un système pile à combustible  $H_2/O_2$  de 20kW (construit par Michelin - *Figure I.5.a*) et b)) en remplacement de l'alimentation de secours (RAT) dans l'avion de recherche A320 (D-ATRA) - *Figure I.5.b*). Cette campagne a mis en évidence la robustesse du système face aux perturbations en situation réelle (pression, température, vibration, inclinaison, accélération, etc.)
- La seconde tâche (FCWIP: Fuel Cell System for Water, Inert-gas and Power) est de démontrer les fonctionnalités multiples d'un système pile à combustible  $H_2/Air$  de 15 kW (production d'eau, d'électricité et inertage des réservoirs de kérosène), essais débutés en juin 2010. Dans cette tâche une plateforme permettant aux systèmes pile à combustible commerciaux de respecter les réglementations aéronautiques a été développée (Airworthy Technology Development Platform - *Figure I.5.c*). Cette plateforme permet au développement des piles à combustible en aéronautique une accélération considérable.
- La troisième tâche (MFFCS: Multi-Functional Fuel Cell System) consiste à ajouter en plus des fonctions précédentes la fonction zéro émission au sol ou « green taxi » à l'aide d'une roue avant électrique (moteur-roue de 11 000 N.m - *Figure I.5.d*) alimentée par quatre PAC de 12,5kW chacune soit 50kW installées sur les plateformes développées à la seconde tâche (essais au sol réalisés en juillet 2011). L'association de plusieurs systèmes PAC offre une redondance intéressante en aéronautique.



a) Système PAC Michelin intégré dans l'avion.

b) Avion de recherche Airbus A320 D-ATRA.



c) Plateforme d'essais PAC qualifiée pour l'aéronautique.

d) Roue avant électrique de « green taxi » en cours de développement.

**Figure I.5** : Moyens d'essais mis en œuvre par le DLR pour Airbus [KAL-10] et [KAL-08]

Les essais en vol du système pile à combustible multifonctionnel sur l'A320 sont prévus en 2013-2014 [REN1-10].

### 1.1.2 Propulsion électrique des petits avions

Comme outils de communication et pour montrer leur technicité, de nombreuses universités et constructeurs cherchent à mettre en place des démonstrateurs propulsés par des systèmes pile à combustible. Qu'ils soient pilotés ou sans pilote, il en existe de nombreux exemplaires dont quelques-uns sont brièvement présentés dans cette partie (pour un aperçu plus complet, l'auteur invite le lecteur à lire [ALL-11]). Ces démonstrateurs permettent notamment de faire évoluer l'image de l'hydrogène auprès du public...

#### 1.1.2.1 Boeing — motoplaneur Diamond HK36TTC Super-Dimona (1 place)

Boeing fut le premier à faire voler un avion à propulsion par pile à combustible en juillet 2008 [LAP-08]. Basé sur un avion Biplace commercial, Boeing a remplacé la propulsion par un moteur électrique et l'alimentation par une association PAC et batterie Li-ion, illustré en **Figure I.6**.

Pile à combustible : peu d'informations disponibles ; mise en série de deux stacks (fabriqués par Intelligent Energy, assemblage membranes électrodes fabriqués par Gore) alimentés en  $H_2$ /Air permettant une puissance max de 25kW et une puissance continue de 18kW

Stockage : peu d'informations disponibles ; réservoir  $H_2$  en matières composites (de fabrication Air Liquide), stockage à 350 bars

Batterie : 66 Block SL20P en série (fabriquée par SAFT), soit 20Ah à 237,6V (4,750 kW.h) ; elle doit fournir 25kW pendant 7 minutes (le temps du décollage) mais est dimensionnée pour 50kW pendant 5 minutes.

Durant les 7 premières minutes du vol, la batterie et la PAC donnent leur puissance maximale pour permettre à l'avion de décoller et monter. Puis seule la PAC fournit sa puissance nominale pour le vol de croisière, ce qui a permis un vol de 25 minutes jusqu'à 1000 pieds (soit 300m)





a) *Implantation du système dans l'avion*

b) *Essai en vol de l'avion*

**Figure I.6 :** Schéma et image du démonstrateur Boeing [LAP-08]

### 1.1.2.2 Le DLR (*Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt*)

Le DLR possède de nombreux projets autour des systèmes à piles à combustible « volants » dans la génération multifonctionnelle à bord d'avions de ligne (§ 1.1.1.3), mais aussi dans la propulsion électrique de plus petits avions avec et sans pilote dont certains projets sont présentés ici.

#### 1.1.2.2.1 Antares H2 (1 place)

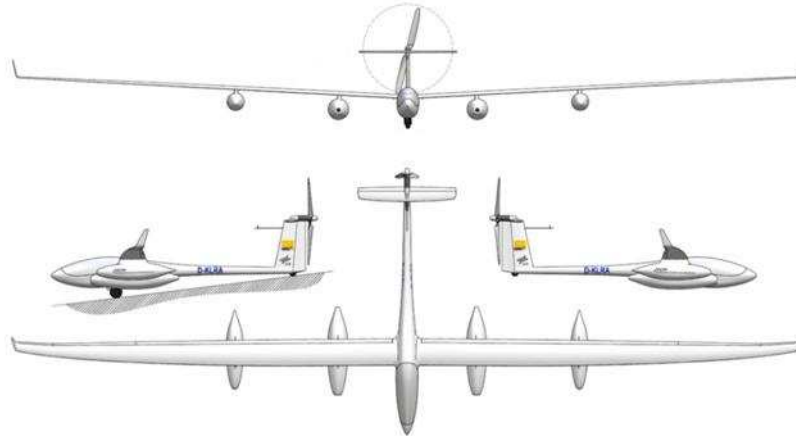
Ce démonstrateur construit sur la base de l'Antares 20E (avion électrique à batteries Li-ion) utilise une hybridation directe d'une batterie Li-ion et d'une pile à combustible. Peu d'informations sont disponibles sur les technologies utilisées dans cet avion, hormis que les batteries de type VL42M (construites par Saft) possèdent une énergie embarquée de 12kW.h, le réservoir d'hydrogène situé sous une des ailes pouvant contenir jusqu'à 4,6kg d'H<sub>2</sub> comprimé à 350 bars et la PAC (développée par Hydrogenics) située sous l'autre aile pouvant fournir jusqu'à 33kW. Le moteur réversible, construit par Lange Aviation développe 40kW ce qui fournit un rendement énergétique global (de l'énergie chimique au mouvement) de 40% [KAL-12]. Il est cité comme le premier avion capable de réaliser un vol complet uniquement grâce à la puissance fournie par le système pile à combustible (premier vol réalisé en 2009), autonomie : 750km.



**Figure I.7 :** Photo du démonstrateur Antares DLR H2 en vol [KAL-12]

### 1.1.2.2.2 Antares H3

En collaboration avec Lange Aviation, le DLR développe une version améliorée de l'Antares H2 dont le but est de réaliser la première traversée de l'atlantique propulsée par un système pile à combustible. L'autonomie visée est de 50h et 6000km et le transport de charges utiles allant jusqu'à 200kg. La commercialisation de ce modèle est envisagée.



**Figure I.8** : Design du démonstrateur Antares DLR H3 - source : Lange Aviation.

### 1.1.2.2.3 HyFish (drone)

HyFish est le nom d'un prototype de drone qui a volé en Avril 2007 propulsé par une PAC de 1,3kW n'excédant pas 800g soit plus de 1,5W/g (construite par Horizon fuel cell) pour un poids total du système PAC et son réservoir d'H<sub>2</sub> de 3kg. Le drone de 6kg a atteint les 200km/h. L'objectif du projet était de démontrer l'efficacité des piles à combustible dans un environnement difficile [HOR-07].

### 1.1.2.3 Université de Stuttgart - Hydrogenius (2 places)

Suite au projet ICARE 2 qui a permis la construction d'un avion solaire qui fut le premier avion à décoller et voler en utilisant uniquement ses panneaux solaires comme source de puissance (sans l'aide de batteries), l'Université de Stuttgart se lance dans la conception d'un avion biplace à propulsion par pile à combustible [VOI-09] illustré sur la **Figure I.9**.

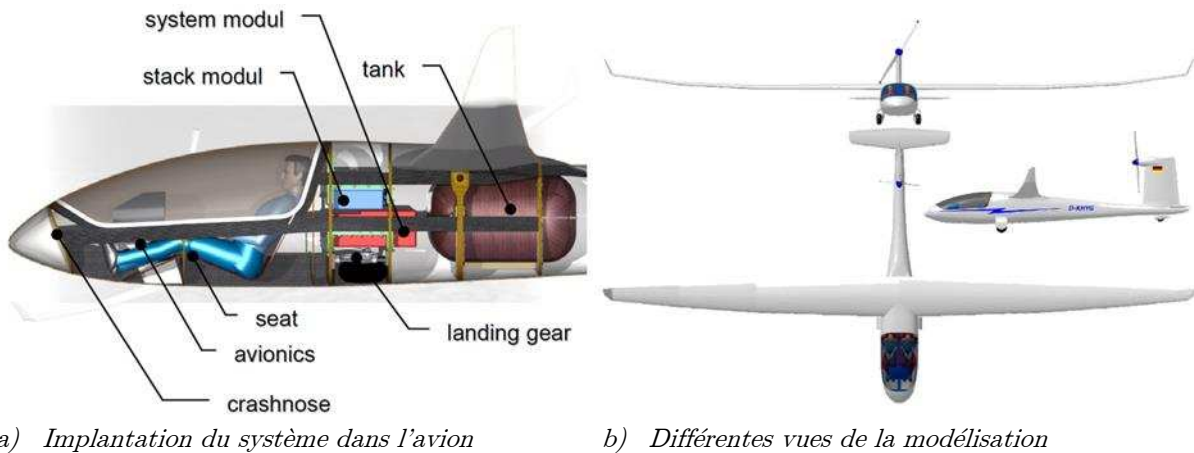
Pile à combustible : le premier design utilisait un système "HY-80TM" (produit par NUCellSys) qui proposait 68kW max pour 220kg ; cependant les nouvelles générations de systèmes proposent 85kW pour moins de 200kg.

Stockage : Réservoir ZM180 pouvant contenir 4,2kg d'hydrogène à 350bars pour une masse de 93kg (fabriqué per Dynetek).

Moteur : brushless triphasé synchrone à aimants permanents de 72kW crête et 58kW nominal pour une masse de 25,5kg (construit par Sineton).

Batterie : peu d'informations disponibles, capacité de 16kW.h

L'Université de Stuttgart vise une autonomie de 700km de l'avion pour une vitesse maximale de 270km/h.



**Figure I.9 :** Illustration de l'avion Hydrogenius [VOI-09]

#### 1.1.2.4 France - Apache

Le projet APACHE (Applications Pile A Combustibles Hybrides Embarquées), réalisé dans le cadre du FUI (Fonds Unique Interministériel) et débuté en 2009, vise au développement de systèmes pile à combustible répondant aux exigences d'utilisation fournies par des exploitants de plateformes aéronautiques (aéronefs légers, hélicoptères, etc.) et navales (voiliers, yachts, bateaux à moteurs) [CAP-08].

Les modules développés seront essayés en situation réelle sur des porteurs avec des exigences et des contraintes croissantes :

- module utilisé comme APU sur un bateau à moteur de grande taille puis,
- module utilisé comme système de propulsion annexe sur un voilier puis,
- module utilisé comme propulseur principal dans un avion biplace puis,
- module utilisé comme propulseur principal dans un avion léger.

A cette occasion, des études sont menées sur les effets de l'inclinaison et de l'altitude des systèmes PAC afin de proposer des modèles permettant de prendre en compte ces paramètres. D'après les premiers travaux, il semble s'en dégager que la solution  $H_2/O_2$ , peu étudiée habituellement compte tenu du poids de l'oxygène à embarquer, possède un réel créneau d'application : vols courts (1 à 2h) et vols à haute altitude (>2500m) [HOR-12].

### 1.1.3 Conclusion sur les systèmes PAC pour l'aéronautique : des PAC hybridées

Ces applications montrent que la faisabilité des piles à combustible de type PEM n'est plus à prouver, mais plusieurs défis demeurent aujourd'hui :

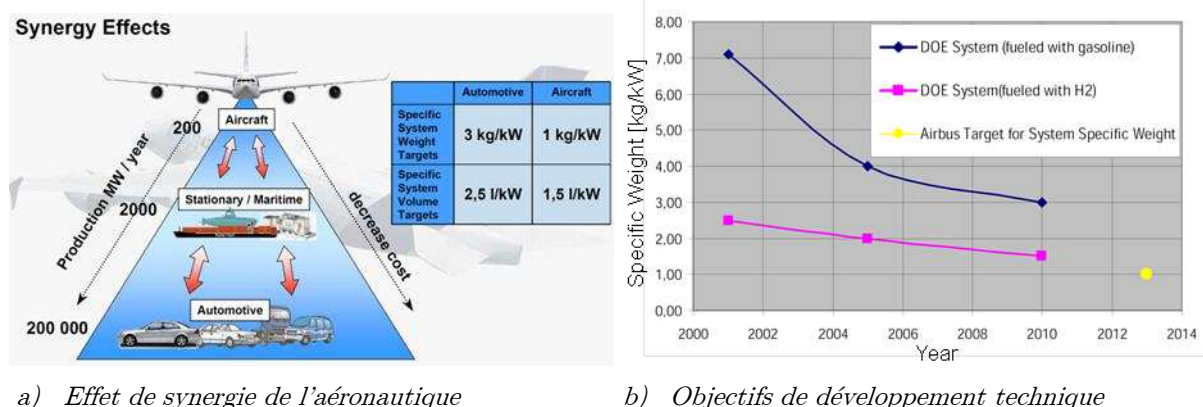
- Augmentation de la durée de vie de la PAC. Il est difficile de savoir où en est la durée de vie des systèmes PAC à l'heure actuelle, d'après [TUR-09] des systèmes ont tourné durant 10 000 h (> une année), ceci étant suffisant pour une application

automobile (cela correspond à 500 000 km pour une vitesse de 50km/h) mais pas pour une application aéronautique (objectif > 60 000 h) ou stationnaire (objectif > 40 000 h). [DOE-11] annonce que la société UTC Power a lancé en 2009 un système (PureCell System Model 400) permettant de fournir 400kW avec une durée de vie du stack de 10 ans soit 80 000 heures (trois à quatre fois plus longue que celle des produits concurrents selon l'auteur) et une durée de vie du système de 20 ans. En revanche la technologie de ce dernier est a priori une technologie PAFC (Phosphoric Acid Fuel Cell technology) différente de la technologie PEM visée. Quant à la technologie PEM, le Japon a vendu en 2011 plus de 8 000 stacks dont la garantie était de 40 000h, qui semble être le record en garantie sur la durée de vie pour des systèmes PAC de type PEM à l'heure actuelle, [DOE-11]. Les objectifs fixés pour l'aéronautique ou le stationnaire semblent donc tout à fait réalisables au cours des prochaines années.

- Diminuer le coût du système, même si cela n'est pas le point le plus critique en aéronautique. Le coût actuel d'une PAC PEM est de l'ordre de 1000 à 2000€/kW selon nos informations, beaucoup moins selon le Département de l'Environnement des Etats-Unis (US DOE) qui estime le coût à 228 USD/kW en 2010 avec une projection à 51USD/kW pour une fabrication en grand volume (500 000 unités par an) basée sur la technologie de 2010 [DOE-11]. Afin d'être concurrentiels face aux autres solutions, les objectifs de coût de revient des systèmes à PAC sont [ANT-06] :
  - Stationnaire : 700 à 1500 €/kW
  - Transport Urbain : 150 à 300 €/kW
  - Automobile : 30 à 40 €/kW

Ces objectifs pourraient être déjà presque atteints si l'on s'en réfère au rapport [DOE-11]. L'objectif d'ici 2015 est d'atteindre le coût de revient des moteurs à combustion interne (30 €/kW).

- Augmenter la puissance massique des systèmes. En ce qui concerne le secteur aéronautique, cette donnée est primordiale étant donné le coût de chaque kg supplémentaire embarqué dans l'avion, une évolution est présentée en **Figure I.10**. En ce qui concerne le secteur stationnaire, la puissance massique n'est pas un critère primordial puisque le système n'est pas à mettre en mouvement, en revanche pour le secteur automobile, les objectifs sont déjà atteints. A ce sujet, notons que Toyota a annoncé la commercialisation de véhicules à PAC prévue pour 2016 avec une densité de puissance de la PAC de 3 kW/L [TOY-12], ce qui est largement au-dessus des exigences pour l'aéronautique données à 0,67 kW/L dans [HIE-07].



a) Effet de synergie de l'aéronautique

b) Objectifs de développement technique

**Figure I.10** : Evolution et effets de l'augmentation de la puissance massique des systèmes PAC [HIE-07].

D'après la **Figure I.10.a)**, l'introduction des systèmes PAC en aéronautique aura un effet très positif sur les systèmes stationnaires et automobiles. D'après la **Figure I.10.b)**, les objectifs de puissance massique exigés par Airbus pour l'introduction de systèmes PAC en aéronautique seront très prochainement atteints.

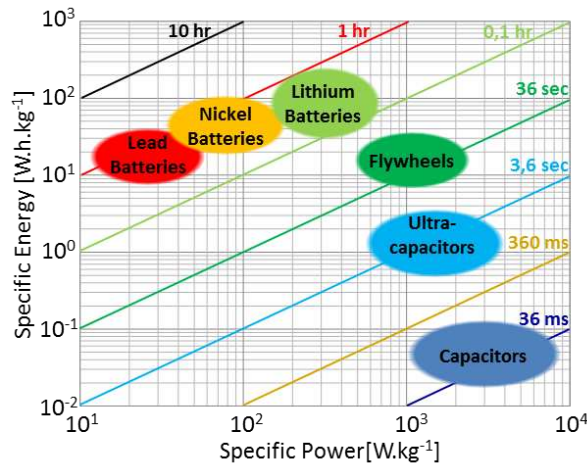
Notons que les défis sont ici exprimés de manière indépendante : le système PAC qui est garantie 40 000h n'est pas forcément celui qui coutera le moins cher ou celui qui possédera la meilleure densité de puissance. Cependant cela nous amène à constater que les barrières sont loin d'être infranchissables et même à nous interroger sur le fait que les systèmes PAC ne soient pas plus développés à l'heure actuelle, en particulier dans le domaine des véhicules pile à combustible commerciaux.

Dans la plupart des applications aéronautique présentées ci-dessus, le système Pile à combustible est associé à un organe de stockage d'énergie électrique. Dans la majorité des cas, ce dispositif stockage est une batterie Li-ion car elle possède une énergie massique relativement élevée (de l'ordre de 150Wh/kg). Cette association est généralement appelée « hybridation ». L'hybridation au sens énergétique se définit comme l'association de plusieurs sources d'énergie présentant des propriétés complémentaires en termes d'énergie, de puissance, et de dynamiques associées. Les motifs qui justifient le choix de l'hybridation sont particulièrement :

- Eviter un dimensionnement de la source d'énergie au point de puissance maximal. En ajoutant un stockage adéquat, on peut dimensionner la source (ici le système PAC) non pas sur la puissance max à fournir mais sur le point de puissance moyenne [LAN-06], [GAR-07], [TUR-12], [TUR1-12].
- Dans le cas d'un fonctionnement H<sub>2</sub>/Air, cela permet de palier la dynamique de la compression d'air [THO-07]. Dans le cas des PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> comme celui des PAC H<sub>2</sub>/Air, la mise en œuvre des autres auxiliaires tel que la régulation des pressions et des débits est simplifiée puisque les dynamiques exigées pour la PAC sont plus faibles grâce à l'hybridation.
- Augmenter la durée de vie du système ; en effet, les variations de puissance rapides réduisent la durée de vie d'une PAC [SCH1-05], [RAL-11]. Les variations de puissance entraînent des variations de pression au niveau de la membrane donc des

efforts mécaniques sur celle-ci, qui à force la détériorent. Il faut naturellement que l'organe de stockage associé tolère bien les variations rapides de puissance.

D'après le plan de Ragone donné en **Figure I.11**, les candidats possédant le meilleur couple énergie massique et puissance massique sont les batteries Li-ion, les volants d'inertie et les supercondensateurs. Ce sont donc ces trois candidats qui pourront répondre le mieux à l'hybridation d'un système PAC dans un contexte d'économie de masse.

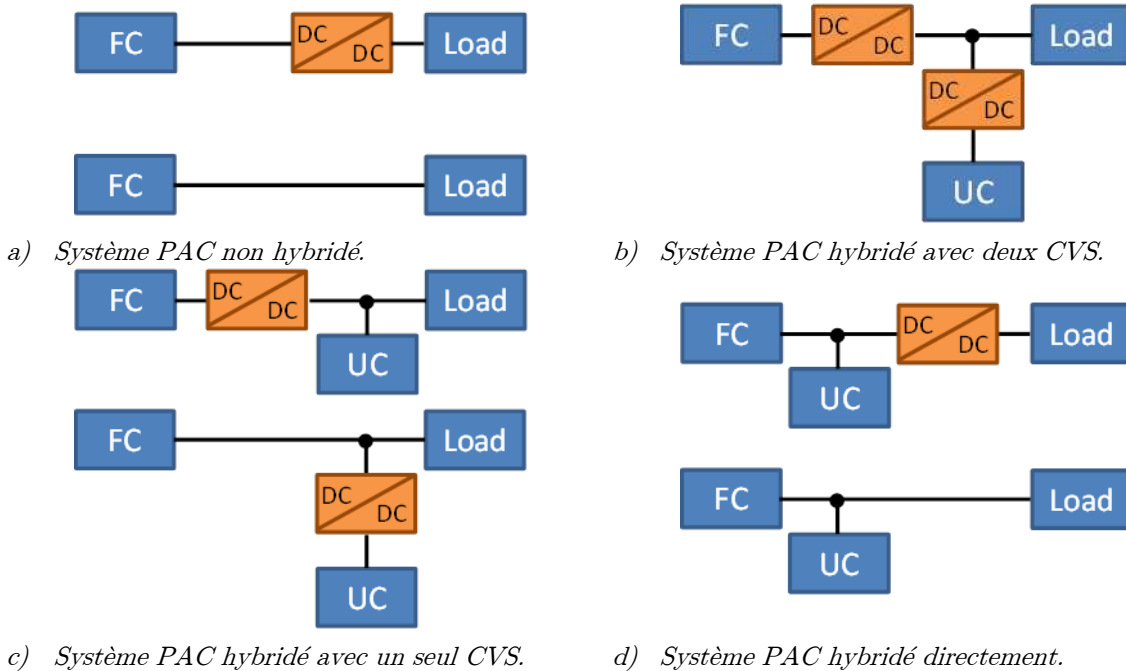


**Figure I.11** : Caractéristiques puissance massique / énergie massiques des principales sources de stockage et de propulsion existantes— extrait et adapté de [MOU-10] et [FLY-04].

La littérature ne propose pas actuellement de documents de synthèse sur l'hybridation des PAC appliquée à l'aéronautique, c'est pourquoi la partie suivante consacrée à l'hybridation des PAC notamment avec des supercondensateurs (SC) s'ouvre également à d'autres secteurs que celui de l'aéronautique. Il s'agit principalement du secteur automobile, mais aussi ferroviaire et stationnaire.

## 1.2 Etat de l'art sur l'hybridation des PAC

Cette partie est consacrée à l'hybridation des piles à combustible, avec des supercondensateurs dans la plupart des cas présentés. Il existe une multitude de possibilités (dont les principales sont présentées à la **Figure I.12**) de faire échanger des puissances entre ces deux composants. Une PAC possède une tension de sortie variable. Or, dans la majorité des applications, les charges nécessitent une tension fixe et qui n'est pas toujours du même ordre de grandeur que la tension de la PAC. C'est pourquoi dans de nombreux cas on lui associe un ConVertisseur Statique d'énergie (CVS) qui va permettre de réguler la tension à sa sortie au niveau souhaité, mais cette solution n'est toujours appliquée. Pour la **Figure I.12.a)** et la **Figure I.12.d)** les deux possibilités sont illustrées. En revanche pour la **Figure I.12.b)** et la **Figure I.12.c)**, les architectures possèdent obligatoirement au moins un CVS.



**Figure I.12 :** Principales architectures parallèles d'hybridation des systèmes PAC et SC

La **Figure I.12.a)** illustre l'exploitation de l'énergie électrique fournie par une PAC lorsqu'elle n'est pas hybridée. Cette architecture entraîne un surdimensionnement de la PAC pour pouvoir subvenir aux pics de puissance si le profil est chahuté.

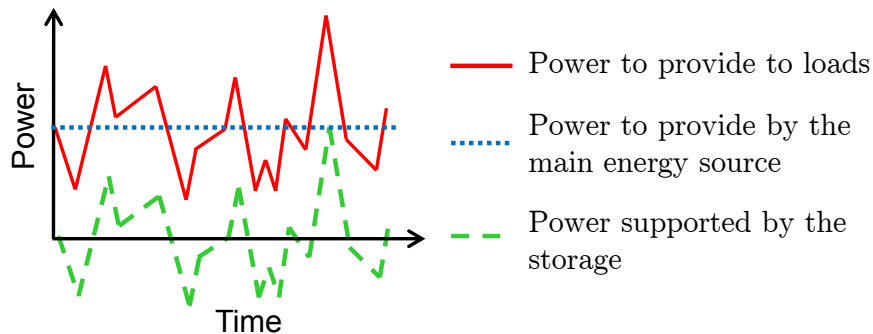
La **Figure I.12.b)** illustre l'exploitation de l'énergie électrique d'une hybridation PAC et SC pour laquelle chaque composant possède son CVS. Elle possède l'avantage de gérer complètement les flux énergétiques de chaque composant et offre de larges possibilités dans la gestion énergétique au détriment d'une électronique de puissance plus complexe.

La **Figure I.12.c)** offre l'avantage de ne pas faire passer toute la puissance transmise aux charges par le CVS et donc un gain associé (masse, coût, pertes, développement, robustesse, etc.). Que le convertisseur soit associé à la PAC ou aux SC, la tension de bus doit être variable. Pour le cas où le CVS est associé à la PAC, la tension doit respirer pour permettre l'hybridation ; en effet si celle-ci est fixe, les supercondensateurs ne stockent/restituent pas d'énergie : il n'y a alors pas d'hybridation. Pour le cas où le CVS est associé aux SC, la tension de charge varie comme celle de la PAC.

La **Figure I.12.d)** présente une hybridation directe (parfois appelée hybridation passive). Lorsqu'elle est associée à un CVS pour réguler la tension de charge, la totalité de la puissance fournie à la charge passe par le CVS, donc un dimensionnement du CVS par rapport au pic de puissance max. En revanche elle propose l'avantage d'une autogestion énergétique due au couplage direct.

La **Figure I.13** illustre le principe de partage des puissances dans un système avec hybridation. La mission, qui est ici illustrée par la puissance à fournir aux charges, oriente par ses propriétés, dynamiques particulièrement, le type de stockage qui sera privilégié. Le stockage doit prendre en charge la partie fluctuante de la puissance à fournir aux charges. De manière générale si ces pics sont fortement énergétiques, le stockage sera plutôt orienté vers des

batteries (qui possèdent une forte énergie stockable/restituable). Et si ces pics sont de fortes puissances instantanées mais faiblement énergétiques, le stockage sera plutôt orienté vers des supercondensateurs (pouvant supporter de fortes puissances et possédant une grande cyclabilité).



**Figure I.13 :** Illustration d'un partage des puissances pour une hybridation idéale.

Rappelons aussi qu'un organe de stockage idéal présente théoriquement un bilan énergétique nul sur tout ou partie de la mission (puissance moyenne nulle) contrainte que la gestion de l'énergie doit satisfaire. En pratique, il faut également compenser les pertes liées aux opérations de stockage - déstockage [TUR-12] [TUR1-12].

Dans la suite nous présentons différents travaux sur l'hybridation des PAC en traitant des deux volets « gestion de l'énergie par partage de puissance » et « architectures » d'interconnexion.

### 1.2.1 Hybridation indirecte des PAC

Dans cette partie, nous présentons par un état de l'art non exhaustif de la gestion d'énergie d'un système hybridé PAC/SC, puis quelques choix d'architectures électriques.

#### 1.2.1.1 Méthodes de partage des puissances

Plusieurs méthodes permettent de séparer la puissance à fournir à la charge en deux composantes : une composante fournie par la PAC et une autre par les SC dont les principales sont présentées ci-après.

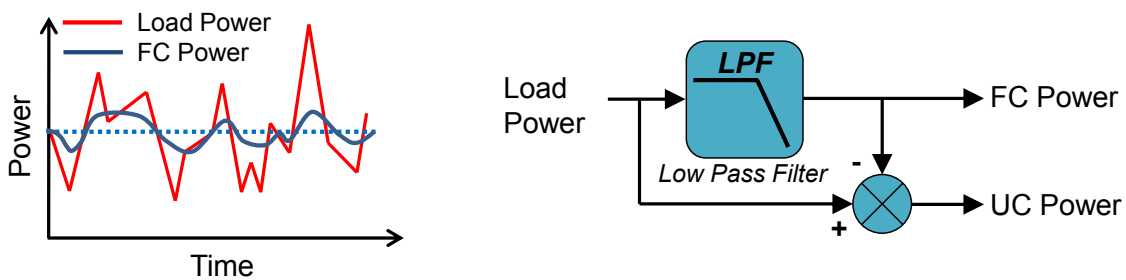
##### 1.2.1.1.1 Méthodes directes de partage de la puissance

Ces méthodes consistent à séparer la puissance à fournir aux charges en deux, une partie dédiée à la PAC et l'autre aux SC. Elles sont très simples d'implémentation mais ne prennent pas directement en compte l'état de charge du stockage. De manière générale, une boucle de régulation supplémentaire prévue à cet effet est ajoutée à ces stratégies pour permettre le fonctionnement du système.



### 1.2.1.1.1 Partage Fréquentiel

Une méthode très couramment utilisée consiste à demander à la PAC de fournir uniquement les basses fréquences du profil de charge et aux SC de fournir le reste (donc les hautes fréquences). Ainsi en choisissant une fréquence de coupure adaptée aux dynamiques souhaitées pour la PAC (dépendant des auxiliaires et des recommandations du fabricant), et en choisissant un ordre du filtre suffisamment grand, on peut s'assurer qu'aucune dynamique supérieure ne sera fournie par la PAC. L'avantage de cette solution est qu'une fois que le filtre a atteint sa valeur nominale, quelle que soit la valeur de la fréquence de coupure la valeur moyenne des puissances à fournir par les SC est nulle, on s'approche de l'hybridation parfaite. De plus les  $dP/dt$  ou  $dI/dt$  imposés à la PAC sont continus et dépendent de la fréquence de coupure du filtre et du profil de charge [GAR-07], [CHA-98].



c) Partage fréquentiel des puissances

d) Réalisation du partage fréquentiel

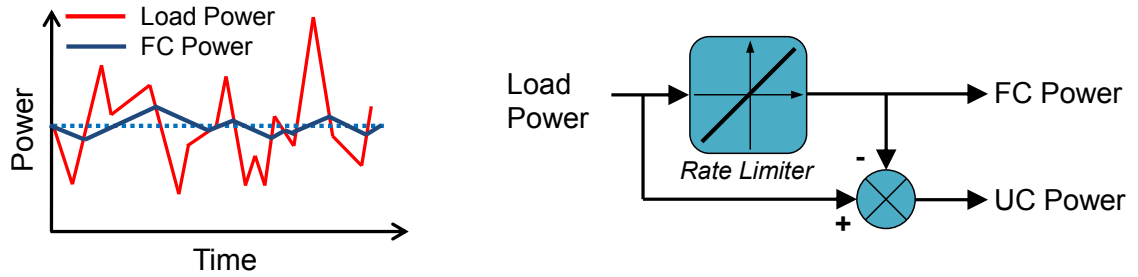
Figure I.14 :

Illustration du partage fréquentiel des puissances

La **Figure I.14** illustre la mise en œuvre et le fonctionnement de cette méthode de partage des puissances. On peut noter la simplicité de la méthode qui la rend très facile à implémenter.

### 1.2.1.1.2 Partage par limitation de pente

La plupart des constructeurs préconisent des limitations de pente sur les PAC (limitations en  $dI/dt$  ou en  $dP/dt$ ). Ces limitations sont principalement liées aux auxiliaires qui peuvent créer des appauvrissements en gaz ou de variations de pression néfastes pour la PAC. Une méthode qui peut être mise en place consiste à placer une limitation de pente sur la puissance (ou le courant) à fournir par la PAC, les SC étant en charge de fournir le complément à la PAC. L'avantage de cette solution est qu'il est facile de respecter complètement les préconisations du constructeur (en revanche les  $dI/dt$  ou  $dP/dt$  ne sont pas continus puisque l'on passe d'une pente positive à une pente négative). Le dimensionnement du stockage va être fonction de la valeur de cette limitation et du profil.



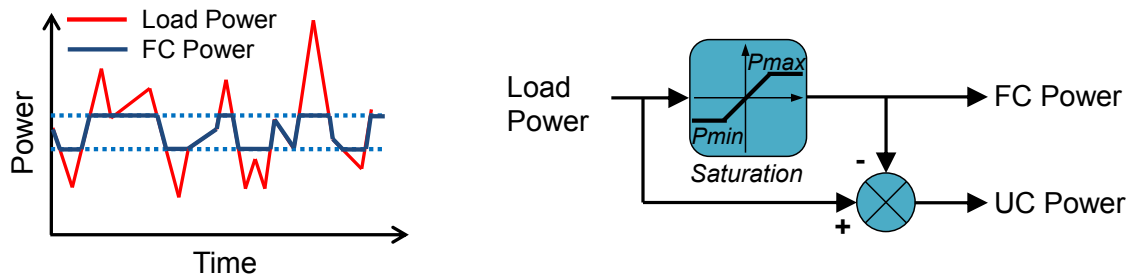
a) Partage des puissances par limitation de pente      b) Réalisation du partage par limitation de pente

**Figure I.15 :** Illustration du partage par limitation de pente des puissances

La **Figure I.15** illustre le principe de fonctionnement de cette méthode. En revanche l'inconvénient majeur est que la puissance à fournir par les SC n'est pas forcément à valeur moyenne nulle, ainsi on pourra jouer sur des limitations de pente (croissantes ou décroissantes) de valeurs différentes pour obtenir une valeur moyenne de la puissance à fournir par les SC la plus proche de zéro. Cependant cette donnée est dépendante du profil de charge et nécessite un grand nombre de simulations pour être approchée. De plus dès que l'on sort du profil de mission dimensionnant, la puissance moyenne du stockage proche de zéro peut ne plus être respectée [GAR-07], [DAN-06].

### 1.2.1.1.3 Partage par bande

Une autre méthode extraite de [GAR-07] et de [BÛC-06] consiste à placer tout d'abord une limitation de la puissance max à fournir par la PAC. Les SC sont considérés comme un complément à la PAC et doivent fournir le reste lorsque la puissance de charge dépasse la limitation max. Il est nécessaire de placer ensuite une limitation min sur la puissance à fournir par la PAC pour permettre au stockage de se recharger. Ainsi la zone de fonctionnement de PAC est complètement maîtrisée. En revanche les  $dP/dt$  ou  $dI/dt$  subis par la PAC sont ceux du profil de mission pour la bande entre  $P_{min}$  et  $P_{max}$ .



a) Partage des puissances par bande      b) Réalisation du partage par bande

**Figure I.16 :** Illustration du partage par bande des puissances

La **Figure I.16** illustre cette méthode de partage des puissances. Comme pour le partage par limitation de pente, cette méthode n'impose pas nécessairement une puissance moyenne nulle aux SC et il va donc falloir bien ajuster les valeurs des limitations pour s'en approcher. Ces valeurs dépendent également du profil de mission et peuvent donc ne plus être valables si le profil change par rapport à celui dimensionnant. De plus étant donné que les  $dP/dt$  ou les

$dI/dt$  ne sont pas maîtrisés, un des objectifs de l'hybridation (réduire les variations de puissance pour de la PAC pour prolonger sa durée de vie) n'est pas respecté. Cette méthode trouvera plutôt sa place pour des profils de mission possédant des faibles  $dP/dt$  dans la bande de puissance considérée.

#### 1.2.1.1.2 Méthodes de partage par règles

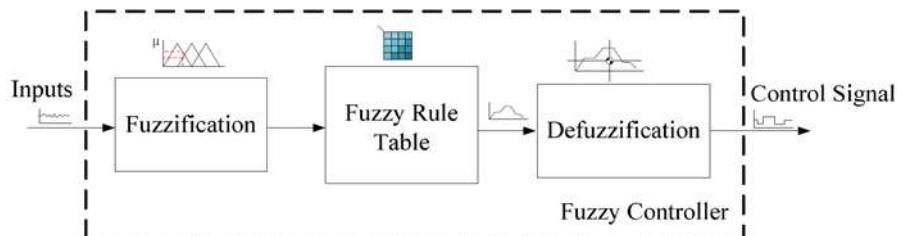
L'intérêt principal du partage des puissances par des règles est leur capacité à contrôler en temps réel les flux de puissance des organes sans connaissance a priori du profil de mission. Les règles sont conçues de manière heuristiques, sur la connaissance et l'expérience voire l'intuition et sur des modèles mathématiques [RAJ-07].

##### 1.2.1.1.2.1 Partage par machine d'état

Le partage par machine d'état consiste à élaborer des règles fonctions de l'état des éléments (état de charge SC, niveaux de puissance PAC et SC, tension bus, etc.) et de leur trajectoire, permettant de définir les flux de puissance à imposer dans le but d'évoluer vers un état désiré.

##### 1.2.1.1.2.2 Partage par logique floue

La logique floue dont le principe est exprimé en **Figure I.17** consiste à quantifier les états des éléments (par exemple on ne considère plus le stockage comme trop chargé ou trop déchargé mais trop chargé à  $x\%$  ou trop déchargé à  $y\%$ ). Ainsi cela ajoute une continuité dans les états et par conséquent dans les changements de consignes des flux de puissance à imposer. Les décisions prises varient alors en fonction du niveau des états.



**Figure I.17 :** Illustration de la structure de contrôle par logique floue [GUR-09].

[SOL-11] présente le cas d'étude d'un véhicule militaire muni d'une chaîne hybridant PAC, SC et batteries plomb nommé ECCE (Electrical Chain Component Evaluation) qui utilise une stratégie exploitant la logique floue de type 1. Une version plus évoluée exploitant une logique floue de type 2 permettant la prise en compte des incertitudes en intégrant l'expertise humaine a ensuite été implantée dans ce véhicule [SOL1-11]. Il s'agit de la première utilisation de cette méthode pour des applications hybridées dans le domaine du transport.

#### 1.2.1.1.3 Méthodes de partage par optimisation

Dans ces stratégies, les consignes de puissance à fournir par chacun des éléments (PAC ou SC) à chaque instant sont calculées par une fonction de minimisation qui est en général la

consommation en hydrogène. Cet optimum peut être calculé à partir d'une mission dimensionnante (optimisation globale) ou la fonction à minimiser peut être définie en fonction de variables du système à l'instant  $t$ . Ainsi on peut envisager une stratégie en temps réel qui vise à minimiser cette fonction (optimisation temps réel) [RAJ-07].

### *1.2.1.1.3.1 Partage par optimisation Globale off-line*

Il existe plusieurs manières d'atteindre l'optimum global d'une fonction. Elles constituent au final un bon outil de dimensionnement permettant d'ajuster, d'évaluer et d'analyser différentes stratégies de contrôle [ZHU-04]. On trouve de nombreuses méthodes d'optimisation utilisées telles que :

- Le recuit simulé [DEL-99]
- La théorie de jeux [GIE-04]
- La programmation linéaire [TAT-98]
- La théorie du contrôle optimal [DEL-04]
- La programmation dynamique et stochastique [LIN-03], [LIN-04]
- Les algorithmes génétiques [PIC-01]

Ces méthodes s'appliquent particulièrement bien lorsque le profil de mission est connu, comme dans le cas des transports en sites propres où les profils de mission restent identiques et connus (trains, tramways) comme par exemple dans le projet COPPACE (COntribution au Pilotage de Pile A Combustible Embarquée) [LAC-04] ou encore dans: [JAA-09], [JAA-11]. En revanche pour l'automobile, on ne peut que réaliser une optimisation sur quelques missions typiques : des cycles standards sont ainsi définis, UDDS, HWFET, FUDS, SFTP, FHDS pour les principaux cycles aux Etats-Unis et EUDC, NEDC pour les cycles les plus couramment utilisés en Europe [ECO-10], [MES-07]. Ces cycles ne sont cependant pas forcément représentatifs de toutes les missions possibles pour tous les utilisateurs. Un cas d'étude est présenté dans [BER-09].

### *1.2.1.1.3.2 Partage par optimisation en temps Réel*

Les techniques d'optimisation globale ne sont généralement pas applicables en temps réel et pour la plupart nécessitent d'importants temps et puissance de calcul. Certains développent des techniques pour permettre l'optimisation du critère en question (la consommation par exemple, des variations de puissance minimales pour la PAC, etc.) en temps réel. Il est ainsi proposé une stratégie indépendante de la mission ou de l'opérateur [RAJ-07] pour un véhicule, en utilisant par exemple des courbes ou des cartes de rendement de la PAC. Ces stratégies peuvent prédire la suite des événements (exemple : si le véhicule est à vitesse max, il est fort probable que sa prochaine variation sera de ralentir ; le stockage peut donc être à son niveau le plus bas car il va bientôt se remplir) ou s'instruire des événements passés (si le chauffeur possède une conduite sportive ou douce). Un cas d'étude est présenté dans [FER-09].

#### 1.2.1.1.4 Partage basés sur d'autres types de commande

Outre les précédentes, il y a encore d'autres méthodes utilisées pour piloter des systèmes hybrides. L'objet de notre étude n'étant pas la maîtrise et la comparaison de toutes ces approches, nous ne ferons que les expliciter de façon sommaire ci-dessous, invitant le lecteur à se reporter aux différentes références pour les détails.

##### *1.2.1.1.4.1 Contrôle par platitude (flatness control)*

La commande par platitude permet de gérer les différents modes de fonctionnement sans commutation d'algorithme, tout en respectant les contraintes imposées par les différentes sources. Ceci est obtenu par une planification adaptée des trajectoires de référence des différentes variables du système. On retrouve par exemple des cas d'études de ce type de commande dans les travaux du laboratoire GREEN (Groupe de Recherche en Électrotechnique et Électronique de Nancy) dans [PAY-06], [PAY-08], [THO-10] et [ZAN-10].

##### *1.2.1.1.4.2 Commande Robuste*

[HER-06] propose une commande robuste multivariable. L'objectif de la stratégie développée consiste à contrôler les variables des différents éléments en tenant compte de leurs couplages. Le contrôle mis en œuvre s'appuie sur une commande  $H_\infty$  qui permet de contrôler un système multi-variable avec un correcteur optimal, tout en intégrant des critères de robustesse.

##### *1.2.1.1.4.3 Commande hiérarchique par commutation de mode*

Dans [ZHO-09] est exposée une commande où plusieurs niveaux sont considérés. A chaque niveau correspond un mode de commande. Ainsi les modes de commande sont adaptés en fonction de l'état du système.

##### *1.2.1.1.4.4 Commande par perturbations singulières*

L'utilisation de l'approche par perturbations singulières est présentée dans [GHA-11]. Cette solution attribue une importance particulière aux perturbations et permet d'éviter les régulations de type PI, l'utilisation d'observateurs ou d'actions intégrales qui sont parfois peu robustes.

##### *1.2.1.1.4.5 Commande passive*

[TIE-10] utilise une approche basée sur la passivité du système pour le commander. Cette approche qui, dans cette étude, est échantillonnée permet entre autres de garantir la stabilité asymptotique de l'association commande/système.

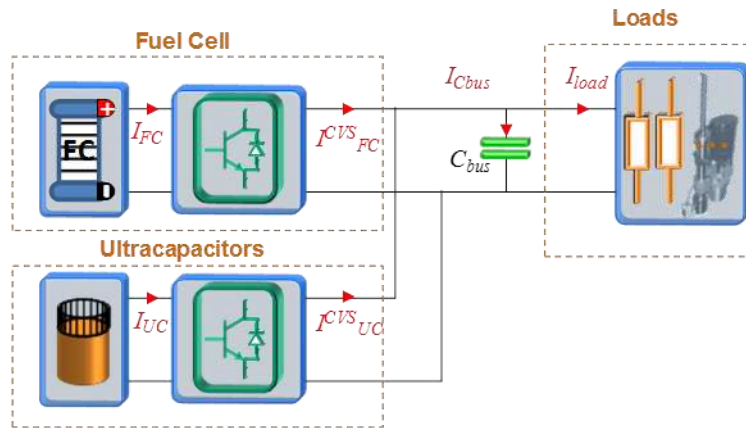
### 1.2.1.2 Architectures d'hybridation à deux CVS

A l'heure actuelle les plaques bipolaires des PAC représentent environ 70% de leur coût lorsqu'elles sont en graphite usiné [HON-08], donc il y a un fort intérêt à en réduire le nombre. Mais à puissance égale on augmente le courant et diminue la tension de sortie. Pour faire baisser ce coût, des alternatives au graphite usiné sont recherchées comme des plaques en acier inoxydable embouties ou des plaques en composite moulées. De plus, la réalisation de stack avec de plus en plus de cellules compatibles avec l'environnement aéronautique reste un défi technologique et requiert la plupart du temps une surveillance de chaque cellule, ce qui peut exiger une supervision imposante. Avec les progrès de l'électronique de puissance, il est possible d'augmenter de manière importante la tension de sortie d'une PAC. De même pour les SC pour lesquels la mise en série de cellules en nombre important (la tension max de chaque cellule étant de 2,7Vdc) est délicate puisqu'il faut assurer un bon équilibrage entre tous les modules. De plus, le carré de leur tension étant l'image de l'état de charge, plus on va vouloir exploiter la capacité énergétique des modules, plus la tension à leurs bornes présentera de grandes variations. Pour profiter au maximum de l'énergie emmagasinable dans les SC, un convertisseur statique leur est généralement associé.

Il existe plusieurs manières d'associer PAC et SC avec deux convertisseurs, la structure qui semble la plus évidente est d'associer un CVS à chaque composant (structure parallèle). Certains auteurs [AZI-10] appellent cette architecture « structure à deux degrés de liberté ». En effet chaque convertisseur a la possibilité de réguler une grandeur (tension ou courant). Une seconde structure consistant à insérer les composants les uns à la suite des autres (structure cascade) sera présentée dans la deuxième partie. Enfin, il existe d'autres structures comme la structure série, cependant elles ne seront pas présentées ici étant donnée leur efficacité jugée trop limitée. Le lecteur curieux et désireux de se renseigner sur la structure série est invité à consulter [CAC-04], où les trois structures sont présentées.

#### 1.2.1.2.1 Structure parallèle

Une structure souvent employée permettant de connecter les trois éléments (charge, PAC et SC) est d'associer un CVS à la PAC et un CVS aux SC, les deux étant eux-mêmes connectés sur un bus DC, comme illustré sur la *Figure I.18*.



**Figure I.18 :** Illustration de la structure parallèle à deux convertisseurs.

Cette architecture, bien que complexe par son électronique de puissance, permet une bonne gestion énergétique des SC. En effet, étant donné qu'ils possèdent un CVS dédié, il est possible d'en faire varier la tension sur toute la gamme. En général, il est choisi d'utiliser 75% de l'énergie emmagasinable dans ceux-ci soit une tension qui varie de  $V_{max}$  à  $V_{max}/2$ , [LAN-06], [GAR-07]. A tension inférieure le courant exigé pour en extraire une puissance conséquente serait trop important pour les SC et trop contraignant pour l'électronique de puissance pour un faible gain sur l'énergie utilisable.

Le fait d'avoir ces deux degrés de liberté dans la structure est utilisé de manière différente suivant les auteurs. Cependant, il semble y avoir un intérêt à attribuer le contrôle de la tension de bus à l'organe qui possède la plus grande dynamique (les SC). Dans ce cas, la gestion de l'état de charge des SC dont la dynamique est maîtrisée (à l'inverse des dynamiques des charges constituant l'application) est généralement attribuée à la PAC. En revanche, dans le cas où la PAC régule la tension de bus, les SC devant fournir la partie HF du courant de charge pour ne laisser à la PAC qu'une partie BF, ceci exige pour le convertisseur des SC d'être capable de suivre parfaitement sur le plan dynamique la partie HF du courant de charge [RAF-10].

[LAN-06] montre que la tension de bus ne peut être régulée que par la source principale, ou par le stockage mais pas par les deux, ainsi deux mode de pilotage en découlent. Ces deux modes de pilotage sont employés dans la littérature :

- Dans une étude [THO-09], la régulation de la tension de bus est ainsi confiée au CVS des SC alors que le CVS de la PAC est en charge de réguler l'état de charge des SC. Ce mode de régulation est le plus souvent mis en place (on le retrouve par exemple également dans [BEC-06]). Cependant la particularité de cette étude est que aucune boucle de séparation des puissances telle qu'illustrée dans la partie 1.2.1.1 n'est ajoutée. L'état de charge des SC étant régulé de manière lente, cela suffit à attribuer à la PAC une puissance à fournir possédant des variations lentes.
- Le second mode de pilotage consiste à attribuer le contrôle de la tension de bus au CVS de la PAC. Dans l'étude de [LAN-06] où la PAC est remplacée par une turbine éolienne, un intérêt particulier semble se dégager à réguler la tension de bus par le stockage, puisque cela permet de piloter la turbine éolienne en source de courant et

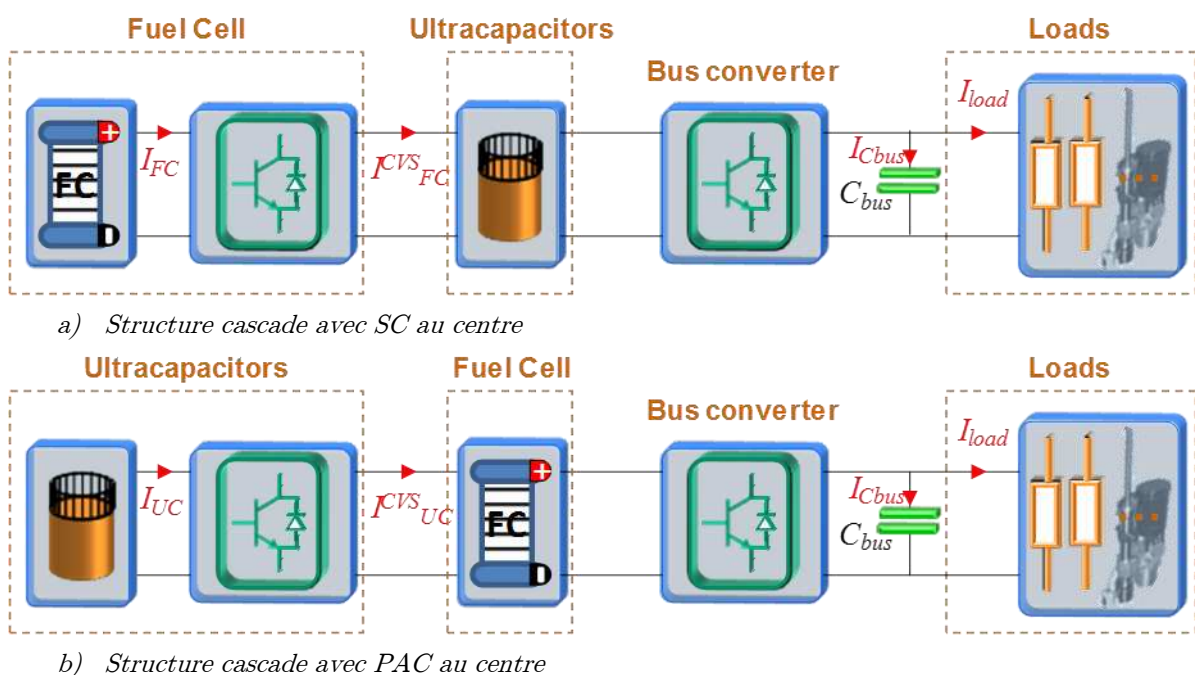
d'y insérer une fonction MPPT (Maximum Power Point Tracking). Cependant [GAR-07] a repris cette étude pour le cas d'une PAC et aucun intérêt particulier ne semblait se dégager à réguler la tension de bus par l'un ou l'autre CVS d'un point de vue dimensionnement (les CVS étant considérés dans cette étude avec une bande passante infinie).

On peut élargir cette approche au cas d'une double hybridation avec SC et batterie qui est encore plus complexe :

- Dans le cadre d'une étude d'une PAC hybridée par deux composants [THO1-09] (PAC, SC et batterie toujours sur une architecture parallèle), les auteurs proposent de réguler la tension de bus via les SC, ensuite la batterie vient contrôler l'état de charge des SC, puis la PAC régule l'état de charge de la batterie. Le composant le plus lent vient réguler l'état de charge de celui qui est un peu moins lent et ainsi de suite jusqu'au plus rapide qui contrôle le bus.
- Dans une autre étude basée sur la même structure [JIA-06] (PAC, SC et batterie en architecture parallèle), les auteurs proposent cette fois ci de réguler la tension de bus par la batterie. Les SC viennent en complément de la batterie en réalisant un partage par bande (cf. **Figure I.16** où la PAC serait la batterie), une boucle de régulation de leur état de charge y est sommée. Enfin avec le dernier degré de liberté : la PAC vient réguler l'état de charge de la batterie. L'intérêt de cette solution par rapport à la précédente est que pour un pic très important sur le courant de charge, on bénéficie à la fois du courant fournit pas les SC et de celui fourni par la batterie pour combler ce pic. En revanche, la batterie voit une partie HF dans son courant, ce qui pourrait être néfaste pour sa durée de vie.

#### 1.2.1.2.2 Structure cascade

La **Figure I.19** illustre les deux cas de figure possibles pour la structure en cascade.





**Figure I.19 :** Illustration de la structure cascade à deux convertisseurs.

La structure où les SC sont au centre (*Figure I.19.a*) possède l'avantage d'avoir seulement le convertisseur de bus de bidirectionnel. Elle permet de gérer simplement l'énergie emmagasinée dans les SC indépendamment de celle issue de la PAC en régime stationnaire. En revanche, l'utilisation de l'énergie stockée dans les SC est très limitée, puisque si l'on veut descendre bas en tension, non seulement il faut que le CVS de PAC puisse être abaisseur en tension, mais aussi que le convertisseur de bus puisse faire transiter des courants importants. De plus, la puissance fournie par la PAC doit traverser deux convertisseurs pour arriver aux charges (pertes et dimensionnement liés). Pour éviter de transformer plusieurs fois des courants importants sous des tensions faibles, la tension des SC doit être plus élevée que celle de la PAC (ce qui implique un dispositif de précharge des SC par la PAC si le CVS n'est pas abaisseur). Enfin, cette structure employée dans [HON-08] semble montrer l'avantage d'une gestion énergétique, et donc d'un contrôle-commande des CVS, plus simple que pour le cas des structures parallèles.

La structure où la PAC est au centre (*Figure I.19.b*), employée dans [PAY-06] et [PAY-08] présente l'avantage de contrôler facilement le point de fonctionnement de la PAC en régulant la tension à ses bornes. De plus, les SC peuvent être utilisés sur toute leur gamme de tension à condition que leur tension nominale soit inférieure à celle de la PAC, ce qui impose la nature du CVS qui leur est associé. En revanche, étant le dual du cas précédent, c'est la puissance fluctuante qui devra traverser deux CVS (pertes et dimensionnement liés) dans ce cas. Pour pouvoir fournir un pic de puissance sur la charge, la puissance venant des SC devra atteindre le nœud de la PAC idéalement à l'instant où celle-ci est prélevée par le CVS de bus, ce qui implique un CVS associé aux SC au moins aussi rapide que celui du bus.

#### 1.2.1.2.3 Conclusion sur les structures à deux CVS

Les structures à deux convertisseurs sont pratiques puisqu'elles permettent une gestion énergétique idéale des SC (grâce au degré de liberté supplémentaire offert par ces structures), un bus DC bien régulé en tension (idéal pour les charges), ainsi qu'un filtrage adéquat pour la PAC (fonction de la capacité du stockage). Ceci est cependant à payer au prix d'un convertisseur supplémentaire et donc du coût, de la masse, de l'encombrement, de la fiabilité, du développement (en particulier le choix d'une stratégie de gestion énergétique adaptée), et des pertes qui lui sont associées. Dans cette optique, de nombreuses études explorent l'hybridation PAC et SC à l'aide d'un seul convertisseur dont quelques-unes sont présentées dans la partie suivante.

#### 1.2.1.3 Architectures d'hybridation à un seul CVS

Les structures à un seul CVS doivent nécessairement laisser la tension de bus respirer. En effet, elles consistent à reprendre les structure cascade présentées à la *Figure I.19* en supprimant le convertisseur en charge de la régulation de bus. Ainsi la tension de bus devient celle des SC (cas de la *Figure I.19.a*) ou celle de la PAC ((cas de la *Figure I.19.b*)).

## 1.2.1.3.1 CVS associé à la PAC

La structure avec le CVS associé à la PAC consiste à employer les SC comme condensateurs de bus. Ainsi la PAC et son convertisseur associé ne fait que gérer l'état énergétique des SC, ce qui revient in fine à contrôler la tension de bus de manière très peu dynamique.

Dans l'étude de [GAR-07] appliquée à l'aéronautique, le dimensionnement des SC a été réalisé pour obtenir une ondulation de près de 5% sur le bus DC à 540Vdc. Compte tenu des dynamiques de réponse des CVS, il n'est pas rare que, sur un échelon de puissance, la tension de sortie d'un CVS varie de cette même valeur ou plus ; ce qui rend cette respiration de la tension du bus DC très compétitive (en terme d'amplitude) par rapport aux solutions possédant un CVS régulant la tension de bus. En revanche, la différence se situe sur l'aspect temporel car les ondulations du bus dans cette architecture se font à l'échelle de la seconde voire de la minute (étant donnée la capacité importante de celui-ci), alors que les ondulations en sortie d'un CVS régulant la tension de bus se font à l'échelle de la ms voire des 10ms. Cette étude a comparé entre autres la masse et la consommation en hydrogène de trois architectures (celle-ci, 2 CVS en parallèle et une hybridation directe PAC et SC). L'architecture présentée ici s'est avérée posséder le couple masse-consommation le plus faible parmi les trois architectures observées malgré un surdimensionnement nécessaire des SC étant donné leur faible pourcentage d'utilisation énergétique ; cela la rend très attrayante aux yeux de l'aéronautique compte tenu des avantages précédemment cités. De plus, la norme STD MIL 704 F [DOD-04] sur les réseaux électriques en aéronautique autorise une ondulation supérieure à 10% sur un bus DC de 270Vdc en régime permanent (il n'y a pas de normes actuellement disponible publiquement sur les réseaux 540Vdc). On peut donc constater que l'étude de [GAR-07] a été conservatrice sur l'ondulation puisqu'une ondulation double aurait pu être considérée. Donc, réduire le dimensionnement des SC, réduire encore la masse totale aurait rendu l'architecture encore plus attrayante.

Une autre étude [AZI-10] exprime à juste titre que, pour rendre cette solution viable, il faut envisager un dispositif de précharge auxiliaire des SC étant donné le caractère survolteur du CVS (tant que  $V_{SC} < V_{PAC}$ , le CVS ne peut fonctionner). Cet aspect pratique n'avait pas été envisagé dans [GAR-07], cependant des solutions telles que celles envisagées pour le cas de l'hybridation directe peuvent être mises en place ; elles seront décrites dans les chapitres concernés. En revanche, l'auteur écarte cette solution : il en juge la portée trop limitée étant donné que toute la puissance de la PAC passe par le convertisseur et subit donc ses pertes inhérentes.

## 1.2.1.3.2 CVS associé aux SC

Dans cette architecture la PAC est directement connectée au bus DC (*Figure I.19.b*) avec suppression du CVS de bus). Dans l'étude [GAR-07], l'auteur avait écarté cette possibilité car, à l'époque de l'étude, les plus grands stacks possédaient 400 cellules. Or pour l'application, la tension d'alimentation des charges est de 540Vdc, ce qui ne pouvait pas être atteint par une PAC et la mise en série de plusieurs stacks n'était pas autorisée par le cahier des charges. En

revanche, dans [AZI-10] cette solution est très valorisée en raison de l'énoncé des qualités suivantes :

- Exploitabilité totale de l'énergie emmagasinée dans les SC
- Pas de dispositif de précharge nécessaire (la précharge se fait via le CVS)
- Simplicité de la structure et gain sur la puissance moyenne fournie par la PAC étant donné qu'elle ne transite pas par un CVS
- Contrôle en tension du bus (donc de la PAC) via le CVS favorable par rapport au contrôle en courant habituellement employé lors de la venue d'une défaillance
- Continuité de service (en mode dégradé) en cas de perte de fonctionnement du CVS

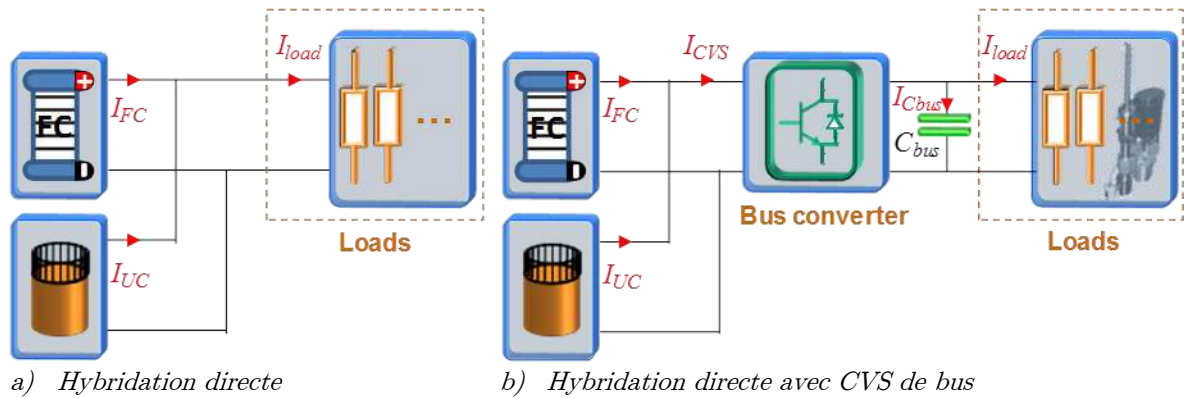
En revanche, pour la mise en place de cette solution, la stratégie de gestion énergétique devra in fine exiger du stockage de fournir la partie HF du courant de charge à travers la régulation de la tension de bus/PAC et d'état de charge ; cela exige une dynamique importante du CVS pour ne pas retrouver une partie de la HF fournie par la PAC. De plus, le contrôle en tension d'une PAC est a priori favorable en cas d'engorgement [SAI-04] (même si cela reste à prouver expérimentalement) mais ne l'est pas a priori en cas d'assèchement (tendance à aggraver la défaillance). Enfin, il faut que la charge puisse tolérer une variation de tension importante ou surdimensionner la PAC pour obtenir un comportement proche d'une source de tension aux points considérés.

#### 1.2.1.3.3 Conclusion sur les structures à un CVS

L'avantage des structures est de pouvoir réaliser l'économie d'un CVS et donc de s'affranchir des inconvénients liés (cités dans la *partie 1.2.1.2.3* ). En revanche, ceci est à payer au prix d'une tension de bus variable dont la variation peut être diminuée au moyen d'un surdimensionnement de la capacité des SC ou de la PAC suivant la structure employée. Cependant, pour certaines applications, la variation de la tension de bus n'est pas acceptable pour les charges. On doit alors rajouter un CVS pour la réguler : on se retrouve alors dans le cas des architectures à deux CVS en cascade. Ou alors, pour éviter le rajout d'un CVS et maintenir une tension de bus constante, il y a la possibilité d'hybrider directement la PAC avec les SC puis d'insérer le CVS en aval de l'ensemble hybridé : c'est la solution qui est proposée au paragraphe suivant.

### 1.2.2 Hybridations directes PAC/SC

L'hybridation directe (ou hybridation passive) consiste à relier directement une PAC avec des SC en utilisant l'inertie en tension ajoutée grâce aux SC pour filtrer le courant de la PAC. La gestion énergétique se fait alors naturellement entre les deux composants ce qui simplifie notablement l'implémentation.

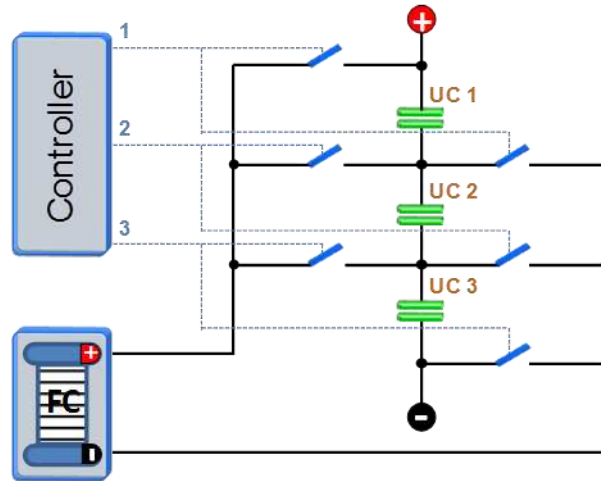


**Figure I.20 :** Illustration des architectures d'un système PAC hybridé directement

La **Figure I.20** illustre une architecture avec (a) ou sans (b) convertisseur de bus. Du point de vue gestion énergétique et association des composants, il n'y a pas de différence notable entre les architectures puisque pour le cas de la **Figure I.20.b**), on peut très bien imaginer un courant  $I_{CVS}$  qui serait identique au courant  $I_{load}$  de la **Figure I.20.a**) et inversement. En pratique, le courant prélevé par le CVS comportera des harmoniques supplémentaires liées au découpage. En faisant cette hypothèse d'égalité des courants dans les deux cas de figure, les charges ne verront pas le même profil de puissance pour un profil de courant donné. Considérer la solution sans CVS suffit compte tenu de l'aspect qualitatif de cet état de l'art.

### 1.2.2.1 Brevets ReliOn : présentation

Un principe d'hybridation directe breveté par ReliOn en 2002 [FUG-02] consiste à venir alimenter successivement des SC ou blocs de plusieurs SC en série à l'aide d'une source fort courant faible tension telle qu'une PAC grâce à un jeu d'interrupteurs. Ainsi si chacun des SC est chargé à la tension nominale de la PAC, la tension aux bornes de l'ensemble des SC équivaut à la tension de la PAC multipliée par le nombre de blocs de SC. Une élévation de tension est alors réalisée sans passer par les structures classiques de conversion. Ce système aurait un meilleur rendement selon les auteurs. Le principe de fonctionnement est illustré sur la **Figure I.21** pour un cas à 3 étages, le principe étant généralisable sur un nombre quelconque d'étages. Le brevet propose une solution identique avec des batteries et une autre solution, où les SC de la **Figure I.21** sont associés avec des éléments de batterie en parallèle. De la même manière, un fonctionnement similaire est proposé pour alimenter une charge à partir des blocs de SC et ainsi obtenir plusieurs niveaux de tension de sortie pour, par exemple obtenir, une tension AC type réseau en sortie.



**Figure I.21 :** Principe de fonctionnement d'une hybridation directe élévatrice de tension brevetée par ReliOn.

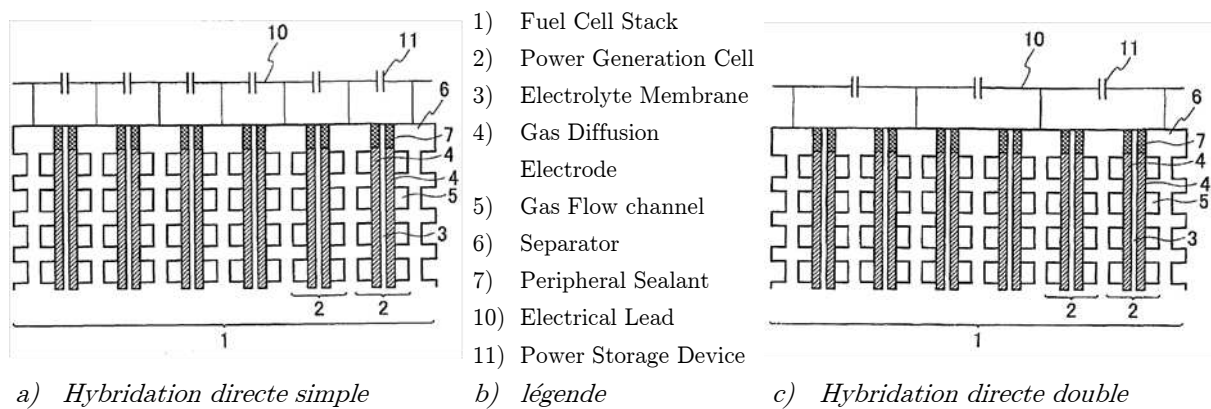
En revanche, aucune information n'est disponible sur les stratégies de gestion énergétique mises en place grâce aux jeux d'interrupteurs, ni sur les effets des commutations sur la PAC ou encore sur la précharge à mettre en place.

### 1.2.2.2 Brevets Nissan : présentation et analyses

Nissan a breveté en 2005 un ensemble de concepts sur l'hybridation directe d'une PAC par des SC [NIS-05]. Les principales idées développées dans ces brevets sont détaillées dans cette partie. Ces brevets ont été identifiés lors d'une recherche d'antériorité préalable à une tentative de dépôt de plusieurs brevets dans le cadre de la présente thèse.

#### 1.2.2.2.1 Connexion PAC et SC

Tout d'abord, il s'agit de connecter PAC et SC tout en assurant un équilibrage entre chaque cellule. Pour cela, Nissan propose les connexions illustrées sur la **Figure I.22**.

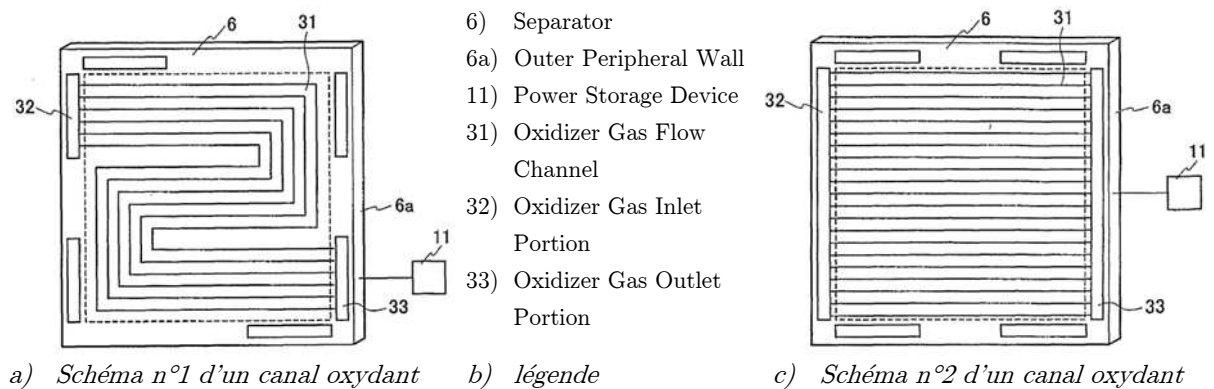


**Figure I.22 :** Illustration des principes d'hybridation directe proposés par Nissan [NIS-05]

La **Figure I.22.a)** illustre l'association directe d'une cellule PAC avec une cellule SC. L'avantage de cette association est, qu'à l'aide des dispositifs présentés par la suite, elle permet de maîtriser la tension de chacune des cellules de la PAC et ainsi prévenir les défaillances.

La **Figure I.22.c)** illustre l'association directe d'une cellule SC pour deux cellules PAC. En effet, la tension max d'une cellule SC organique est à l'heure actuelle de 2,7V ; or une cellule PAC attendra 1,1V dans le meilleur des cas. Puis dans le brevet, Nissan généralise aux nombres supérieurs, ce qui suppose à l'heure actuelle d'utiliser une autre technologie de SC. L'association d'une cellule PAC avec une cellule SC représente un taux d'utilisation de l'énergie maximale emmagasinable dans le SC de l'ordre de 16% ( $W = \frac{1}{2}.C.V^2$ ). Alors que dans le cas de l'hybridation double, le taux d'utilisation énergétique est de l'ordre de 66%, ce qui semble plus pertinent du point de vue énergétique.

En ce qui concerne la connexion de ces éléments, Nissan recommande de connecter les SC au voisinage de la sortie des gaz de la cathode.



**Figure I.23 :** Illustration du lieu préférable de connexion proposé par Nissan [NIS-05]

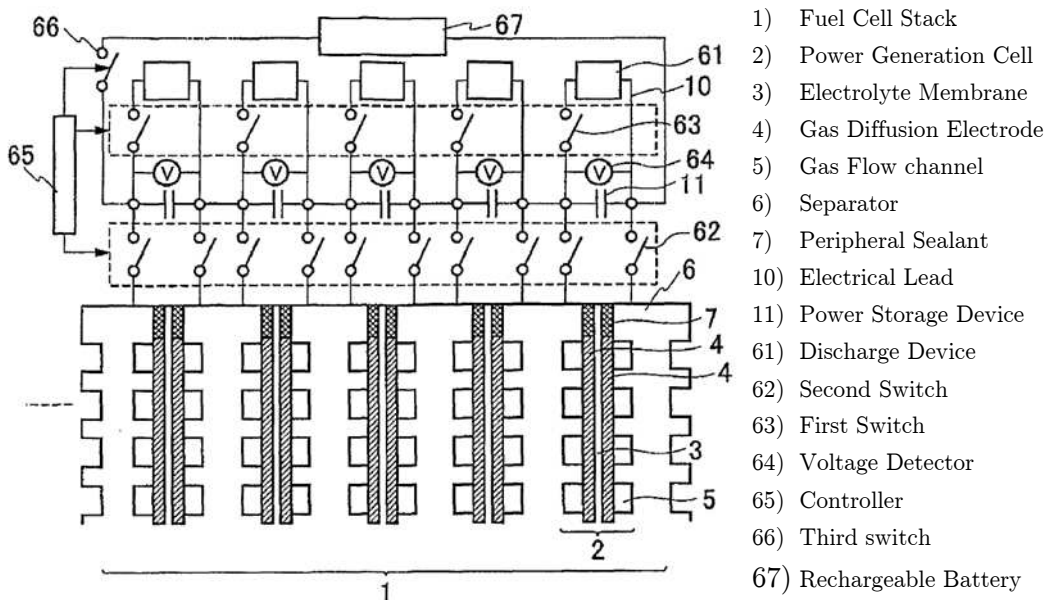
Comme illustré sur la **Figure I.23**, c'est dans cette zone que les densités de courant ont tendance à être les plus faibles. La connexion proposée par Nissan permettrait de minimiser les pertes lors des transferts de charge dans cette zone. Le fait d'inciter les charges à aller dans cette région en y ajoutant l'inertie que constitue le SC aurait tendance à rééquilibrer les densités de courant sur la surface et éviter les variations rapides de la tension localisée dans cette zone. La connexion des SC au niveau des plaques bipolaires (Separators) pourrait être faite simplement en prolongeant l'extrémité de celles-ci de manière non symétrique au niveau des zones recommandées (sorties gaz à la Cathode).

Nissan propose également de placer des SC de capacité supérieure aux deux extrémités du stack (de préférence les 2 à 5 premières/dernières cellules) souvent sujettes à des noyages rapides entraînant de variations de tension de ces cellules et ainsi permettre une meilleure stabilisation dans ces zones. Ceci permettant de ne pas surdimensionner la totalité des SC et d'en diminuer le coût.

#### 1.2.2.2.2 Utilisation

Nissan propose plusieurs versions intermédiaires dont la plus complète est présentée en **Figure I.24**. Tout d'abord un contrôleur surveille la tension de chaque SC (et donc de chaque

cellule PAC). En cas de surcharge des SC, des dispositifs de décharge placés en parallèle peuvent être connectés à l'aide d'interrupteurs permettant ainsi d'en diminuer l'état de charge (principalement utile pour le cas où il y aurait au moins trois cellules PAC pour un SC de technologie organique). Ces éléments (pilotés individuellement) permettraient également d'équilibrer les différentes cellules du stack, ce qui permet in fine d'améliorer la durée de vie et le rendement de celui-ci.



a) Schéma d'une version de système PAC hybridé directement b) Légende

**Figure I.24 :** Illustration d'un système PAC hybridé directement, version la plus aboutie [NIS-05]

La mise en gaz du stack doit se faire SC déchargés mais connectés. Habituellement de l'air s'insère à l'anode durant le stockage. Cela va générer des réactions parasites responsables de surtensions lors de la mise en gaz. Ces surtensions, nuisibles à la durée de vie de la PAC seraient supprimées par l'inertie ajoutée par les SC.

En général, les systèmes PAC sont laissés en circuit ouvert après la phase d'arrêt. Ici la procédure proposée consiste à connecter les dispositifs de décharge sur chaque cellule SC connectées elles-mêmes aux cellules PAC. Ceci permet de ne pas laisser la PAC à l'OCV (Open Circuit Voltage) et de ne pas risquer que sa tension remonte par la suite à cause de gaz réactifs résiduels. Ainsi le fait de forcer le potentiel à zéro de la cathode permettrait d'empêcher la détérioration pendant le stockage.

Enfin, afin de réaliser une mise en route saine du système, Nissan propose deux étapes visant à humidifier les membranes de manière homogène.

- La première étape consiste à charger les SC via une batterie, puis à connecter les SC aux cellules de la PAC. Ainsi un potentiel est imposé à chaque cellule et chaque cellule est équilibrée par rapport aux autres (ce qui n'est pas forcément vrai lorsque l'on impose une tension ou un courant à l'ensemble du stack). Ensuite de l'hydrogène est introduit à la cathode. Le potentiel imposé réalise une pompe à

hydrogène. Ceci permet à l'eau présente de traverser de la cathode vers l'anode aidée par le transfert de protons, ce qui humidifie ainsi la membrane.

- La seconde étape consiste toujours à précharger les SC avec la batterie, puis à venir les connecter en sens inverse aux cellules PAC (les interrupteurs numéroté 62 sur la **Figure I.24** doivent être également prévus pour inverser les polarités des SC sur les cellules PAC). Par le même principe que précédemment, les protons passent cette fois de l'anode vers la cathode embarquant de l'eau présente à l'anode, ce qui réalise un transfert d'eau dans le sens inverse de la première étape et homogénéise ainsi l'humidification de la membrane.

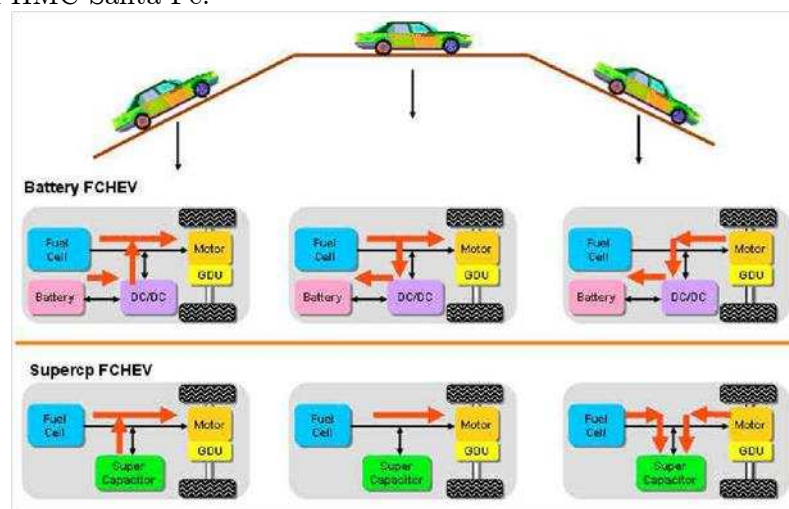
L'opération étant stoppée sur chaque membrane de manière individuelle par mesure du potentiel, il est possible d'avoir toutes les membranes dans un état d'humidité favorable et homogène, et d'éviter les niveaux de tension où la corrosion des électrodes est favorisée. La mise en gaz peut alors se faire de manière stable et sans détérioration. Enfin les auteurs du brevet décrivent une procédure de mise en route du système qui consiste à décharger les SC lorsqu'ils ne sont pas connectés, puis les connecter et alimenter les gaz. En revanche, ils ne donnent pas d'information sur les débits de gaz nécessaires ou sur la valeur des courants d'appel lors de la phase de précharge.

La batterie utilisée pour l'humidification des cellules va pouvoir remplir un rôle supplémentaire en enrichissant l'hybridation.

### 1.2.2.3 Véhicules hybrides et hybridation directe

Plusieurs études sur les véhicules hybrides montrent que l'on peut réaliser une économie significative sur l'hydrogène en adoptant une architecture d'hybridation directe PAC/SC plutôt qu'une hybridation indirecte PAC et batterie.

La première étude [JEO-05] est une réalisation expérimentale sur banc de tests pour un véhicule Hyundai HMC Santa Fe.

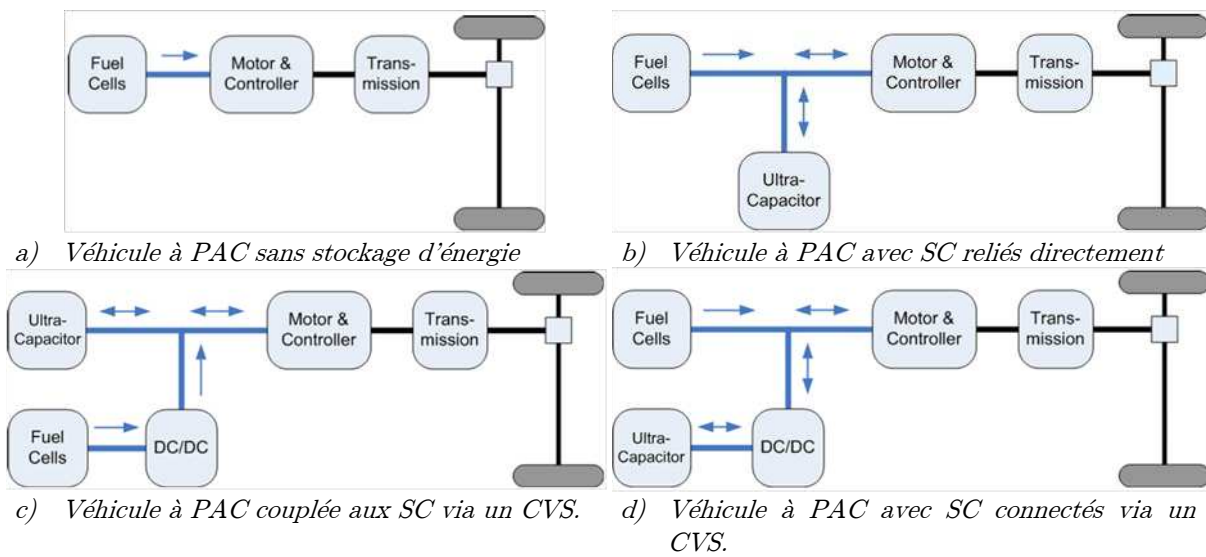


**Figure I.25** : Principales différences des sens de transfert d'énergie entre un véhicule à PAC/SC hybridés directement et un véhicule hybride PAC/Li-ion [JEO-05]



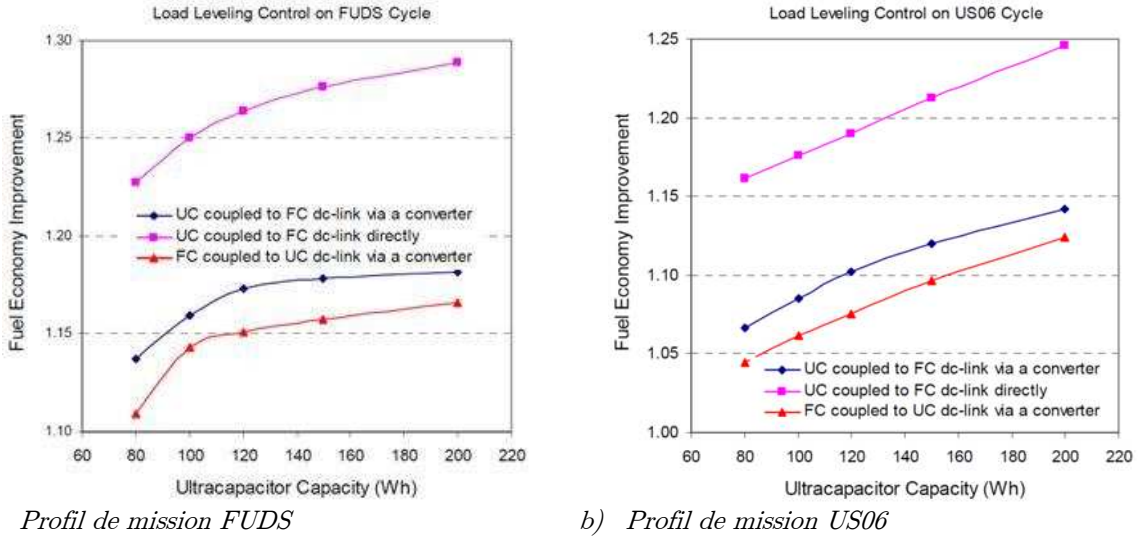
L'auteur montre que l'architecture hybride directe PAC-SC permet des économies en hydrogène sur les profils de mission FUDS, HWFET, JAPAN10-15 respectivement de 11,2%, 9,1%, et 13,6% par rapport à l'architecture hybride indirecte PAC et batterie. Dans leur cas (PAC de 75kW et SC de 15,7F sous 270Vdc), le filtrage naturel existant entre les deux composants laisse à la PAC les harmoniques inférieurs à 0,02Hz pour le profil FUDS selon les auteurs.

Une autre étude [ZHA-10] a comparé par simulation, entre autres, la consommation en hydrogène d'un véhicule basé sur les quatre architectures de la **Figure I.26**.



**Figure I.26 :** Architectures étudiées dans [ZHA-10]

Cette étude montre que l'architecture hybride directe (**Figure I.26.b**) permet une économie en hydrogène entre 10% et 20% supplémentaire (détaillé sur la **Figure I.27**) par rapport aux architectures indirectes (**Figure I.26.c**) et **Figure I.26.d**) suivant la capacité du stockage et le profil de mission par rapport au cas du véhicule non hybridé (**Figure I.26.a**).

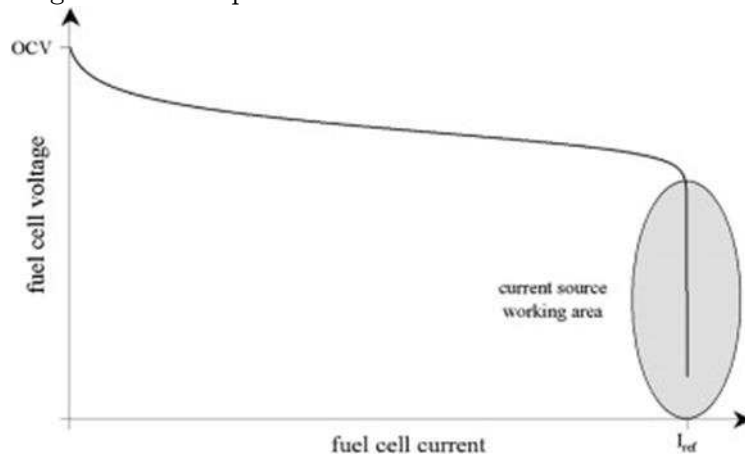


**Figure I.27 :** Economies réalisées sur la consommation en hydrogène des architectures proposées pour deux profils de mission différents — l'unité étant la consommation pour l'architecture non hybridée [ZHA-10].

Le fait d'hybrider directement la PAC permet également de diminuer la taille (de près d'un tiers selon [ZHA-10]) de celle-ci tout en conservant la même consommation en hydrogène que celle du cas non hybridé. Cela montre le potentiel élevé que propose l'hybridation directe dans les applications automobiles. En revanche, ces études génériques ne traitent pas précisément de l'interaction entre les deux composants, de l'impact sur la durée de vie du système, des moyens d'équilibrages ou encore des dispositifs de précharge du stockage.

#### 1.2.2.4 Association PAC-SC avec régulation de courant par le débit

L'étude [HIN-12], [NOI-13] a montré la faisabilité du pilotage d'une cellule PAC comme source de courant par régulation du débit des gaz. Cette étude a été réalisée sur une PAC H<sub>2</sub>/Air dont la partie électrique est en court-circuit. Un débit d'hydrogène a été fixé de manière à correspondre à un courant donné ( $I_{ref}$ ), le débit d'air étant calculé pour un fonctionnement en sur-stœchiométrie. Les gaz étant aux pressions ambiantes.

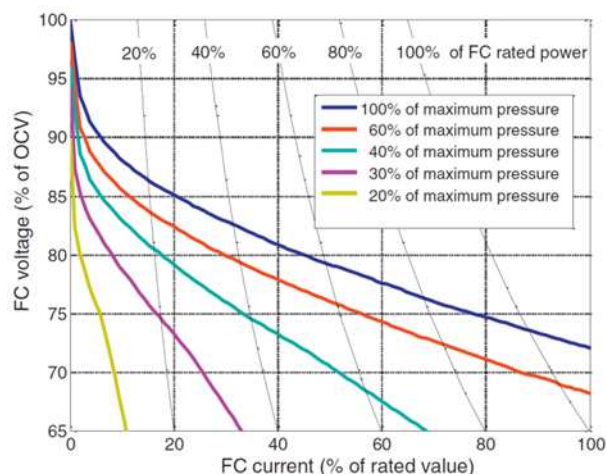


**Figure I.28 :** Courbe de polarisation incluant la zone où la cellule fonctionne comme une source de courant commandée par le débit d'hydrogène fixé par  $I_{ref}$  [HIN-12]

Comme illustré sur la **Figure I.28**, les auteurs montrent qu'il est possible de maîtriser le courant fourni par la PAC en maîtrisant le débit d'alimentation en gaz. Enfin il est proposé, par ce contrôle en tant que source de courant de la PAC, de piloter le courant débité par la PAC dans un SC pour une association directe entre les deux composants. Suite à cette expérience, il semblerait que la PAC employée n'ait pas subi de dégradation spécifique.

### 1.2.3 Hybridation PAC/Batterie

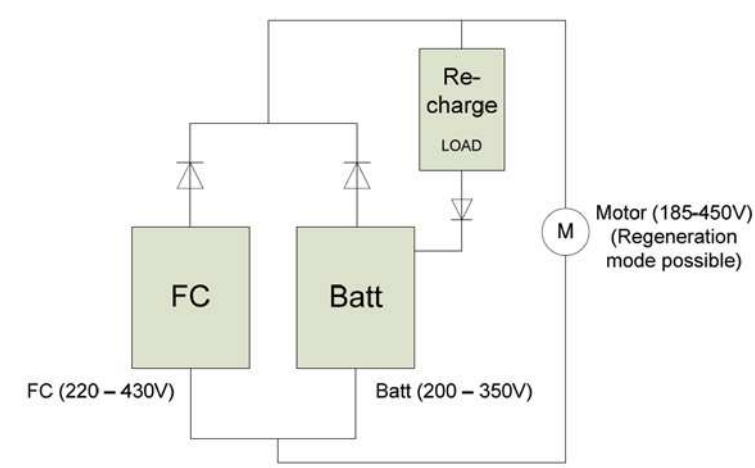
De manière similaire aux associations PAC et SC présentées dans les paragraphes précédents, le Paul Scherrer Institut [BER-11] et Ballard [BAL-03] proposent de piloter une PAC en tant que source de courant grâce à un contrôle des pressions de la PAC. L'application de ces méthodes est proposée pour une hybridation directe PAC et batterie. Le brevet déposé en 2003 par Ballard propose, entre autres, de piloter le courant fourni par une PAC ( $H_2/O_2$  ou  $H_2/Air$ ) dans une batterie au plomb par la maîtrise des pressions des gaz réactifs.



**Figure I.29** : Courbe de polarisation à température nominale et différentes pressions [BER-11]

La **Figure I.29** illustre la possibilité de variation de la courbe de polarisation d'une PAC placée sous différentes pressions. Ainsi en ajustant ces pressions de manière dynamique, dans [BER-11] est proposé une hybridation directe PAC  $H_2/O_2$  et batterie Li-ion où les auteurs viennent choisir le courant que doit fournir la PAC étant donné que la tension est fixée par la batterie. En revanche ce type d'hybridation nécessite un contrôle de l'état de charge de la batterie influant sur la valeur moyenne des pressions mises en jeu : l'avantage d'une autogestion énergétique proposé par l'association directe PAC et SC n'est alors plus présent.

D'autres travaux s'intéressent à l'hybridation directe entre une PAC et des batteries Li-ion. Par exemple, le DLR propose le système illustré sur la **Figure I.30** appliqué à l'avion à propulsion par PAC Antares H3.



**Figure I.30** : Architecture d'hybridation directe PAC et batterie Li-ion proposée par le DLR [KAL-11]

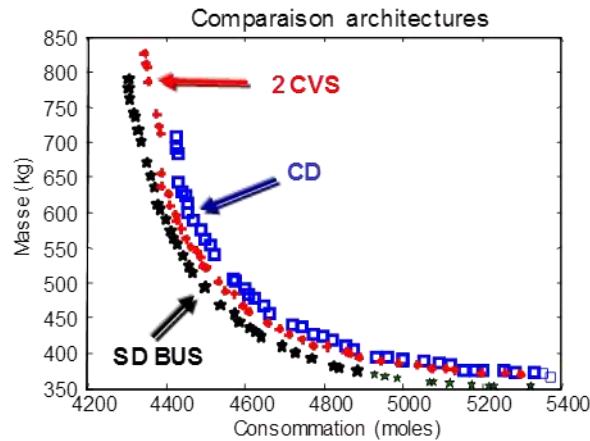
Le partage des puissances se fait naturellement sur cette architecture. Par contre la recharge de la batterie directement par la PAC n'est pas permise. La recharge de la batterie exige d'ailleurs des précautions supplémentaires. Le partage des puissances n'intervient que lorsque la tension de la PAC devient inférieure à celle de la batterie.

D'autres travaux envisagent l'hybridation directe d'une PAC et d'une batterie Li-ion. On peut citer parmi eux ceux de [HOR-12] dans le cadre du projet français APACHE dont une étude expérimentale de ce couplage a été réalisée.

### 1.3 Conclusion

Des différents états de l'art présentés dans ce premier chapitre ressort tout l'intérêt que l'on peut porter aux piles à combustible pour des applications variées. Dans un contexte où les avionneurs s'intéressent fortement à l'introduction des systèmes à PAC dans les avions de ligne, et où en parallèle la course à la propulsion électrique par hydrogène de plus petits avions est lancée, le laboratoire LAPLACE et Airbus travaillent sur la mise en œuvre de systèmes PAC. L'introduction des systèmes PAC en aéronautique pourrait devenir une étape essentielle pour parvenir aux objectifs environnementaux en aéronautique fixés par ACARE.

L'étude présentée dans [GAR-07] présente un niveau de maturité technologique (TRL - Technology Readiness Level) de l'ordre de TRL-2 (l'échelle allant de 1 à 9, du principe de base au système éprouvé et avionnable). Elle a notamment permis de comparer la masse et la consommation de trois architectures hybrides PAC et SC : une architecture directe, une architecture à un CVS et une architecture à deux CVS dont un des résultats d'optimisation masse/consommation est présenté en **Figure I.31**.



**Figure I.31** : Front de Pareto des architectures étudiées (CD : hybridation directe, 2CVS, hybridation avec deux CVS, SD bus : hybridation avec un CVS pour la PAC) [GAR-07]

Il en ressort que pour l'application au groupe de secours, du point de vue masse et consommation en hydrogène, l'architecture à un seul CVS semble être la meilleure option. En revanche, les autres architectures possèdent d'autres avantages qui ont déjà été exprimés dans ce chapitre tels qu'une bonne gestion énergétique du stockage et du bus DC possible pour l'architecture à deux CVS ou une autogestion énergétique et donc une fiabilité accrue pour l'architecture directe. Cette étude a en outre ouvert la voie à l'hybridation directe, mettant en évidence quelques mécanismes particuliers intervenants dans l'association des deux composants [GAR1-07] : ces mécanismes sont encore méconnus et peu de documentation publique en traitent.

L'étude présentée dans ce mémoire s'inscrit naturellement dans la continuité visant une meilleure compréhension des phénomènes d'interaction entre une PAC et un SC qui fait l'objet des chapitres suivants :

- le second chapitre propose des études préliminaires en vue de l'hybridation directe
- le troisième chapitre est consacré à l'analyse expérimentale d'une hybridation directe de monocellules
- le quatrième chapitre est dédié à l'analyse par simulation des études expérimentales d'hybridation directe

Puis, poursuivant l'étude théorique présentée dans [GAR-07] qui s'appuyait sur des résultats par seule simulation et dans le but d'augmenter le niveau de maturité technologique de ces concepts, nous présentons une validation expérimentale des trois architectures retenues lors cette étude à travers le cinquième chapitre relatif à la mise en œuvre et l'exploitation d'essais à puissances significatives de systèmes hybrides PAC/SC dans le cadre du projet ISS.

## CHAPITRE II

Analyses préliminaires et  
prospectives en vue de  
l'hybridation directe

Notre objectif est de développer un principe d'hybridation le plus simple possible, c'est-à-dire avec un nombre de composants additionnels idéalement nul entre les deux organes. Au début de nos travaux, la connaissance du laboratoire se résumait à quelques essais préliminaires réalisés à petite échelle dans [GAR-07] avec une pile à respiration et un supercondensateur de 10F. Si nous ne doutions pas de la faisabilité de l'hybridation directe, de très nombreuses interrogations existaient sur le fonctionnement intime d'une telle association et notamment concernant les interactions entre les deux composants. Parmi ces interrogations, nous pouvons souligner les problématiques suivantes : quels sont les mécanismes mis en jeu lors de la décharge en gaz d'une PAC ? Où partent les charges lorsque l'on stoppe l'alimentation en gaz d'une PAC, celles stockées dans le SC mais également celles des condensateurs de double couche de la PAC ? Quelle pourrait être la procédure de démarrage ou d'arrêt d'un système PAC hybridé par des SC ? En particulier, n'y a-t-il pas un risque de dégrader la PAC en laissant les deux composants connectés après avoir stoppé l'alimentation des gaz ? Etc.

Au regard de l'ampleur des interrogations, nous avons décidé de « débroussailler » le champ d'investigations de façon à apporter un minimum de réponses avant d'ambitionner des validations expérimentales de plus grandes envergures. Ce chapitre porte donc sur des études prospectives menées au laboratoire concernant différents mécanismes qui nous semblaient susceptibles de jouer un rôle dans l'hybridation directe. Plusieurs « débroussaillages » ont ainsi été menés et il nous a semblé intéressant de les relater au lecteur. Certains essais présentés dans ce chapitre pourront sembler originaux (voire décalés) ou incomplets, mais nous l'assumons. En effet, faute de recul, de temps et de moyens sur le moment, des oublis lors des manipulations ont pu exister. Cependant, à notre sens, cela n'enlève rien à l'intérêt que peuvent avoir ces tests que nous allons tenter d'analyser de manière la plus profonde et rigoureuse possible.

## ***2.1 Appréhension de phénomènes secondaires en vue de comprendre l'autodécharge d'une PAC hybridée ou non***

Les premières réflexions de cette thèse nous ont très rapidement conduits à nous intéresser aux phénomènes secondaires existants au sein d'une pile à combustible et habituellement négligés. Effectivement, il était assez facile de se projeter sur le fonctionnement d'une hybridation directe à courants non nuls (notamment en nous appuyant sur le modèle dynamique fort signal présenté dans l'Annexe 1), mais assez difficile d'appréhender le fonctionnement à courant nul ou très faible, et encore moins en phase d'arrêt. Or, il était connu que des phénomènes secondaires se manifestaient plus ou moins fortement dans cette zone des courants très faibles, comme notamment le crossover des gaz. La difficulté d'appréhender le fonctionnement dans cette zone s'explique d'une part, par la difficulté de nous appuyer sur notre modèle puisqu'il globalise, de manière très grossière, l'impact des phénomènes secondaires par le biais d'un courant parasite interne  $I_n$  (cf. première figure de l'Annexe 1), à l'instar de ce que propose généralement la littérature. D'autre part, cette difficulté s'explique par le fait que notre connaissance sur les phénomènes secondaires et sur le comportement d'une PAC en phase d'arrêt étaient très modestes.

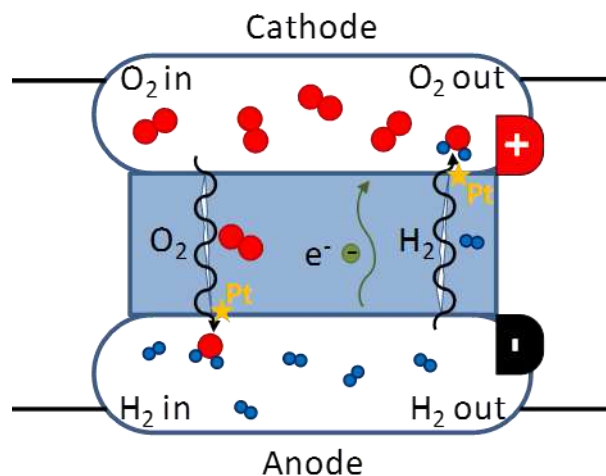
La littérature nous a en fait guidés vers la considération de trois phénomènes secondaires principaux susceptibles de jouer un rôle important dans une association directe PAC/SC : le crossover des gaz à travers la membrane voire celui électronique également, la réaction d'oxydation du platine et celle de corrosion du carbone connues pour être assez actives pour les courants très faibles et/ou en phase d'arrêt.

Dans cette partie, nous allons détailler successivement chacun de ces phénomènes secondaires de manière assez générale. Nous jetterons ainsi les bases qui nous permettront d'appréhender aux paragraphes 2.2 et 2.3 leurs impacts sur le comportement à vide d'une PAC ou d'une hybridation directe PAC/SC, puis sur son « autodécharge » qu'elle soit hybridée ou non (nous entendons par « autodécharge » le fait que la tension finisse toujours par s'écrouler suite à l'arrêt de l'alimentation en gaz).

### 2.1.1 Phénomènes de crossover

#### 2.1.1.1 Description et conséquences

Sous ce nom se regroupent trois phénomènes schématisés sur la **Figure II.1** : les passages des molécules de dihydrogène (appelée hydrogène par abus de langage) et de celles de dioxygène (appelée également oxygène) du côté opposé de la membrane, et la traversée de la membrane par des électrons. Dans le cas d'une PAC H<sub>2</sub>/air, le phénomène de crossover d'azote existe également.



**Figure II.1** : Illustration schématique des phénomènes de crossover (PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>)

La membrane électrolytique est conçue pour faciliter la traversée des protons (excellent conducteur ionique) et empêcher le passage des électrons (très mauvais conducteur électronique). Malgré tout, une infime partie des électrons parvient à traverser l'électrolyte directement au lieu d'être échangée à l'extérieur de la PAC avec le circuit électrique. Et cela d'autant plus que les constructeurs sont amenés à créer des membranes de plus en plus minces (de l'ordre de 25 à 50 μm) pour réduire les pertes associées à la conduction des protons. Ces électrons peuvent être vus comme un courant de fuite, puisqu'à l'arrivée côté cathode, ils peuvent contribuer à la réaction de réduction de l'oxygène ( $\frac{1}{2}O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightleftharpoons H_2O$ ).



Autrement dit, même en circuit ouvert, une PAC délivre un infime courant interne à cause des fuites électroniques à travers la membrane.

Un phénomène plus important que le crossover électronique précédemment décrit est le crossover gazeux à travers la membrane. Plus l'épaisseur de la membrane sera faible, plus son étanchéité aux gaz sera imparfaite. Plus ou moins de gaz va ainsi la traverser par diffusion. Ces mécanismes de diffusion sont liés à l'existence de gradients de concentrations des différentes espèces gazeuses présente initialement chacune à une seule électrode. Le crossover des gaz est maximal à courant nul car c'est là que les concentrations des espèces sont maximales de part et d'autre de la membrane.

Comme illustré sur la *Figure II.1*, après son passage à travers la membrane, l'hydrogène (respectivement l'oxygène) peut réagir de manière exothermique avec l'oxygène (respectivement avec l'hydrogène) pour former de l'eau en présence de platine : on parle de combustion catalytique de l'hydrogène. Ainsi la zone catalytique concernée n'est plus complètement utilisée pour la réaction principale de la PAC. La littérature ([ZHA-06], [INA-06], [CHE-07], [KOC-06]) s'accorde à dire que crossover de l'hydrogène est plus élevé que celui de l'oxygène. Dans [ZHA-08], il est question d'un rapport  $10^5$  entre les deux crossovers. C'est pourquoi, dans bien des cas, on se limite au crossover de l'hydrogène dans l'étude de ces phénomènes. Mais, cela ne doit pas être considéré, à notre sens, comme une généralité.

Au cours de son utilisation, une PAC va se détériorer. On relève notamment une diminution progressive de l'étanchéité aux gaz de la membrane liée à son amincissement et/ou la création de micro trous (appelés « pinholes » dans la littérature) par endroits. Le phénomène de crossover gazeux est en fait un des principaux responsables de la dégradation de la membrane. La traversée de la membrane par l'hydrogène et/ou l'oxygène vers l'électrode opposée va en effet provoquer des échauffements à proximité de la membrane de par la combustion catalytique de l'hydrogène. En outre, l'hydrogène et l'oxygène vont pouvoir se rencontrer et réagir au sein même de la membrane conduisant à la formation de radicaux libres très agressifs pour celle-ci. Ces phénomènes secondaires vont accélérer le vieillissement de la membrane avec un effet en chaîne puisque, plus la membrane s'affine à certains endroits, plus le phénomène de crossover va y augmenter, jusqu'au cas extrême de la création de « pinholes » qui va encore accélérer le processus de dégradation.

Une toute petite partie des gaz actifs va ainsi être directement transformée en chaleur sans production d'énergie électrique. Dans le cas de l'azote (PAC  $H_2$ /Air), son crossover vers l'anode va contribuer à l'inertier. C'est en partie pour cela qu'il faut purger régulièrement l'anode d'une PAC  $H_2$ /Air.

Les effets néfastes des phénomènes de crossover sur la durée de vie d'une PAC ne sont plus à prouver. Cependant le phénomène existe et, bien que les constructeurs travaillent à le limiter au maximum, l'utilisation des PAC doit se faire malgré tout.

### 2.1.1.2 Mesure du crossover d'hydrogène par Voltammétrie à Balayage Linéaire (VBL)

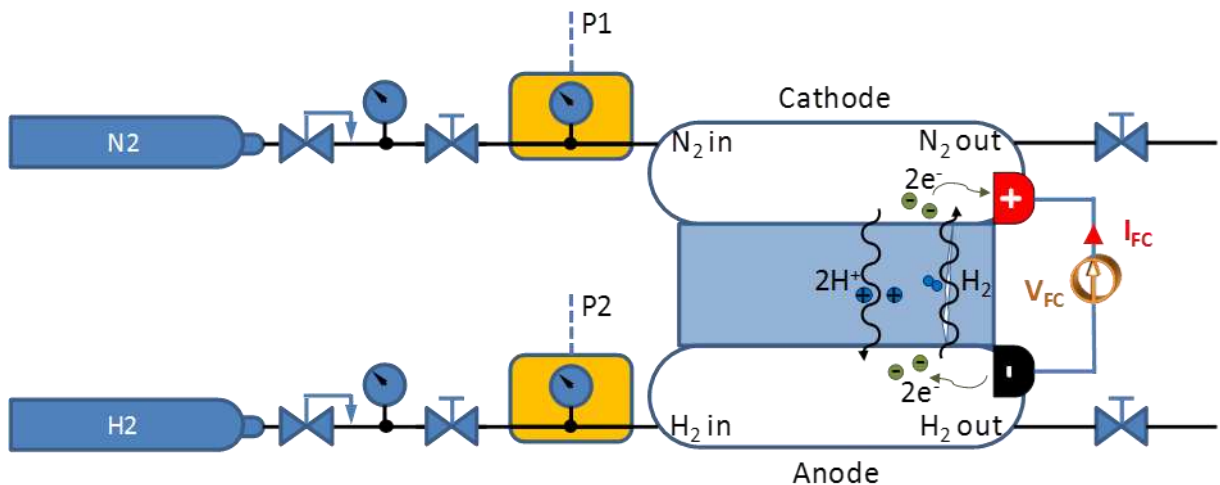
La voltammétrie à balayage linéaire (VBL) est une technique pour estimer le crossover d'hydrogène à travers la membrane d'une PAC, celle-ci n'étant plus en conditions opératoires nominales.

En effet, cette technique consiste à laisser le crossover d'hydrogène se produire vers la cathode dans laquelle un gaz inerte, tel que l'azote, est introduit, puis de « renvoyer » les molécules ayant traversé sous forme de protons sous l'action de la tension imposée aux bornes du composant. Une illustration du principe est proposée sur la *Figure II.2*.

Les molécules ayant traversé n'ont théoriquement aucun autre choix que de se dissocier ( $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ ) au niveau des sites catalytiques cathodiques (platine) puisqu'elles se trouvent en milieu inerte. Cependant, il est possible qu'une partie de l'hydrogène ayant traversé la membrane ne se décompose pas à la cathode et s'y accumule et/ou soit entraînée par le très léger flux d'azote qui balaie la cathode. De retour à l'anode via la membrane, les protons vont se retransformer en  $\text{H}_2$  ( $2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2$ ).

Ainsi, sous certaines conditions de tension, nous obtenons le nombre de protons ayant traversé la membrane en mesurant le courant extérieur. On en déduit alors le nombre de molécules d'hydrogène ayant traversé la membrane par crossover.

Cette méthode est valable uniquement pour la mesure du crossover d'hydrogène. Elle est entre autres détaillée et largement utilisée dans [WAS-10].



**Figure II.2** : Schéma de manipulation illustrant la mesure du courant équivalent de crossover

La mesure par voltammétrie à balayage linéaire consiste plus exactement à appliquer une tension linéairement variable en fonction du temps aux bornes de la PAC. Cette variation est en général choisie entre quelques 10mV et quelques 100mV. Les valeurs limites diffèrent suivant les auteurs. Cependant la valeur haute est fixée à une tension où la corrosion du carbone ne prend pas des proportions trop importantes ; la notion de « proportions trop importantes » étant assez vague, chaque manipulateur choisit dans les faits sa propre valeur max. Quant à la valeur basse, elle dépend du matériel employé et du temps de mesure considéré.

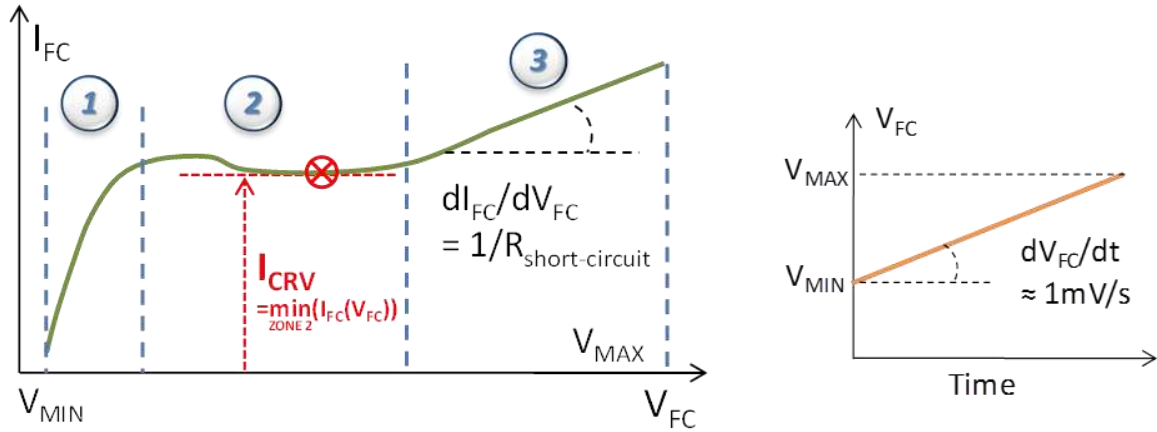
Afin de s'affranchir du courant nécessaire à la charge du condensateur de double couche, la variation de la tension sera choisie lente (1 à 2mV/s suivant la valeur de la capacité de double couche de la PAC — illustration sur la *Figure II.3.b*).

Lorsque la tension augmente, le courant croît lui aussi en trois étapes schématisées sur la *Figure II.3* :

- La tension est basse (zone 1): le courant part de zéro puis croît doucement. Tant qu'il est inférieur au crossover, des molécules d'hydrogène s'oxydent ( $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ ) et les autres s'accumulent à la cathode.
- Lorsque la tension devient suffisamment importante (zone 2), elle permet l'oxydation de toutes les molécules d'hydrogène traversant. On peut parfois observer un dépassement du courant correspondant au courant nécessaire pour « renvoyer » les molécules qui ont eu le temps de s'accumuler pendant que la tension était trop basse. Ce niveau de tension se situe en général entre 300mV et 350mV [WAS-10].
- La tension continue à croître (zone 3). On suppose que toutes les molécules sont réduites, même si en pratique, il est fort probable qu'une partie arrive à s'échapper vers la sortie en diffusant à travers l'azote qui circule. Durant cette phase, le courant continue de croître de manière linéaire. Selon [WAS-10] et [KOC-06], cette croissance correspondrait à la résistance électronique de l'électrolyte que l'on peut extraire en inversant la pente de la courbe durant cette phase (en général entre 400mV et 600mV). Cette résistance est souvent nommée résistance de court-circuit, mais rarement modélisée étant donnée sa valeur théoriquement importante et son faible impact sur le modèle.

La mesure du courant de crossover par VBL repose sur l'hypothèse très forte que toutes les molécules traversant par crossover sont oxydées. De plus, si l'on ne considère que cette mesure du crossover par VBL, cela revient à négliger le crossover d'oxygène (voire d'azote dans le cas d'une PAC  $H_2$ /air) : ce qui peut ne pas être pertinent dans certains cas. Théoriquement, on doit pouvoir vérifier que toutes les molécules traversant la membrane sont renvoyées à l'anode par l'ajout d'un capteur d'hydrogène en sortie des gaz cathode. Nous n'avons pas les moyens matériels d'effectuer cette mesure au moment de nos expérimentations ; donc pour cette étude, nous considérerons cette hypothèse vérifiée.

La détermination du crossover dans la zone 2 est sujette à débat dans la communauté scientifique (débat que l'on peut retrouver dans [WAS-10]). La mesure la plus pertinente nous semble être celle proposée par [RAM-04] consistant à considérer le courant au niveau du plateau comme courant équivalent de crossover comme illustré sur la *Figure II.3.a*).



a) Evolution du courant en fonction de la tension. Illustration d'un plateau de courant représentant le courant de crossover. b) Evolution de la tension en fonction du temps.

**Figure II.3 :** Illustration des signaux électriques pour une mesure de crossover par VBL

La quantité d'hydrogène traversant la membrane par unité de temps peut être déduite facilement par la loi de Faraday donnée par l'Equation (II.1) où  $I_{CRV}$  représente le courant équivalent de crossover :

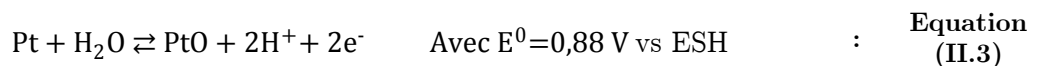
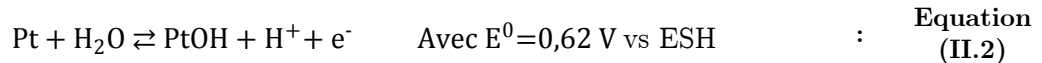
$$N_{H_2 CRV} = \frac{I_{CRV}}{n.F} \quad : \quad \text{Equation (II.1)}$$

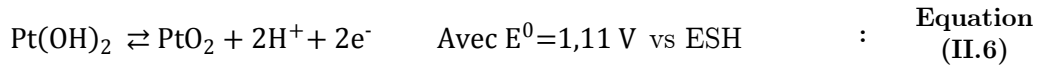
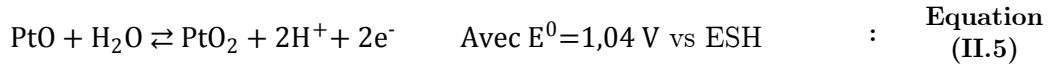
Il peut être exprimé de manière globale pour la PAC (mA), mais en général on préfère le mettre sous la forme de densité de courant ( $mA.cm^{-2}$ ) afin de pouvoir comparer des PAC de différentes surfaces actives entre elles. Les grandeurs  $n$  et  $F$  représentent respectivement le nombre d'électrons échangés lors de la réaction et la constante de Faraday (cf. Annexe 1) tandis que  $N_{H_2 CRV}$  est la quantité d'hydrogène traversant la membrane par unité de temps ( $moles.s^{-1}$  ou  $mole.cm^{-2}.s^{-1}$  suivant l'unité de  $I_{CRV}$ ).

Cependant étant de culture électrique, nous préférons conserver les grandeurs relatives au crossover sous la forme  $I_{CRV}$  plutôt que de manipuler  $N_{H_2 CRV}$ . A titre d'exemple, les ordres de grandeur des mesures observés par cette méthode dans [WAS-10] pour  $I_{CRV}$  sont comprises entre  $0,5 mA.cm^{-2}$  et  $3 mA.cm^{-2}$  ; plus ce courant est faible, meilleur est l'état de santé de la cellule. En revanche, on considère bien souvent qu'une cellule PAC est hors service si son courant de crossover dépasse les  $10 mA.cm^{-2}$ , son utilisation peut même devenir dangereuse puisqu'il y a un risque d'avoir des mélanges importants d' $H_2$  et d' $O_2$  dans une même électrode. En ce qui concerne les valeurs de la résistance de court-circuit, la majorité des mesures par cette méthode donnent des valeurs comprises entre  $180 \Omega.cm^2$  et  $300 \Omega.cm^2$  dans [WAS-10].

### 2.1.2 Réaction secondaire d'oxydation du platine - Potentiel mixte

Selon [LIU-09], les différentes réactions secondaires potentielles avec le platine sont les suivantes (ESH : Electrode Standard à Hydrogène, référence des potentiels standards) :





La réaction explicitée par l'*Equation (II.3)* est a priori la réaction essentielle. Notamment selon [ZHA-06], la réaction secondaire entre le platine et l'eau donnée par l'*Equation (II.3)* recouvre une partie de la surface du catalyseur par un oxyde de platine qui peut atteindre jusqu'à 30% de la surface catalytique totale.

Ainsi cette réaction secondaire d'oxydation du platine va réduire la surface des sites actifs puisqu'une « passivation » de la cathode est en quelque sorte réalisée. Mais cette dégradation est réversible. Outre la diminution de la surface active cathodique, cette réaction va influencer la tension aux bornes de la PAC.

A 25 °C et 1 bar en  $\text{H}_2/\text{O}_2$ , la réaction  $\frac{1}{2}\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}$  instaure un potentiel théorique de +1,229 V à la cathode par rapport au potentiel de l'anode. Celui-ci, étant régi par la réaction  $\text{H}_2 \rightleftharpoons 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ , est le potentiel de référence en électrochimie, c'est-à-dire théoriquement 0 V. Ces deux réactions imposent donc une différence théorique de potentiel de +1,229 V entre l'anode et la cathode.

Selon la théorie du potentiel mixte, si une autre réaction secondaire a lieu au sein de la PAC et que sa vitesse de réaction est dans un ordre de grandeur comparable à celle de la réaction de base  $\text{H}_2 + \frac{1}{2}\text{O}_2 \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}$ , alors la tension résultante sera une combinaison complexe des deux tensions des deux réactions.

Comme nous le verrons à la section 2.1.4, la corrosion du carbone est une autre réaction secondaire courante au sein d'une PAC. Cependant sa vitesse de réaction semble suffisamment faible pour qu'elle n'influence pas le potentiel mixte.

Ainsi, il semblerait que seule l'oxydation du platine à la cathode réponde aux critères de cinétique lui permettant d'influencer la tension de la PAC. En supposant des courants d'activation égaux et des coefficients de transferts égaux à 0,5 pour les deux réactions finalement considérées, la tension mixte aux bornes de la PAC serait théoriquement égale à 1,054 V (moyenne de 1,229 V et 0,88 V). Une valeur de 1,06V (à 25°C et 1 bar), très proche de cette valeur estimative, est fournie par [ZHA-06] sans explications plus précises. Cela signifie une diminution de 14% par rapport au potentiel standard théorique initialement attendu.

### 2.1.3 Bilan des impacts de la réaction d'oxydation du platine et des phénomènes de crossover sur la tension d'une PAC

Dans un cas idéal, la tension à vide d'une PAC devrait atteindre la tension théorique  $E_{\text{rev}}$  dépendante de la pression et de la température via la loi de Nernst (cf. Annexe 1), et de la

tension standard  $E^0$ , elle-même dépendante de la température. L'*Equation (II.7)* fournit une approximation de cette dépendance à la température [ZHA-06] :

$$E^0 = 1,229 - 0,000846 \cdot (T - 298,15) \quad : \quad \text{Equation (II.7)}$$

Ce qui conduit à une tension théorique à vide  $E_{rev}$  allant de 1,1797 V (dans des conditions usuelles d'utilisation en  $H_2$ /Air :  $P_{H_2} = 1$  bar ;  $P_{O_2} = 0,2$  bar et  $T = 80$  °C) à 1,2308 V (dans des conditions usuelles d'utilisation en  $H_2$ / $O_2$ :  $P_{H_2} = 3$  bar ;  $P_{O_2} = 3$  bar et  $T = 25$  °C).

En pratique, la tension théorique  $E_{rev}$  ne sera jamais atteinte même à courant nul. Deux principaux phénomènes sont mis en cause dans la littérature : le potentiel mixte lié à la réaction secondaire d'oxydation du platine Pt/PtO en premier lieu, et le crossover des gaz (notamment celui de l'hydrogène) en second lieu.

A l'instar de ce que propose généralement la littérature, notre modèle globalise, de manière très grossière, l'impact de ces deux phénomènes secondaires par le seul biais d'un courant parasite interne  $I_n$  (cf. Annexe 1) qui n'a une influence qu'aux très faibles densités de courant puisqu'il est typiquement de l'ordre du  $mA \cdot cm^{-2}$ .

Pour notre modèle décrit dans l'Annexe 1, il a été fait le choix que cette source de courant parasite interne influence tous les phénomènes : pertes ohmiques, pertes par diffusion et pertes par activation. Le fait d'influencer les pertes par diffusion et les pertes ohmiques est censé permettre de modéliser l'impact de la diffusion parasite de gaz à travers la membrane et donc à travers les électrodes, et dans une certaine mesure le crossover électronique. Quantitativement, ce sont les pertes par activation qui sont les plus fortement impactées par ce courant parasite incluant les effets du potentiel mixte et des phénomènes de crossover.

A notre sens, cette approche globalisée pour modéliser l'impact des phénomènes secondaires n'a pas vocation à décrire finement les réactions secondaires du cœur de pile, elle a été introduite pour rendre compte de l'écart (attribué auxdites réactions secondaires) entre tension théorique à vide et tension de circuit ouvert. Et de ce point de vue, elle remplit son rôle de façon plutôt satisfaisante par le biais de pertes d'activation. Cependant, pour une description précise de réactions secondaires, cette approche globalisée est insatisfaisante et reste complètement à améliorer.

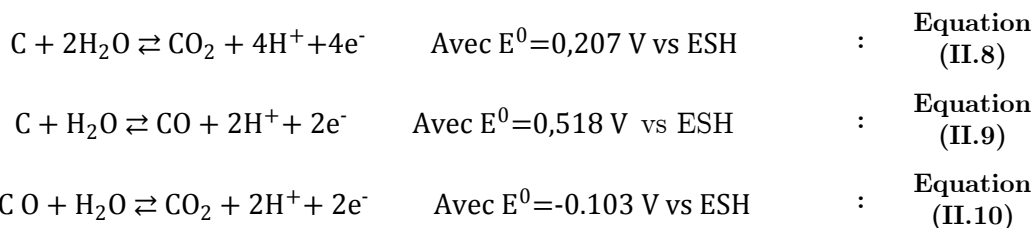
#### 2.1.4 Réaction secondaire de corrosion du carbone

Par souci d'économie en métaux rares et précieux, dans la majorité des cas, les couches catalytiques (AL : Active Layer) de l'anode et celle de la cathode sont généralement constituées d'un support en carbone sur lequel des petits grains de platine sont déposés le plus finement possible pour en réduire la quantité. Sous certaines conditions que nous allons tenter d'identifier dans cette partie, il est possible que ce support carboné s'oxyde avec l'eau présente à chaque électrode et s'évacue sous forme de gaz. Si une partie de carbone supportant un grain de platine s'oxyde, ce grain se détache et peut alors se rattacher à un autre, être évacué avec l'eau produite, tomber et rester au fond de la PAC, se coincer dans les couches de diffusion ou encore migrer à travers la membrane.

Les couches de diffusion (GDL : Gas Diffusion Layer) sont également constituées de carbone. Nous nous interrogeons si elles peuvent être impactées par ce phénomène alors que la conduction protonique y semble très difficile... La littérature n'est pas claire à ce sujet.

Il va de soi que ce phénomène affecte la durée de vie et les performances de la PAC puisque les zones réactives sont réduites. De nombreuses études sont effectuées pour réduire ce phénomène intrinsèque à la conception de la PAC.

D'après [MAA-07], il est affirmé que la réaction donnée par l'*Equation (II.8)* peut se produire dès 0,207 V à la cathode d'une PAC et donc dans la grande majorité des cas d'utilisation de celle-ci. En revanche la réaction donnée par l'*Equation (II.9)* n'est pas thermodynamiquement favorisée à cause de la réaction de l'*Equation (II.10)* selon [RAN-10].

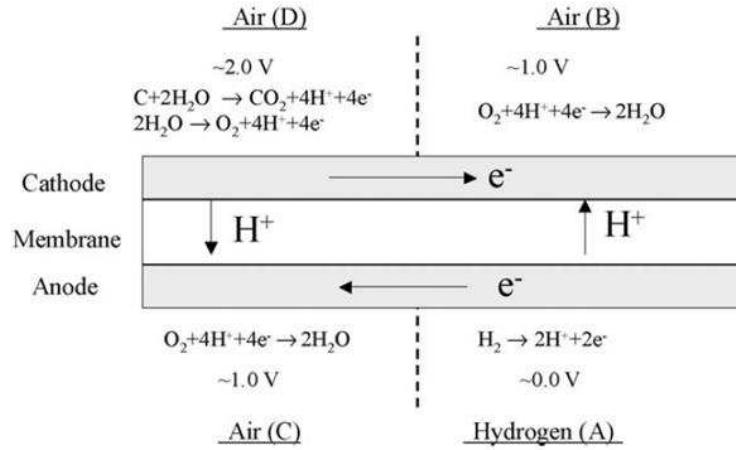


Dans la littérature, la majorité des auteurs se concentrent ainsi sur l'oxydation du carbone régie par l'*Equation (II.8)*. La réaction d'oxydation du carbone se produit en permanence. En revanche, les dynamiques sont très lentes compte tenu des faibles températures d'utilisation des PAC (<100 °C) [ZHA-08]. Cependant la cinétique de cette réaction s'accélère lorsque le potentiel monte et commence à devenir conséquente lorsque l'on s'approche de 1 V [TAN-05], [MAK-04]. Suivant les auteurs, le niveau de tension où la corrosion du carbone devient importante se situe entre 0,8 V et 0,9 V (là encore la notion « d'importance » est assez vague...). De plus cette réaction augmente en fonction du taux d'humidité de la membrane compte tenu des réactifs mis en jeu. Elle dépend également d'autres critères tels que la nature de la membrane ; les membranes ont en effet chacune un comportement différent vis-à-vis de l'eau suivant leur matériau.

De manière générale, pour éviter cette dégradation du carbone, il est conseillé de ne pas rester trop longtemps à l'OCV (Open Circuit Voltage : tension à vide) pour un système PAC.

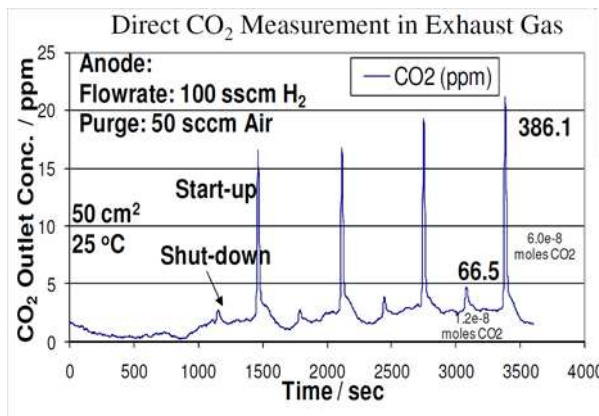
#### **2.1.4.1 Cas des mises en gaz et arrêts**

La littérature s'accorde à dire que la corrosion du carbone est prépondérante pendant les phases de démarrage et d'arrêt d'une PAC, et en particulier pendant les phases de démarrage [BOR-10], [GU-07]. En revanche, toutes ces études sont appliquées à des PAC H<sub>2</sub>/Air arrêtées par un balayage en air de l'anode. En effet, lors de la remise en gaz, le flux d'arrivée des gaz crée des sur-potentiels locaux accélérant cette réaction comme illustré sur la *Figure II.4*. Ainsi la région notée C voit la réaction de réduction de l'oxygène (créant localement un potentiel mixte de l'ordre de 1V), et la région D subit environ deux fois son potentiel à vide et par conséquent se corrode très rapidement. Le raisonnement peut être envisagé de manière similaire lors l'arrivée de l'air à l'anode pour arrêter la PAC.

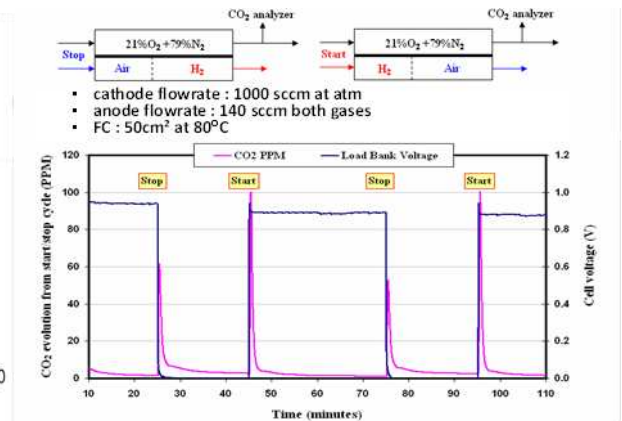


**Figure II.4 :** Représentation schématique des réactions mises en jeu dans les quatre régions distinctes d'une PAC H<sub>2</sub>/Air lors de la phase de mise en gaz après aération de l'anode. [TAN-05]

Par exemple, dans l'essai de [BOR-10] illustré sur *Figure II.5.a)*, un capteur de CO<sub>2</sub> a été placé en sortie des gaz (l'électrode en question n'est pas précisée ; il s'agit probablement de la cathode car c'est là que la dégradation est la plus importante). Puis plusieurs cycles d'arrêts et de mises en gaz ont été effectués. Le CO<sub>2</sub> produit ne peut provenir que de la corrosion puisqu'il n'est pas présent dans ces quantités dans les gaz d'entrée. La différence entre la corrosion lors de la mise en gaz et celle lors l'arrêt apparaît nettement. Il en est de même pour l'essai de [GU-07] illustré sur la *Figure II.5b)* qui est semblable, mais présente une différence moins importante entre l'oxydation à la mise en gaz et l'oxydation à l'arrêt ; néanmoins, les valeurs mesurées sont conséquentes. Le CO<sub>2</sub> mesuré en ppm aura donc une valeur dépendante du débit tandis que la cinétique de la réaction de corrosion du carbone est influencée entres autres par le taux d'humidité à la cathode (elle fait intervenir de l'eau) et la température.



a) Essais réalisés par [BOR-10]



b) Essais réalisés par [GU-07]

**Figure II.5 :** Mesure de la quantité de CO<sub>2</sub> en sortie de gaz d'une PAC soumise à des phases de démarrages et d'arrêts

Un moyen d'éviter l'oxydation du carbone lors des phases de démarrage est de balayer l'anode (compartiment H<sub>2</sub>) avec de l'azote [DAH-10], [MAR-10], [SCH-11]. De cette manière, on évite la réaction de réduction de l'oxygène si de l'air venait à être présent à l'anode et le sur-potentiel lié à cette réaction. Seules les molécules d'oxygène ayant traversé par crossover peuvent réagir, mais elles restent en faibles quantités. La cathode ne verra donc pas un



potentiel plus élevé que son potentiel à vide. De ce fait l'oxydation du carbone à la cathode ne dépassera pas les cinétiques habituelles régies par le potentiel à vide.

Une étude présentée dans [WET-09] et dont les résultats sont présentés dans le **Tableau II.1**, affirme que, plus le flux d'hydrogène entrant est faible, plus la dégradation du carbone est importante et que, plus la capacité de double couche est importante, plus la dégradation est importante. Ces travaux remettent potentiellement en cause notre étude, étant donné que nous souhaitons augmenter artificiellement la capacité de la PAC en lui associant un SC en parallèle.

Introduction time (s)	Maximum carbon loss (g/cm <sup>2</sup> )
0.8	1.57
0.4	1.02
0.2	0.767
0.1	0.498

Capacitance (F/cm <sup>2</sup> )	Maximum carbon loss (g/cm <sup>2</sup> )
0.04	0.977
0.022	0.767
0.01	0.485
0.005	0.383
0.001	0.333

a) Perte de carbone maximale prédite par le modèle pour différentes valeurs de capacité spécifique

b) Perte de carbone maximale prédite par le modèle pour différents temps d'introduction d'hydrogène.

**Tableau II.1 :** Pertes de carbone prédites par un modèle pour différents temps d'introduction d'hydrogène et différentes capacité de double couche [WET-09]

En revanche, une autre étude est potentiellement plus rassurante par rapport à nos travaux : [MAR-10]. Dans le mécanisme illustré sur la **Figure II.4** : on observe des trajets d'électrons de manière transversale (et donc des courants). Suite à un entretien avec les auteurs, il semble que le courant d'oxydation ne soit pas la somme de ces courants comme ce qui a été considéré dans [WET-09], mais la somme de ces courants déduite des courants capacitifs. Or il est vrai que plus la capacité de double couche sera élevée, plus les courants capacitifs seront importants et donc, considérant ces courants comme courants d'oxydation, il est normal que [WET-09] trouve une oxydation qui augmente avec la capacité. Une fois ces courants déduits, les courants d'oxydation ne varient plus avec la capacité mais, entre autres, avec le potentiel de la cathode et le temps d'introduction de l'hydrogène ([MAR-10] et [WET-09] sont en accord sur ce point).

Au regard de ces études contradictoires, il reste tout de même difficile de conclure à ce stade sur un potentiel aspect positif ou négatif de l'hybridation directe concernant la corrosion du carbone lors des phases d'arrêt ou de démarrage d'une PAC.

De plus, notre étude porte sur les PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>. Ce cas d'étude peut être différent de ceux précédemment détaillés puisqu'habituellement lors des phases d'arrêt, les gaz sont chassés par de l'azote aux deux électrodes. Cela n'est pas toujours possible pour une PAC H<sub>2</sub>/Air puisque la cathode est aérée dans la plupart des cas. De plus, pour une utilisation embarquée, il ne sera pas toujours aisé d'emporter, en plus de l'hydrogène, l'azote nécessaire à l'inertage.

On peut également arrêter une PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> en soufflant un gaz inerte seulement à une électrode. Un intérêt peut se dégager à inerte la cathode : c'est l'électrode qui impose le potentiel positif. En le réduisant à zéro, on le place hors de portée de certaines réactions.

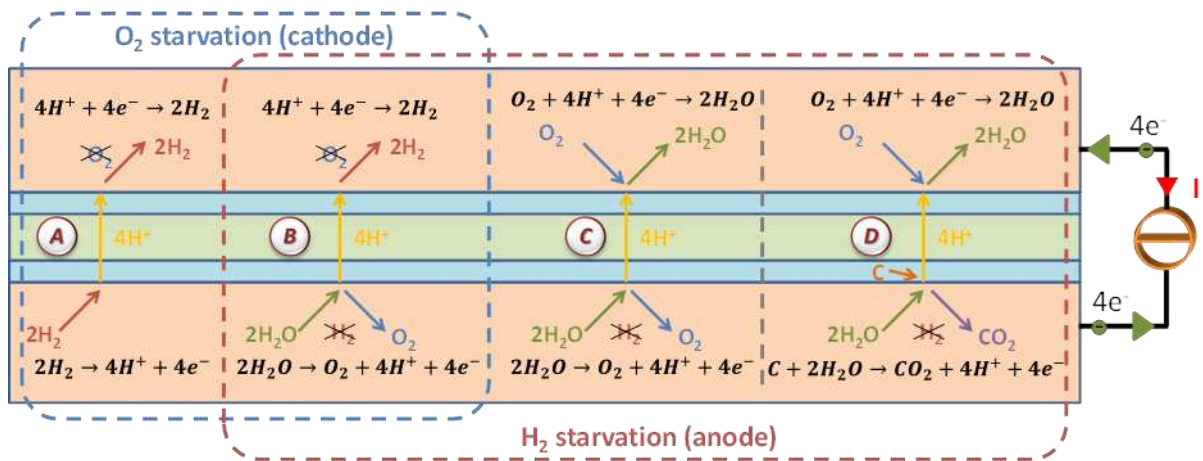
De nombreux scénarii peuvent ainsi être envisagés pour arrêter une PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> : inertage d'une seule électrode, des deux, ou encore d'une puis de l'autre quelques temps après, avec différents gaz courants tels que l'azote ou l'air. De même, il existe de nombreuses possibilités pour la mise en gaz. Ces scénarii seront étudiés plus en détails à la fin de ce chapitre. Ces scénarii seront étudiés à la fin de ce chapitre.

**2.1.4.2 Conséquences d'appauvrissements en gaz actifs**

Hormis les potentiels élevés, un autre phénomène responsable de la corrosion du carbone est présent dans la littérature : il s'agit de l'appauvrissement en gaz qui peut se produire transitoirement après des changements assez importants de point de fonctionnement pendant que les régulations fluidiques opèrent, ou lors de défaillances comme l'apparition d'un bouchon d'eau au niveau des canaux d'alimentation. A la différence d'un démarrage ou d'un arrêt, ce cas de figure se produit donc lorsque la PAC est en fonctionnement et alimente une charge.

Sous l'hypothèse d'un appauvrissement en hydrogène, pour répondre à la demande en protons et en électrons nécessaires à la réduction de l'oxygène à la cathode, la zone appauvrie concernée à l'anode va subir une oxydation du carbone selon l'**Equation (II.8)** en libérant les protons et électrons demandés [MAA-07].

Dans [PHL-09], on retrouve les conséquences détaillées pour chaque type d'appauvrissement (anglais : starvation). Les réactions citées sont résumées sur la **Figure II.6**. Sur cette figure, toutes les réactions ont été mises « à l'échelle » de manière à fournir 4 protons et 4 électrons de l'anode vers la cathode.



**Figure II.6** : Réactions permettant de fournir 4 protons et 4 électrons à la cathode lors d'appauvrissements en gaz à l'anode et/ou à la cathode.

Signalons que dans le cas d'un appauvrissement en oxygène, la réaction de corrosion du carbone n'est a priori pas sollicitée [PHL-09] : la cellule concernée fonctionne alors en pompe à hydrogène. Parmi les conséquences d'un appauvrissement, seule la réaction (D) provoque directement une dégradation non réversible de la cellule.

## 2.2 Etudes expérimentales prospectives avec une monocellule PAC H<sub>2</sub>/air (à respiration)

Pour nos premières études prospectives, il semblait souhaitable de mener nos investigations, potentiellement destructrices, sur une PAC simple et peu coûteuse. Nous avons retenu une monocellule à respiration commercialisée par la société française PAXITECH (*Figure II.7*).

Une PAC à respiration est une PAC H<sub>2</sub>/Air dont la cathode respire directement l'air ambiant par des ouvertures, donc aucune gestion du comburant n'est à mettre en place. Cela peut constituer un avantage ou une limitation comme nous le verrons à quelques reprises. La PAC dont nous disposons est très facile à mettre en œuvre, d'autant plus qu'elle autogère sa thermique et l'évacuation de l'eau produite (les deux étant liées via l'évaporation de l'eau). Elle ne dispose que :

- d'une entrée sur laquelle on vient brancher un tuyau d'alimentation en hydrogène à pression atmosphérique (ou très légèrement supérieure).
- d'une sortie, avec une vanne permettant d'effectuer des purges de l'anode.
- de 2 connecteurs électriques.

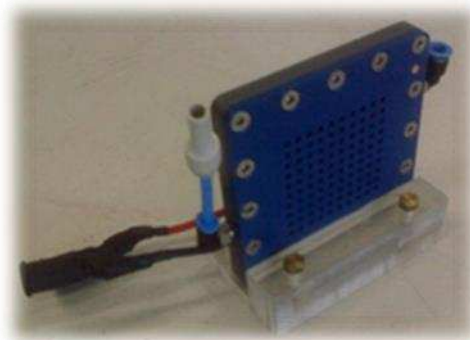
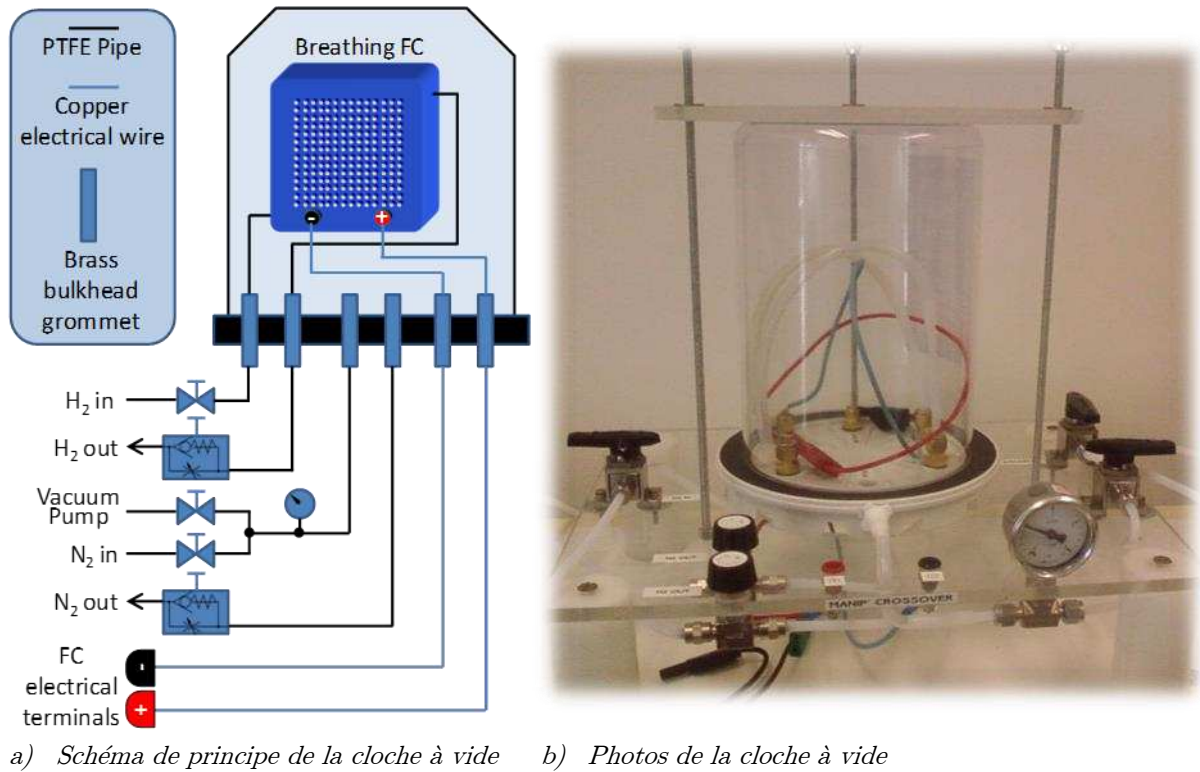


Figure II.7 : Photo de la PAC à respiration utilisée.

### 2.2.1 Mesure du crossover d'H<sub>2</sub> par VBL pour la PAC à respiration

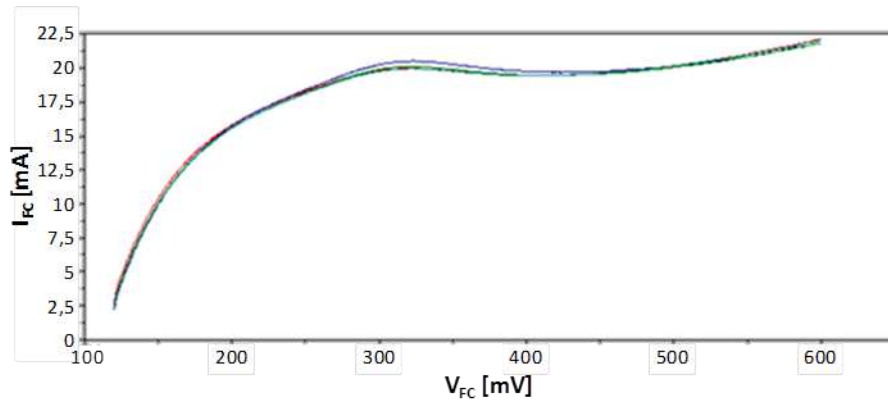
La méthode de voltammétrie à balayage linéaire (VBL) exige de placer la cathode de la cellule sous atmosphère inerte. Si la mise en œuvre de notre PAC à respiration est aisée, l'inertage de sa cathode ne l'est en revanche pas. Pour inertiser cette PAC, nous avons donc mis en place une cloche à vide (*Figure II.8*) permettant d'une part de vider l'atmosphère hermétique de la cloche, et d'autre part de remplir cet atmosphère par un gaz de notre choix (de l'azote pour les essais de VBL). Cette cloche nous permet également de faire fonctionner les PAC à respiration en H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>, mais là n'est pas le sujet de cette partie. Ainsi en faisant le vide partiel dans la cloche, puis en la remplissant d'azote, et en effectuant ces deux opérations successivement plusieurs fois, on peut penser que l'atmosphère de la cloche est totalement inerte au bout de quelques itérations. L'inconvénient de notre montage est que la température de la cloche, ainsi que l'humidité relative de l'atmosphère qui y règne, ne sont pas maîtrisées.



**Figure II.8 :** Illustration de la cloche à vide pour l'inertage d'une PAC à respiration

En ce qui concerne les tensions maximale, minimale et la vitesse de croissance de la tension, nous avons choisi en premier lieu de réutiliser les valeurs employées dans [INA-06], c'est-à-dire  $V_{min} = 120 \text{ mV}$ ,  $V_{max} = 500 \text{ mV}$  avec une vitesse de  $1 \text{ mV/s}$ . Quelques mesures nous ont permis d'observer que  $V_{max}$  devait être augmentée puisque, dans notre cas, le plateau recherché semblait se situer aux alentours de  $400\text{-}450 \text{ mV}$ . Par la suite,  $V_{max}$  a été fixée à  $600 \text{ mV}$ . Cependant nous verrons que ce choix n'est pas optimal car à l'époque des essais (début 2010), les travaux de [WAS-10] n'étaient pas encore publiés et la documentation disponible sur la mesure par VBL était plutôt maigre.

Un essai regroupant 5 mesures à la suite est illustré sur la **Figure II.9**. Nos premiers essais n'étant pas tous reproductibles, chaque essai suivant a été systématiquement reproduit plusieurs fois. Ces non-reproductibilités ont été attribuées au fait que la cloche n'était pas parfaitement inertée. Pour s'assurer qu'il ne reste plus d'oxygène à l'intérieur, il faut en effet effectuer de nombreuses fois l'opération de mise à vide, remplissage à l'azote et de balayage à l'azote.



**Figure II.9 :** Mesures par VBL sur la PAC à respiration

Sur la **Figure II.9**, on observe un plateau se situant vers 19,5 mA. Notre PAC possédant une surface active de 16 cm<sup>2</sup>, on aboutit à un courant équivalent de crossover de 1,22 mA/cm<sup>2</sup>.

Sur cette courbe, on commence en outre à observer la pente censée correspondre à la résistance de court-circuit de la membrane. Cependant, cette pente n'est pas assez longue pour en avoir une valeur précise. C'est pourquoi le choix de V<sub>max</sub> = 600 mV n'était pas le plus judicieux. Après coup, nous pensons qu'un choix de V<sub>max</sub> aux alentours de 800 mV aurait été mieux approprié ; d'autant plus que cette tension est une grandeur de travail que nous utilisons couramment avec cette cellule : la dégradation du carbone n'aurait donc pas été plus importante que lors de son utilisation habituelle. En revanche, on peut tout de même estimer cette pente aux alentours de 2mA pour 100mV, soit une résistance de court-circuit de 50 Ω (800Ω.cm<sup>2</sup>) ; ce qui nous semble assez faible pour une cellule.

Si l'on souhaite séparer le crossover de gaz du crossover électronique, il faut à priori déduire le courant traversant cette résistance de court-circuit au point de mesure (420 mV) soit 8,4 mA. Cette séparation n'est généralement pas effectuée dans la littérature. Nous resterons donc prudents à ce sujet. Il en résulte que le crossover de l'hydrogène représenterait un courant équivalent de fuite de 11,1 mA (0,69 mA.cm<sup>-2</sup>).

## 2.2.2 Autodécharge d'une PAC à respiration seule ou hybridée

Lorsque l'on associe une cellule PAC avec un SC et que l'on stoppe l'arrivée des gaz actifs, se pose la question de savoir ce qu'il advient de la charge du SC : reste-t-il chargé ? Se décharge-t-il dans la PAC ? Si oui par quel procédé ? Est-ce dégradant pour la PAC ?

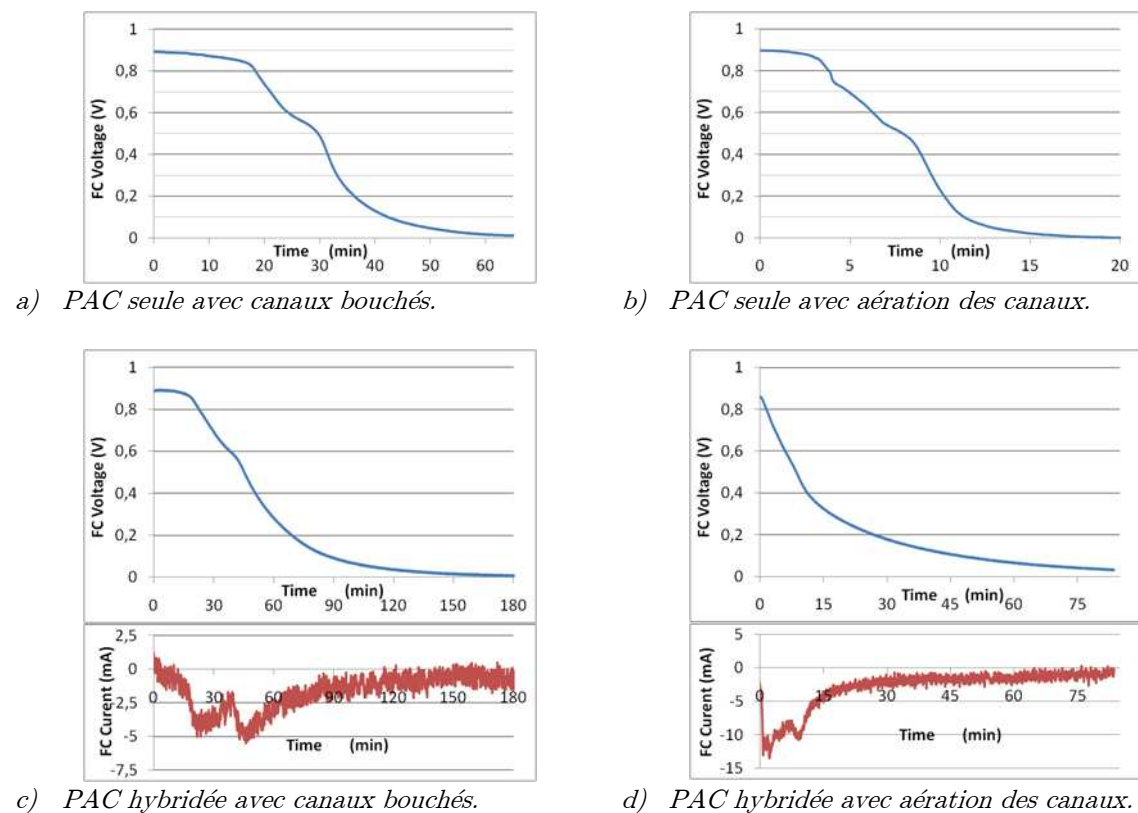
Le problème peut être considéré en fait de manière similaire pour une PAC seule, étant donné que son condensateur de double couche est un condensateur électrostatique réel, de grande valeur de par la forte porosité des couches d'activation. Dans le cas d'une PAC seule, les questions sont : où partent les charges accumulées dans le condensateur de double couche lorsque l'on stoppe l'alimentation en gaz actifs ? Est-ce dégradant pour la cellule ? Les gaz restent-ils dans la cellule ? Si non, quel est l'impact sur le condensateur de double couche ?

La littérature est silencieuse sur l'autodécharge d'une PAC seule et encore davantage dans le cas d'une PAC hybridée par un supercondensateur. Nous avons donc mené des essais

prospectifs d'autodécharge dans les deux cas pour comparer les comportements et tenter d'apporter des premiers éléments de réponses aux questions précédentes.

La PAC à respiration utilisée pour les mesures de crossover de la partie précédente a été testée seule ou associée avec un SC de 10F (**Figure II.10**).

Pour chacun de ces deux cas (seule ou hybridée), l'autodécharge a été observée selon deux modes opératoires : dans un mode, l'arrivée en hydrogène a été bouchée (canaux « bouchés ») ; dans l'autre mode, le tuyau d'alimentation d'hydrogène a été débranché et la purge a été ouverte (canaux « aérés »). On peut noter deux différences principales entre ces deux modes : dans le premier mode, il reste de l'hydrogène dans les tuyaux et l'oxygène arrive difficilement, tandis que dans le second mode, d'une part l'hydrogène s'évacue rapidement, et d'autre part l'oxygène (de l'air extérieur) pénètre plus rapidement dans l'anode à travers les tuyaux aérés.



**Figure II.10** : Essais de décharge d'une PAC à respiration seule puis hybridée avec un SC de 10F

Sur la **Figure II.10**, on peut constater que le temps où la cellule est à la tension à vide est plus long lorsque les canaux sont bouchés. Tant qu'il y a de l'hydrogène, la tension à vide de la cellule est à peu près maintenue.

Dans un premier temps, nous allons évaluer si la décharge observée peut s'expliquer par l'existence de la résistance de court-circuit de la cellule. Rappelons que celle-ci a été mesurée (très probablement avec beaucoup d'imprécisions) par VBL lors de la partie 2.2.1 : son ordre de grandeur serait  $50\Omega$ .

Pour le cas non hybridé, on ne connaît pas la valeur exacte de la capacité de double couche. Cependant sur des cellules du même fabricant, on observe habituellement un condensateur de double couche équivalent dont la valeur est comprise entre quelques 10 mF et 100 mF. Considérons une valeur maximale : 500 mF. Alors la constante de temps  $R_{C-C} \cdot C_{DL}$  entre ce condensateur et la résistance de court-circuit serait de l'ordre de 25 secondes. Cela signifierait une décharge à 63% en 25 secondes, et à 95% en 1,25 minute. A l'observation des *Figure II.10.a)* et *b)*, la décharge est visiblement beaucoup plus lente que celle issue de ce calcul.

Pour le cas hybridé, on peut négliger la valeur de la capacité de double couche devant celle du SC qui est de 10 F. La constante de temps  $R_{C-C} \cdot C_{UC}$  serait alors de l'ordre de 500s. Cela signifierait une décharge à 63% en 8,33 minutes et à 95% en 25 minutes. Or, on observe expérimentalement sur les *Figure II.10.c)* et *d)*, que l'évolution temporelle est bien plus lente.

Il y a deux hypothèses possibles à ces écarts. La première hypothèse serait que la résistance de court-circuit de la cellule change de valeur lorsque la cellule n'est plus alimentée en hydrogène. La seconde hypothèse serait que la mesure de la résistance de court-circuit est erronée. Compte tenu de la précision de la mesure effectuée et de la pertinence de celle-ci, nous pencherions plutôt pour la seconde proposition, sans être capables cependant d'estimer cette erreur.

L'hypothèse d'une décharge via la résistance de court-circuit interne étant bien incertaine pour nous, nous allons rechercher d'autres causes pouvant permettre de faire transiter des électrons de la cathode vers l'anode et donc de décharger le condensateur de double couche et/ou le SC. Les explications recherchées étant électrochimiques, un transfert d'électrons implique un transfert de protons.

Lorsque les canaux sont aérés, il est clair que l'oxygène pénètre facilement et rapidement à l'anode.

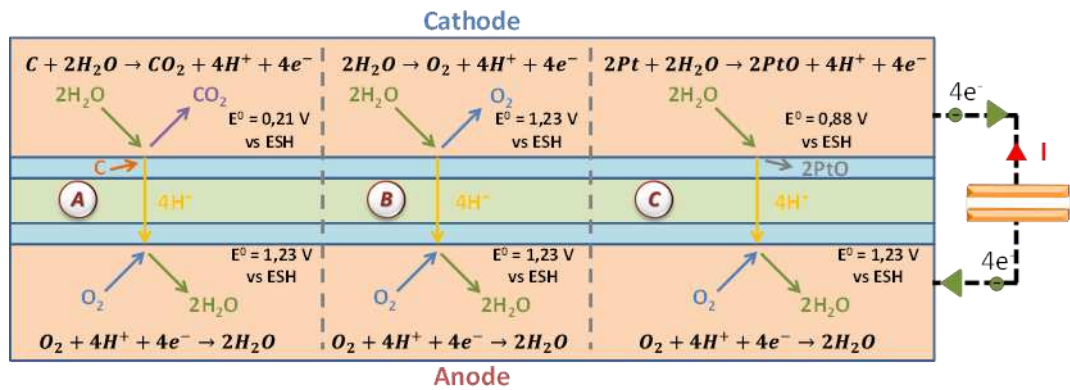
Lorsque les canaux sont bouchés, nous pensons que l'oxygène pénètre également à l'anode, même si c'est plus lentement, à cause d'une étanchéité anodique globale plutôt mauvaise.

Ainsi, dans tous les cas, nous pensons que de l'oxygène se retrouve à l'anode en plus ou moins grande quantité et plus ou moins rapidement.

Sous ces hypothèses, on se retrouverait dans des conditions similaires à l'arrêt classique d'une PAC H<sub>2</sub>/Air. Le mécanisme principal pourrait ainsi être proche de celui existant à la mise en gaz ou à l'arrêt d'une PAC exprimé à la section 2.1.4.1, c'est-à-dire impliquant une réduction de l'oxygène à l'anode ( $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ ).

Selon les cas canaux bouchés ou aérés, la quantité d'oxygène mise en jeu dans la réaction à l'anode pourrait expliquer les vitesses de décharge différentes entre ces deux cas.

A la cathode, le mécanisme réactionnel mis en jeu doit pouvoir fournir des électrons et des protons. Si l'on considère les réactions qui ont déjà été exprimées dans ce chapitre, on retrouve l'oxydation de l'eau, celle du carbone ou celle du platine (cf. *Figure II.11*).



**Figure II.11 :** Mise en évidence de phénomènes permettant un transfert de 4 protons et 4 électrons de la cathode vers l'anode.

Compte tenu que la tension reste comprise entre 0 V et 1 V, il semblerait que les mécanismes (A) et (B) puissent coexister à la cathode. Cependant, si le mécanisme que nous proposons est correct, nous ne sommes pas en mesure de pouvoir dire dans quelles proportions ces réactions coexistent. Concernant le mécanisme noté (C), il est probablement également présent ; mais sa contribution doit diminuer au fur et à mesure que la tension de la cellule diminue, pour devenir assez rapidement négligeable.

Il reste donc difficile d'évaluer les cinétiques de ces réactions et de prévoir si l'une est prioritaire. Nous pensons qu'une analyse de  $CO_2$  à la cathode aurait pu nous éclairer sur l'intensité des réactions proposées. Notons que l'analyse des gaz à la cathode d'une cellule à respiration ne semble pas évidente à mettre en œuvre (utilisation de la cloche nécessaire).

Si nous faisons fausse route et que l'oxygène était vraiment absent à l'anode, une réaction de réduction de l'hydrogène devrait être envisagée ( $4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2$ ) correspondant alors à un fonctionnement électrolyseur. Cette réaction semble cependant peu probable compte tenu de la différence de potentiel insuffisante entre les électrodes.

Comme le lecteur l'aura remarqué, nous manquons de connaissances sur la cinétique et la probabilité d'apparition des réactions évoquées pour prononcer des réponses claires et précises aux questions qui ont été posées en introduction de cette section.

Cependant, on constate qu'un ensemble PAC-SC ne reste pas chargé si la PAC n'est plus alimentée en hydrogène (de même pour une PAC seule). Le SC se décharge bien dans la PAC puisque l'on observe un courant négatif. Le procédé de décharge n'est pas clairement identifié, mais la présence d'oxygène à l'anode nous semble jouer le rôle principal dans les vitesses de décharge.

L'hypothèse d'une dégradation de la PAC lors de cette phase (en particulier l'oxydation du carbone) n'est pas exclue. La communauté scientifique a validé a priori le fait qu'un arrêt par balayage en air à l'anode d'une PAC oxyde le carbone (comme illustré en **Figure II.5**). Le mécanisme semble similaire pour l'autodécharge d'une PAC seule ou d'une PAC hybridée. La principale différence entre les deux cas concerne le temps de décharge. Compte tenu de la capacité équivalente supérieure dans le cas hybridé, si la cinétique du mécanisme (A) (cf. **Figure II.11**) est non négligeable, les dégradations occasionnées pendant une phase de



décharge avec aération de l'anode semblerait potentiellement plus élevées pour l'association hybride.

*Remarque :*

Concernant les pics de courant que l'on peut observer dans le cas hybridé (*Figure II.9.c* et *d*)) ou les ralentissements sur la tension dans le cas non hybridé (*Figure II.9.a* et *b*)), une piste d'explication pourrait être la réaction d'oxydation du monoxyde de carbone à l'anode comme le suggère l'auteur [ROE-4]. Mais d'où viendrait ce monoxyde de carbone sachant que l'hydrogène est issu d'un électrolyseur PEM? De l'air ambiant? Cette réaction est donnée en *Equation (II.11)* :



Le potentiel standard de la réaction d'oxydation du monoxyde de carbone gazeux est  $E^0 = -0,11 \text{ V}$  vs ESH. D'après l'auteur, celui-ci serait ramené à  $+0,55 \text{ V}$  vs ESH lorsqu'il est fixé au platine. Il suggère la présence de cette réaction à l'anode pour les tensions entre  $+0,4 \text{ V}$  et  $+0,6 \text{ V}$  aux bornes de la PAC pour certaines technologies de membranes.

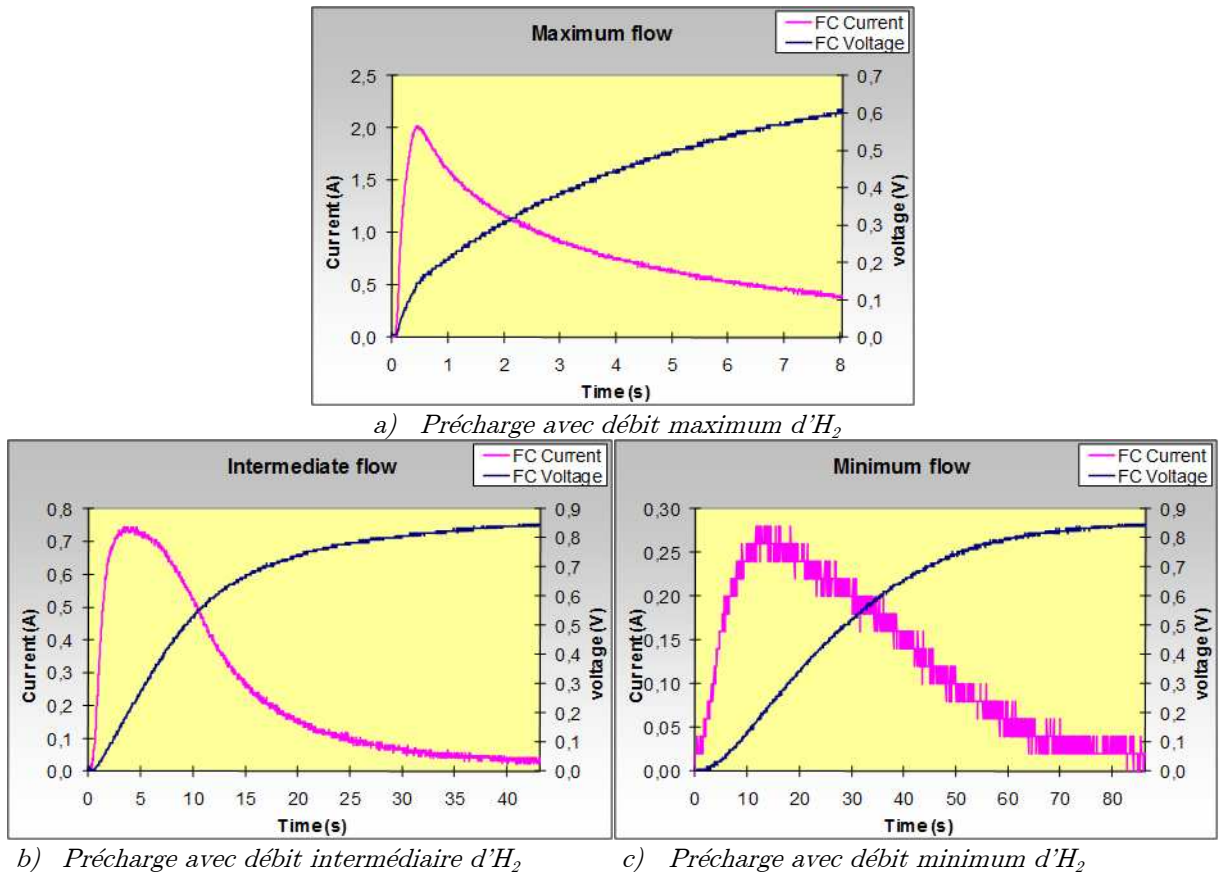
### 2.2.3 Précharge du SC via la PAC à respiration

Comme exprimé en introduction de ce chapitre, le principe d'hybridation que nous souhaitons développer doit être le plus simple possible pour rendre cette solution concurrentielle par rapport aux solutions avec convertisseur ; d'autant plus que pour une hybridation directe, la capacité du SC ne pourra pas être exploitée à 100%. L'idéal serait donc de n'avoir aucun dispositif spécifique pour la précharge du SC. Nous explorons ici l'idée de pouvoir contrôler cette précharge par une procédure spécifique de mise en gaz de la PAC.

Considérons un ensemble PAC et SC associés uniquement par de simples câbles électriques. A l'état déchargé, un SC peut être vu comme un court-circuit. Les questions qui se posent sont alors : si l'on alimente la PAC en gaz actifs, comment évoluent les courants d'appel ? Y-a-t-il possibilité de réduire ces courants en maîtrisant le débit d'alimentation de gaz ?

La *Figure II.12* présente différentes mises en gaz d'une cellule PAC à respiration hybridée avec un SC de 10 F. Au début de ces tests, précisons que la PAC est à l'arrêt et son anode pleine d'air. Quant au supercondensateur, il est initialement déchargé.

Il nous faut également préciser que cette monocellule à respiration n'était pas dans un état de santé remarquable avant ces essais. C'est justement pour cette raison que nous l'avons sélectionnée pour ces essais, sa destruction potentielle ayant peu d'importance pour la suite des travaux.



**Figure II.12** : Essais de précharge d'un SC de 10F pour différents débits d'hydrogène avec une monocellule à respiration

Ces résultats montrent qu'il est possible de diminuer le courant d'appel en réduisant le débit d'alimentation d'hydrogène. Les mesures de débit n'ayant pas été effectuées lors de ces premiers essais, il nous est difficile de lier la valeur du courant d'appel à celle du débit.

La limitation du débit d'hydrogène a été réalisée, dans ces essais, par une vanne micrométrique. Cette vanne était complètement fermée pour l'essai de la **Figure II.12.c**). Malgré tout, cette vanne n'étant pas complètement étanche, la fuite existante a permis la montée en tension de la PAC. La vanne était dans une position d'ouverture intermédiaire lors de l'essai de la **Figure II.12.b**). Enfin, lors de l'essai de la **Figure II.12.a**), la vanne était ouverte à son maximum conduisant à un courant maximal plus élevé que dans les deux réglages précédents.

Pour l'essai de la **Figure II.12.a**), le courant de 2A obtenu est proche du courant « nominal » connu de la cellule. Afin d'extraire un courant « conséquent » de ce type de cellule, nous avons l'habitude de descendre assez bas en tension (jusqu'à 0,3 V). C'est pour ce niveau de tension que l'on considère le courant comme « nominal ». En milieu de vie, il est typiquement de 2A pour cette cellule de 16 cm<sup>2</sup> soit 0,125 A.cm<sup>-2</sup>. A titre de comparaison, pour une cellule industrielle, le courant nominal est en général retenu pour une tension entre 0,6 V et 0,7 V et varie typiquement entre 0,8 A.cm<sup>-2</sup> et 2 A.cm<sup>-2</sup> suivant la technologie utilisée.

Ces essais montrent qu'il est donc possible, lors de la mise en gaz, de limiter le courant d'appel d'une PAC hybridée par un SC initialement déchargé en limitant le débit d'alimentation d'hydrogène. Il est probable que le tuyau d'amenée d'hydrogène, la géométrie

des canaux anodiques, les propriétés des couches de diffusion anodique ou encore la dynamique de l'organe régulant le débit (qu'il soit mécanique ou électrique) aient leur importance dans la valeur du courant maximal pendant cette phase.

Dans [HIN-12], les auteurs ont exploré une piste assez similaire. Partant dans leur cas d'une PAC H<sub>2</sub>/air sous gaz, ils ont essayé de limiter le courant d'appel en limitant le débit d'hydrogène lors qu'une connexion déclenchée à un supercondensateur déchargé. Un dépassement de deux à quatre fois la valeur attendue au regard du débit d'hydrogène imposé est constaté. Ce dépassement est expliqué par les auteurs par la quantité de gaz contenue dans le volume des tuyaux d'alimentation d'hydrogène de la PAC. Après ce dépassement, le courant est en revanche bien fixé par le débit d'hydrogène imposé. Pour les auteurs, la PAC fonctionne alors en « source de courant contrôlée par le flux d'hydrogène ».

### 2.2.4 Caractérisation fréquentielle de notre PAC à respiration seule ou hybridée avec un SC

Afin d'avoir une première idée sur les propriétés fréquentielles d'une hybridation directe, nous avons réalisé quelques essais en charge (créneaux de courant de différentes fréquences) de notre PAC à respiration hybridée avec un SC de 10F, et de notre PAC seule pour comparaison. Le but de ces essais était d'appréhender les ordres de grandeur des mécanismes de partage mis en jeu, afin de mieux définir la future série d'essais qui allait être menée pour des monocellules industrielles H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>.

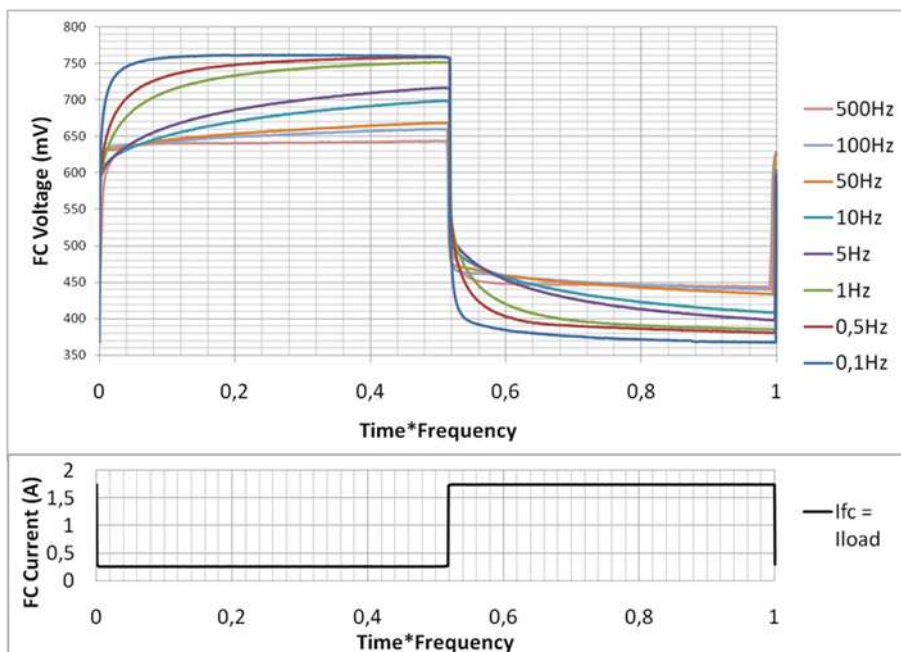


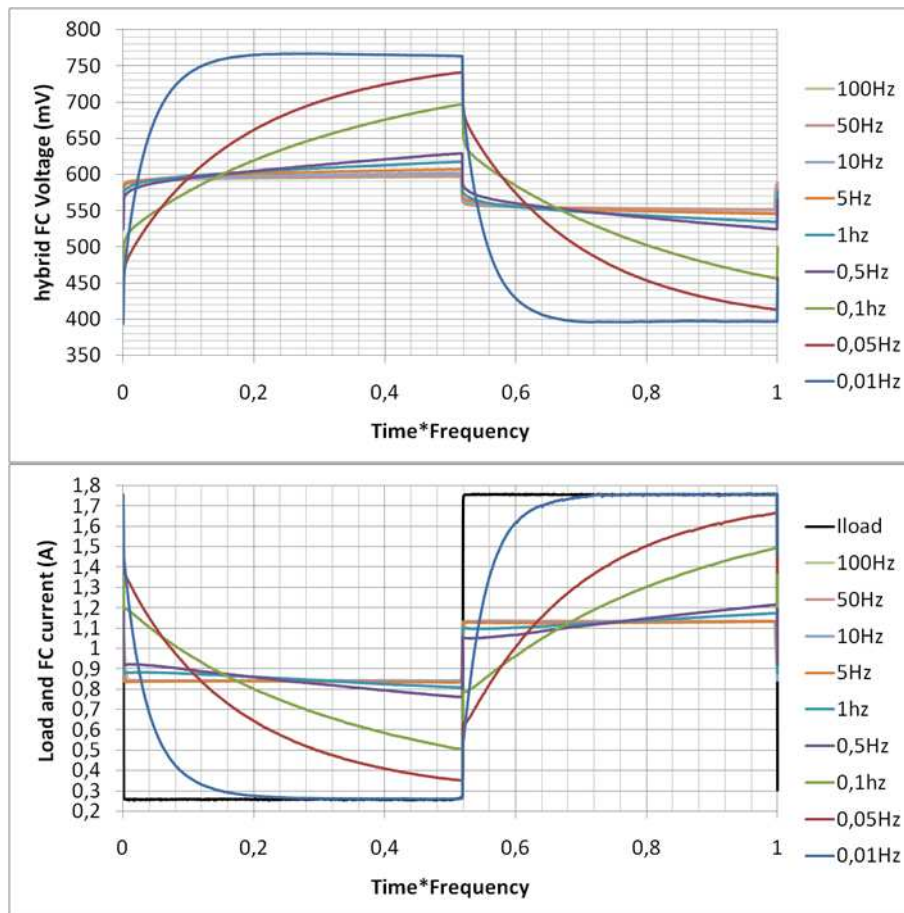
Figure II.13 : Créniaux de courant à différentes fréquences imposés à la PAC à respiration seule

La **Figure II.13** illustre, dans une représentation Temps x Fréquence, la réponse à des créniaux de courant de la PAC seule pour différentes fréquences.

On observe que, dès que les fréquences sont relativement élevées (environ >50 Hz), la réponse de la PAC s'approche de celle d'un circuit du type  $U = E - R_{elec} \cdot I$  avec  $R_{elec}$  sa résistance électrique (140,0 mΩ) et  $E$  la tension de polarisation à  $\langle I_{PAC} \rangle$  soustraite du terme  $R_{elec} \cdot \langle I_{PAC} \rangle$ . On bénéficie à ces fréquences élevées de l'effet de filtrage interne dû aux phénomènes de double couche.

Pour atteindre le régime permanent de la PAC au courant donné, il faut descendre aux alentours de 0,5 Hz.

Les mêmes types d'essais ont été réalisés sur la PAC hybridée avec un SC de 10 F.



**Figure II.14 :** Créneaux de courant à différentes fréquences imposés à la PAC à respiration hybridée avec un SC de 10 F

La **Figure II.14** illustre, toujours dans une représentation Temps x Fréquence, la réponse à des créneaux de courant de l'ensemble PAC-SC hybridés directement. On observe deux principales différences par rapport aux essais sans hybridation :

- la première est qu'à haute fréquence, la réponse en termes de variations de tension de l'ensemble est similaire à celle d'une résistance bien plus faible et équivalente à 27,7 mΩ ( $\Delta V$  de 40 mV pour un  $\Delta I$  de 1,44 A). A titre de comparaison, la résistance du SC, mesurée par spectroscopie d'impédance, est de 27,4 mΩ.
- la seconde différence est le décalage du comportement de la PAC vis-à-vis des fréquences. En effet, dans le cas hybridé, on observe un comportement « quasi-résistif » pour des fréquences supérieures à 0,5 Hz, tandis que pour le cas non

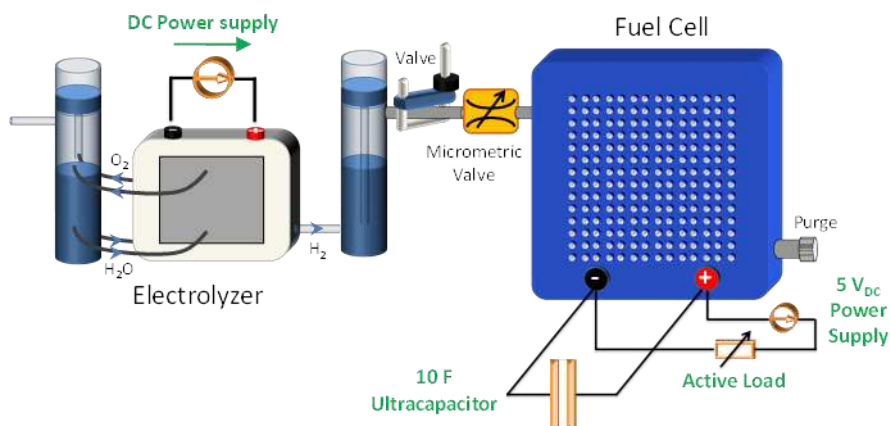
hybridé, ce comportement est observé pour des fréquences supérieures à 50 Hz (deux décades de décalage). Il en est de même pour le régime permanent. Ici, la PAC atteint son régime permanent pour des fréquences avoisinant les 0,01 Hz ou moins, alors que dans le cas non hybridé, il faut descendre seulement en dessous de 0,5 à 1Hz (ici encore, il y a pratiquement deux décades de décalage).

Ces essais montrent que l'hybridation permet bien un filtrage de la puissance fournie par la PAC à la charge.

Cependant, lors d'un échelon de courant, on constate que la PAC prend en charge un certain « talon » de courant qui est toujours fixe dans ces essais ( $\Delta I_{pac}=0,29$  A pour un  $\Delta I_{charge}= 1,44$  A), que l'échelon soit montant ou descendant. La partie de l'échelon de courant prise en charge par la PAC est de 20,1 %. Ce qui nous a amenés à penser dans un premier temps que cette partie était le rapport entre les résistances internes hautes fréquences ( $R_{SC}/(R_{elecPAC}+R_{SC})$ ) comme exprimé dans [GAR-07].

Ce rapport vaut 16,4% concernant les composants de cette hybridation. Comment expliquer la différence ?

La caractérisation des éléments PAC et SC a été réalisée au plus proche de ceux-ci. Cependant, pour l'hybridation, des câbles ont été utilisés pour relier les deux composants. Ces câbles n'ont pas été caractérisés. Malgré tout, on peut dire qu'ils ont comme effet l'augmentation de l'impédance du SC, puisque la charge a été directement connectée aux bornes de la PAC (cf. **Figure II.15**). Pour que la PAC fournisse 20,1 % du courant de charge au moment de l'échelon, il faudrait une augmentation de 35% de la résistance de la branche du SC. Cela conduirait à une résistance des câbles de 9,6m $\Omega$  qui semble cohérente. Ce résultat nous a confortés à l'époque dans l'idée que les puissances se partageaient selon le rapport des résistances comme exprimé dans [GAR-07].



**Figure II.15** : Schéma électrique et fluide des essais d'hybridation directe avec la monocellule PAC à respiration.

Ces conclusions ne peuvent cependant qu'être à portée limitée puisque la PAC utilisée avait un assez mauvais état de santé, que sa caractérisation n'avait pas été faite de manière complète, que le câblage n'avait pas été optimisé pour être le plus court possible et enfin qu'il n'ait pas été caractérisé. Il est donc au final difficile de quantifier les mécanismes de partage des puissances entre les deux composants à partir de ces seuls essais comportant trop

d'inconnues. Nous verrons d'ailleurs, dans les chapitres ultérieurs, que contrairement à cette première idée, les courants ne se partagent pas forcément au moment de l'échelon suivant le rapport des résistances.

En tout état de cause, ces essais ont mis en évidence l'intérêt de bien caractériser chaque élément du montage afin de pouvoir interpréter et quantifier les interactions plus finement.

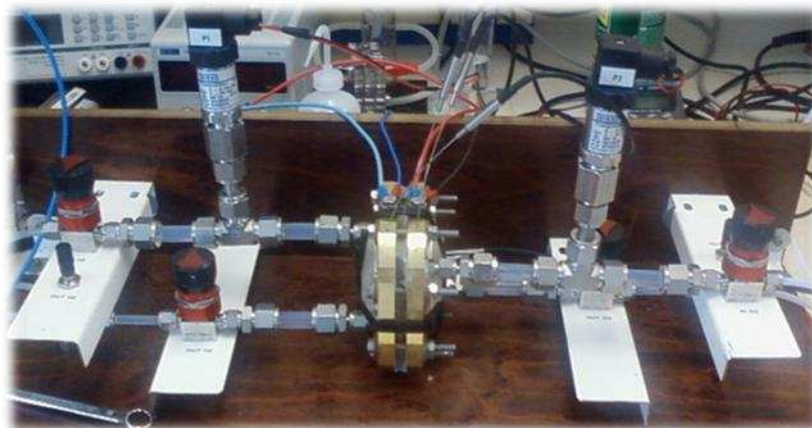
### ***2.3 Etudes expérimentales prospectives avec une monocellule PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>***

Le précédent « débroussaillage » a ensuite été étendu à une monocellule PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> dont l'état de santé était moyen. Des essais similaires à ceux effectués sur la PAC à respiration ont été réalisés. Ces essais nous ont été très utiles notamment pour continuer la définition de toutes les campagnes menées au chapitre III. Nous aurions pu nous contenter de ces premiers résultats, mais nous avons préféré renouveler l'ensemble de ces tests avec une monocellule possédant un meilleur état de santé, à savoir une monocellule H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> utilisée lors des expérimentations finales (qui seront exposées au chapitre III).

Les caractéristiques de cette monocellule et ses conditions usuelles d'utilisation sont les suivantes :

- **Fabricant** : Hélium Hydrogen Power
- **Surface** : 25 cm<sup>2</sup>
- **Courant max** : 50A
- **Cathode** : Alimentée en O<sub>2</sub> à 2 bars absolus avec une fuite de 75mL.min<sup>-1</sup> (cf. chapitre III)
- **Anode** : Alimentée en H<sub>2</sub> à 2 bars absolus avec une fuite de 50mL.min<sup>-1</sup> (cf. chapitre III)
- **Température** : 70 °C ; régulation thermique par hystérésis à l'aide de couvertures électriques chauffantes (chauffage) et de petits ventilateurs (refroidissement).

Les risques de dégradation encourus pour la cellule lors de la campagne d'essais envisagée sont importants : temps longs à l'OCV, différences de pression supérieures à 1 bar entre les électrodes, etc. C'est pourquoi, nous avons choisi d'effectuer ces essais après toutes les campagnes qui seront présentées au chapitre III. Chronologiquement, ce sont donc les derniers essais qui ont été menés dans la présente thèse.



**Figure II.16 :** Photo du banc d'essais prospectifs pour les monocellules  $H_2/O_2$  (ici, avec la première cellule testée)

Le banc de test utilisé (illustré en **Figure II.16**) a été conçu de manière à avoir des longueurs de tuyaux les plus courtes possibles et une très bonne étanchéité.

Dans cette section vont être successivement présentés la mesure du crossover d' $H_2$  de cette cellule, son autodécharge seule puis hybridée, les démarrages et les arrêts lorsqu'elle est seule puis hybridée.

### 2.3.1 Mesure du crossover d' $H_2$ par VBL pour la PAC $H_2/O_2$

L'objet de cette section est de relater la mesure du crossover d'hydrogène réalisée par VBL pour la monocellule  $H_2/O_2$  étudiée. L'objectif est de pouvoir mettre cette mesure du crossover en regard des essais d'autodécharge. Nous invitons le lecteur à se référer au 2.1.1.2 pour la description du principe de la VBL.

La mesure s'effectue aux conditions usuelles d'utilisation de la PAC pour les pressions et débits. La principale différence réside dans le fait que le gaz alimentant la cathode est de l'azote.

En temps normal, la cellule s'humidifie par sa propre production d'eau. Il est évident qu'elle ne peut pas s'humidifier de cette manière dans le présent cas. Un système d'humidification de l'azote entrant a donc été introduit : il s'agit d'un bulleur maintenu à 80 °C.

Afin de permettre une mise en regard, la température pour la PAC est choisie identique à celles des essais d'autodécharge, c'est-à-dire l'ambiante (22°C).

Suite aux remarques sur la mesure du crossover d'hydrogène par VBL pour la cellule à respiration, les caractéristiques de la présente mesure sont les suivantes :

- Tension initiale de 120mV avec une stabilisation de 200 s
- Tension finale de 850mV
- Variation de tension de  $1mV.s^{-1}$ .
- Reproduction de l'essai 5 fois de suite.

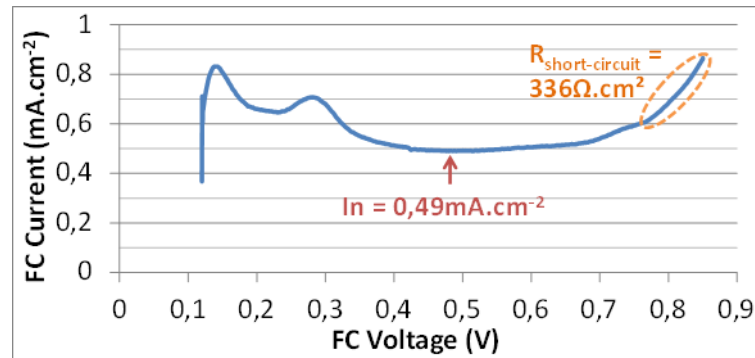


Figure II.17 : Mesure par VBL sur la monocellule H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>

La *Figure II.7* illustre la mesure par VBL réalisée pour la cellule H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> étudiée. A partir de cette courbe et des méthodes d'identification exprimées en section 2.1.1.2, on détermine :

- un courant de crossover d'hydrogène de 0,49 mA.cm<sup>-2</sup> soit 12,25 mA
- une résistance de court-circuit de 336 Ω.cm<sup>2</sup> soit 13,44 Ω.

Ces valeurs sont dans le même ordre de grandeur que celles observées par [WAS-10] qui obtient, pour des cellules commerciales, des courants de crossover d'hydrogène d'environ 0,75 mA.cm<sup>-2</sup> et des résistances de court-circuit aux alentours de 200 Ω.cm<sup>2</sup>.

Notons que plus le courant de crossover est faible et la résistance de court-circuit élevée, meilleures sont les performances de la monocellule.

### 2.3.2 Autodécharge de la PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> seule ou hybridée

Nous souhaitons observer et comprendre l'autodécharge de la monocellule PAC seule dans un premier temps, puis de la monocellule PAC hybridée avec un supercondensateur dans un second temps.

Deux intérêts particuliers se dégagent pour ces essais. Le premier est le fait qu'ils concernent une cellule PAC et un SC utilisées lors des expérimentations d'hybridation directe exposées au chapitre III, ce qui nous offre un point de comparaison. Le second est que nous allons ajouter à l'observation des tensions et courants celle des pressions.

Les essais qui ont été menées visaient à répondre aux nombreuses questions que nous nous posions à l'époque : si l'on place la PAC sous gaz actifs, que l'on bouche correctement la cellule, les gaz se consomment-ils ? Si oui, comment ? Qu'advient-il du potentiel s'il n'y a plus de réactifs ? Y-a-t-il une différence de temps de consommation des gaz si la cellule est hybridée ? Etc.

Au préalable de cette prospection, il est nécessaire de s'assurer que la PAC et son montage fluide exposé sur la *Figure II.16* ne possèdent que très peu de fuites vers l'extérieur. C'est l'objet de la section suivante.

#### 2.3.2.1 Estimation préalable des fuites extérieures du système PAC

La première étape est de limiter les fuites du montage fluide au maximum afin de pouvoir observer le mieux l'action des gaz actifs dans les essais d'autodécharge. Ainsi, le banc de tests a



été réalisé avec des volumes de tuyaux réduits (cf. **Figure II.16**). Le capteur de pression est placé à l'entrée des gaz, au plus proche de chaque électrode. L'ensemble PAC et capteur de pression est immédiatement suivi de vannes performantes en termes d'étanchéité (vannes à membrane).

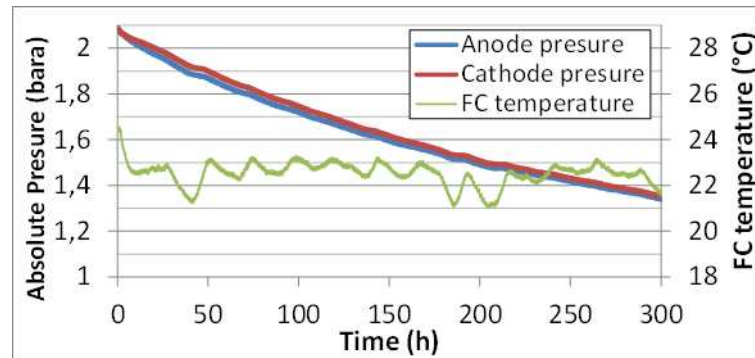
La mesure directe des quantités de gaz sortant du montage n'est pas évidente. Dans la majorité des cas, c'est une variation de pression qui est observée. Cependant, une telle mesure est difficile à exploiter si l'on ne connaît pas les volumes mis en jeu. Par conséquent, la seconde étape consiste à obtenir une estimation des volumes des tuyaux, ainsi que ceux des canaux internes de la PAC.

Une méthode exploitant les pertes de charge est la première idée venant à l'esprit. Cependant, à l'époque des essais, nous ne disposions pas de dispositifs de mesure des débits suffisamment performants sur ce banc pour appliquer une telle méthode.

Nous avons donc appliqué la méthode suivante : chaque cavité a été remplie d'eau. Puis, une fois extraite, cette eau a été pesée sur une balance de précision. Nous devons reconnaître que cette méthode ne permet pas d'obtenir une précision très grande. De même, l'impact sur l'état de santé de la cellule est inconnu. Cette mesure a donc été effectuée à la fin de toutes les campagnes d'essais. Il a été mesuré un volume (tuyaux d'amenée et électrode compris) de 26,47 mL côté cathode et de 26,24 mL côté anode. Cette mesure offre cependant une estimation minimale du volume : en effet, une partie de l'eau injectée a pu rester coincée dans la cellule. Les deux côtés étant a priori symétriques, et en supposant qu'une petite partie de l'eau est restée dans les pores des électrodes, nous allons considérer un volume de 27 mL pour chaque compartiment.

A l'issue de ces deux premières étapes, nous pouvons passer à l'étape principale, à savoir l'observation des variations de pression lors des tests de fuite. Pour cela, les deux compartiments anodique et cathodique ont été remplis d'un gaz identique, puis la chute des pressions a été enregistrée.

*Remarque* : Pour être honnêtes avec le lecteur, nous ne savons plus quel gaz a été utilisé pour cette mesure. La logique (que notre planning des essais aurait tendance à confirmer) aurait voulu que de l'hydrogène ait été utilisé puisque c'est le gaz le plus fuyard mis en jeu. Cependant, l'essai a été renseigné, après les deux semaines d'enregistrement, comme ayant été effectué sous azote. Malheureusement nous n'avons plus de moyens à l'heure actuelle pour retrouver cette information. Pour cette raison, nous préférons ne pas préciser ici la nature du gaz de cet essai.



**Figure II.18 :** Mesure des fuites externes du montage sous gaz identique dans les compartiments

La *Figure II.18* donne une idée des fuites du montage vers l'extérieur. Faute de temps, il n'a pu être effectué jusqu'à l'équilibre. Cet essai, qui a duré 13 jours, témoigne de faibles fuites vers l'extérieur.

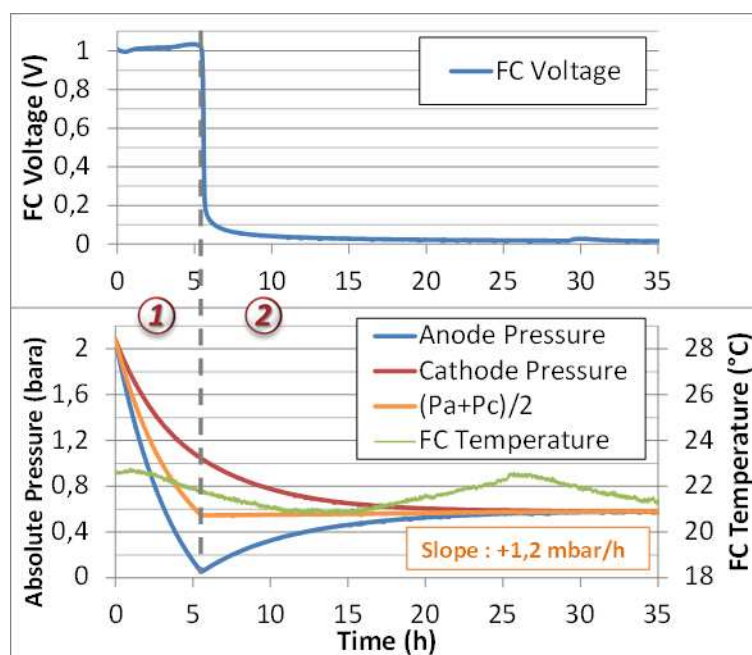
Deux hypothèses peuvent être émises concernant l'équilibrage des pressions : soit les fuites à l'anode et les fuites à la cathode sont équilibrées, soit l'équilibre est assuré par une fuite entre l'anode et la cathode.

À la pression proche de 2 bara nous pouvons relever des fuites de l'ordre de  $4 \text{ mbar.h}^{-1}$ , tandis que pour une pression proche de 1,4 bara, les fuites observées sont inférieures à  $2 \text{ mbar.h}^{-1}$ .

*Note :* la notation « bara » signifie qu'il s'agit d'une pression absolue mesurée en bars : 1,01325 bara correspond à l'atmosphère et 0 bara correspond au vide absolu. Tandis que la notation « bar » peut parfois prêter à confusion, en effet dans certains cas l'atmosphère est donnée à 1,01325 bar et dans d'autres cas à 0 bar (comme sur de nombreux manomètres).

### 2.3.2.2 Autodécharge de la PAC $H_2/O_2$ seule

L'essai d'autodécharge de la PAC seule consiste à placer la PAC sous gaz actifs, puis, après un certain temps de balayage en gaz actifs, à fermer les compartiments, et ensuite à observer l'évolution des pressions, de la température et de la tension. Les mesures sont présentées sur la *Figure II.19*.



**Figure II.19 :** Autodécharge d'une cellule PAC  $H_2/O_2$  seule

Tout d'abord, on constate que cet essai est d'une durée relativement courte comparée à celle de l'essai d'estimation des fuites externes. Compte tenu de cette remarque et de la valeur des fuites externes estimées pour les deux compartiments, nous allons négliger ces fuites dans les raisonnements suivants.

Deux zones peuvent être distinguées dans cet essai (*Figure II.19*) : une première où les pressions anodique et cathodique chutent (zone 1), une seconde où la pression anodique remonte pour rejoindre la pression cathodique (zone 2).

Les mécanismes suivants sont proposés pour expliquer les comportements observés :

- Zone 1 : l'hydrogène diffuse de l'anode vers la cathode, par crossover à travers la membrane, et s'y recombine avec l'oxygène par combustion catalytique en présence de platine. De même, l'oxygène diffuse vers l'anode par crossover et se recombine avec l'hydrogène par la même réaction. Les pressions chutent donc progressivement dans un rapport moitié respectant les coefficients stœchiométriques de la réaction de combustion catalytique d'hydrogène. On constate que la tension à vide (OCV) est maintenue dans toute cette zone.
- Zone 2 : cette zone débute lorsque la pression anodique atteint son minimum, « se rapprochant » même du zéro absolu ( $P_{\text{MIN}} = 58,5 \text{ mbara}$  à  $t = 20125 \text{ s}$ ), tandis que la pression cathodique atteint la moitié de la valeur de départ (1,040 bara pour 2,080 bara de chaque côté au départ). A l'instant où la pression anodique atteint son minimum, la tension aux bornes de la cellule chute rapidement pour tendre ensuite assez lentement vers zéro. On peut considérer qu'à l'instant de cette chute de tension, un des gaz actifs, l'hydrogène, a pratiquement totalement disparu. Ensuite, les pressions s'équilibrent lentement grâce au crossover de l'oxygène à travers la

membrane de la cathode vers l'anode. A la fin de l'essai, les deux pressions semblent s'équilibrer vers le quart de la pression initiale.

Nous allons tenter de justifier ce raisonnement par quelques quantifications.

Tout d'abord, tentons d'estimer la quantité de gaz nécessaire à maintenir l'OCV en présence du court-circuit électronique interne. Autrement dit, supposons que les gaz permettant de maintenir l'OCV sont consommés dans la résistance de court-circuit de la cellule. Celle-ci a été mesurée à 13,44  $\Omega$  par VBL, ce qui conduit à un courant équivalent de 74 mA sous 1V. Soit, d'après le volume des compartiments estimés précédemment et l'*Equation (II.12)* (obtenue à partir de la loi de Faraday et de l'équation des gaz parfaits), une consommation de 1,25 bar.h<sup>-1</sup> à l'anode et 0,63 bar.h<sup>-1</sup> à la cathode.

$$\Delta P = \frac{2.F.V}{R.T} \cdot \frac{I_{CRV}}{\Delta t} \quad : \quad \text{Equation (II.12)}$$

Sous cette hypothèse, il n'y aurait plus d'hydrogène en 1h36.

De plus, il est fort probable que l'on observerait une cassure dans la courbe de la pression cathodique à la frontière de la zone 1 et de la zone 2. En effet, les phénomènes de crossover étant présents en permanence, si un phénomène constant s'était éteint (comme l'arrêt de la consommation dans la résistance de court-circuit), alors la dynamique de la variation de pression aurait varié à la frontière de la zone 1 et de la zone 2.

Pour ces deux raisons, nous sommes amenés à supposer que la mesure de la résistance de court-circuit par VBL est erronée. L'absence de changement de dynamique dans la variation de pression cathodique nous amène même à penser que la consommation de réactifs dans la résistance de court-circuit est négligeable. Cette résistance semblerait en réalité bien plus élevée que celle mesurée.

Cela nous amène à supposer que les variations de pression sont bien essentiellement dues au crossover des gaz à travers la membrane et à la combustion catalytique de l'hydrogène. Suite à cette réaction, les deux gaz se combinent pour former de l'eau vapeur qui se condense immédiatement à la température de la PAC (22 °C). Les deux pressions diminuent donc puisque des gaz disparaissent pour laisser place à de l'eau liquide. En effet, le volume occupé par l'eau liquide ainsi formée est minuscule comparé aux volumes occupé par le gaz.

On ne peut a priori pas dissocier la part du phénomène de crossover d'hydrogène de celle du crossover d'oxygène dans les variations de pression observées en zone 1 en considérant uniquement ces mesures. Pour tenter de dissocier le crossover d'hydrogène de celui d'oxygène, nous pouvons comparer la valeur du courant équivalent calculé à partir de ces quantités de gaz à la mesure par VBL.

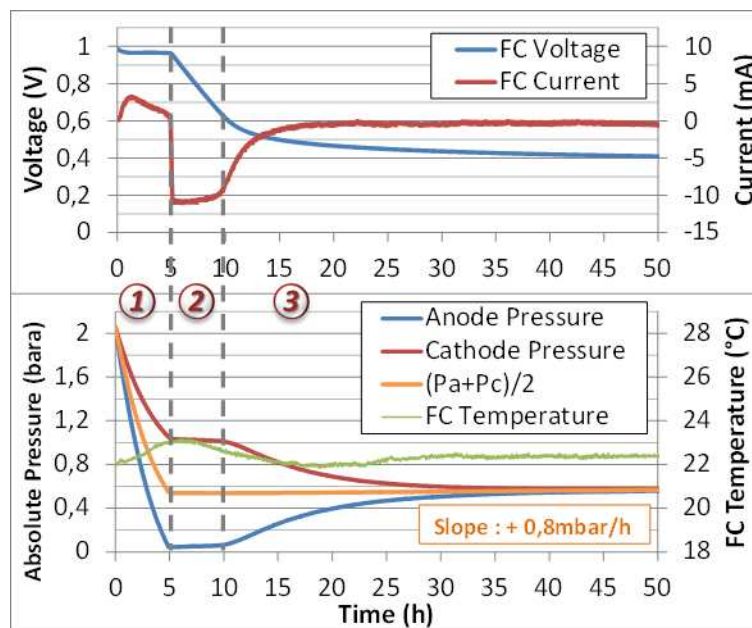
Dans une approximation, on peut linéariser la chute de pression d'hydrogène, soit une chute de pression de 2,08 bara en 20125 s. Cela revient à moyenniser les phénomènes de crossover. L'*Equation (II.12)* nous permet d'estimer un courant de crossover global (hydrogène et oxygène) de 21,86 mA soit 0,874 mA.cm<sup>-2</sup>. Sous l'hypothèse que la mesure par VBL du crossover d'hydrogène soit correcte (12,25 mA soit 0,49 mA.cm<sup>-2</sup>), le courant équivalent correspondant au crossover de l'oxygène serait de 9,61 mA soit 0,384 mA.cm<sup>-2</sup> (ordre de grandeur très proche de celui de l'hydrogène).

A présent, revenons sur la pression anodique minimale observée de 58,5 mbara. Nous attribuons cette pression résiduelle aux impuretés gazeuses présentes initialement : CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>... De plus, on peut noter qu'à l'instant où cette pression anodique minimale est atteinte, une différence de pression de 1 bar entre les deux électrodes est appliquée, différence qui ne semble pas ici destructive sans doute car elle a été appliquée très lentement.

Enfin, revenons sur la pression finale atteinte. En tenant compte des 2,08 bara d'H<sub>2</sub> consommés avec l'O<sub>2</sub>, il reste 1,04 bara d'O<sub>2</sub> à l'issue de la zone 1. Dans la zone 2, l'oxygène se répartit entre les deux électrodes, soit 0,52 bara dans chaque compartiment. La pression finale de croisement mesurée est de 0,579 bara, ce qui est assez proche des 0,52 bara. On peut attribuer, en partie, cette différence aux 58,5 mbara d'impuretés relevées côté anode en supposant qu'ils se séparent équitablement à chaque électrode (0,52+0,0585=0,549 bara).

### 2.3.2.3 Autodécharge de la PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> hybridée

L'essai d'autodécharge de la PAC hybridée avec un SC de 650 F est identique au précédent dans son mode opératoire. En termes de métrologie, la différence est qu'une mesure du courant échangé entre les deux composants est ajoutée. Les mesures réalisées sont présentées sur la *Figure II.20*.



**Figure II.20** : Autodécharge d'une cellule PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> hybridée avec un supercondensateur de 650 F

De la même manière que dans l'essai précédemment, les fuites vers l'extérieur seront négligées.

Sur la *Figure II.20*, on peut distinguer trois zones : une première où les deux pressions chutent (zone 1), une seconde où les pressions stagnent (zone 2) et une troisième où les deux pressions convergent vers une valeur identique (zone 3).

Signalons qu'il y avait un léger écart entre les pressions de départ des gaz : 2,055 bara pour l'hydrogène contre 2,080 bara pour l'oxygène.

Dans la zone 1, les mêmes phénomènes que dans le cas de la PAC seule se produisent, c'est-à-dire une consommation des gaz essentiellement par crossover et combustion catalytique de l'hydrogène. On constate que la tension à vide (OCV) est là encore maintenue dans toute cette zone. Cependant, à la consommation des gaz par combustion catalytique de l'hydrogène, s'ajoute celle liée au maintien de l'état de charge du SC que l'on peut observer à travers le courant fourni par la PAC.

En supposant le crossover des gaz constant et équivalent à l'essai précédent, la différence de temps observé (1631 secondes) entre le cas non hybridé et le cas hybridé correspond à une fuite de courant moyen de 1,65 mA. En moyennant le courant fourni par la PAC durant cette période, on obtient 1,61 mA. Aux erreurs de mesures près, cela confirme la nécessité pour la PAC de fournir un peu d'énergie au SC.

La zone 2 débute à partir du moment où la pression anodique a atteint son minimum, tandis que la pression cathodique atteint la moitié de la valeur de départ. De même qu'au 2.3.2.2, on attribue le minimum de pression observable à l'anode (43,7 mbara) aux impuretés présentes initialement. On peut considérer qu'au début de cette zone, l'hydrogène a pratiquement totalement disparu.

Dans la zone 2, les pressions n'évoluent pas (ou presque pas) tandis que la tension du SC diminue linéairement, le courant négatif le traversant étant pratiquement constant. Il ne semble pas raisonnable d'envisager que la stagnation des pressions soit dû à un arrêt momentané du crossover d'oxygène (seul gaz actif restant).

Pour justifier l'existence de ce courant, il s'agit de trouver un mécanisme permettant de faire transiter des électrons de la cathode vers l'anode sachant qu'il n'y a initialement pas de actif à l'anode (vide partiel à cette électrode). En nous appuyant sur les mécanismes qui ont déjà été proposés dans les sections précédentes (en particulier ceux de la section 2.2.2), nous proposons le mécanisme illustré en **Figure II.20**. Cependant, il est tout à fait possible que d'autres mécanismes que nous n'avons pas envisagés puissent exister, comme l'oxydation du platine par exemple (mais la quantité d'électrons à fournir semble trop importante dans cet essai pour qu'ils proviennent « massivement » de cette réaction).

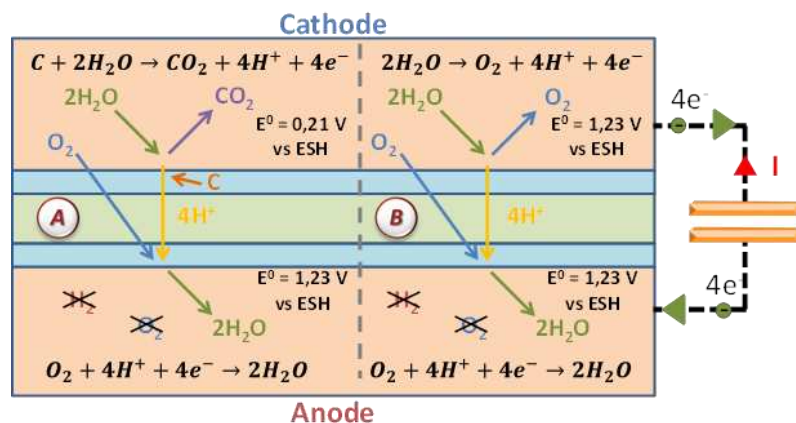


Figure II.21 : Illustration d'un mécanisme plausible régissant la zone 2.

Selon nous, l'oxydation du carbone (A) et l'électrolyse de l'eau (B) peuvent permettre de générer « massivement » des électrons à la cathode. Pour cela, il faut une réaction à l'anode capable de les consommer : nous proposons la réduction de l'oxygène ( $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ ).

Le problème est qu'il est censé ne plus y avoir de gaz actif à l'anode, qui plus est de l'oxygène. Cependant n'oublions pas que le crossover d'oxygène, qui a été observé dans la zone 2 de l'essai pour la PAC seule, est toujours présent. Dès que de l'oxygène apparaît à l'anode, les deux réactions proposées à la cathode sont possibles grâce à la réduction de cet oxygène ayant traversé par crossover. Ainsi, dans cette zone 2, les cinétiques des réactions à la cathode seraient dictées (limitées) par le crossover de l'oxygène. Si le mécanisme décrit est juste, cela signifie que le courant observé est alors l'image du crossover d'oxygène. Ce courant serait donc logiquement constant à l'image du crossover d'oxygène qui n'a pas lieu d'évoluer puisque les pressions restent constantes.

Le mécanisme proposé suggère in fine que, pour une molécule d'oxygène traversant de la cathode à l'anode et réduite à l'anode, une autre molécule gazeuse est créée à la cathode. Ce qui justifie la stagnation des pressions dans cette zone. De plus, on peut souligner qu'un transfert d'eau de la cathode vers l'anode est réalisé avec ce mécanisme.

Comme pour le cas de l'autodécharge de la PAC à respiration (2.2.2), il est difficile de nous prononcer sur la prédominance d'une des deux réactions proposées à la cathode à l'heure actuelle.

Lorsque la tension aux bornes du SC ne suffit plus à fournir une cinétique suffisante aux réactions de la cathode pour suivre le crossover de l'oxygène, la pression à l'anode augmente. En effet, tout l'oxygène traversant la membrane n'est alors plus réduit pour former de l'eau : la pression anodique se met à croître. Alors on passe à la zone 3.

Dans la zone 3, la pression cathodique diminue d'autant qu'augmente celle anodique. La vitesse de variation des pressions est légèrement plus lente que pour le cas de la PAC non hybridée. En effet, une partie des molécules d'oxygène traversant vers l'anode est réduite en eau, impliquant qu'une autre molécule est produite à la cathode ( $O_2$  et/ou  $CO_2$ ). Ainsi, la réaction à la cathode suit sa propre cinétique inférieure au crossover de l'oxygène (donc plus dicté par celui-ci) et s'estompe au fur et à mesure que la tension diminue. Lorsque la tension du SC devient faible (aux alentours de 0,45V), la cinétique du mécanisme proposé est tellement réduite que l'effet n'est plus observable. Au final, l'équilibrage des pressions s'effectue toujours suivant les gradients de concentration existants par crossover des différents gaz au travers de la membrane.

Les explications précédentes nous amènent à envisager une estimation du courant équivalent de crossover d'oxygène grâce à la zone 2. Le courant moyen entrant dans la PAC pendant la zone 2 est mesuré à 10,62 mA. Cette valeur est proche du crossover d'oxygène estimé par la méthode précédente (2.3.2.2).

Enfin, comme déjà dit, nous ne pouvons pas nous avancer sur la prépondérance d'un mécanisme ou de l'autre expliquant la décharge du supercondensateur. En revanche un seul

semble dégradant pour la PAC. Une analyse de la constitution des gaz restants dans la PAC à la fin de l'expérience ou une mesure en ligne de  $\text{CO}_2$  permettrait probablement d'apporter des éléments de réponse à ce raisonnement.

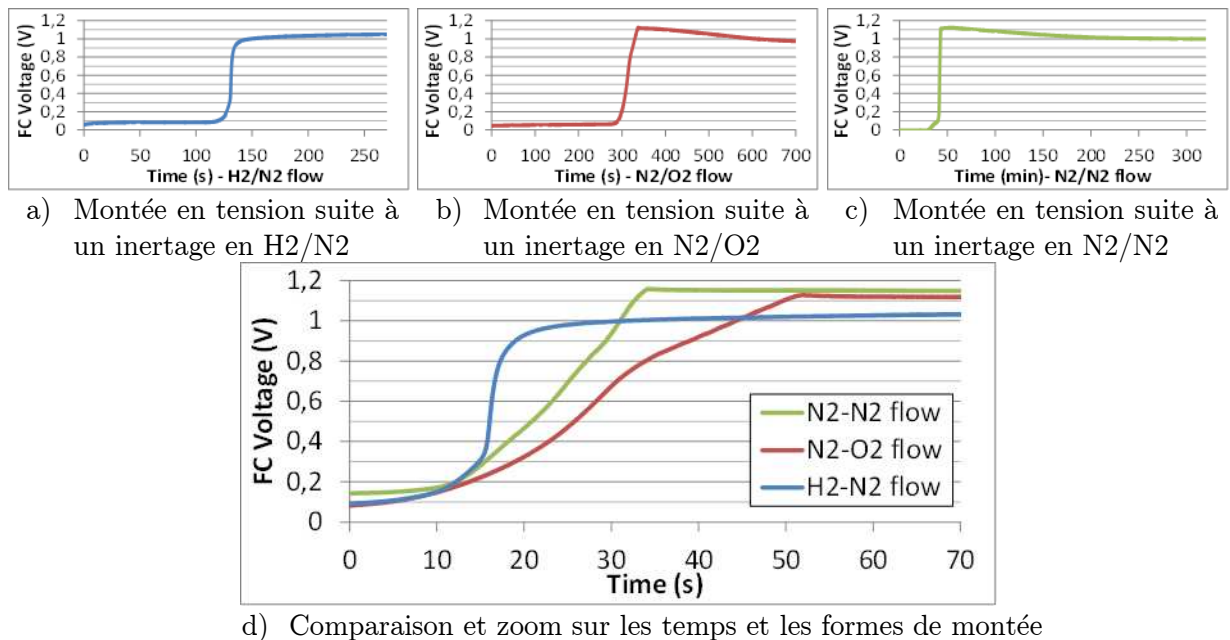
### 2.3.3 Mise en gaz de la PAC $\text{H}_2/\text{O}_2$ seule ou hybridée

Dans cette partie, nous nous intéresserons aux différentes manières de mettre une PAC seule sous gaz actifs : est-il plus pertinent d'alimenter en premier la cathode ou l'anode ?

Cette même interrogation peut également se poser pour le cas d'une PAC hybridée avec un supercondensateur, sans perdre de vue qu'il s'agit, dans ce cas, avant tout de limiter le courant d'appel occasionné par le supercondensateur initialement déchargé.

#### 2.3.3.1 Mise en gaz de la PAC $\text{H}_2/\text{O}_2$ seule

Un premier essai a consisté à inerte la PAC par une seule électrode, puis à réalimenter cette électrode inertée une fois la tension redescendue à une valeur proche de zéro. Nous nous intéresserons dans cette partie qu'aux phases de mises en gaz ayant succédé l'inertage. Dans une optique de comparaison supplémentaire, cet essai a également été réalisé pour un inertage/mise en gaz des deux électrodes simultanément. Ces essais sont illustrés sur la **Figure II.22**.



**Figure II.22** : Montée en tension d'une cellule PAC  $\text{H}_2/\text{O}_2$  par différentes mises en gaz actif. La légende correspond à la notation Anode-Cathode. Le gaz actif ayant permis la montée en tension est le gaz qui a été remplacé par l'azote.

On peut remarquer deux types de montées différentes pour la tension de la PAC : un premier type où la tension à vide est atteinte sans dépassement (cas de la montée en tension



par la cathode), un second type où cette tension à vide est atteinte après dépassement (cas des montées en tension par l'anode et par les deux électrodes).

Dans un souci de lisibilité, tout l'horizon temporel des essais n'a pas été représenté. Cependant la tension, lors de la montée en tension par la cathode (cas *a*)), converge vers une valeur plus haute que pour les autres cas (1,052 V contre 0,98 V pour les cas *b*) et *c*)), malgré le fait qu'il n'y ait pas de dépassement dans ce cas.

Si les tensions de démarrage sont différentes suivant les essais, alors la PAC ne se retrouve pas dans le même état suivant les stratégies de mise en gaz. Cette situation est a priori réversible puisqu'après utilisation de la PAC, la tension à vide revient systématiquement à une valeur proche de sa valeur normale (1,052 V).

La présence d'air non désiré pourrait expliquer les dépassements observés en mettant en jeu des réactions parasites créant temporairement un potentiel mixte.

L'essai  $N_2-N_2$  est difficile à mener puisque l'on doit sortir d'un inertage des deux électrodes. Les gaz actifs sont introduits simultanément de chaque côté. En pratique un des deux gaz actifs est arrivé à la zone active avant l'autre, d'où le sens limité de cet essai.

Dans cet essai, on s'affranchit de la possibilité qu'un gaz actif diffuse vers l'électrode opposée par crossover durant l'inertage. De plus, toutes les précautions ont été prises pour s'assurer que de l'air n'ait pas pu pénétrer ou n'était présent dans les tuyaux lors de l'introduction du front d'hydrogène. Malgré ces précautions, on observe encore un dépassement de la tension lors de la mise en gaz. On peut émettre l'hypothèse que l'oxygène est parvenu quelques instants avant l'hydrogène dans la cellule. Ces instants auraient pu suffire à une petite partie de l'oxygène pour traverser la membrane par crossover et créer des réactions secondaires lors de l'arrivée du front d'hydrogène. Ces réactions secondaires pouvant être responsables de la surtension initiale et de la tension à l'OCV réduite au démarrage.

Enfin pour conclure sur ces essais, si le dépassement en tension correspond à une oxydation accrue du carbone comme décrit dans la littérature, la montée en tension par la cathode semble la plus saine pour la cellule. En effet, ce cas ne présente pas de dépassement. De plus, les autres cas de mise en gaz envisagés possèdent une tension de démarrage plus faible que la tension à l'OCV lors d'un fonctionnement usuel. Il est probable que cette baisse de tension soit due à certaines réactions parasites.

Notons que la mise en gaz par la cathode est moins aisée à réaliser dans le cas d'une PAC  $H_2$ /Air où la cathode est souvent aérée.

### ***2.3.3.2 Précharge du SC par la PAC $H_2/O_2$ avec une limitation du débit d'oxygène ou d'hydrogène***

Des essais de mise en gaz ont été réalisés sur la cellule hybridée avec un supercondensateur de 650 F. Nous avons vu à la section 2.2.3 qu'il est possible de réduire le courant d'appel lors d'une mise en gaz d'un ensemble hybridé par une maîtrise du débit d'hydrogène entrant.

L'objet des essais présentés ici était de déterminer si les résultats étaient similaires avec une mise en gaz maîtrisée par la cathode.

Sur la **Figure II.23** sont présentés les deux cas de figure : mise en gaz à l'anode (via l'hydrogène) et mise en gaz à la cathode (via l'oxygène).

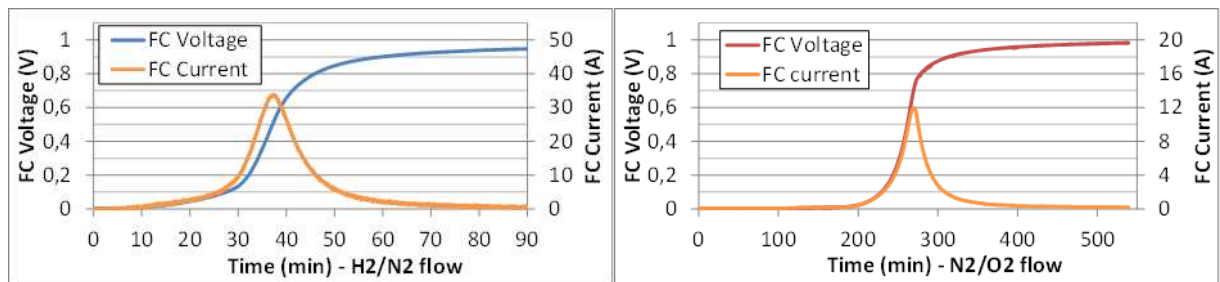
Le débit réglé est un débit de fuite. Les essais ont été réalisés à 2 bara, mais les débits sont mesurés en sortie, à l'atmosphère.

Les débits illustrés sont les débits minimums que l'on peut visualiser avec nos débitmètres à bille, c'est-à-dire  $30 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$  à la cathode (**Figure II.23.a**) et  $20 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$  à l'anode (**Figure II.23.b**). Ces débits correspondraient respectivement à un courant de 8,02A et à un courant de 2,67 A en s'appuyant sur l'**Equation (II.13)** :

$$I_{\text{Limite}} = \frac{n.F.P.D}{R.T} \quad : \quad \text{Equation (II.13)}$$

Avec :

- n le nombre d'électrons mis en jeu (2 pour l' $\text{H}_2$ , 4 pour l' $\text{O}_2$ )
- P la pression en Pa
- D le débit considéré en  $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ .



a) Mise en gaz d'une association directe PAC - SC par la cathode      b) Mise en gaz d'une association directe PAC - SC par l'anode

**Figure II.23** : Illustration de mises en gaz anodique et cathodique d'un système PAC  $\text{H}_2/\text{O}_2$  — SC (650 F)

On constate sur la **Figure II.23** que les courants attendus sont très largement dépassés (rapport entre 3 et 4). Cela pourrait s'expliquer en partie par le fait que le débit réglé est un débit de fuite. Il aurait peut-être fallu contrôler le débit d'entrée et non celui de sortie pour obtenir des meilleures performances. Cela pourrait également s'expliquer par les réserves de gaz contenues dans les canaux et les amenées de gaz [HIN-12]

On remarque que, contrairement aux différents essais de mises en gaz de la PAC seule, les mises en gaz pour l'ensemble PAC-SC présentent des formes de tension et courant similaires quelle que soit la stratégie.

A première vue il ne semble pas se dégager d'intérêt particulier à préférer utiliser une méthode ou l'autre pour mettre en gaz une hybridation directe PAC-SC.

Ces essais seront repris plus en détails dans le chapitre III.

### 2.3.4 Arrêt de la PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> seule ou hybridée

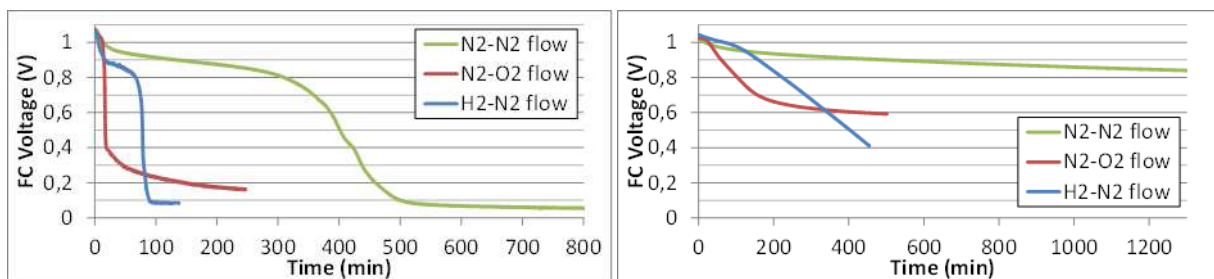
Quelques essais d'inertage d'une PAC et d'une PAC hybridée avec un supercondensateur de 650 F ont été réalisés afin d'appréhender les méthodes préférables à utiliser.

Ces essais ont précédé les mises en gaz de la partie précédente et portent sur différentes stratégies d'inertage pour la PAC seule et hybridée :

- inertage anode (N<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>),
- inertage cathode (H<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>)
- inertage des deux électrodes (N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>).

Les balayages ont été fixés à 50 mL.min<sup>-1</sup> à la cathode et 75 mL.min<sup>-1</sup> à l'anode pour les gaz inertes ou actifs.

Ces essais, illustrés sur la *Figure II.24*, n'ont pu être effectués qu'en journée : c'est pourquoi nous n'avons pas pu attendre que la décharge atteigne 0 V dans ces cas.



a) Inertages d'une cellule PAC seule

b) Inertages d'une PAC hybridée

**Figure II.24 :** Illustration d'inertages d'une PAC seule et d'une PAC hybridée

Dans les deux cas (hybridé et non hybridé), l'inertage pour lequel la tension commence à décroître le plus rapidement est l'inertage de l'anode. Cela signifie que l'énergie contenue dans le SC ou dans le condensateur de double couche s'évacue plus rapidement dans ce cas-là. Après que l'hydrogène ait été chassé par l'azote à l'anode, on peut supposer une diffusion de l'oxygène de la cathode vers l'anode par crossover couplée aux mécanismes décrits à la section 2.3.2.3.

Dans le cas de l'inertage de la cathode, le processus est assez lent au démarrage mais propose une chute de tension très rapide au bout de quelques minutes. On peut dans ce cas se trouver in fine dans une situation similaire à un appauvrissement en hydrogène pour lequel des dégradations du carbone ou un transfert d'eau d'une électrode à l'autre sont suggérés.

Enfin, le cas N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> fait preuve de dynamiques beaucoup plus lentes. L'azote étant un gaz inerte, cela ne laisse pas beaucoup de possibilités de réactions pour permettre la décharge des éléments capacitifs en dehors de la résistance de court-circuit. Même si la corrosion du carbone pourrait être possible puisqu'elle utilise l'eau et le carbone pour réagir, il faudrait une réaction à l'électrode opposée capable de capter ces électrons et ces protons. Est-ce que le CO<sub>2</sub> produit à une électrode pourrait passer par crossover à l'autre et créer de cette réaction ? Cela semble délicat avec le balayage en gaz des électrodes. Des hypothèses précises semblent difficiles à émettre dans ce cas.

Si l'on considère la décharge du SC uniquement dans la résistance de court-circuit (cas  $N_2-N_2$ ), cela supposerai une résistance de court-circuit de l'ensemble PAC+SC de  $986\Omega$  pour obtenir une chute de tension du SC à cette vitesse et pour un SC de 650F. L'autodécharge d'un SC étant plutôt lente, on peut supposer que cette résistance est principalement celle de la PAC, soit une résistance de court-circuit de PAC minimum d'environ  $25\text{ k}\Omega\cdot\text{cm}^2$ . Si l'on émet l'hypothèse que cette résistance est fonction de la nature des gaz présents aux électrodes, une différence entre les deux mesures est possible. Cependant, la définition de cette résistance (qui est la perméation des électrons à travers la membrane) semble éventuellement liée à l'humidité mais de manière peu probable avec la nature des gaz. Dans le cas présent les conditions d'humidité sont les mêmes que lors des mesures par VBL : les gaz entrants à la cathode sont humidifiés par passage à travers un bulleur maintenu à  $80^\circ\text{C}$  et sont à débit de fuite identique ( $75\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ). Cette mesure tend à confirmer que la résistance de court-circuit serait en réalité bien plus élevée que celle mesurée par la VBL et remet en cause le mode de détermination de cette résistance par VBL appliqué dans ce chapitre et indiqué à la section 2.1.1.2.

Pour conclure, la possibilité de consommation de carbone n'est pas exclue dans certains cas. Compte tenu du nombre d'incertitudes persistant sur cette phase, par principe de précaution, la méthode d'inertage d'un système hybridé (comme un système non hybridé) qui suit est proposée :

- balayage des deux électrodes à l'azote pour réduire les réactions parasites
- une fois que l'on a l'assurance que les gaz actifs sont complètement chassés (ce qui est difficile à savoir — un balayage d'une durée bien déterminée peut être une alternative), il est préférable de décharger l'énergie du SC (ou du condensateur de double couche de la PAC pour le cas non hybridé). La décharge peut s'opérer dans une résistance par exemple. Le but de cette opération est de ne pas laisser la possibilité à l'énergie résiduelle de servir les réactions parasites comme l'oxydation du carbone.
- Une fois que la tension de la PAC est passée sous la barre des  $0,21\text{ V}$ , la cellule est a priori hors de portée de la plupart de réactions néfastes.

## *Conclusion*

Ce chapitre regroupe des études préliminaires sur les dégradations possibles liées à l'hybridation. L'analyse de ces essais comporte beaucoup d'hypothèses qu'il est à ce jour assez difficile de vérifier avec nos moyens (temps, matériel, recul). La communauté scientifique n'est de plus pas toujours en accord sur certains des phénomènes mis en jeu dans cette partie. Ainsi il ne s'agit là que de propositions d'explications argumentées de manière plus ou moins fine suivant les cas, mais elles ne se veulent en aucun cas irréfutables.

Plusieurs mécanismes ont notamment été suggérés durant les différentes phases de démarrage et d'arrêt de l'hybridation d'une PAC et d'un supercondensateur. Certains ne sont, a priori, pas dégradants pour la PAC. Le principal risque reste la corrosion du carbone encourue si ce mécanisme est vérifié. Il est évident que l'association PAC/SC pourrait se

comporter de manière différente que celle observée dans notre cas, avec d'autres technologies de PAC ou d'AME (Assemblage Membrane Electrodes).

Les premiers essais sur une cellule à respiration et sur une cellule  $H_2/O_2$  nous ont permis d'appréhender les mécanismes mis en jeu, de valider le principe à petite échelle et d'orienter la conception d'un banc d'essais dédié à l'hybridation directe (présenté au chapitre III). Ils ont également permis de mettre au point certaines procédures qui ont été très utiles pour les essais qui seront présentés au chapitre III.

Pour la première fois au laboratoire, des mesures par VBL ont été effectuées. Cependant un doute persiste quant à la qualité de l'information obtenue. En effet l'hypothèse de réduction de la totalité des molécules d'hydrogène traversant par crossover semble avérée, mais l'invalidation de l'estimation de la résistance de court-circuit montre les limites de la méthode. En revanche, il est possible que la méthode n'ait pas été appliquée ou interprétée correctement, même si elle nous a menés à des valeurs de paramètres usuels dans la littérature.

Des essais originaux (surtout ceux en  $H_2/O_2$ ) d'autodécharge ont été proposés. Ces essais ont été rendus possibles compte-tenu des très faibles fuites vers l'extérieur de la PAC à notre disposition et du montage que nous avons réalisé. Ils ont été un très bon outil de travail pour envisager les réactions secondaires possibles dans des cas peu ordinaires.

Enfin, concernant la mise en gaz d'une cellule seule inertée, il semblerait que l'introduction d'hydrogène à l'anode, puis d'oxygène à la cathode une fois l'opération précédente terminée, soit préférable pour diminuer les réactions parasites induites par le crossover de l'oxygène.

En ce qui concerne une cellule hybridée, il ne semble pas y avoir d'importance dans l'ordre de l'introduction des gaz. Une limitation du débit de gaz à l'anode ou à la cathode permet, quant à elle, une limitation du courant d'appel de la PAC.

Pour l'arrêt d'un ensemble hybridé, l'inertage unique de l'anode provoque une chute de tension plus rapide dans nos essais. En revanche il semblerait qu'un inertage des deux électrodes simultanément suivi d'une décharge soit préférable. L'esprit de cette recommandation est le principe de précaution.

Dans le chapitre suivant, différentes associations d'hybridation directe PAC/SC vont être éprouvées lorsqu'elles débitent un courant, contrairement aux études majoritairement menées dans ce chapitre II.

# CHAPITRE III

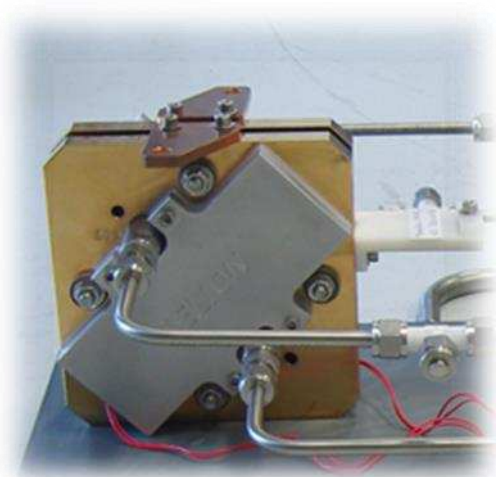
## Expérimentation et Analyse d'une hybridation directe

Nous avons souhaité segmenter l'étude du plus simple au plus complexe en allant de la cellule unique hybridée à plusieurs cellules hybridées. Le choix des composants pour ces essais a été effectué en fonction de leur maturité technologique et de leur facilité d'approvisionnement. La société Hélium Hydrogen Power étant partenaire de cette thèse, nous avons retenu des monocellules  $H_2/O_2$  de  $25\text{cm}^2$  pour les essais d'envergure présentés dans ce chapitre. En ce qui concerne les SC, les plus matures et facilement disponibles nous semblaient être les modules organiques fabriqués par Maxwell. La surface des cellules PAC utilisées ( $25\text{cm}^2$ ) correspondant à la borne inférieure des surfaces généralement utilisées dans les systèmes industriels, nous avons choisi de l'associer à la borne inférieure des capacités pour les SC de puissance. Les caractéristiques principales des éléments sont données dans le **Tableau III. 1** et les éléments sont illustrés en **Figure III.1**.

PAC	SC
<ul style="list-style-type: none"> <li>• <b>Fabricant</b> : Hélium Hydrogène Power</li> <li>• <b>Surface</b> : <math>25\text{ cm}^2</math></li> <li>• <b>Courant max</b> : 50A</li> <li>• <b>Cathode</b> : Alimentée en <math>O_2</math> à 2 bars absolus avec une fuite de <math>75\text{mL}/\text{min}</math> (cf. section 3.1.1)</li> <li>• <b>Anode</b> : Alimentée en <math>H_2</math> à 2 bars absolus avec une fuite de <math>50\text{mL}/\text{min}</math> (cf. section 3.1.1)</li> <li>• <b>Température</b> : référence de <math>70\text{ }^\circ\text{C}</math> chauffée par des couvertures électriques chauffantes, refroidie par ventilation des plaques</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• <b>Fabricant</b> : Maxwell</li> <li>• <b>Modèle</b> : BCAP0650</li> <li>• <b>Capacité</b> : 650 F</li> <li>• <b>Résistance série</b> : <math>0,8\text{m}\Omega</math></li> <li>• <b>Tension max</b> : <math>2,7\text{ V}</math> (<math>2,85\text{V}</math> max absolu)</li> <li>• <b>Courant DC max</b> : 54A</li> <li>• <b>Courant pic max</b> : 600A</li> <li>• <b>Poids</b> : 165g</li> </ul>

Tableau III. 1 :

Caractéristiques constructeurs des éléments



a) Photo d'une monocellule PAC utilisée



b) Image d'un SC semblable à ceux utilisés

**Figure III.1** : Illustration d'une des monocellules PAC et d'un SC utilisés pour les essais d'hybridation directe de ce chapitre.

Dans une hybridation impliquant de nombreuses cellules PAC et SC, nous souhaitons étudier s'il est possible de supprimer les systèmes d'équilibrage habituellement employés pour les mises en série de SC au profit de simples connexions intermédiaires entre PAC et SC.

En effet, étant donnés les efforts déployés par les constructeurs (autant ceux de PAC que ceux de SC) pour éviter la dispersion entre les cellules, on peut penser que les courants nécessaires à l'équilibrage seront de faibles amplitudes. Pour appuyer ceci, il n'y a qu'à regarder les systèmes d'équilibrage actifs des modules SC industriels récents qui ne peuvent dériver que qq 10 à 100mA pour garantir l'équilibrage. Concernant les PAC, au sein d'un stack sain, il n'y a que très peu de différences entre les tensions des cellules qui sont traversées par un courant identique. On pourrait alors envisager de connecter ces fils d'équilibrage sur la tranche des cellules d'un stack. Ceci, en se gardant la possibilité d'y insérer une impédance pour limiter ces courants si nécessaire. En effet, d'une part la tranche des plaques bipolaires n'est pas prévue pour faire transiter des courants importants, d'autre part cela pourrait fortement dé-symétriser les lignes de courant sur la surface de la cellule.

Nous avons choisi dans un premier temps d'étudier le montage de la *Figure III.2.a*), ceci pour nous permettre d'observer les phénomènes mis en jeu, de les décrire et de les caractériser. L'objectif de ces premiers essais est également de prévoir le câblage et l'instrumentation des essais suivants.

Le montage de la *Figure III.2.b*) a été mis en place dans le but d'appréhender les mécanismes d'équilibrage. L'objectif est, dans un premier temps, d'avoir une première idée sur la valeur, la cause et le comportement du courant d'équilibrage. Dans un second temps ; il s'agit de prévoir un schéma électrique adéquat autant pour la partie « courants forts » que pour la partie « équilibrage » pour les essais suivants.

Ensuite le montage de la *Figure III.2.c*) représente une hybridation directe de quatre cellules optimisée énergétiquement et qui, de plus, possède un fil d'équilibrage, ce qui en fait un bon objet d'étude. Comme exprimé lors du chapitre I, l'association d'une cellule PAC avec une cellule SC représente en effet un taux d'utilisation de l'énergie maximale emmagasinable dans le SC de l'ordre de 16% ( $W = \frac{1}{2} \cdot C \cdot V^2$ ). Alors que dans le cas de l'hybridation avec deux cellules, le taux d'utilisation énergétique du SC est de l'ordre de 66%.

Enfin, le montage de la *Figure III.2.d*) a pour but d'observer et de comparer les courants d'équilibrage. Dans le cas précédent, il n'y a effectivement d'équilibrage qu'un seul courant. De plus, cet essai étant programmé en dernier, on peut supposer que les PAC ne seront pas toutes dans le même état de santé à l'issue de la caractérisation des montages précédents. Celles-ci n'auront pas toutes le même vécu et donc l'impact sur les courants d'équilibrages sera peut-être amplifié.



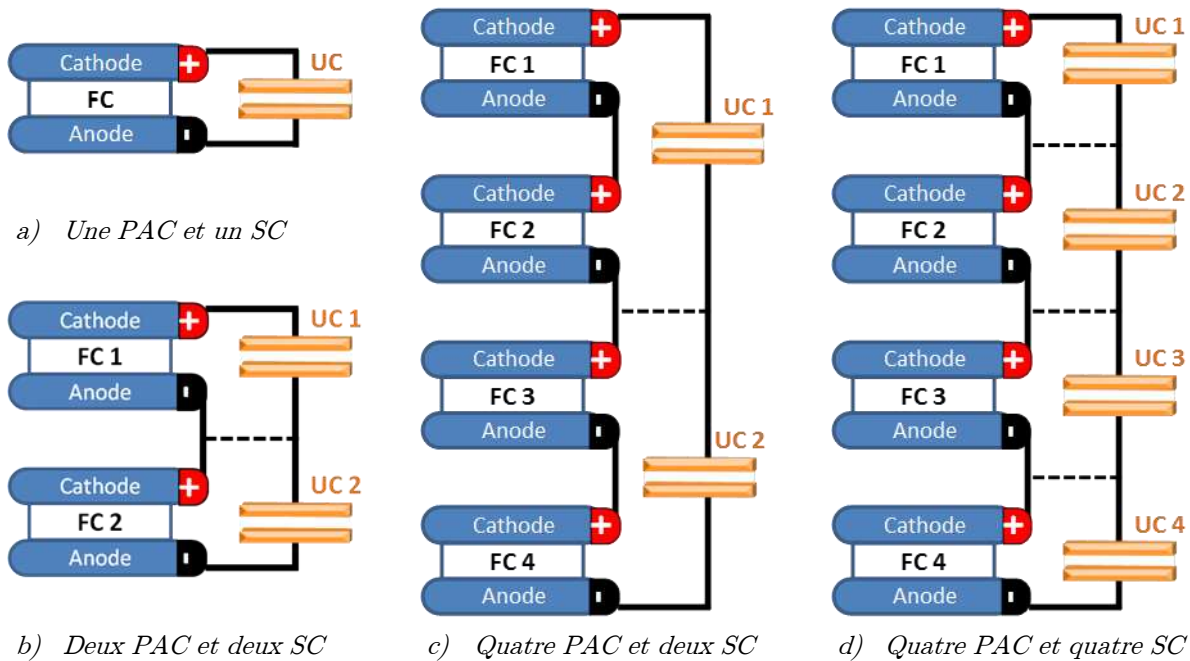


Figure III.2 : Illustration des schémas électriques utilisés pour l'hybridation de monocellules PAC.

Sur la *Figure III.2*, les fils d'équilibrage sont représentés en pointillés. Leur présence n'est remise en question, mais nous ne connaissons à ce jour pas l'impact qu'aura le fait de dériver des courants sur la tranche des plaques bipolaires d'un stack. Par contre, la forme naturelle (faiblement ou fortement impédante ?) de ces connexions est ouverte. En effet, lors des phases de précharge ou des phases d'arrêt, des courants importants risquent d'être appelés via ces connexions. Si l'on ne souhaite pas trop modifier la structure d'un stack, qui a priori, ne semble pas pouvoir faire transiter des courants importants via ces zones, il faut que ces courants soient réduits. On peut envisager plusieurs solutions comme rendre ces fils résistifs ou les associer avec des contacteurs (ou des semi-conducteurs) pour restreindre ou empêcher les courants d'échanges durant certaines phases.

Enfin, précisons que chaque essai a vu un câblage électrique et un montage fluide différents. De plus, des erreurs ont été réalisées dans les premiers essais (ou plutôt : des améliorations ont été apportées dans les essais suivants !). Afin que le lecteur puisse avoir conscience des méthodologies entreprises, nous avons choisi, pour le présent chapitre, de présenter les essais dans l'ordre chronologique dans lequel ils ont été effectués.

### 3.1 Etude du comportement d'une Cellule PAC hybridée avec un SC

Après une description du montage expérimental, cette partie présentera différentes méthodes permettant de précharger le SC avec la PAC. En effet, cette phase représente la première étape d'une utilisation d'un système hybride : avant de pouvoir utiliser un système hybride il est nécessaire de le précharger. L'accent sera mis sur une méthode n'utilisant pas d'autres composants que ceux déjà présents sur un banc d'essais typique : la précharge du SC par montée en gaz lente de la PAC.

En nous appuyant sur des essais où l'ensemble hybridé est soumis à divers profils de charge, nous nous attacherons à décrire le partage du courant de la charge entre la PAC et le SC. Ce partage sera décrit suivant 3 phénomènes. Dans un premier temps, nous tenterons de quantifier et expliquer chacun de ces phénomènes, puis dans un second temps, nous proposerons des méthodes permettant de retrouver les grandeurs observées par le calcul.

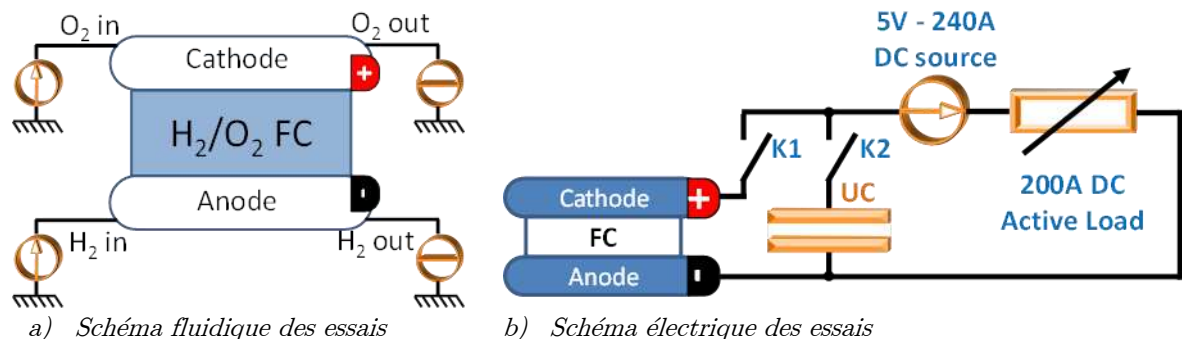
### 3.1.1 Montage Expérimental

Avant toutes choses, il faut prendre connaissance du banc d'essai qui possède quelques particularités. De manière générale, la plupart des composants du banc sont à commande manuelle.

En ce qui concerne la partie fluide illustrée en **Figure III.3.a)**, des bouteilles de type B05 fournissant les gaz via des détendeurs mécaniques. Ces détendeurs fixent les pressions des gaz dans la PAC (homogènes à des sources de tension d'après l'analogie électrique).

En ce qui concerne les sorties gaz, des vannes micrométriques sont placées en sortie de la PAC ; et donc à pression constante (cas de notre étude), elles imposent un débit constant (qui varie suivant l'ouverture retenue). En toute rigueur, ces vannes restrictives devraient être représentées par des résistances, étant donné que nous cherchons à imposer un débit et que la pression est fixe durant les essais ; nous les avons représentées par des sources de débit (homogènes à des sources de courant).

Si nous souhaitons avoir des campagnes d'essais soumises aux mêmes conditions de facteur de stœchiométrie ( $\lambda$ ), il faut adapter le débit de fuite en fonction du courant. Or ces vannes étant manuelles, cette adaptation permanente semble difficile et contraignante à réaliser. Nous avons donc choisi une ouverture de vanne micrométrique fixe pour chaque essai. Ainsi les  $\lambda$  sont variables en fonction du courant et ils vont de l'infini (à zéro de courant) à leur valeur minimale (pour le courant max) ; le mode bouché correspondant à  $\lambda=1$ . L'expérience nous a amenés à choisir un débit de sortie de 75mL/min pour la cathode ( $\lambda_{O_2} \in [1.34, +\infty[$  pour  $I_{PAC} \in [0A, 50A]$ ) et un débit de sortie de 50mL/min pour l'anode ( $\lambda_{H_2} \in [1.112, +\infty[$  pour  $I_{PAC} \in [0A, 50A]$ ). Notons que le fonctionnement  $H_2/O_2$  de la PAC permet de se passer d'humidificateurs et de compresseur.



**Figure III.3 :** Illustration des schémas électrique et fluide utilisés pour l'hybridation de monocellules PAC.

En ce qui concerne la partie électrique illustrée sur la *Figure III.3.b*), l'ensemble est dimensionné pour faire transiter des courants de 200 A. Dans ces premiers essais, nous avons choisi un montage « sécuritaire ». Deux contacteurs ont été insérés pour permettre de séparer toutes les sources entre elles au prix d'une dégradation de l'hybridation. En effet, l'ajout d'une impédance (celle du contacteur, des connexions et des câbles permettant de relier le tout) n'aura certainement pas un effet bénéfique sur le partage des puissances ni sur la valeur des puissances échangées. Etant donné que ces essais sont les premiers essais à courant fort, toutes les précautions possibles sont nécessaires. De plus, cela permet de connecter ou déconnecter le SC de la charge pour faire fonctionner la PAC seule ou hybridée sans recâbler.

La charge active ne pouvant fonctionner avec toute sa dynamique qu'au-dessus de 2 à 3 V, il a été nécessaire de monter la tension vue par la charge active par l'ajout d'une alimentation en série. Nous pourrions nous servir de la charge active pour décharger le SC. Cependant cette solution ne sera pas utilisée car il y a un risque de polariser le SC en sens inverse, compte tenu de l'alimentation de 5 V dans le circuit.

L'ensemble électrique ne possédait pas de surveillance électronique à l'époque des essais pour ouvrir les contacteurs ou couper les alimentations en cas de défaut de tension. Un SC organique est réversible en tension par ses matériaux de construction, cependant l'impact sur sa performance et la durée de vie n'est pas clair : nous ne préférons donc pas aller dans ce quadrant.

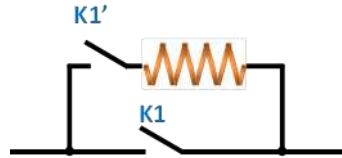
### 3.1.2 Précharge du SC par la cellule PAC

La présence des contacteurs nous permet un large choix dans les manières de précharger l'ensemble. Pour la PAC, cela permet au préalable de la précharge de choisir de la réveiller, de l'humidifier (la seule manière avec ce banc d'essais d'humidifier la PAC étant de la faire tourner à courant conséquent) ou de la laisser en gaz inertes. Concernant le SC, on peut choisir de le charger via une source extérieure ou via la PAC. Il y a également la possibilité d'interconnecter des éléments en parallèle du contacteur. C'est l'essai qui sera décrit dans la section suivante.

#### 3.1.2.1 Précharge du SC via une résistance (PAC sous gaz actifs)

La précharge résistive est sans doute la méthode la plus simple et la plus prévisible que l'on peut mettre en œuvre. En effet, en interconnectant une résistance entre la PAC et le SC, il est facile de prévoir l'ordre de grandeur du courant d'appel maximum. Tandis que cela est beaucoup moins facile à prévoir lors d'une connexion par fermeture du contacteur après mise en gaz, ou lors d'une mise en gaz PAC et SC connectés. Ainsi la certitude ne pas encourir de risque de détérioration de la PAC par cette solution est rassurante.

Sur le montage présenté en *Figure III.3.b*), la précharge via une résistance a été réalisée par le montage illustré sur la *Figure III.4*. En fermant l'interrupteur noté K1' dans un premier temps, le courant transite de la PAC vers le SC en passant par la résistance. Le courant d'appel est alors limité par la valeur de la résistance.



**Figure III.4 :** Schéma de principe de la précharge par une résistance

On peut envisager un dimensionnement rapide (bien qu'un peu grossier) si l'on considère la PAC comme une source de tension parfaite à la valeur de la tension à vide (ce qui n'est pas le cas). On négligera également la résistance de la PAC et celle du SC. Sous ces suppositions, en notant  $C_{UC}$  la capacité du SC et  $R$  la résistance utilisée pour la précharge et en considérant la résistance en convention récepteur, on a alors les équations suivantes :

$$I_{UC}(t) = \frac{V_{PAC}}{R} \cdot e^{-\frac{t}{R \cdot C_{UC}}}, \quad V_R(t) = V_{PAC} \cdot e^{-\frac{t}{R \cdot C_{UC}}} \quad : \quad \text{Equation (III.1)}$$

$$P_R(t) = \frac{V_{PAC}^2}{R} \cdot e^{-\frac{2t}{R \cdot C_{UC}}}, \quad W_R^{0 \rightarrow \infty} = \frac{1}{2} \cdot C_{UC} \cdot V_{PAC}^2 \quad : \quad \text{Equation (III.2)}$$

Notons que l'expression de l'énergie à dissiper dans la résistance est identique à celle de l'énergie stockée dans le SC en fin de charge. Ainsi, peu importe la valeur de la résistance connectée entre la PAC et le SC, il y aura autant d'énergie dissipée dans la résistance que celle transmise au SC. Le dimensionnement de la résistance résulte d'un compromis entre la valeur du courant max que l'on souhaite faire délivrer à la PAC (donc de la puissance max dans la résistance) et la durée de précharge souhaitée.

Supposons une tension à vide de la PAC de 1 V, alors la valeur du courant d'appel sera l'inverse de la valeur de la résistance de précharge. On connaît par cette méthode la puissance max et l'énergie à dissiper ce, qui permet de trouver une résistance adéquat. Notons que de manière générale, on peut surcharger les résistances durant quelques secondes.

Se pose ensuite la question du moment où l'on peut court-circuiter la résistance, car attendre que le SC atteigne la valeur de la tension à vide de la PAC peut être très long. En effet, dans le cas réel, c'est aux faibles densités de courant que la tension de la PAC possède la plus grande variation. Dans la zone d'activation, il faut augmenter fortement la tension du SC alors que la PAC ne peut fournir que de très faibles courants (typiquement qq mA). Dans notre cas, ce temps d'attente est de l'ordre de l'heure, d'autant plus qu'à l'OCV les dégradations de la PAC s'accroissent. Il est donc préférable d'envisager un court-circuit de la résistance avant la tension à vide.

On peut envisager (avec beaucoup d'approximations) que la PAC se positionnera alors sur son point quasi-statique. Par exemple : si le SC est à 0,8 V, le fait de court-circuiter la résistance de précharge à cet instant positionnera la PAC sur son courant correspondant à 0,8V (dans notre cas : 13 A pour 0,8 V, 6 A pour 0,85 V et 2,5 A pour 0,9 V). Notons qu'il est évident que cette méthode est trop approximative pour le dimensionnement au plus juste d'un système de précharge résistif.

Cette méthode est celle que nous avons utilisée lors des premières connexions PAC et SC en vertu de son aspect sécuritaire et prédictif vis-à-vis des courant fournis par la PAC. Cependant, ce n'est pas celle que nous souhaitons proposer à termes puisqu'elle nécessite l'ajout de

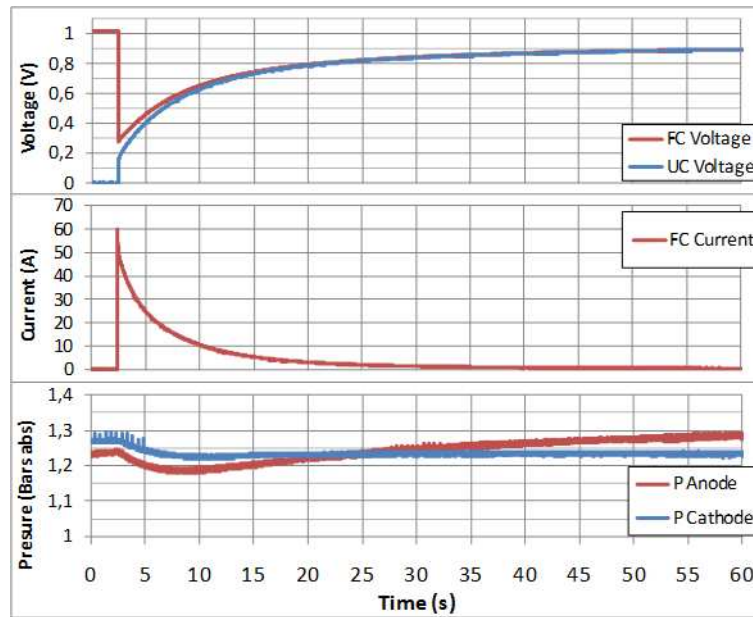
résistances capables de faire transiter des courants importants (si l'on souhaite une précharge relativement rapide) et capables de dissiper une énergie qui peut être conséquente (pratiquement équivalente à celle stockée). Si l'on souhaite une hybridation performante, la minimisation du volume sera importante.

### ***3.1.2.2 Précharge du SC via une connexion directe (PAC sous gaz actifs)***

Nous avons procédé à des connexions via le contacteur en partant du SC déchargé et de la PAC sous gaz. On ferme d'abord l'interrupteur K1 pour forcer la PAC à débiter un peu de courant dans la charge active, lui permettant ainsi de s'hydrater. Puis, une fois la charge active remise à zéro, on ferme l'interrupteur K2.

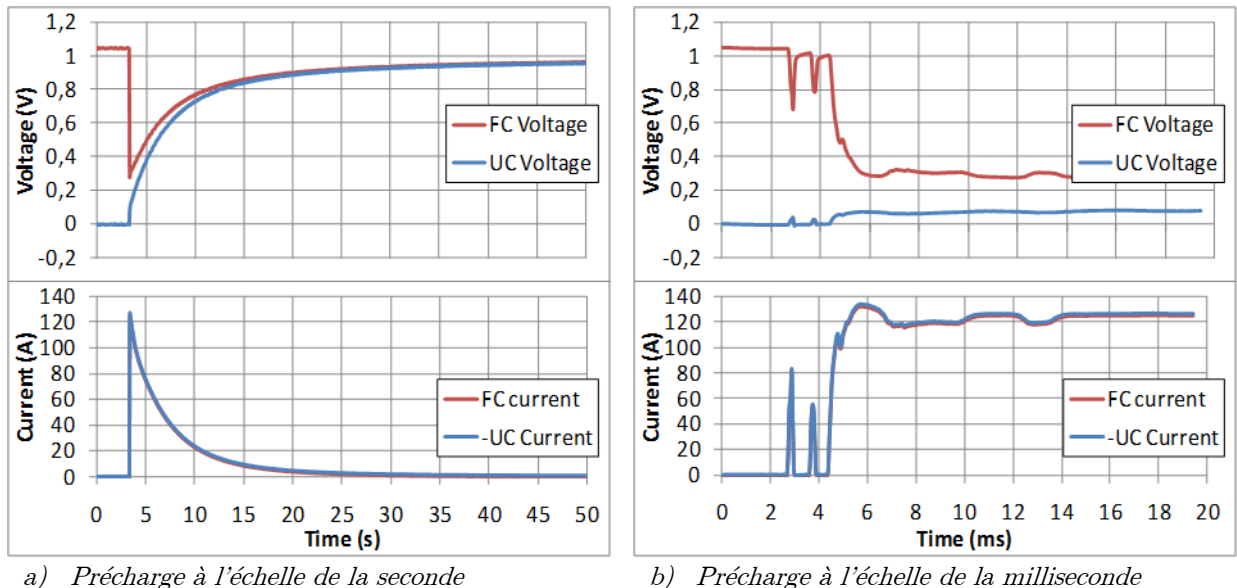
Etant données les résistances des éléments (3,2 m $\Omega$  pour la résistance électrique de la PAC et 0,8 m $\Omega$  pour la résistance série du SC), à 1 V de tension à vide, on peut s'attendre à un courant max de 250 A si l'on considère les résistances du câblage et du contacteur négligeables. Le système électrique étant dimensionné pour un courant nominal de 200 A, un pic court de 250 A ne poserait pas de problème sur la partie électrique. Dans ce cas on peut penser que ce sont les résistances électriques de la membrane, du SC et des câbles qui joueront le rôle de résistance de précharge. La membrane court des risques, à savoir : les détendeurs vont-ils réagir de manière suffisamment rapide et simultanée pour ne pas créer de variation de pression trop importante entre les électrodes ? Les couches de diffusion vont-elles subir des contraintes mécaniques dommageables par cette variation brusque de concentration (effet d'aspiration) ? D'autres questions sont encore possibles autour des dégradations liées à cet essai.

Dans les premiers essais, afin ne pas risquer de dégrader de matériel important pour la suite des travaux, nous avons choisi une cellule PAC en mauvais état de santé ( $I_{max} = 12A$  à 0,6V au lieu de 50A) ainsi qu'un SC inutilisé par la suite (une cellule 350F extraite d'un module BPAK0058 E015 B01 endommagé lors des essais présentés dans les chapitres V). Les pressions ont également été réduites à 1,25 bar absolu (bara) pour ne pas risquer d'atteindre la différence de pression maximale autorisée entre les électrodes qui est de 0,3 bars. La précharge est présentée en ***Figure III.5***



**Figure III.5 :** Premier essai de précharge par connexion directe (PAC-SC dégradés, pressions faibles)

On observe un courant d'appel de 60A ( $5.I_{max}$ ) dans la PAC avec des variations sur les pressions raisonnables. Une caractérisation rapide de la PAC (non présentée ici) n'a pas montré d'effets néfastes sur celle-ci dus à la précharge. Cet essai que l'on peut qualifier de « débroussaillage » est plutôt positif ! On peut alors passer à l'essai avec une PAC en bonne santé et un SC prévu pour ces essais d'hybridation (leurs caractéristiques sont celles du **Tableau III. 1**). Cet essai est illustré sur la **Figure III.6** (les pressions ne sont pas représentées étant donné leurs faibles variations).



a) Précharge à l'échelle de la seconde

b) Précharge à l'échelle de la milliseconde

**Figure III.6 :** Essai de précharge du SC par la PAC par connexion directe après mise en gaz de la PAC

On observe lors de cette connexion un courant d'appel de 134 A ( $5,36 \text{ A/cm}^2$  soit  $2,7.I_{max}$ ). Notons que les résistances des câbles et les pertes par diffusion dans la PAC ne sont en réalité pas négligeables dans cet essai puisque le courant mesuré (134A) est bien éloigné du courant

maximisant estimé initialement (250A). On observe également sur le zoom de la **Figure III.6.b)** que le contacteur possède des rebonds.

Nous avons profité de cet essai pour avoir une première idée de la qualité de la mesure de courant de la PAC qui est réalisée ici avec un LEM (LA100P-SP13). Ce capteur est annoncé avec une bande passante de 200kHz. La mesure de courant du SC est réalisée avec une sonde plus performante, dont la bande passante indiquée est de 15MHz. Notre expérience montre que, de manière générale, il faut rester très prudent par rapport aux aspects bandes passantes données par les constructeurs. Pour les essais futurs, nous avons décidé d'équiper chaque PAC et chaque SC avec ce type de LEM compte tenu des performances observées ici très bonnes.

Nous n'avons pas le recul nécessaire pour répondre convenablement aux questions qui ont été posées au début de ce paragraphe concernant les potentielles dégradations. Cependant sur les quelques essais réalisés, nous n'avons pas constaté de diminution des performances électriques. Il faudrait une analyse avec un microscope adapté de la membrane et des couches de diffusion pour en dire plus. En l'état, cette méthode de précharge n'est pas la méthode que nous souhaitons retenir.

En revanche, cet essai nous donne un ordre de grandeur du courant maximum que pourrait fournir la PAC lors d'une précharge par montée en gaz très rapide. En effet, le cas présenté (connexion après mise en gaz) nous semble être le cas de précharge le plus « violent » possible pour la PAC. Malgré tout [HIN-12] a montré qu'il était possible de limiter ce courant d'appel en contrôlant le débit d' $H_2$  dans le cas d'une cellule  $H_2$ /Air.

### **3.1.2.3 Précharge du SC via une montée en gaz lente de la PAC**

Nous n'avons pas de modèles capables de modéliser une PAC sous gaz inertes, hors gaz ou en cours d'alimentation en gaz. Les essais précédents nous ont permis d'avoir une idée sur l'ordre de grandeur des courants que nous pouvons rencontrer. L'inconvénient des méthodes précédentes est qu'elles nécessitent au moins un contacteur entre la PAC et le SC. Non seulement cela augmente l'impédance entre les deux éléments mais aussi cela rajoute un élément dans le système. Pour le cas d'un stack, si l'on doit ajouter des contacteurs de puissance pour chaque cellule SC, cela rend probablement rédhibitoire la solution recherchée.

Nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il est possible de précharger un SC avec une PAC avec des courants d'appel modérés par une alimentation en gaz réactifs maîtrisée. Il a été montré que cela est possible quelle que soit l'électrode que l'on choisit d'alimenter en dernier. Cependant des essais à différents débits n'ont pas été effectués sur une PAC  $H_2/O_2$ . Ce cas va pouvoir nous permettre d'avoir quelques mesures sur les débits.

Partant de ces constats, nous souhaitons faire l'économie des contacteurs entre la PAC et les SC. Ces contacteurs pourraient être remplacés par une procédure de mise en gaz.

A l'époque de ces essais, la PAC ne pouvait pas être mise sous gaz inertes en phase d'arrêt. En fin de journée les alimentations en gaz étaient coupées, puis les sorties gaz ouvertes. Ainsi le lendemain, la PAC se retrouvait à tension nulle et probablement avec les deux électrodes remplies d'air ayant remonté à travers les sorties par diffusion. La précharge par mise en gaz

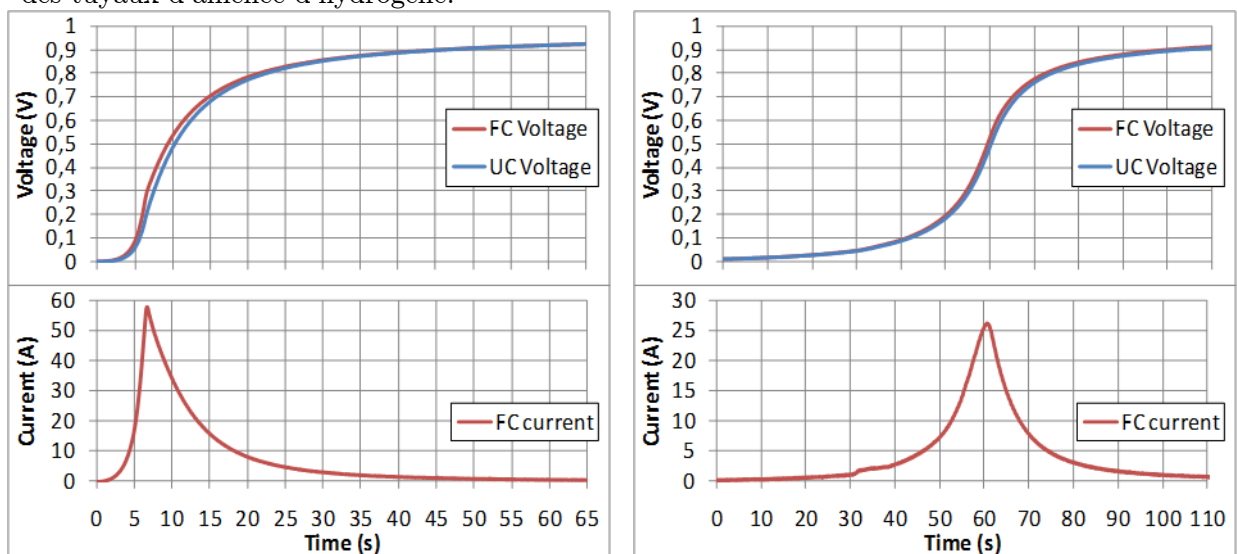
actifs ne pouvait donc se faire que par l'anode en hydrogène étant donné qu'à la cathode de l'air était déjà présent.

La **Figure III.7** illustre deux exemples de précharges par la mise en gaz : l'un où l'hydrogène était introduit à 350mL/min (**Figure III.7.a**) et l'autre où l'hydrogène était introduit à 20mL/min (**Figure III.7.b**). Ces essais ont été réalisés avec la PAC à température ambiante et dans un état d'humidification difficile à estimer. En effet, les gaz entrants ne sont pas humidifiés et la cellule avait passé a minima une journée avec les sorties de gaz ouvertes. On suppose cependant que la PAC avait suffisamment fonctionné la veille pour être humide, mais la nuit écoulée entre temps peut constituer une durée suffisante pour que la membrane se soit séchée.

On remarque dans ces essais qu'il faut descendre très bas dans les débits d'alimentation des gaz actifs pour diminuer fortement le courant d'appel. Ainsi entre les deux essais, il y a un facteur deux dans les courants max pour un facteur 20 dans les débits d'alimentation. Cela permet tout de même d'atteindre 25A de courant d'appel (soit 1A/cm<sup>2</sup>), ce qui représente la moitié du courant max que l'on fait passer usuellement dans cette cellule.

En revanche, il ne nous a pas été possible de descendre plus bas en débit. En effet, les vannes micrométriques sont prévues pour faire passer des débits beaucoup plus importants et donc le réglage de débits tels que ceux requis se joue au 10<sup>ième</sup> de tour pour un gaz comme l'hydrogène. De plus, la gamme des débitmètres à notre disposition ne permet d'observer qu'un débit minimum de 20mL/min.

Il n'est pas certain que le fait d'appliquer des débits plus faibles aurait permis de réduire encore ce courant d'appel. En effet, dans ses travaux, [NOI-13] obtient bien une limitation du courant par une limitation du débit d'hydrogène entrant. Dans ces essais réalisés avec une PAC déjà en gaz (comme au 3.1.2.2), un dépassement de 3 à 4 fois le courant de référence est malgré tout observé au moment de la connexion entre les deux composants. Les auteurs attribuent ce dépassement à la capacité fluïdique liée aux canaux internes à la cellule et surtout aux volumes des tuyaux d'amenée d'hydrogène.



a) Précharge par les gaz à 350mL/min (anode)

b) Précharge par les gaz à 20mL/min (anode)



**Figure III.7 :** Essai de précharge sur la PAC et SC par alimentation en gaz de la PAC après connexion

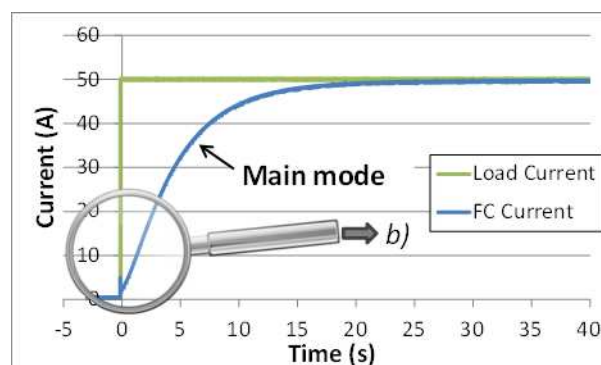
Une fois l'ensemble PAC-SC démarré (PAC sous pression et SC préchargé), il existe une multitude d'essais réalisables dont nous allons détailler une partie dans les sections suivantes.

### 3.1.3 Comportement de l'association hybride directe d'une cellule PAC et d'un SC face à des échelons de courant.

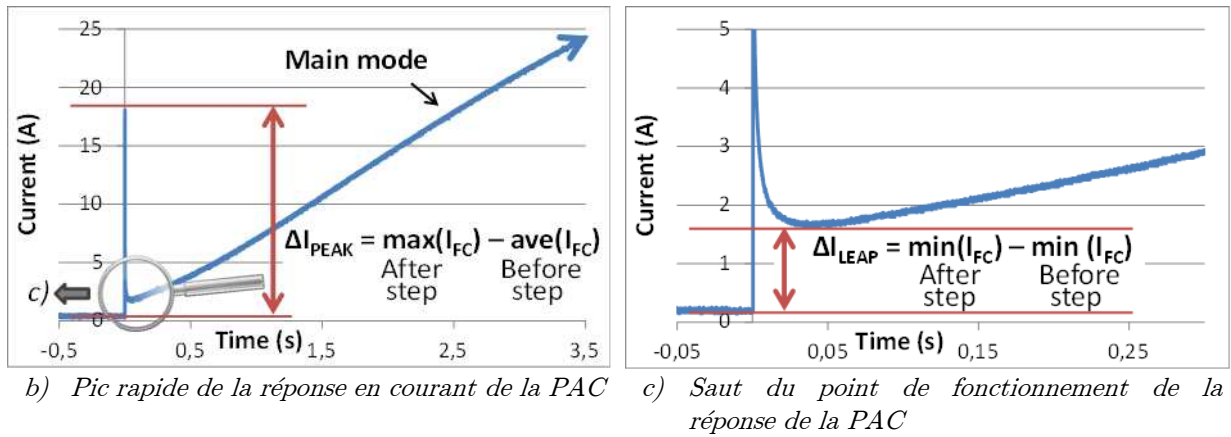
Dans cette section, nous allons nous attacher à étudier le partage de courant de charge entre la PAC et le SC lorsque des échelons de courants sont appliqués par la charge. L'application d'échelons nous renseigne rapidement sur les différents types de réponse et les dynamiques mises en jeu. Ainsi, nous constatons qu'il y a 3 phénomènes mis en jeu illustrés en **Figure III.8** où la partie *b)* est un zoom de la partie *a)* et la partie *c)* est un zoom de la partie *b)*.

On peut définir les trois phénomènes illustrés de la manière qui suit (du plus rapide au plus lent) :

- Un premier phénomène qui se produit au moment de l'échelon avec une constante de temps très faible : il est lié à la charge ou la décharge du condensateur équivalent de double couche (cela sera analysé en détails dans le chapitre IV). Ce phénomène est illustré en **Figure III.8.b)** où la manière dont il sera mesuré est précisée. Il peut passer facilement inaperçu ou apparaître de manière réduite si l'échantillonnage de l'acquisition n'est pas assez fin, comme en **Figure III.8.a)**.
- Un second phénomène qui va ensuite prendre le relais et imposer les conditions initiales du régime transitoire de l'hybridation directe : c'est ce que nous nommerons « saut du point de fonctionnement » dans la suite. Ce phénomène est illustré en **Figure III.8.c)** où la manière dont il sera mesuré est précisée.
- Un troisième phénomène qui va constituer le comportement dominant de l'hybridation directe, à savoir la charge (ou la décharge) du SC. Dans une approximation grossière, on pourrait parler de circuit  $R.C_{UC}$  avec une résistance fortement non linéaire régie principalement par la courbe statique.



a) Mode dominant de la réponse en courant de la PAC

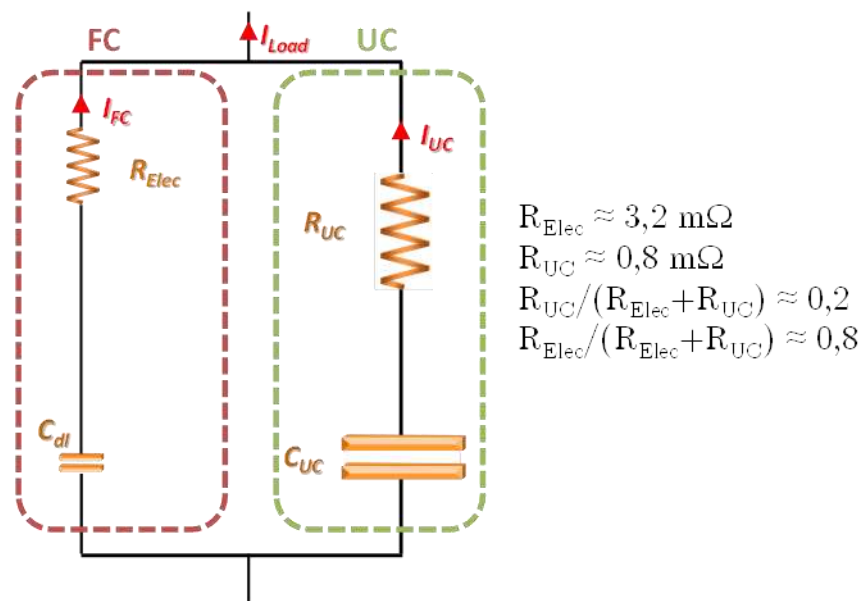


**Figure III.8** : Observation des trois phénomènes visibles à travers le courant de la PAC mis en jeu suite à l'application d'un échelon à l'ensemble PAC/SC hybridé.

L'objet de cette section est de décrire précisément ces trois phénomènes. Nous allons traiter dans un premier temps ce phénomène de « saut de point de fonctionnement », puis dans un second temps, nous zoomerons sur le phénomène de pic se produisant au moment de l'échelon. Le troisième phénomène sera traité en section 3.1.5.

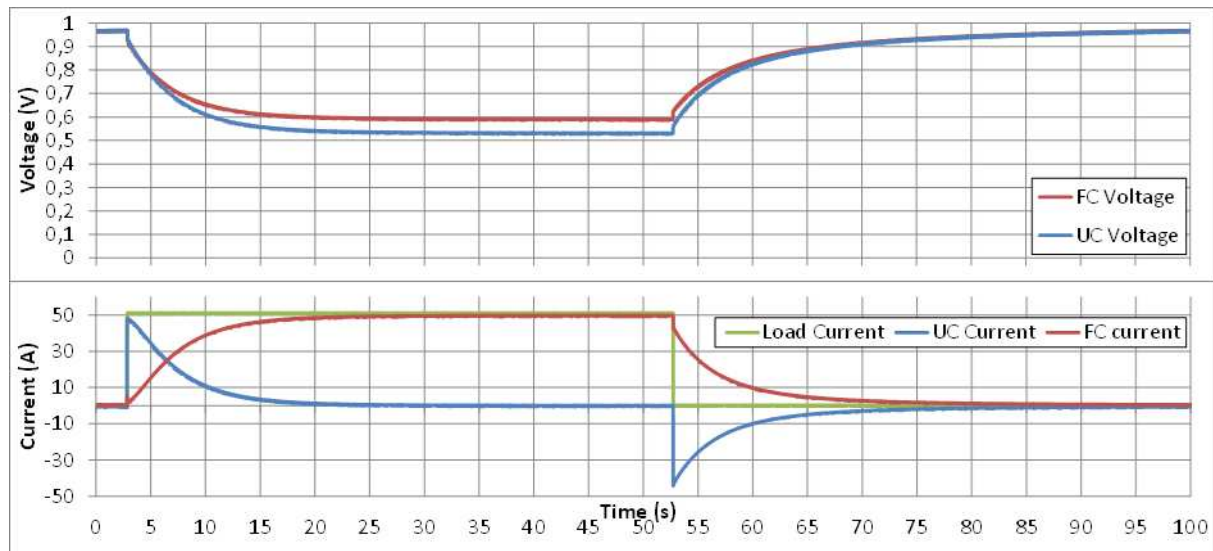
### 3.1.3.1 De l'idée préconçue du partage selon les rapports des résistances électriques des composants au moment de l'échelon

A l'issue de l'étude de [GAR-07], il ressortait que, lors d'un échelon de courant de charge, les courants doivent se séparer à l'instant  $t=0$  de l'échelon de la manière suivante :  $\Delta I_{FC} = (R_{UC} / (R_{Elec} + R_{UC})) \cdot \Delta I_{LOAD}$  et  $\Delta I_{UC} = (R_{Elec} / (R_{Elec} + R_{UC})) \cdot \Delta I_{LOAD}$ . Ce choix se justifie si l'on choisit de modéliser l'association directe PAC/SC par le schéma simplifié de la **Figure III.9**, cependant nous allons voir par la suite que cette idée reçue n'est pas vérifiée.



**Figure III.9** : Modélisation simplifiée d'une association directe PAC et SC à l'instant de l'échelon.

Observons par exemple la répartition des courants suite à l'application d'un créneau de courant de charge sur l'ensemble hybridé. La **Figure III.10** montre ces réponses électriques pour une consigne de charge en créneau de 0 à 50A, à la fréquence de 10mHz. On observe que, lors de l'échelon de charge montant (0A→50A), la PAC prend en charge 1,50A soit 2,9% (car l'échelon fait 50,9A) ; alors que, lors de l'échelon descendant (50A→0A), la PAC prend en charge -5,17A soit 10,2% de l'échelon.



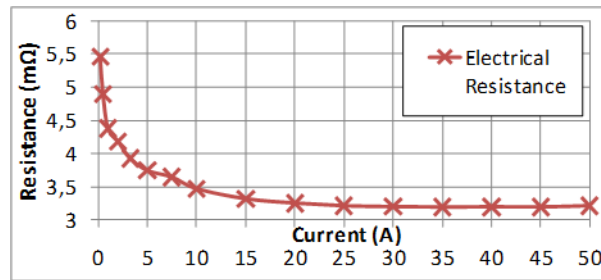
**Figure III.10 :** Répartition des courants lors d'un créneau 0→50A à 10mHz

On constate dans un premier temps que la part du courant de charge assumée par la PAC ne représente pas les 20% issus du calcul de  $R_{UC}/(R_{elec}+R_{UC})$  (cf. **Figure III.9**). Cependant, il est tout à fait possible que les résistances prises en compte ne soient pas celles qui doivent intervenir dans le calcul présenté. En effet, dans ce cas, le câblage n'a pas été pris en compte : ce qui est une approximation grossière.

En revanche, on constate dans un second temps que ce rapport varie énormément entre le cas montant et le cas descendant : cela représente un rapport de 3,5 entre les deux cas. Il s'agit maintenant de vérifier si les résistances impliquées peuvent varier de telle manière à retrouver un rapport proche de celui observé dans ce partage des courants.

La résistance électrique d'un SC ne varie pas avec la tension, ou alors de manière infime et négligeable. Cependant, elle peut varier avec la température. Mais dans ces essais, le SC n'a pas le temps de s'échauffer pour montrer une variation importante de température. Ainsi, on ne peut pas mettre en cause la résistance du SC dans la variation de ces rapports.

L'étude dans [GAR-07] avait déjà observé une variation de ce rapport sans s'attacher particulièrement à sa description ; la variation de la valeur de la résistance électrique de la PAC avait été suggérée comme piste d'explication. Ici, la valeur considérée pour  $R_{Elec}$  est la valeur à courant nominal, c'est-à-dire la valeur minimale de  $R_{Elec}$ . Si la variation de cette résistance est responsable de ce rapport, cela suppose une multiplication par 4,125 de cette résistance entre le courant nominal et le courant nul. Il est vrai que la résistance électrique d'une PAC augmente lorsque le courant diminue, comme on peut l'observer sur la mesure effectuée sur cette cellule présentée en **Figure III.11**.



**Figure III.11 :** Mesure par spectroscopie d'impédance de la résistance électrique de la PAC en fonction du courant débité

Il faut noter que la mesure de cette courbe a été réalisée sur une séquence de 3h environ dans le sens des courants décroissants sous des débits de fuite fixes (cela sera illustré plus en détails au chapitre IV). Cela signifie que pour les faibles densités de courant le facteur de stœchiométrie est très important. La tendance à assécher la PAC de par cette sur-stœchiométrie est forte. La séquence est relativement longue et donc l'assèchement est d'autant plus sévère. Le fait d'assécher la membrane entraîne une augmentation de la résistance électrique de celle-ci. On peut alors dire que la résistance ainsi mesurée pour les courants faibles est une valeur maximale de celle que l'on aurait pu observer lors de l'essai de la *Figure III.10*. Cette valeur maximale ne dépasse pas le double de la valeur à courant nominal.

Aussi, [ZEI-11] a observé que, lors de la décroissance des courants, la résistance électrique de la PAC requiert un temps important avant de témoigner d'une variation conséquente (il observe plusieurs dizaines de minutes). Cela appuie le fait que dans notre essai, la résistance électrique de la PAC n'a pas le temps de varier dans un rapport supérieur à 4 en 50 secondes.

Cette analyse signifie que l'on ne peut pas expliquer le partage des courants par les rapports des résistances électriques des composants au moment de l'échelon ; en particulier parce que les composants en question ne peuvent pas témoigner de variations aussi importantes que celles que l'on observe dans le partage à deux courants différents. Il y a certainement d'autres phénomènes responsables de cette répartition. Nous concluons que l'on ne peut pas baser le raisonnement sur une approche aussi simplifiée que celle-ci. Une explication probable sera présentée dans les paragraphes qui suivent.

### ***3.1.3.2 Saut du point de fonctionnement de la PAC au sein de l'ensemble hybridé 1 PAC - 1SC***

Partant du constat que le partage des courants est visiblement plus faible pour la PAC que celui annoncé par le rapport des résistances électriques entre les composants, cela suggère que :

- Soit il faut considérer une impédance beaucoup plus élevée pour la PAC (d'un facteur 2,25)
- Soit il faut considérer une impédance plus faible pour le SC (représentant 44% de la valeur considérée).

La première proposition semble la plus pertinente, d'autant plus que nous avons vu au précédent paragraphe qu'au moins une des impédances considérées doit témoigner de variations d'un rapport 4,125.

L'explication proposée consiste à considérer les impédances en régime continu, autrement dit à considérer que le condensateur de double couche de la PAC s'est chargé ou déchargé pour rejoindre le régime quasi-statique. L'impédance en régime continu de la PAC est représentée par une dérivation de la courbe de polarisation. En effet, celle-ci propose de grandes variations : une forte impédance aux courants faibles et une faible impédance aux courants forts.

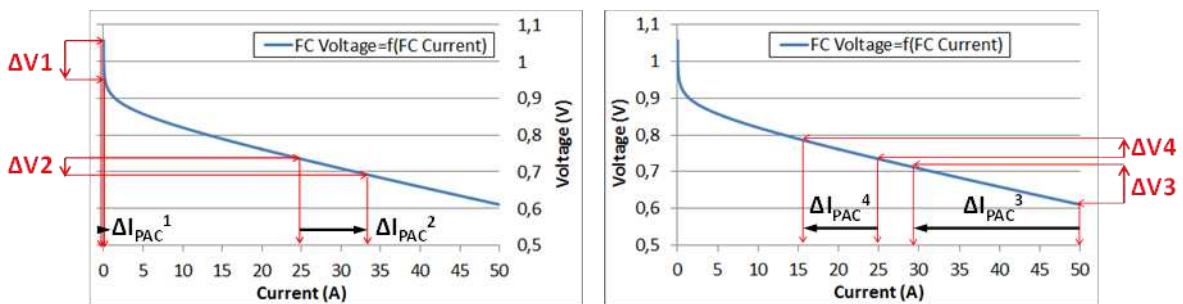
Par rapport au raisonnement précédent, cela revient à considérer l'impédance en régime continu de la PAC (que l'on notera  $R_{FC}^{t \rightarrow \infty}$  et qui est fonction du courant  $I_{pac}$ ) au lieu de sa résistance électrique. Alors, les relations de la répartition précédemment envisagée deviennent :

$$\Delta I_{FC} = (R_{UC} / (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} + R_{UC})) \cdot \Delta I_{LOAD} \quad : \quad \text{Equation (III.3)}$$

$$\Delta I_{UC} = (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} / (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} + R_{UC})) \cdot \Delta I_{LOAD} \quad : \quad \text{Equation (III.4)}$$

La variation de tension appliquée aux bornes des composants est identique :  $((R_{FC}^{t \rightarrow \infty} \cdot R_{UC}) / (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} + R_{UC})) \cdot \Delta I_{LOAD}$ . Bien que l'impédance  $R_{FC}^{t \rightarrow \infty}$  varie beaucoup avec le courant, le rapport  $((R_{FC}^{t \rightarrow \infty} \cdot R_{UC}) / (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} + R_{UC}))$  représentant l'impédance équivalente de l'ensemble varie peu : de  $6,8 \cdot 10^{-4} \Omega$  à  $8 \cdot 10^{-4} \Omega$ . Cette variation instantanée du courant de la PAC sera nommée par la suite « saut de point de fonctionnement » de la PAC.

La **Figure III.12** tente d'illustrer les propos précédents. La variation de tension a été ici exagérée pour permettre une meilleure illustration.



a) Saut du point de fonctionnement sur échelon croissant

b) Saut du point de fonctionnement sur échelon décroissant

**Figure III.12 :** Illustration du saut du point de fonctionnement de la PAC sur un échelon croissant et décroissant

Avant tout il faut comprendre qu'un échelon de courant entraîne un échelon de tension aux bornes de la PAC régie par la résistance du SC ; la tension aux bornes de la capacité interne du SC étant supposée constante dans cette phase.

La **Figure III.12.a**) illustre l'application d'échelons de charge croissants sur l'ensemble hybridé. A la tension à vide : la courbe de polarisation de la PAC est très « pentue » (c'est-à-dire très impédante à faibles courants). Donc l'échelon de courant entrainera une grande variation de tension ( $\Delta V1$  grand) mais entrainera un petit saut de son point de fonctionnement ( $\Delta I_{PAC1}$  petit). Si l'on réalise un autre échelon de courant sur un autre point, par exemple à  $I_{max}/2$ , la chute de tension sera plus petite ( $\Delta V2$  environ divisé par 2) puisque l'échelon maximal possible est plus petit (que de 25A à 50A). En revanche, sur ce point, la courbe de polarisation de la PAC est beaucoup moins « pentue » (c'est-à-dire à impédance plus faible). Dans ce cas, un saut plus important du point de fonctionnement de la PAC ( $\Delta I_{PAC2}$  grand) pour un échelon plus faible sera réalisé. On conçoit ainsi que, pour les échelons de sens positif,

un échelon plus petit puisse entraîner un saut du point de fonctionnement de la PAC plus grand suivant son point de départ.

La **Figure III.12.b)** représente l'application d'échelons de courant de charge de sens négatifs sur l'ensemble hybridé. Dans ce cas, l'impédance continue de la PAC augmente lorsque le courant diminue : les deux actions possèdent des effets analogues, à l'inverse du cas de l'échelon montant. Ainsi, plus l'échelon sera de forte amplitude, plus le saut du point de fonctionnement sera important, peu importe son point de départ.

Les sens de variation des sauts du point de fonctionnement ayant été appréhendés, nous allons, dans les paragraphes suivants, proposer une méthode permettant de les représenter graphiquement en fonction du point de départ.

Tout d'abord, il est nécessaire de trouver une relation entre l'impédance en régime continu de la PAC et le courant. Pour cela, considérons le modèle quasi-statique présenté en détails dans l'Annexe 1 et rappelé ici par l'**Equation (III.5)**. On peut le développer sous la forme de l'**Equation (III.6)**.

$$U_{FC} = E_{rev} - \eta_{act} - \eta_{diff_{fast}} - \eta_{diff_{slow}} - \eta_{diff_{H^+}} - \eta_{elec} \quad : \quad \text{Equation (III.5)}$$

$$U_{FC} = E^0 + \frac{R.T}{2.F} \cdot \ln \left( \frac{P_{O_2}^{1/2} \cdot P_{H_2}}{a_{H_2O}} \right) - \frac{R.T}{2.\alpha.F} \cdot \ln \left( \frac{I+I_n}{I_0} \right) - \left| \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{fast}}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I+I_n}{I_{lim, diff_{fast}}} \right) \right| \quad : \quad \text{Equation (III.6)}$$

$$- \left| \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{slow}}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I+I_n}{I_{lim, diff_{slow}}} \right) \right| - \left| \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{H^+}}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I+I_n}{I_{lim, diff_{H^+}}} \right) \right| - R_{elec} \cdot (I+I_n)$$

Ainsi, l'impédance en régime continu peut être donnée par l'**Equation (III.7)**.

$$R_{FC}^{t \rightarrow \infty} (I) = - \frac{dU_{FC}}{dI} = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \cdot \frac{1}{I+I_n} + \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{fast}}.F} \cdot \frac{1}{I_{lim, diff_{fast}} - (I+I_n)} \quad : \quad \text{Equation (III.7)}$$

$$+ \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{slow}}.F} \cdot \frac{1}{I_{lim, diff_{slow}} - (I+I_n)} + \frac{R.T}{2.\beta_{diff_{H^+}}.F} \cdot \frac{1}{I_{lim, diff_{H^+}} - (I+I_n)} + R_{elec}$$

Les différents termes constants de cette dernière équation sont issus de la paramétrisation qui sera présentée au chapitre IV.

Notons qu'il est également possible d'utiliser une expression de la valeur approchée de la résistance en régime continu de la PAC plus simple telle que :

$$R_{FC}^{t \rightarrow \infty} (I) = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \cdot \frac{1}{I+I_n} + R_{diff} + R_{elec} \quad : \quad \text{Equation (III.8)}$$

L'impédance en régime continu de la PAC ( $R_{FC}^{t \rightarrow \infty}$ ) est très forte à bas courant (jusqu'à 13  $\Omega$ ) et très faible à fort courant (4,7 m $\Omega$ ). Il peut être plus visible d'en représenter les variations par son admittance comme sur la **Figure III.13**. La précision pour les courants faibles est largement discutable compte tenu de l'hypothèse  $I_n \ll I$ , cependant la valeur de l'impédance aux courants très faibles a peu d'impact pour la suite.

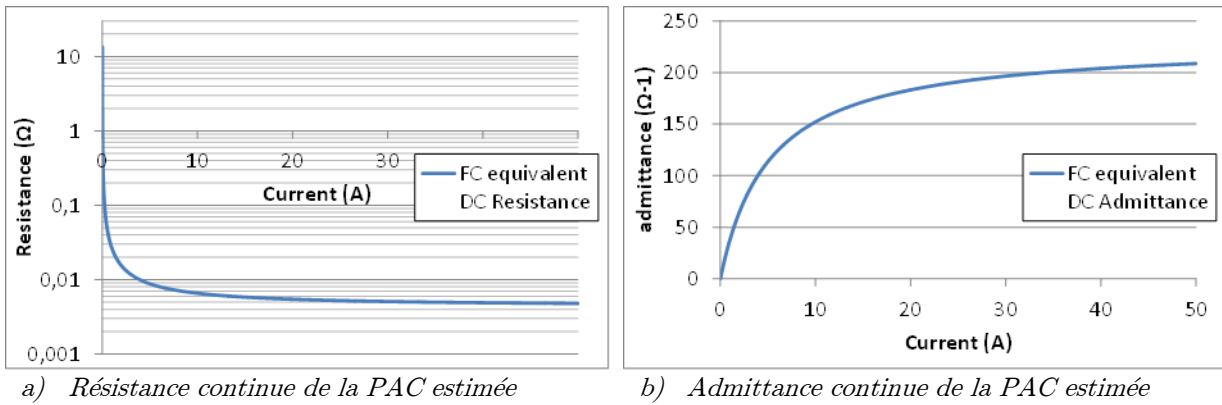


Figure III.13 : Représentation de l'impédance continue de la PAC

La **Figure III.14** représente la fonction  $\Delta I_{FC}(I) = (R_{UC}/(R_{FC}^{t \rightarrow \infty}(I)+R_{UC})) \cdot (I_{LOAD} - I)$  qui caractérise les sauts de point de fonctionnement de la PAC (issue de l'**Equation (III.3)**). Dans cette courbe, les sauts positifs ne sont possibles que pour des échelons positifs et les sauts négatifs que pour des échelons négatifs. Les échelons ont été choisis maximums, c'est-à-dire l'échelon du point initial considéré sur l'abscisse jusqu'à 50A pour le cas positif, et l'échelon du point considéré sur l'abscisse jusqu'à 0A pour le cas négatif. Cette courbe est valable uniquement pour ces cas extrêmes (allant de  $I_{Initial}$  à 0A ou 50A) à partir d'un régime permanent.

On observe alors que le pire  $\Delta I_{FC}$  que la PAC peut subir lors d'un échelon croissant n'est pas pour un échelon  $0 \rightarrow 50A$  à partir du régime permanent, mais pour un échelon  $9,2A \rightarrow 50A$ . Pour les échelons négatifs, le pire cas est bien celui  $50A \rightarrow 0$  étant donné qu'il possède à la fois la plus grande variation de tension imposée et l'impédance de la PAC la plus faible.

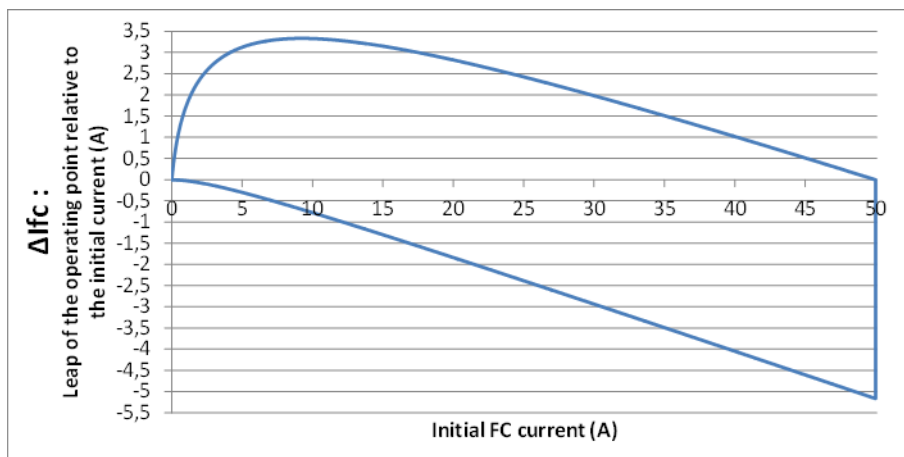


Figure III.14 : Quantification du saut du point de fonctionnement de la PAC en fonction du point de courant initial.

Comparons avec les sauts mesurés en **Figure III.10**. On relève que, d'après cette courbe estimative, si l'on procède à un échelon  $0 \rightarrow 50A$  lorsque le courant initial de la PAC est complètement nul, celle-ci doit subir un saut minime (calculé à 9mA du fait de la résistance continue équivalente de la PAC très élevée à courant nul) ; or, on a mesuré un saut à 1,5A. D'après la courbe, ceci signifie que, pour témoigner d'un saut de cette amplitude, la PAC

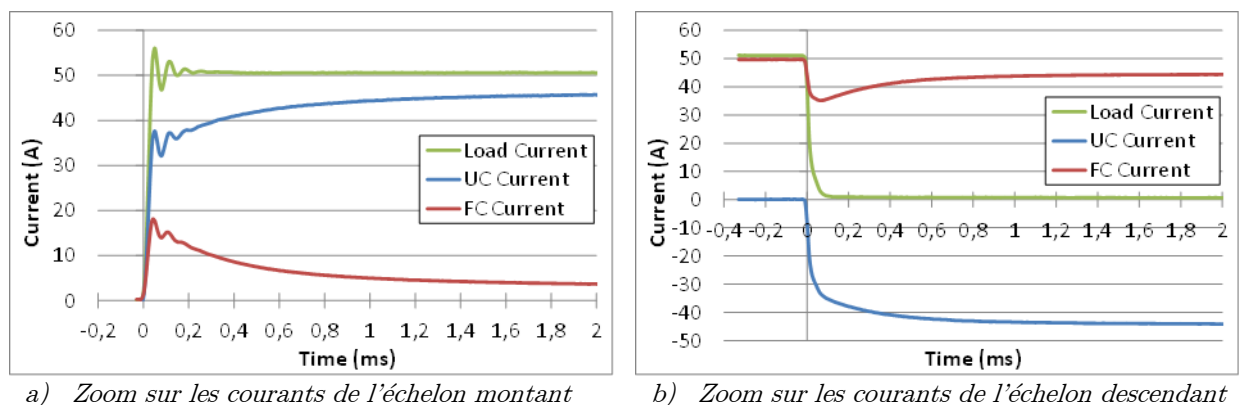
n'était pas complètement à zéro de courant, mais à 0,79A. Cela semble correspondre : en effet, durant les 50 secondes qui ont précédé l'échelon, la PAC n'a pas eu le temps de charger le SC à sa tension à vide et donc de se placer à son point à zéro de courant. De plus, notons que pour parvenir à formuler de manière simple la quantification de ce saut, nous avons dû négliger la décharge du SC durant le transitoire de double couche ; l'erreur commise par cette simplification est faible si la valeur du condensateur de double couche de la PAC est très inférieure à celle du SC.

On relève également que le saut de -5,17A observé est bien visible sur cette courbe pour l'échelon 50A  $\rightarrow$  0A.

### 3.1.3.3 Régime transitoire au moment de l'échelon lié au condensateur de double couche

Dans cette section, nous nous intéressons aux phénomènes illustrés en introduction comme des « pics » de courants rapides transitant par la PAC.

Pour les observer de manière détaillée, il est nécessaire d'observer l'instant  $t=0$  des deux échelons (montant et descendant) avec un pas d'acquisition très fin ( $10\mu\text{s}$ ). Les mesures sont illustrées en **Figure III.15**.



**Figure III.15 :** Répartition des courants lors d'un créneau 0 $\rightarrow$ 50A et 50A $\rightarrow$ 0 avec un pas d'acquisition rapide

Dans le cas de l'échelon montant (**Figure III.15.a**), on observe un dépassement de la référence du courant de charge et des oscillations liées à l'inductance du circuit total. En revanche, le temps de montée est très court (environ  $30\mu\text{s}$ ), ce qui en fait un échelon acceptable. La part prise en charge immédiatement par la PAC est de 32,1% contre 67,9% pour le SC. Ensuite le courant de PAC redescend jusqu'au point de départ du saut du point de fonctionnement (1,50 A soit 2,9%).

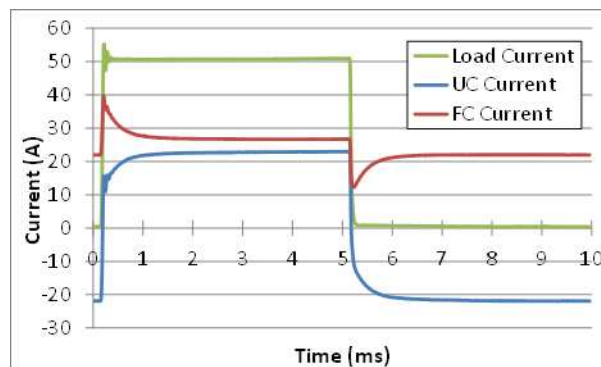
Dans le cas de l'échelon descendant (**Figure III.15.b**), on observe d'abord que la charge peine à descendre à zéro et que le temps de descente est relativement long (environ  $100\mu\text{s}$ ). La part prise en charge immédiatement par la PAC est de 31,3% contre 68,7% pour le SC. Ensuite le courant de PAC remonte jusqu'au point de départ du saut du point de fonctionnement (50,9 A - 5,17 A = 45,73 A), point que l'on retrouve sur la courbe théorique. Le rapport instantané du partage des courants est quasiment identique au cas de l'échelon montant.



On constate seulement que l'amplitude relative de ces pics ne semble pas dépendre du courant en régime continu de la PAC. Cela amène différentes questions : d'où proviennent ces pics ? Sont-ils néfastes pour la PAC ? Peut-on prédire leurs valeurs ? A ce stade, il est difficile de fournir des réponses précises. Une étude plus poussée de ces courants mettant en cause le condensateur de double couche de la PAC sera réalisée par simulation dans le chapitre IV.

#### 3.1.3.4 Illustration des deux phénomènes sur des créneaux rapides

Un essai permettant de mettre en évidence les deux phénomènes illustrés précédemment est l'application de créneaux de courant haute fréquence. Lors de ces créneaux, l'état de charge de la capacité interne du SC ne varie pas même si la tension aux bornes du SC varie à cause de la chute de tension dans la résistance interne. A l'instant de l'échelon on peut observer des pics tels que ceux décrits dans la partie 3.1.3.3. Puis un régime s'installe autour du courant moyen (25 A) avec un saut du point de fonctionnement autour de ce point (cf. section 3.1.3.2).



**Figure III.16 :** Créneaux de courant 0.50A à 100Hz appliqués par la charge sur l'ensemble hybridé

Sur la **Figure III.16**, on observe des pics de 32,4% pour la PAC à l'échelon montant et de 30,0% pour l'échelon descendant. Ces valeurs sont très proches des 32,1% et 31,3% respectifs mesurées dans la partie 3.1.3.3. Ce qui tend à confirmer le fait que l'amplitude relative de ces pics soit indépendante du courant moyen de la PAC.

On appellera régime pseudo permanent le régime visible à courant établi car le régime permanent réel est à  $I_{SC}=0$ . Durant cette phase, on peut observer une variation de courant de +2,38 A par rapport au courant moyen (qui est de 24,37 A) pour le cas de l'échelon montant et une variation de -2,39 A pour l'échelon descendant.

Revenons sur la courbe d'évolution du point de fonctionnement de la **Figure III.14**. Cette courbe suppose un point initial de la PAC en régime continu, puisqu'elle est extraite de l'impédance de la PAC relative à la courbe de polarisation.

Dans ce cas, la fréquence est suffisamment haute pour que l'impédance de la PAC ne varie que très peu. Le point de fonctionnement de la PAC peut être considéré comme son point moyen (24,37A). Le saut du point de fonctionnement évoluerait entre celui de l'échelon montant (+2,42 A) et celui de l'échelon descendant (-2,38 A). On retombe sur des valeurs proches de celles mesurées (+2,38A et -2,39A)

En résumé, la PAC présente une variation maximale de courant de 27,4 A dans cet essai (la différence entre la valeur max du pic positif et la valeur min du pic négatif). La variation de son courant en régime pseudo permanent de 4,76 A représente 17,4% des 27,4A de variation maximale vue par la PAC, mais inférieure à 10% de la variation du courant de charge.

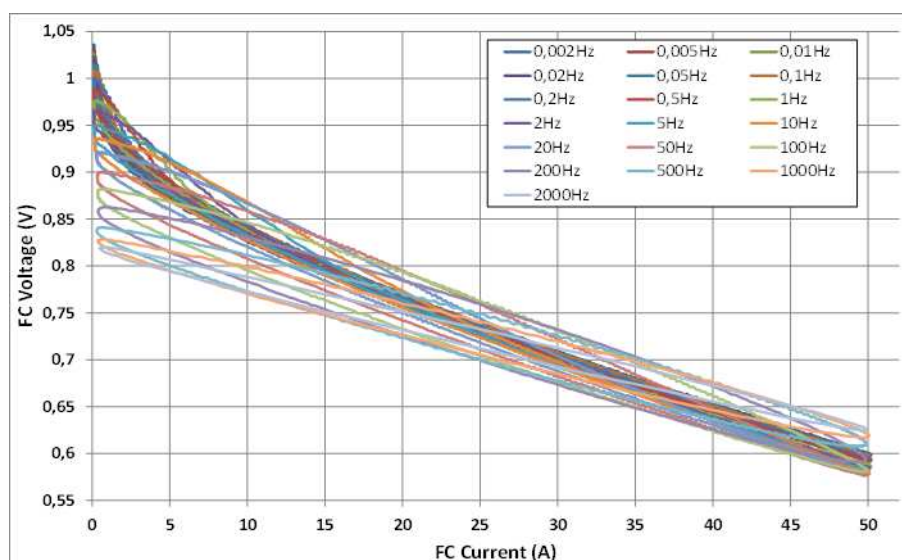
A priori, seule la variation en régime pseudo permanent (4,76A) serait vue par la réaction à proprement parler et donc entraînerait des à-coups de consommation en gaz et des variations de pression qui en découlent, le reste étant filtré par le condensateur de double couche (cf. chapitre IV). La membrane, quant à elle, voit toutes les variations du courant de PAC.

### 3.1.4 Comportement de l'association hybride 1PAC-1SC face à des balayages sinusoïdaux en courant de fortes amplitudes

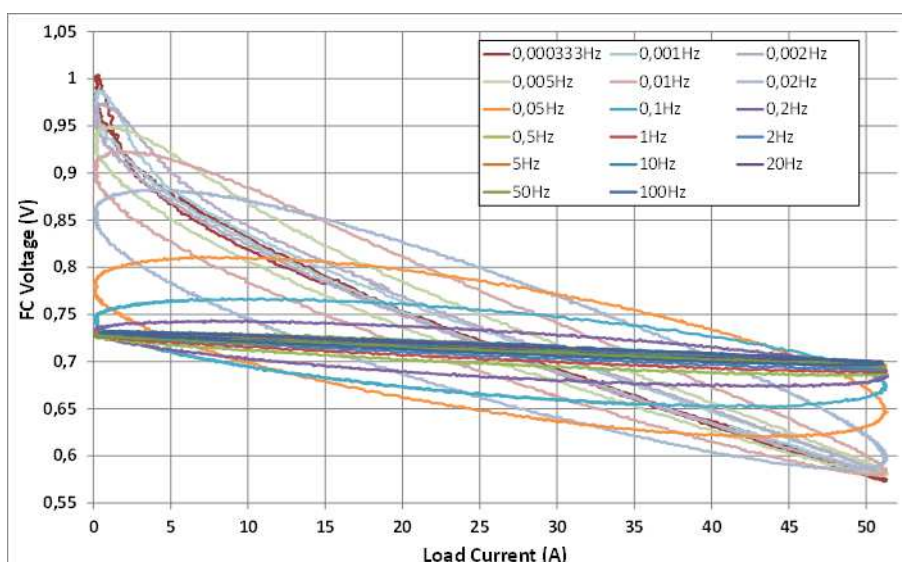
Un essai intéressant consiste à effectuer des balayages sinusoïdaux sur l'ensemble hybridé et observer la manière dont les courants se séparent suivant la fréquence du sinus. Dans cette partie seront présentés des essais ayant pour consigne de charge : des sinus de valeur min 0 A et de valeur max 50 A (Sinus 25 Adc — 25 Aac) à différentes fréquences (de 333  $\mu$ Hz à 2 kHz). Pour avoir une référence, des essais similaires ont été réalisés sur la monocellule seule. L'analyse du comportement de l'ensemble hybridé face à ces excitations sera observé suivant deux grandeurs : l'impact sur la tension aux bornes de la monocellule PAC et l'impact sur le courant délivré par la PAC dans l'ensemble hybridé.

#### 3.1.4.1 Impact sur la tension aux bornes de la monocellule PAC

La *Figure III.17* illustre l'évolution de la tension PAC en fonction du courant dans la charge. Dans le premier cas (non hybridé), la totalité du courant de charge passe par la PAC alors que dans le second cas (hybridé), une partie de ce courant de charge est filtré par le SC.



a) Tension PAC en fonction du courant pour une consigne Sinus 0..50A à différentes fréquences : Cas d'une PAC seule (non hybridée)



b) Tension PAC en fonction du courant de charge pour une consigne Sinus 0.50A à différentes fréquences : Cas d'une PAC hybridée

**Figure III.17 :** Evolution de la tension PAC en fonction du courant pour des profils sinus 0.50A à différentes fréquences appliqués à la PAC non hybridée (a) puis hybridée (b).

A première vue, dès que l'on atteint une fréquence supérieure à 0,2 Hz, la PAC hybridée se comporte comme une source de tension presque parfaite. En effet, quelle que soit la valeur instantanée du courant fourni par l'ensemble, sa tension de sortie ne varie presque plus (de 30 à 40mV suivant les fréquences). La variation est linéaire (l'hystérésis disparaît). A l'échelle de ces fréquences, on peut approximer l'ensemble hybridé par une source de tension de 0,73V en série avec une résistance de 0,7m $\Omega$ . En ce qui concerne les moyennes fréquences (2mHz à 100mHz), l'hystérésis sur la tension devient relativement importante. A très basse fréquence (il faut descendre jusqu'au 1mHz et même en dessous), on retrouve la courbe de polarisation classique de la PAC.

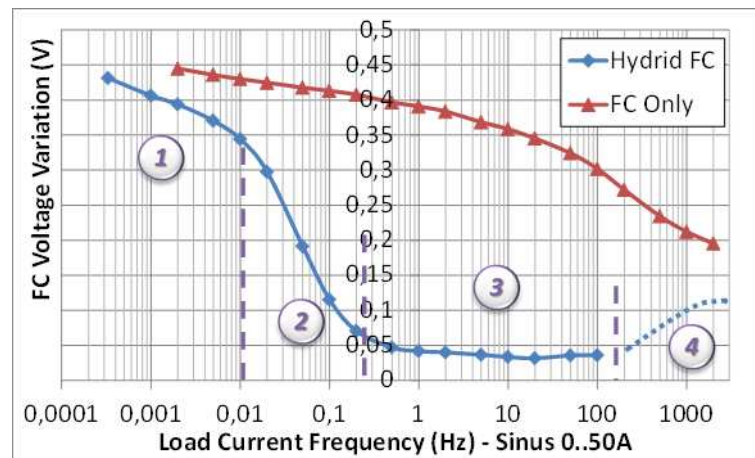
En revanche pour le cas de la PAC seule (**Figure III.17.a**), lorsque la fréquence augmente, l'hystérésis sur la tension est toujours présente. La charge et l'enregistreur utilisés ne permettent pas de monter plus haut en fréquence sur de telles amplitudes AC (50A crête à crête), avec des formes d'onde propres.

La **Figure III.18** résume le gain que l'on peut avoir par l'hybridation sur la tension de la PAC. A partir de ces deux courbes, deux intérêts apparaissent concernant l'évolution de la tension dans le cas hybridé.

Le premier est que l'ondulation sur la tension est plus faible pour une large gamme de fréquence. Ceci devrait avoir un effet bénéfique sur la charge : il est en général plus facile d'exploiter une source si sa tension varie peu.

Le second est que, pour de tels profils (sinus 0.50A), la tension de la PAC hybridée dépasse rarement le potentiel de 0,8V (ou 0,85V) : il faut atteindre une fréquence inférieure à 50mHz pour dépasser 0,8V. La valeur de cette fréquence dépend d'ailleurs de la valeur de la capacité. On peut espérer une corrosion du carbone plus faible (ce seuil étant souvent considéré comme la limite à partir de laquelle cette corrosion devient importante). Cet aspect pourrait prévenir dans une certaine mesure les dégradations du carbone de la PAC pour un profil de mission

ayant des instants répétés à bas courant (ou courant nul). En effet, dans le cas hybridé, même si l'ensemble ne fournit pas de courant à la charge, la PAC recharge durant quelques instants le SC, ce qui évite d'atteindre l'OCV trop rapidement.



**Figure III.18 :** Variation de la tension PAC en fonction de la fréquence pour des profils sinus 0.50A — comparaison du cas hybridé et du cas non hybridé

Les quatre zones repérées sur la **Figure III.18** seront détaillées dans la section suivante puisque les impacts sont très liés. En effet une ondulation du courant fourni par la PAC entraîne une ondulation de tension à ses bornes et vice versa. La section en pointillée est une projection des mesures qui n'ont pas pu être réalisées ; elle sera détaillée dans la section suivante et validée à la fin de ce chapitre.

### 3.1.4.2 Impact sur le courant de la monocellule PAC

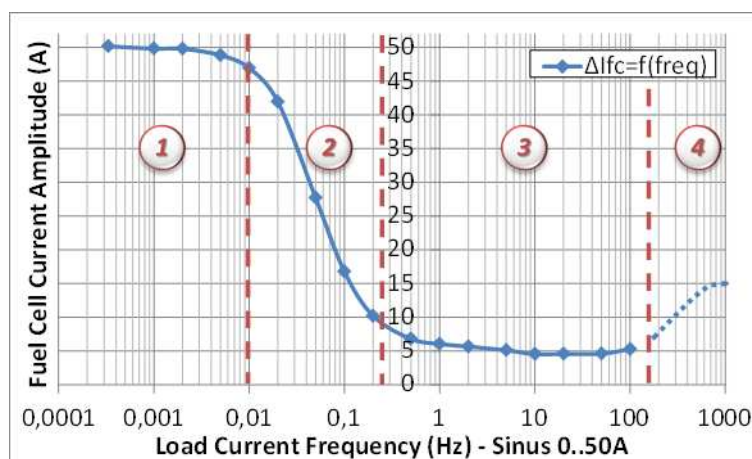
De même que pour la **Figure III.18**, on peut observer la répartition des courants en fonction de la fréquence. Il est inutile de tracer cette courbe pour le cas d'une PAC seule puisque la PAC fournit quoi qu'il arrive la totalité du courant de charge. Sur la **Figure III.19** est représentée cette répartition qui met en évidence les trois zones décrites précédemment :

- Zone 1 - à basse fréquence (freq. < 0,01 Hz) : la PAC fournit la totalité du courant de charge. Si le profil de charge est lent, le choix d'une hybridation directe avec un SC est naturellement à remettre en question pour ce type d'utilisation.
- Zone 2 - à moyenne fréquence (0,01 Hz < freq. < 0,2 Hz) : zone intermédiaire, l'utilisation énergétique du SC est maximale dans cette zone pour ce type de profil. En effet si le profil de charge est trop rapide sa tension ne varie que très peu et par conséquent son état énergétique aussi. Si le profil est trop lent, toutes les variations sont prises en charge directement par la PAC, la puissance échangée par le SC est alors très faible. C'est dans cette zone que l'on observe les hystérésis dans le plan V(I) de la PAC de la **Figure III.17. b)**, témoins d'une « bonne » utilisation énergétique du SC.
- Zone 3 - à haute fréquence (freq. > 0,2 Hz) : cas idéal pour la PAC ; à partir de cette zone sa part de prise en charge du courant devient constante et de l'ordre de 10% pour ce montage. En revanche, pour une utilisation dans cette zone uniquement, on

peut se poser la question de réduire la taille du stockage de manière à faire correspondre la zone d'utilisation avec la limite de la zone 2.

D'après le paragraphe 3.1.3.3, il devrait apparaître une quatrième zone située au niveau des hautes fréquences (tracée en pointillés). En effet, d'après la **Figure III.15**, la répartition des courants est plus importante à l'échelle de temps des pics. La constante de temps de ces répartitions semble être de l'ordre de 0,3 ms à 1 ms, ce qui devrait situer cette quatrième zone aux environs de 1kHz et au-delà. Compte tenu des difficultés à monter haut en fréquence tout en conservant un signal de forme sinus sur la charge, ces mesures n'ont pas été réalisées sur ce montage.

De plus, nous n'allons pas cacher que ces phénomènes n'ont été identifiés qu'après cette campagne d'essais. En effet, pour les deux dernières décades (côté HF) la part de prise en charge du courant par la PAC semblait en plus évoluer : nous n'avons alors pas cherché à aller plus loin en fréquence.



**Figure III.19 :** Amplitude du courant pris en charge par la PAC lors de l'application de sinus 0..50A à l'ensemble hybridé pour différentes fréquences

### 3.1.5 Plan de Ragone ou diagramme Energie-Puissance

On souhaite pouvoir déterminer la forme complète des courants de manière analytique. Il s'agit alors de résoudre les équations suivantes :

$$I_{LOAD}(t) = I_{FC}(t) + I_{UC}(t) \quad : \quad \text{Equation (III.9)}$$

avec

$$I_{UC}(t) = C_{UC} \frac{dV_{UC \text{ int}}(t)}{dt} \quad : \quad \text{Equation (III.10)}$$

$V_{UC \text{ int}}$  étant la tension aux bornes de la capacité interne du SC (soit la tension aux bornes déduire de sa chute ohmique) qui vaut donc :

$$V_{UC \text{ int}}(t) = V_{FC}(t) + R_{UC} \cdot I_{UC}(t) \quad : \quad \text{Equation (III.11)}$$

Les courants sont liés par :

$$I_{LOAD} = I_{FC}(t) + C_{UC} \frac{dV_{FC}(t)}{dt} - C_{UC} \cdot R_{UC} \cdot \frac{dI_{FC}(t)}{dt} \quad : \quad \text{Equation (III.12)}$$

Soit l'équation différentielle relative à  $I_{FC}$ , en considérant l'**Equation (III.8)**, suivante :

$$I_{LOAD}=I_{FC}(t)+C_{UC}\cdot\frac{R\cdot T}{\alpha\cdot n\cdot F}\cdot\frac{1}{I_{FC}(t)+I_n}\cdot\frac{d(I_{FC}(t))}{dt}-C_{UC}\cdot(R_{Elec}+R_{Diff}+R_{UC})\cdot\frac{dI_{FC}(t)}{dt} : \quad \text{Equation (III.13)}$$

La solution analytique de cette équation différentielle n'est pas évidente compte-tenu des non linéarités. La simulation du système au chapitre IV permettra d'en donner quelques résultats. Ainsi dans cette section, nous suggérons une méthode graphique, à partir du plan de Ragone du SC dans l'ensemble hybridé, pour obtenir une approximation de l'évolution temporelle des courants pour l'ensemble soumis à un échelon.

Le plan de Ragone [CHR-00] est un outil de représentation énergétique exprimant l'énergie en fonction de la puissance. Ce diagramme auquel on peut ajouter une notion de masse (densité massique d'énergie - densité massique de puissance) est très souvent utilisé pour comparer les sources embarquées. En effet, il permet de mettre sur le même plan de comparaison les sources d'énergie associées à leurs réservoirs (moteur à combustion interne ou PAC par exemple) et les sources de puissances (batteries, supercondensateurs, volants d'inertie, etc.).

En ce qui concerne les moyens de stockage, on peut délimiter un plan de Ragone limite par l'énergie maximale emmagasinable en fonction de la puissance maximale qu'ils peuvent stocker/restituer. Côté consommation, on peut également représenter dans le plan de Ragone un profil de charge à énergie de départ donnée. L'utilisation ce diagramme comme outil de dimensionnement dans l'hybridation consiste à vérifier que le plan de Ragone du consommateur (profil de mission) est compatible avec le plan limite de Ragone du producteur (source principale + stockage) : c'est la méthode utilisée dans [LAN-06].

De manière générale, l'organe hybridé (source d'énergie) va fournir la valeur moyenne de la puissance exigée (ce qui représente toute l'énergie requise par le profil de mission intégrant les pertes) tandis que l'organe de stockage (source de puissance) va chercher à fournir la différence (c'est-à-dire des pics de puissance à valeur moyenne et par conséquent à énergie moyenne nulle).

### 3.1.5.1 Plan limite de Ragone d'un SC

Une étude de 2006 [LAN-06] réalisée au laboratoire a déjà appuyé un dimensionnement d'hybridation avec des supercondensateurs sur ce type de diagramme. La partie théorique sur le plan limite de Ragone présentée dans cette section sera fortement inspirée de ces travaux.

Si l'on considère un modèle à simple condensateur (cas idéal) en adoptant une convention générateur pour le composant, alors le plan de Ragone est limité par deux grandeurs :

- La tension maximale admissible par le condensateur (**Equation (III.14)**) qui définit l'énergie maximale emmagasinable par le composant. Au-delà de cette limite qui est donnée par le constructeur (notée ici  $W_{UC\ max}$ ), on risque l'électrolyse de l'électrolyte.

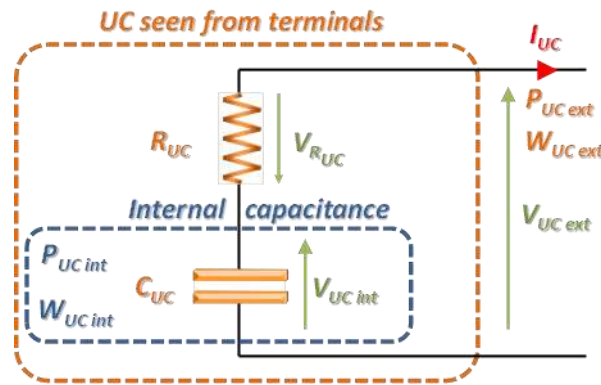
$$W_{UC\ max|_{(V_{max})}} = \frac{1}{2}\cdot C_{UC}\cdot V_{UC\ max}^2 : \quad \text{Equation (III.14)}$$

- Le courant maximum admissible par le composant (**Equation (III.15)**) définit la puissance maximale en fonction du niveau énergétique qui peut transiter par le composant (et inversement).

$$W_{UC \max(I_{\max})} = \left( \frac{1}{2} \cdot \frac{C_{UC}}{I_{UC \max}^2} \right) \cdot P_{UC}^2 \quad : \quad \text{Equation (III.15)}$$

De manière générale, certains constructeurs préconisent un courant continu maximum mais aussi un courant de pic maximum. La principale raison de ces limitations semble thermique. En effet, compte tenu des pertes dans le composant et dans les connexions, l'échauffement se propage dans l'électrolyte et il y a risque d'ébullition au-delà d'un certain seuil. La limitation en courant est donc fortement dépendante de l'environnement d'utilisation du SC : taille des conducteurs limitante, température ambiante, ventilation naturelle ou forcée, etc. Pour notre cas d'étude, les températures des PAC sont réglées à 70°C et les SC sont placés relativement proches des PAC (suivant les essais). L'impédance entre les deux est minimisée, or une bonne conduction électrique implique une bonne conduction thermique (cuivre de forte section et faible longueur). Ainsi la température du SC sera élevée dans certains essais. Nous allons choisir le plus faible courant maximum annoncé par le constructeur (courant continu maximum pour un échauffement inférieur à 15°C) comme courant maximum (noté  $I_{UC \max}$ ) pour cette étude énergétique.

Maintenant, considérons un modèle de supercondensateur avec une résistance série  $R_{UC}$  tel que celui illustré sur la **Figure III.20**. Les équations énergétiques sont alors modifiées. En effet l'énergie contenue dans le SC n'est plus définie par la tension vue à ses bornes mais par celle aux bornes de son condensateur interne. De plus une partie de la puissance fournie/accumulée par le SC est perdue dans la résistance interne.



**Figure III.20 :** Nomenclature des grandeurs électriques et énergétiques associées à un modèle équivalent RC d'un SC

Le plan de Ragone représente l'énergie effectivement stockée dans le composant ( $W_{UC \text{ int}}$ ) en fonction de la puissance disponible aux bornes de l'organe ( $P_{UC \text{ ext}}$ ). L'énergie stockée étant définie par l'**Equation (III.16)**, avec la tension aux bornes de son condensateur interne régie par l'**Equation (III.17)** et la puissance aux bornes du composant par l'**Equation (III.18)**.

$$W_{UC} = W_{UC \text{ int}} = \frac{1}{2} \cdot C_{UC} \cdot V_{UC \text{ int}}^2 \quad : \quad \text{Equation (III.16)}$$

$$V_{UC \text{ int}} = V_{UC \text{ ext}} + R_{UC} \cdot I_{UC} \quad : \quad \text{Equation (III.17)}$$

$$P_{UC} = P_{UC \text{ ext}} = V_{UC \text{ ext}} \cdot I_{UC} \quad : \quad \text{Equation (III.18)}$$

Ainsi, à partir de ces trois dernières équations, il est possible de déterminer la relation entre l'énergie interne et la puissance aux bornes du composant (à courant donné). Cette dernière est donnée par l'**Equation (III.19)**. Pour tracer le plan limite de Ragone du SC, nous choisirons comme courant donné  $I_{UC}$  le courant max (**Equation (III.20)**).

$$W_{UC} = \left( \frac{1}{2} \cdot \frac{C_{UC}}{I_{UC}^2} \right) \cdot P_{UC}^2 + (R_{UC} \cdot C_{UC}) \cdot P_{UC} + \left( \frac{1}{2} \cdot R_{UC}^2 \cdot C_{UC} \cdot I_{UC}^2 \right) \quad : \quad \text{Equation (III.19)}$$

$$W_{UC \max(I_{\max})} = \left( \frac{1}{2} \cdot \frac{C_{UC}}{I_{UC \max}^2} \right) \cdot P_{UC}^2 + (R_{UC} \cdot C_{UC}) \cdot P_{UC} + \left( \frac{1}{2} \cdot R_{UC}^2 \cdot C_{UC} \cdot I_{UC \max}^2 \right) \quad : \quad \text{Equation (III.20)}$$

On doit considérer la tension maximale annoncée par le constructeur comme la tension maximale admissible aux bornes du module  $V_{UC \text{ ext}}$  (étant donné que la tension du condensateur n'est pas mesurable). Comme pour la relation précédente, il est possible de déterminer l'énergie en fonction de la puissance à tension donnée, la relation est exprimée dans l'**Equation (III.21)**.

$$W_{UC} = \left( \frac{1}{2} \cdot \frac{R_{UC}^2 \cdot C_{UC}}{V_{UC \text{ ext}}^2} \right) \cdot P_{UC}^2 + (R_{UC} \cdot C_{UC}) \cdot P_{UC} + \left( \frac{1}{2} \cdot C_{UC} \cdot V_{UC \text{ ext}}^2 \right) \quad : \quad \text{Equation (III.21)}$$

Pour le cas de la recharge ( $I_{UC} < 0$  en convention générateur), en considérant la chute de tension dans la résistance, on ne peut pas atteindre le niveau d'énergie maximum au courant maximum. En effet, la limitation en tension s'applique aux bornes de l'élément et non aux bornes du condensateur interne. Alors, le diagramme de Ragone sera limité par l'expression de l'**Equation (III.22)**.

$$W_{UC \max(V_{\max}, P < 0)} = \left( \frac{1}{2} \cdot \frac{R_{UC}^2 \cdot C_{UC}}{V_{UC \max}^2} \right) \cdot P_{UC}^2 + (R_{UC} \cdot C_{UC}) \cdot P_{UC} + \left( \frac{1}{2} \cdot C_{UC} \cdot V_{UC \max}^2 \right) \quad : \quad \text{Equation (III.22)}$$

Cependant pour le cas de la décharge ( $I_{UC} > 0$ ), à tension aux bornes du composant fixée à la valeur maximale, la formule précédente autorise d'avoir une tension aux bornes de la capacité interne supérieure à la tension max. Ceci est permis dans la formule compte tenu de la chute de tension dans la résistance interne positive dans les conventions utilisées. En revanche, ce niveau d'énergie ne peut pas être atteint par la recharge et la trajectoire de la décharge ne peut pas aller vers des niveaux d'énergies croissants. Dans ces cas ( $I_{UC} > 0$ ), le plan limite de Ragone sera défini par l'**Equation (III.23)**.

$$W_{UC \max(V_{\max}, P > 0)} = \frac{1}{2} \cdot C_{UC} \cdot V_{UC \max}^2 \quad : \quad \text{Equation (III.23)}$$

Une représentation du plan limite de Ragone d'un SC à courant donné est donnée en **Figure III.21**, la résistance du SC ayant été exagérée pour mettre en évidence son effet sur le diagramme.



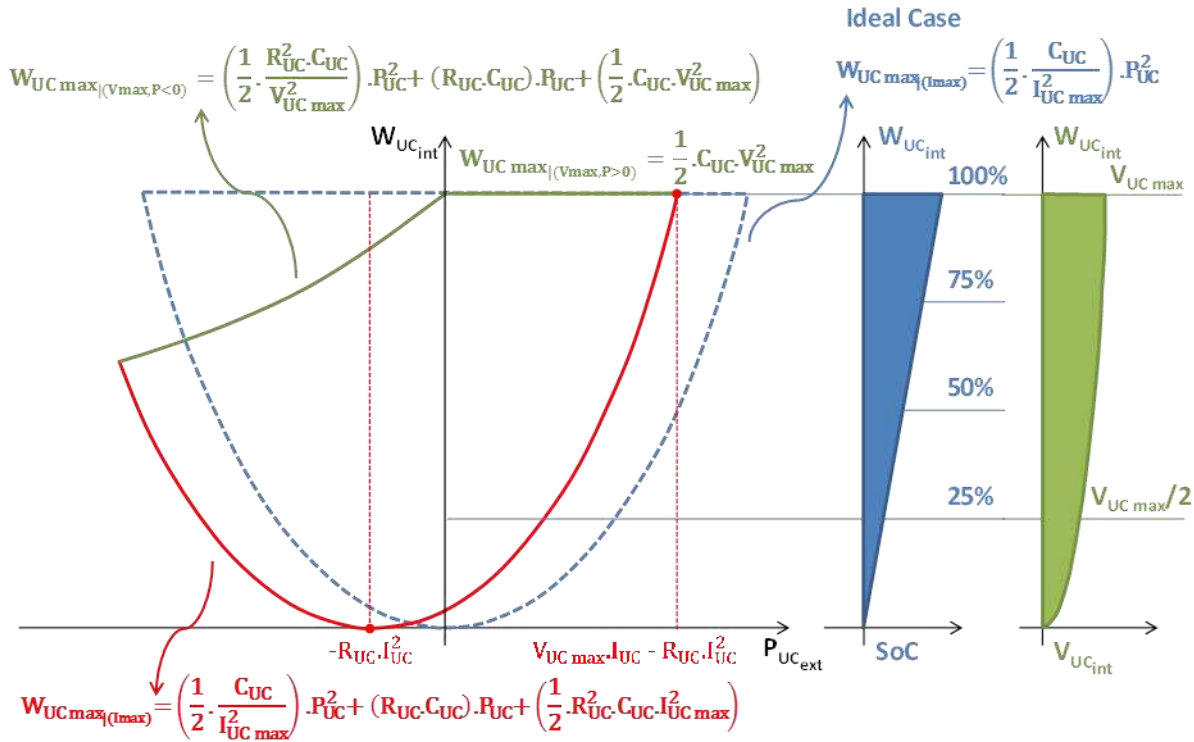


Figure III.21 : Diagramme « énergie stockée » - « puissance fournie » du supercondensateur, et visualisation de l'état de charge et de la tension.[LAN-06]

### 3.1.5.2 Application au cas de l'hybridation directe

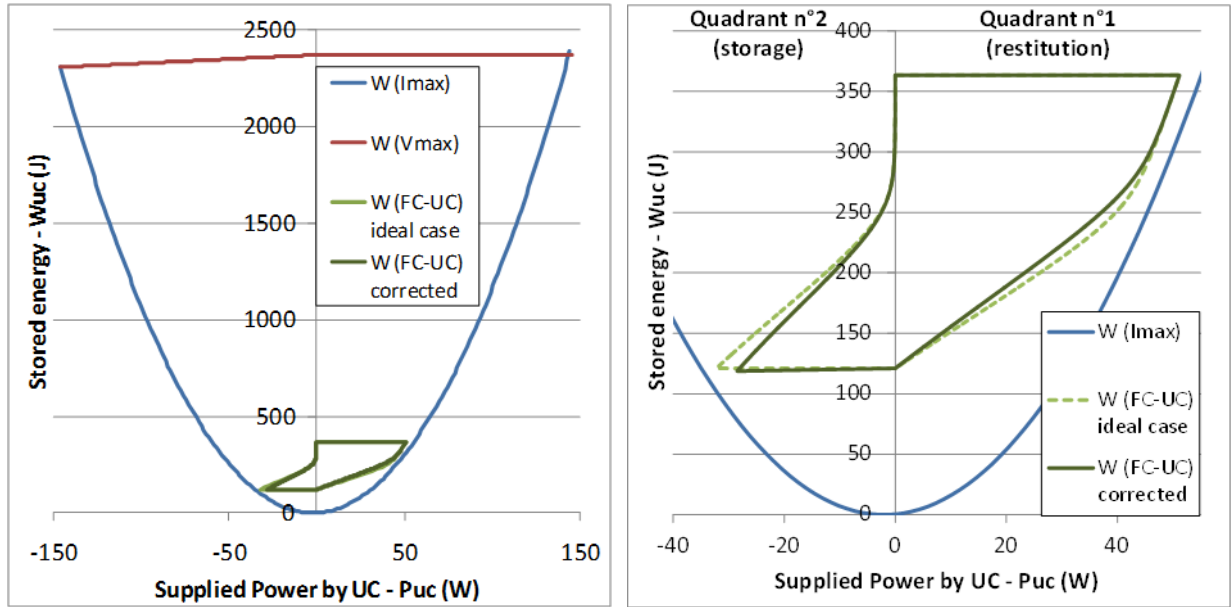
Lors d'une hybridation directe, le SC ne va pas être libre de parcourir la totalité de son espace limite dans le plan de Ragone. La tension maximale (et donc l'énergie maximale) est fixée par la PAC. En ce qui concerne l'énergie minimale, en régime permanent (c'est-à-dire à puissance fournie nulle pour le SC), l'énergie dans le SC correspond à une certaine tension dans la PAC. De manière générale (pour des questions de rendements), on veille à ne pas descendre trop bas en tension sur la PAC.

Dans notre cas, nous limitons le courant PAC à 50A (2A/cm<sup>2</sup>), ce qui correspond à une tension entre 600 mV et 630 mV. Nous avons choisi dans un premier temps de limiter notre étude à 50 A puisque nous cherchons à atteindre le régime permanent.

Le courant  $I_{UC\ max}$  d'après les données constructeur est de 54 A. Sur la **Figure III.22.a)** est représentée la zone limite dans le plan de Ragone de notre SC décrite dans la partie 3.1.5.1 (limite bleue pour le courant maximal et rouge pour la tension maximale).

A l'intérieur de cette limite est tracée en vert la zone d'utilisation pour le cas d'une hybridation directe PAC-SC. Cette zone est tracée pour le pire cas, c'est-à-dire du niveau d'énergie maximal au niveau minimal à courant nominal (50A). En utilisation classique, la trajectoire ne pourra pas sortir de cette zone. En effet, l'énergie maximale emmagasinable dans le SC est liée à la tension à vide de la PAC et l'énergie minimale à la tension correspondant au courant nominal de la PAC (il n'y a pas de dépassement). Les bornes d'utilisation en puissance sont définies par le courant nominal de la PAC pour ce cas d'étude.

On peut noter que, pour cette architecture (une cellule PAC associée avec un SC), la zone d'exploitation est faible au regard de la limite globale du SC. Le cas intitulé « corrected case » correspond au cas où le saut du point de fonctionnement précédemment décrit est pris en compte. En effet, à l'instant de l'échelon, si la PAC témoigne d'un saut de point de fonctionnement, alors le SC ne prendra pas en charge la totalité de la variation sur cet instant.



a) Zone d'exploitation du plan énergie — puissance d'un SC au sein d'une hybridation directe  
 b) Zoom sur le plan limite de Ragone du SC dans l'association directe avec une PAC prenant en compte le saut du point de fonctionnement.

**Figure III.22 :** Limite globale et dans le cas hybridé du plan « énergie stockée » — « puissance fournie » du SC

Sur la **Figure III.22.b)** est tracé un zoom sur la zone d'exploitation du SC dans le plan de Ragone pour une hybridation directe PAC-SC. Le cas idéal correspond à un partage des courants sans prise en compte du saut du point de fonctionnement mais en considérant les pertes résistives du SC. Dans ce cas, le SC prendrait en charge la totalité de la variation à l'instant d'un échelon. L'influence du saut du point de fonctionnement est la plus visible sur l'échelon négatif (50A → 0A), où l'on voit un décalage important. Pour l'échelon négatif, le SC ne prend en charge que 89,8% à l'instant t=0 contre 100% dans le cas idéal.

Notons que le cas présenté ici concerne celui d'échelons d'un point de départ donné mais allant soit jusqu'à 50A, soit jusqu'à 0A suivant le sens de la variation.

### 3.1.5.3 Reconstitution de l'évolution temporelle de la tension aux bornes de la PAC hybridée

La particularité du diagramme de Ragone est qu'il représente l'énergie en fonction de la puissance. Or il existe un lien fort entre les deux (**Equation (III.24)**) :

$$\langle P_{UC} \rangle = \frac{\Delta W_{UC}}{\Delta t} \quad ; \quad \text{Equation (III.24)}$$

Si l'on connaît la trajectoire du SC dans le plan de Ragone d'un point A ( $P_A, W_A$ ) à un point B ( $P_B, W_B$ ), on peut alors déduire le temps de parcours pour aller de A à B. Si l'on discrétise la trajectoire en segments [AB], le temps de parcours s'exprime par l'*Equation (III.25)* :

$$t_{A \rightarrow B} = \frac{W_A - W_B}{\frac{P_A + P_B}{2}} \quad : \quad \text{Equation (III.25)}$$

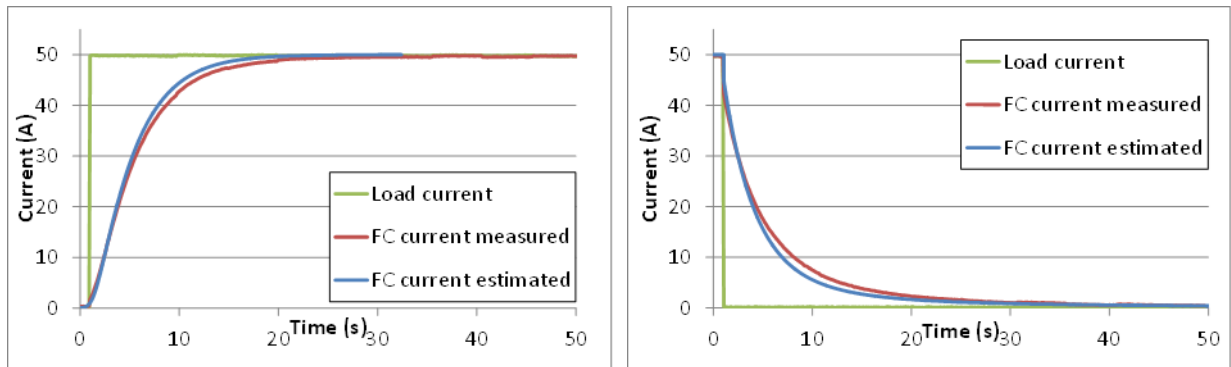
Ce qui permet de mettre en évidence quelques propriétés du diagramme de Ragone appliqué au cas d'un SC en convention générateur. A savoir :

- un déplacement horizontal (iso-énergétique) correspond à un temps nul,
- de manière duale, un déplacement vertical (iso-puissance) correspond à un temps infini (ceci n'est possible ici qu'à puissance nulle),
- les déplacements montants dans le quadrant n°1 [ $P > 0 ; W > 0$ ] (soit  $W(t) \nearrow$  et  $P > 0$ ) ne peuvent exister puisqu'ils correspondraient à des temps de parcours négatifs.
- les déplacements descendants dans le quadrant n°2 [ $P < 0, W > 0$ ] (soit  $W(t) \searrow$  et  $P < 0$ ) sont proscrits également (temps de parcours négatifs).

On peut donc observer une trajectoire quasi-verticale dans la *Figure III.22.b*) au niveau du quadrant 2 et des énergies hautes, ce qui représenterait environ 6100 secondes (1heure 40 minutes) pour aller de 1,040V à 1,050V sur le SC. Ceci s'explique également par le fait que dans cette zone le SC doit augmenter son niveau énergétique de manière relativement importante alors que la PAC ne peut fournir qu'un courant très faible (coude d'activation dans la courbe de polarisation de la PAC). C'est pourquoi, dans les essais d'échelon précédents (à 10mHz), le niveau énergétique du SC correspondant à l'OCV de la PAC n'est jamais atteint. Du coup, le saut du point de fonctionnement théorique à 0 A n'est jamais observé dans nos essais.

A partir de cette trajectoire dans le plan de Ragone et en discrétisant de manière suffisamment fine, il est possible de déduire le temps de parcours entre chaque point et donc de reconstituer le courant du SC en fonction du temps. Ainsi, il est possible d'obtenir une estimation du courant à fournir par la PAC en fonction du temps sans passer par une simulation.

Cette estimation est donnée en *Figure III.23* pour les échelons montants et descendants. Cependant on remarque une erreur notable au niveau du coude pour les deux cas. A ce jour, la cause n'en est pas clairement identifiée. Plusieurs phénomènes peuvent être mis en cause tels que l'état de santé de la PAC qui n'était pas tout à fait similaire lors des échelons et lors de la caractérisation. C'est de cette caractérisation quasi-statique que découle la trajectoire limite du SC dans le plan de Ragone. Une autre explication pourrait mettre en cause le modèle de SC utilisé, en effet celui-ci est des plus simples, en particulier les valeurs de paramètres  $R_{UC}$  et  $C_{UC}$  qui ont été choisies à partir des données constructeur (une correction a été appliquée sur la résistance pour inclure le câblage dedans). Nous n'avons cependant pas souhaité aller vers un modèle trop complexe pour le raisonnement sur les interactions entre les deux composants, au regard de la complexité globale de la problématique.



a) Echelon montant (0A → 50A)

b) Echelon descendant (50A → 0A)

**Figure III.23 :** Estimation du courant de PAC en fonction du temps à partir de la trajectoire du SC dans le plan de Ragone

Malgré tout, dans ces conditions, cette méthode permet de donner des formes de courants et tensions en fonction du temps pour la PAC et pour le SC relativement proches de celles mesurées. L'avantage de la méthode par plan de Ragone est qu'elle permet de donner les caractéristiques d'une hybridation directe (telles que la part de l'échelon pris en charge par la PAC,  $dI/dt$  max, etc.) sans avoir recours à la simulation. Ainsi dans le cadre d'un dimensionnement, cette méthode pourrait être éventuellement adaptée à l'optimiseur et permettre de réduire considérablement les temps de calculs qui sont habituellement en grande partie des temps de simulation. On pourrait envisager de pouvoir définir ainsi le meilleur couple PAC-SC en fonction des critères qui ont été imposés.

### 3.2 Etude du comportement d'une association hybride avec deux cellules PAC et deux SC

Cette architecture est celle présentée en *Figure III.2.b*). Elle a pour but principal l'observation du point milieu ainsi qu'une première version de mise en parallèle fluïdique. Nous souhaitons par cette architecture nous rapprocher progressivement d'un stack à l'aide de monocellules. Rappelons que dans un stack, les cellules sont en parallèle fluïdiquement et en série électriquement.

#### 3.2.1 Mise en parallèle fluïdique de cellules PAC

Le schéma fluïdique décrit sur la *Figure III.25* représente la mise en parallèle fluïdique des deux monocellules. Les principaux défis de cette installation sont :

- Obtenir la symétrie la plus parfaite possible sur les entrées et sorties des gaz pour assurer une alimentation symétrique en gaz.
- Maintenir une isolation électrique sur les tuyaux de gaz étant donné que les plaques des monocellules ne sont pas isolées.

Afin de garantir la symétrie fluïdique, nous avons choisi de réaliser toute la tuyauterie en tube inox, ainsi les angles des coudes sont maîtrisés (contrairement aux tuyaux souples). En revanche, cela ne permet pas l'isolation électrique ; c'est pourquoi, sur chacune des

entrées/sorties de gaz, immédiatement après le coude, une courte section en PVC a été introduite.

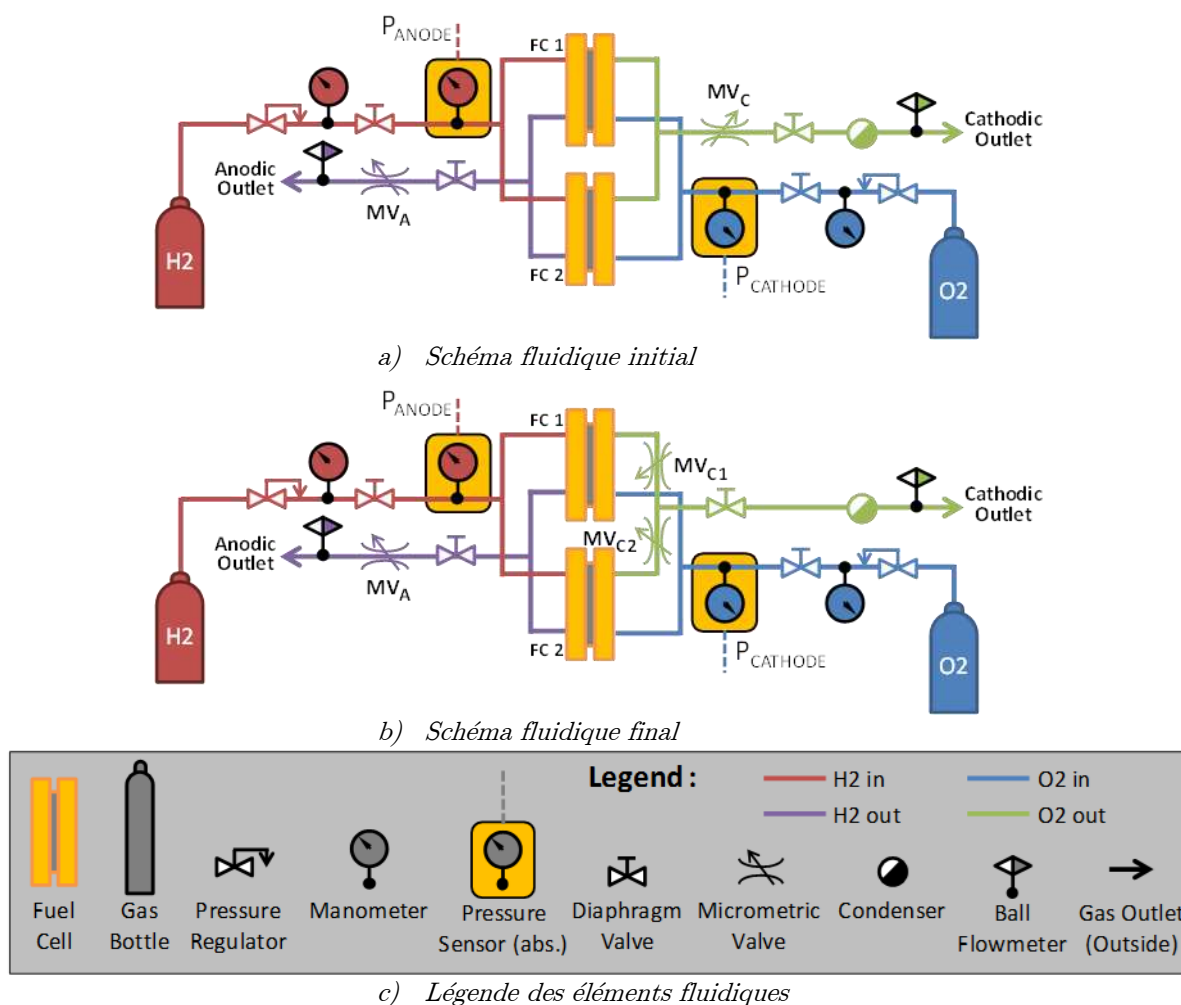


Figure III.24 : Illustration schématique du montage fluidique pour deux monocellules

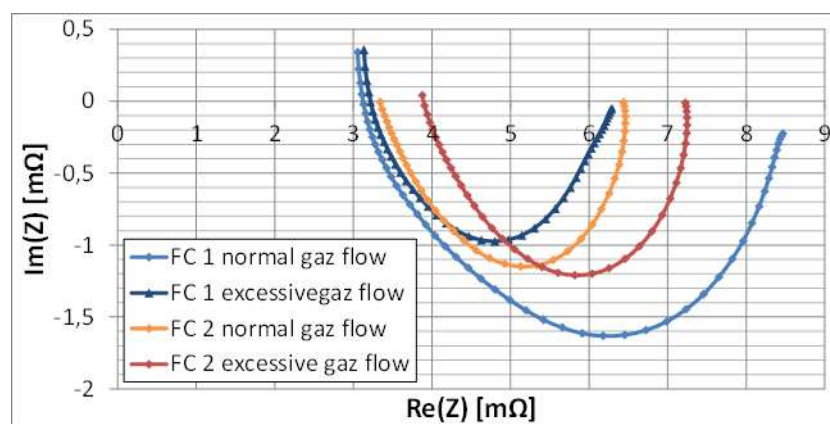
Initialement, le schéma fluidique qui a été réalisé est celui de la **Figure III.25.a)** possédant une seule vanne micrométrique pour régler les débits de chaque sortie ( $MV_A$  et  $MV_C$ ). Nous avons mis la plus grande rigueur dans la réalisation du montage, cependant les débits ne s'équilibraient pas malgré les efforts. Il semblerait que les monocellules qui sont censées être similaires et ont été assemblées en même temps ne possèdent pas des pertes de charges identiques.

La réalisation de quelques spectroscopies d'impédance simultanées pour les deux PAC données en **Figure III.25** permet de confirmer ce défaut d'équilibrage. Les interprétations de ces spectres sont issues de l'expérience en la matière du laboratoire et que l'on peut en partie retrouver dans [ZEI-11].

Lors de débits de gaz usuels à la sortie des cathodes (qui est de 75mL/min/PAC soit 150mL/min régulé pour l'ensemble par l'unique vanne micrométrique de sortie cathode), on peut constater que la PAC 1 est en phase d'engorgement. La composante BF de l'impédance est très supérieure à la normale et sa résistance HF est faible, ce qui est caractéristique d'une

affectation des couches de diffusion liée à un engorgement. En ce qui concerne la PAC 2, son spectre ne présente pas d'anomalie pour ce débit de fuite hormis le fait qu'elle est plus résistive aux HF que la PAC 1. Il est probable que ce soit la conséquence d'un léger assèchement de la PAC 2. En effet, le débit global est fixé pour que la moitié de celui-ci convienne à chacune des PAC. A débit normal : si la PAC 1 n'en reçoit pas assez, alors la PAC 2 en reçoit trop et vice-versa.

Lors de débits de gaz excessifs, on remarque que la PAC 1 revient à un spectre usuel ; hormis un léger changement de pente sur les BF dont l'origine pourrait être une mauvaise stabilisation du point de mesure. En revanche concernant la PAC 2, la partie réelle de son impédance HF, autrement dit sa résistance électrique augmente considérablement, ce qui est caractéristique d'un assèchement.



**Figure III.25 :** Spectroscopies d'impédance permettant la mise en évidence du défaut de symétrie fluïdique (Courant moyen 50 A).

Pour résumer :

- si l'on « souffle » normalement, la PAC 1 se noie,
- si l'on « souffle » de manière à ce que la PAC 1 ne s'engorge pas, alors la PAC 2 s'assèche.

On peut conclure que la PAC 1 possède une perte de charge fluïdique (à la cathode du moins) supérieure à celle de la PAC 2. Le montage ne peut donc pas fonctionner correctement dans ces conditions.

Après d'autres essais, nous avons constaté que l'impact du déséquilibre de flux à l'anode est moindre, ainsi nous avons décidé de n'insérer des vannes micrométriques qu'à la sortie cathode de chaque monocellule uniquement (*Figure III.25.b*) :  $MV_{C1}$ ,  $MV_{C2}$ ).

Le débit de chacune des PAC est ensuite ajusté un par un : en fermant complètement une vanne micrométrique, on peut ajuster un premier débit, puis ajuster le second en soustrayant le premier débit réglé à celui lu sur le débitmètre à bille.

L'inconvénient majeur de ce type de montage est que les vannes micrométriques sont situées en amont du condenseur, c'est-à-dire que toute l'eau produite doit transiter par l'ouverture interne très faible de ces vannes. En passant, l'eau bloque le débit de fuite quelques instants et

l'on retrouve un coefficient stœchiométrique unitaire à la cathode durant ces instants où l'eau produite est difficilement évacuée.

Le montage fluïdique a été réalisé au plus court pour différentes raisons : d'abord nous souhaitons réaliser des essais d'autodécharge dans lesquels l'inertie liée aux pseudo-capacités fluïdiques (c'est-à-dire les volumes mis en jeu, en particulier dus aux tuyaux) est limitée, ensuite pour optimiser la précharge du SC par montée en gaz lente de la PAC (cf. section 3.1.2.3). Au niveau encombrement, la réalisation finale doit mettre en œuvre 4 PAC en ligne, les distances entre chacune doivent être les plus courtes si l'on veut que le montage tienne sur une paillasse. Les condenseurs sont la plupart du temps encombrants et doivent se situer à un niveau inférieur au niveau le plus bas de la PAC, ce qui en contraint l'implantation sur une paillasse.

### 3.2.2 Architecture électrique d'une hybridation de 2 cellules PAC et 2 SC

La mise en série électrique de cellules PAC est plus simple que la réalisation fluïdique. Cependant pour ce cas d'étude, il faut commencer à mettre en place une instrumentation un peu plus conséquente.

Nous avons alors choisi d'instrumenter les câbles à l'aide de capteurs LEM pour les mesures de courant : en particulier les câbles de liaison entre les SC et entre les PAC (qui sont identiques) sur lesquels 2 capteurs (un pour chaque élément) ont été placés. Ici les mesures sont redondantes. En effet, nous aurions pu déduire certaines mesures par différence des mesures voisines. Pour des raisons d'échelle (le courant milieu ne sera pas du même ordre de grandeur que celui des PAC) et de précision, nous avons préféré avoir mesurer tous les courants.

Pour les mesures de tension, chaque élément est équipé de connexions au plus proche de celui-ci. Ces mesures seront ensuite traitées par un enregistreur à entrées analogiques isolées.

Etant donnée la présence du point milieu, il n'est plus possible d'isoler les PAC, les SC, de la source et de la charge de la même manière que pour le cas 1 PAC - 1SC avec seulement deux contacteurs. Nous avons donc choisi un contacteur pour les PAC et un contacteur pour l'ensemble hybridé. Rappelons que la solution que nous souhaitons développer ne doit pas posséder un contacteur par élément. De plus la partie précédente (notamment la section 3.1.3.2) a mis en évidence l'importance de la résistance liée aux SC dans la part de courant prise en charge par la PAC sur un échelon. Si l'on souhaite favoriser le partage de puissances, on a tout intérêt à minimiser cette résistance et donc à éviter un contacteur en série avec les SC. Le montage électrique final est donné en *Figure III.26*.

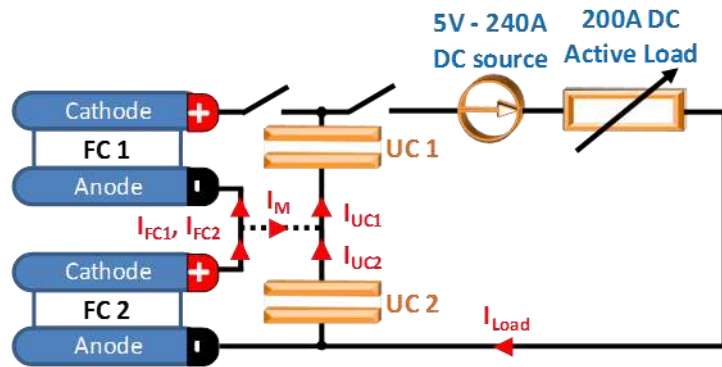


Figure III.26 : Schéma électrique de l'architecture à 2 PAC et 2 SC

### 3.2.3 Comportement du point milieu face à différentes excitations électriques

Les données issues de ces essais serviront à la simulation de l'hybridation directe et à la validation des modèles, c'est l'objet du chapitre IV. C'est pourquoi une première caractérisation complète des PAC a été effectuée avant les essais, puis une autre après, afin de s'assurer que l'état de santé de PAC n'a pas été modifié (du point de vue électrique du moins). Sans le point milieu, il est possible de caractériser les deux PAC simultanément puisqu'elles sont traversées par le même courant. La caractérisation sera détaillée dans le chapitre IV consacré à la modélisation d'une hybridation directe. Ainsi l'analyse des résultats dans cette partie portera principalement sur l'étude des formes d'ondes en réponse à des échelons de courant, et celles en réponse à des balayages sinusoïdaux.

#### 3.2.3.1 Comportement du point milieu face à des créneaux de courant BF

La **Figure III.27** illustre les variations de tension et courant pour chacun des éléments (PAC et SC) lorsque l'ensemble hybridé est soumis à des créneaux de charge  $0\text{ A} \rightarrow 50\text{ A} \rightarrow 0\text{ A}$  à  $10\text{ mHz}$  (cas de charge similaire à celui présenté en **Figure III.10**). Rappelons que l'observation d'un échelon est un outil très pratique d'analyse du comportement électrique puisqu'il sollicite toutes les constantes de temps.



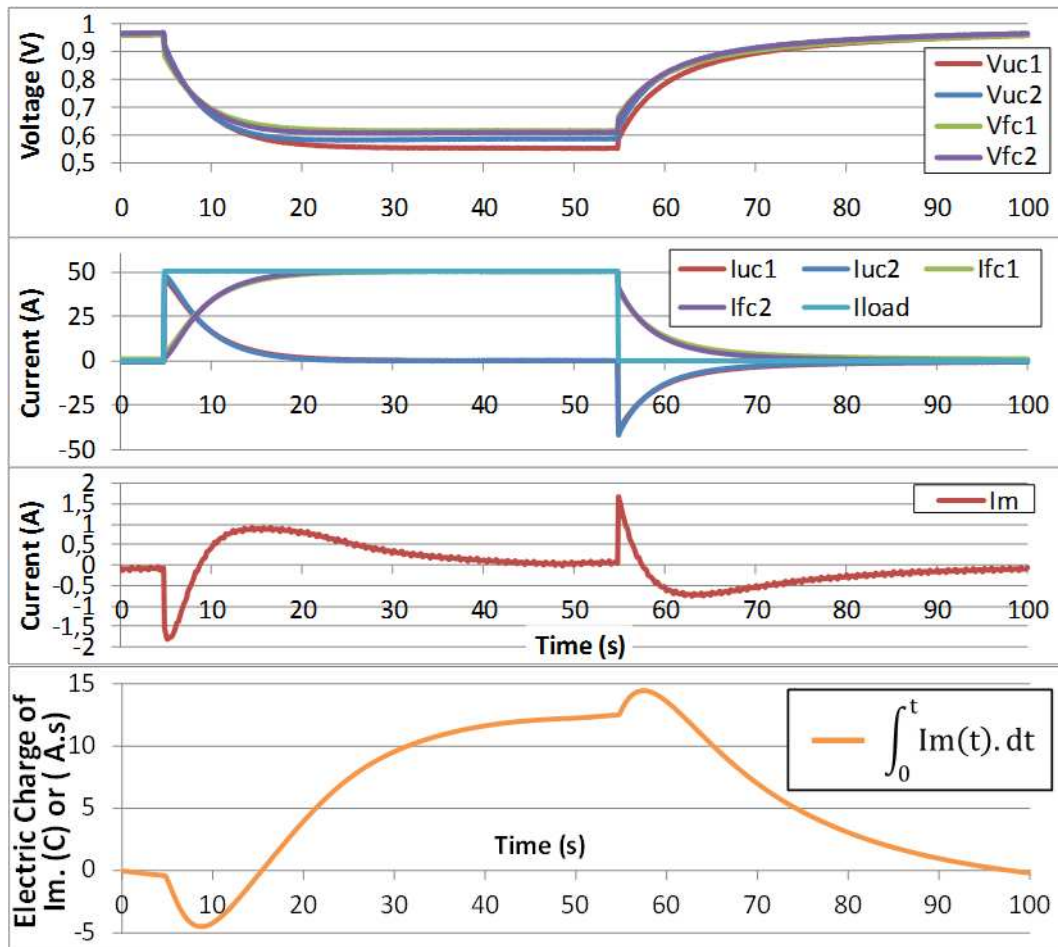


Figure III.27 : Formes d'ondes pour un créneau de courant 0→50A à 10mHz

Le **Tableau III. 2** résume les variations de courant mesurées au sein des PAC aux instants de l'échelon.

A un instant donné, la différence entre le courant de la PAC 2 et celui de la PAC 1 est le courant milieu (noté  $I_m$ ). On constate que la valeur minimale de  $I_m$  ne correspond pas à la différence des sauts de points de fonctionnement ( $\Delta I_{FC2} - \Delta I_{FC1}$ ) donnée dans le tableau pour l'échelon 0A → 50A. En effet, cette différence correspond bien au point de départ du courant du point milieu à l'instant de l'échelon, mais celle-ci évolue rapidement après pour atteindre une valeur minimale plus basse. On peut expliquer le fait que le courant du point milieu diminue encore après sa valeur de départ par le fait que les PAC ne possèdent pas des courbes d'activation rigoureusement identiques. Ainsi, la différence  $I_{FC2} - I_{FC1}$  a tendance à augmenter après le saut initial. Cet aspect est très légèrement visible sur l'échelon montant où l'on remarque un arrondi de la pointe du courant  $I_m$ .

Les valeurs correspondent bien entre la valeur maximale de  $I_m$  et la différence des sauts de points de fonctionnement ( $\Delta I_{FC2} - \Delta I_{FC1}$ ) donnée dans le tableau pour l'échelon 50A → 0A.

	Step 0A→50A	Step 50A→0A
$\Delta I_{FC1}$	+2,782 A	-8,580 A
$\Delta I_{FC2}$	+1,453 A	-6,787 A
$\Delta I_{FC2} - \Delta I_{FC1}$	-1,329 A	1,793 A
$\Delta I_{FC1} / \Delta I_{FC2}$	1,915	1,264
$\Delta I_{UC1}$	47,204 A	-40,980 A
$\Delta I_{UC2}$	48,691 A	-42,920 A

Tableau III. 2 : Récapitulatif de variations de courant mesurées sur la PAC

L'idée dans l'explication suivante est d'essayer de prédire ces variations à partir des paramètres du système.

Une caractérisation des câbles et des SC a permis de déterminer les paramètres donnés en *Figure III.28*.

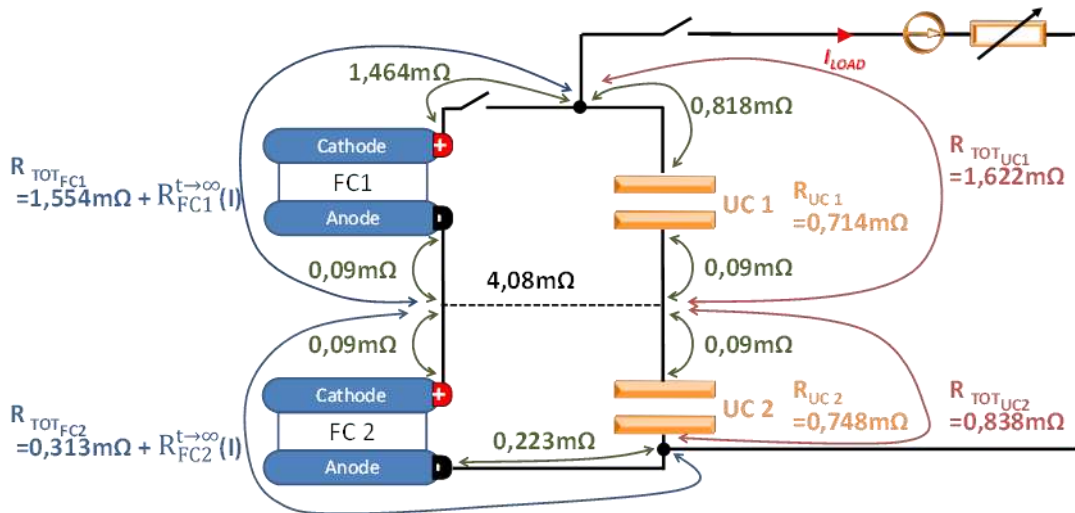


Figure III.28 : Résistances du câblage

Etant donné le nombre important d'éléments dans ce circuit (câblage compris), il est difficile de raisonner avec les impédances exactes des éléments. Une explication pour retrouver l'ordre de grandeur des rapports  $\Delta I_{FC1} / \Delta I_{FC2}$  du *Tableau III. 2* par des approximations fortes est suggérée :

- Dans le cas de l'échelon montant (0A→50A), il est possible de considérer l'impédance du point milieu très faible devant celle des PAC. D'après la *Figure III.13*, l'impédance  $R_{FC}^{t \rightarrow \infty}(I)$  vaut près de  $13\Omega$  à courant nul. L'impédance des PAC est alors aussi négligeable dans l'impédance  $((R_{FC}^{t \rightarrow \infty} \cdot R_{UC}) / (R_{FC}^{t \rightarrow \infty} + R_{UC}))$  d'un couple PAC/SC. Sous ces hypothèses, le rapport  $\Delta I_{FC1} / \Delta I_{FC2}$  peut s'approximer par le rapport  $R_{tot_{UC1}} / R_{tot_{UC2}}$ , soit 1,935. La valeur mesurée est de 1,915
- Dans le cas de l'échelon descendant (50A →0A), il est possible de considérer l'impédance du point milieu grande devant celle des PAC et des SC. Supposons les impédances en régime continu des PAC égales entre elles à courant max (soit  $4,7m\Omega$ ), celles-ci possèdent un point de fonctionnement à courant nominal pratiquement équivalent. On peut envisager le rapport  $\Delta I_{FC1} / \Delta I_{FC2}$  en

l'approximant par le rapport  $R_{tot_{FC1}} / R_{tot_{FC2}}$ , lié aux variations de tensions subies par les PAC. Alors le rapport  $R_{tot_{FC1}} / R_{tot_{FC2}}$  est égal à 1,247, valeur proche de la valeur mesurée à 1,264.

On constate que le courant qui traverse le point milieu semble en partie causé par la dissymétrie du montage. Pour le cas  $0A \rightarrow 50A$ , c'est la dissymétrie entre les SC qui va jouer. Pour le cas  $50A \rightarrow 0A$ , c'est la dissymétrie entre les PAC qui influe. Ces dissymétries sont en grande partie causées par le câblage car les composants sont très similaires entre eux.

On peut exprimer quelques propriétés sur le point milieu de la manière qui suit. Tout d'abord, compte tenu des conventions adoptées sur les courants (*Figure III.26*), on peut exprimer l'*Equation (III.26)* et l'*Equation (III.27)* :

$$I_{FC2} - I_{FC1} - I_M = 0 \quad : \quad \text{Equation (III.26)}$$

$$I_{UC2} - I_{UC1} + I_M = 0 \quad : \quad \text{Equation (III.27)}$$

Un courant milieu positif correspond à  $I_{FC2} > I_{FC1}$  et  $I_{UC1} > I_{UC2}$ , tandis qu'un courant milieu négatif correspond à  $I_{FC1} > I_{FC2}$  et  $I_{UC2} > I_{UC1}$ .

En ce qui concerne la forme du courant du point milieu (visible en *Figure III.27*), pour le cas de l'échelon  $0A \rightarrow 50A$  :

- Sur un horizon de temps long, c'est la PAC la plus impédante qui va offrir au SC associé une tension plus faible. Donc, elle va imposer la valeur moyenne de  $I_M$ , autrement dit le signe de  $\int_0^{50} \text{Im}(t).dt$ , positif dans le cas présent.
- A l'instant  $t=0$ , la variation de tension induite par le SC le plus impédant sur la PAC associée est plus grande et impose un courant  $I_M$  de démarrage.

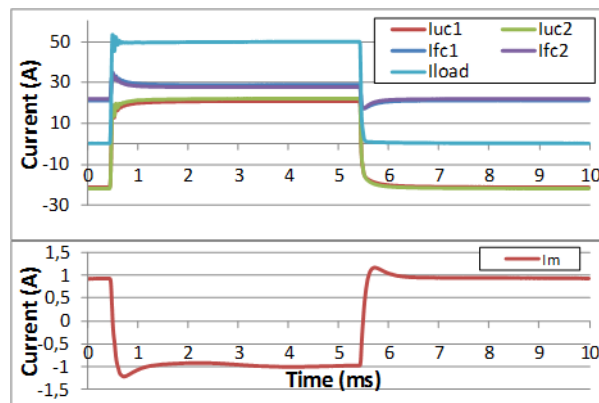
Autrement dit : l'impédance forte du SC 1 entraîne un courant  $I_M$  négatif au démarrage, mais l'impédance forte de la PAC 1 le contraint à une valeur moyenne positive jusqu'à la fin de l'échelon (soit une décharge plus profonde du SC1 que celle du SC2).

L'explication duale est valable pour le cas  $50A \rightarrow 0A$  : l'impédance forte du SC 1 entraîne un courant  $I_M$  positif, mais il doit être à valeur moyenne négative ( $\int_{50}^{100} \text{Im}(t).dt < 0$ ) pour rattraper l'écart sur la tension (une plus grande charge du SC1 que celle du SC2).

Pour le cas de ces échelons, on constate un changement de signe dans le courant milieu qui est imposé par le montage. La dynamique de ces variations est liée aux capacités des SC. Un équilibre est trouvé entre les variations de point de fonctionnement de PAC et la nécessité de réguler la différence d'état de charge entre les SC. Notons aussi que sur un créneau complet, la valeur moyenne du courant milieu est nulle :  $\int_0^{100} \text{Im}(t).dt = 0$ .

### 3.2.3.2 Comportement du point milieu face à des créneaux de courant HF

Les phénomènes appréhendés dans la partie précédente peuvent être illustrés dans différents essais tels que l'échelon haute fréquence (*Figure III.29*). Ainsi, on peut observer les pics rapides liés à la charge/décharge des condensateurs de double couche des PAC (cf. section 3.1.3.3), pics que l'on retrouve légèrement sur le point milieu.

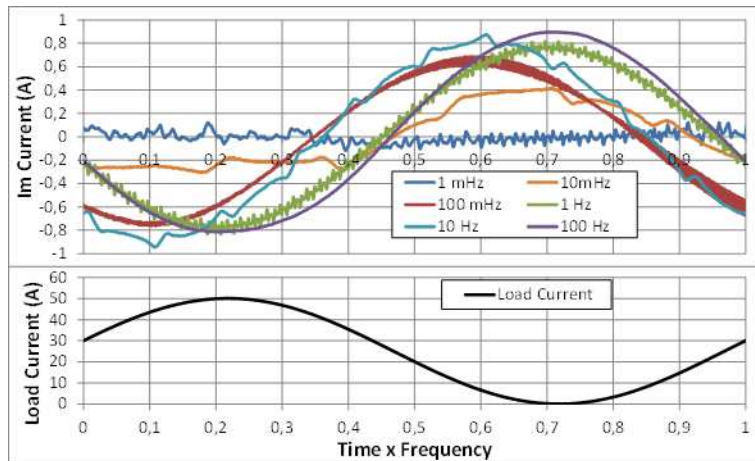


**Figure III.29 :** Répartition des courants lors de l'application de créneaux de courant 0.50A à 100Hz par la charge sur l'ensemble hybridé

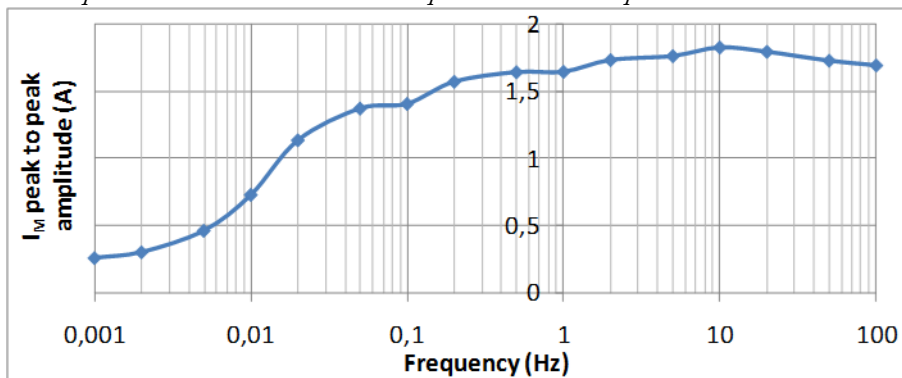
En ce qui concerne le courant milieu, sa forme est différente par rapport au cas de la *Figure III.27*. En effet, ici, l'état de charge des SC ne varie pas compte tenu de la fréquence importante des créneaux. Ainsi, le changement de signe observé pour réguler les différences d'état de charge n'a plus lieu d'être dans ce cas, cette différence ayant été régulée avant l'enregistrement de cette portion. De même que dans le cas précédent, sur un créneau complet, la valeur moyenne du courant milieu est nulle.

### 3.2.3.3 Comportement du point milieu face à des excitations de courant sinusoïdales et de fortes amplitudes

Les mêmes essais que ceux présentés en partie **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et 3.1.4 ont été effectués, cependant ils ne seront pas présentés étant donné qu'ils proposent des résultats similaires. La différence principale est liée à la présence du point milieu. La figure suivante détaille ces essais. La valeur crête à crête retenue est la différence entre la valeur maximale et la valeur minimale d'un signal.



a) Forme temporelle du courant  $I_m$  mesuré pour diverses fréquences



b) Amplitude crête à crête du point milieu en fonction de la fréquence du courant de charge

**Figure III.30 :** Evolution du courant dans le point milieu pour l'ensemble hybridé soumis à des excitations de courant sinusoïdales et de fortes amplitudes (0A..50A) à diverses fréquences

On observe sur la **Figure III.30** que l'amplitude mesurée du courant milieu diminue lorsque la fréquence du courant de charge est très basse et augmente jusqu'à garder une valeur à peu près constante entre 100mHz et 100Hz.

On relève du bruit important dans les mesures à certaines fréquences probablement dû aux cycles thermiques et à l'évacuation de l'eau produite.

D'après les conclusions de la partie précédente, l'amplitude de ce courant serait très liée au montage et à sa symétrie, c'est pourquoi dans la partie suivante, un câblage différent sera mis en œuvre pour permettre une meilleure symétrie dans le montage.

### 3.3 Etude du comportement d'une association hybride avec 4 cellules PAC et 2 ou 4 SC

Ces travaux ont été effectués dans des locaux différents des précédentes manipulations. C'était l'occasion de reprendre le montage en corrigeant les défauts qui ont été mis en évidence dans les parties précédentes. C'est pourquoi la partie suivante corrige des éléments sur la fluïdique et la partie électrique du montage.

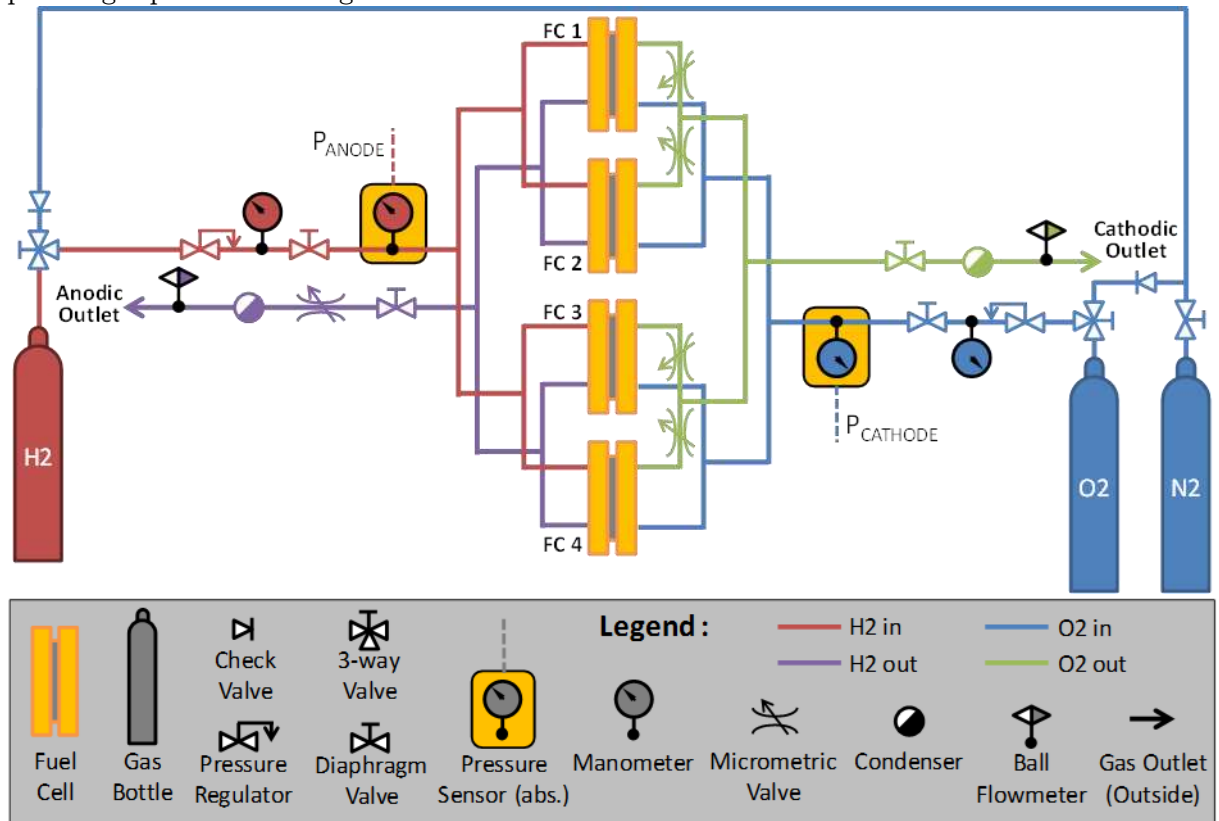
### 3.3.1 Mise en œuvre fluide et autres

Le premier travail à effectuer est de réaliser un montage fluide le plus équilibré et symétrique possible. Sur le même principe que pour l'association de deux cellules, on réalise une mise en parallèle fluide comme illustrée sur la **Figure III.31**.

Lors du démontage de la manipulation précédente, nous nous sommes aperçus que le tuyau reliant la sortie anode au débitmètre à bille était rempli d'eau. Un condenseur unique à la cathode ne suffit pas : de l'eau traverse les membranes, il faut donc en insérer un également à l'anode.

En ce qui concerne l'équilibrage des débits, nous avons choisi de conserver la version précédente : une micrométrie par cellule à la cathode et une micrométrie commune à l'anode. Ce choix n'a pas été forcément le meilleur, en effet l'utilisation a montré des désengorgements parfois difficiles à l'anode sur certaines cellules avec ce système.

Egalement, il a été ajouté une ligne azote permettant d'alimenter l'anode, la cathode ou les deux simultanément. Le fait d'ajouter une ligne qui lie l'anode et la cathode implique que des quantités de gaz actif (oxygène ou hydrogène) anciennement présentes dans les tuyaux pourraient traverser d'un côté à l'autre. Pour éviter tout risque de mélange  $H_2/O_2$ , des clapets anti retour ont été insérés dans ce lien. Cette ligne azote permet non seulement un inertage sans ajout de gaz parasites qui pourrait être présents dans les lignes (puisque'il suffit de basculer la vanne 3 voies en amont du détendeur), mais également une meilleure maîtrise sur les précharges par montée en gaz.

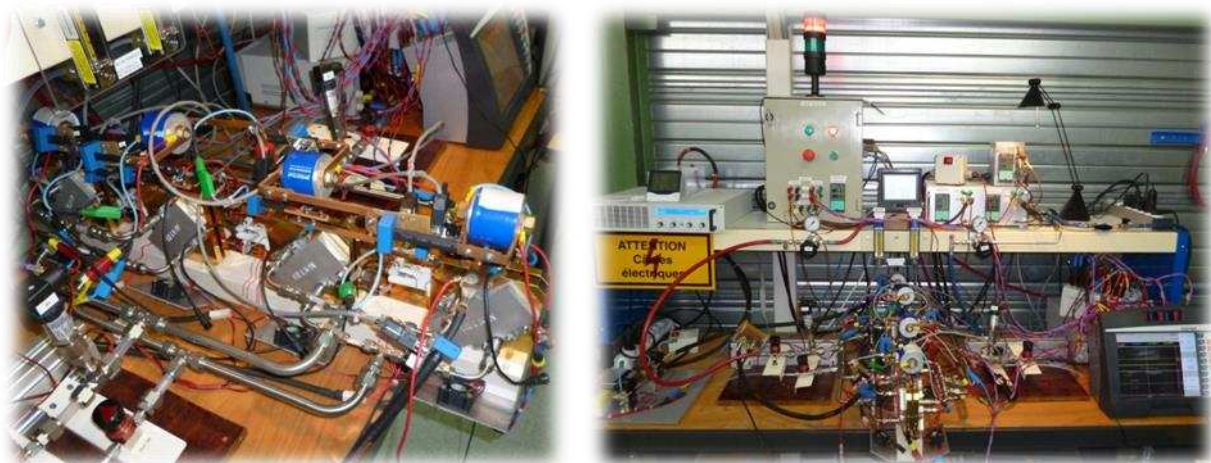


**Figure III.31 :** Illustration schématique du montage fluide de l'installation pour quatre monocellules

Nous avons fait l'effort de simplifier ce montage au maximum : les gaz entrants ne sont pas humidifiés, et les régulations de débits, de pressions et toutes les vannes sont manuelles. Cependant l'utilisation d'une monocellule nécessite :

- Un système de chauffe : les monocellules possèdent deux "couvertures chauffantes" qui sont deux résistances isolées collées sur les parois pour maintenir leur température lorsque leurs pertes irréversibles ne sont pas suffisamment importantes — *soit 4 fils d'alimentation*
- Un système de refroidissement : deux ventilateurs (un pour chaque plaque de serrage de la PAC) sont nécessaires pour une éviter les surchauffes à courant important — *soit 4 fils d'alimentation*
- Un thermocouple permettant la régulation thermique, le même régulateur alimente les ventilateurs et les couvertures chauffantes — *soit 2 fils de mesure*
- Un thermocouple pour la supervision (déclenchement de sécurité et enregistrement continu des données) — *soit 2 fils de mesure*
- Une mesure de tension pour la supervision — *soit 2 fils de mesure*
- Une mesure de tension annexe (spectroscopies, autre enregistreur, etc.) — *soit 2 fils de mesure*
- Une mesure de courant par LEM — *3 fils d'alimentation, 2 fils de mesure*

Soit, pas moins de 21 fils à connecter par monocellule pour la gestion thermique et les mesures de sécurité (tensions, courant, température). A cela s'ajoute les connectiques de puissance, les mesures communes aux monocellules telles que température ambiante et les pressions, les alimentations des auxiliaires (superviseur, contacteurs, régulateurs de température, capteurs de courant, capteurs de pression, source DC, charge active, etc.). Ce qui, au final, représente plus d'une centaine de connectiques électriques à mettre en place et environ 150 raccords fluidiques à serrer pour un montage que l'on a cherché à simplifier un maximum... La plus grande rigueur est alors nécessaire pour mettre en place ce montage. Des photos sont proposées en *Figure III.32*



a) Photo de l'assemblage 4 cellules PAC et 4 SC    b) Photo d'une vue d'ensemble sur la paillasse SC

**Figure III.32 :**      Photos du montage 4 cellules PAC et 4 SC et de son environnement.

### 3.3.2 Mise en œuvre électrique

Comme vu précédemment, le fait que le montage ne soit pas symétrique pénalise la répartition des courants mais aussi joue sur le courant circulant dans le point milieu. C'est pourquoi il est nécessaire de réaliser un câblage optimisé, le plus symétrique possible mais également le moins impédant. Nous nous sommes fixés les conditions suivantes : le même câblage doit pouvoir satisfaire chaque architecture (présentées en **Figure III.2**) et doit posséder un nombre minimal d'éléments. Pour respecter ces conditions, il semble difficile de conserver les contacteurs dans le circuit : il faudrait quatre contacteurs pour satisfaire la symétrie au prix d'une impédance plus élevée.

En créant des barres de mise en série des PAC (**Figure III.33.a**), on peut réutiliser ces mêmes barres pour mettre en série les SC à condition que les connexions des SC soient identiques à celles des PAC (ajout des barres illustrées en **Figure III.33.b**). Ainsi, avec un jeu de deux types de barres, il est possible de réaliser toutes les connexions présentées en **Figure III.33.c**. Peu de place est disponible dans le montage : les espaces de chaque côté des PAC sont utilisés pour le câblage fluide (entrée/sortie anodes et cathodes non représentées ici) et les espaces supérieurs sont utilisés par les SC ; ce qui ne laisse que la partie inférieure pour placer les ventilateurs de refroidissement (visibles en noir sur la **Figure III.33.c**). La section des barres de cuivre permet l'insertion de capteurs LEM ; le trou visible dans la partie centrale du raccord de mise en série permet une connexion du point milieu.

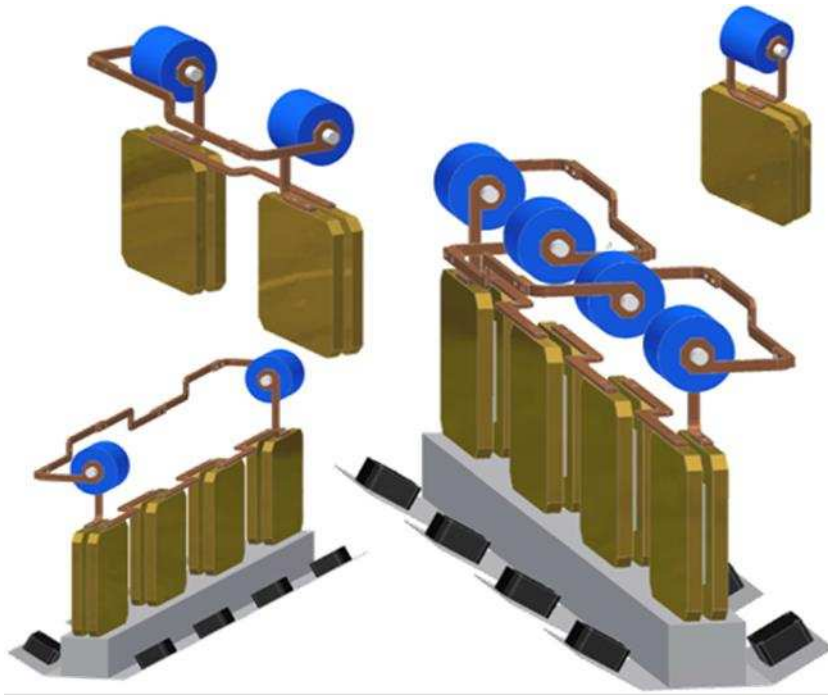


a) Raccord de connexion pour la mise en série



b) Raccord de connexion des SC

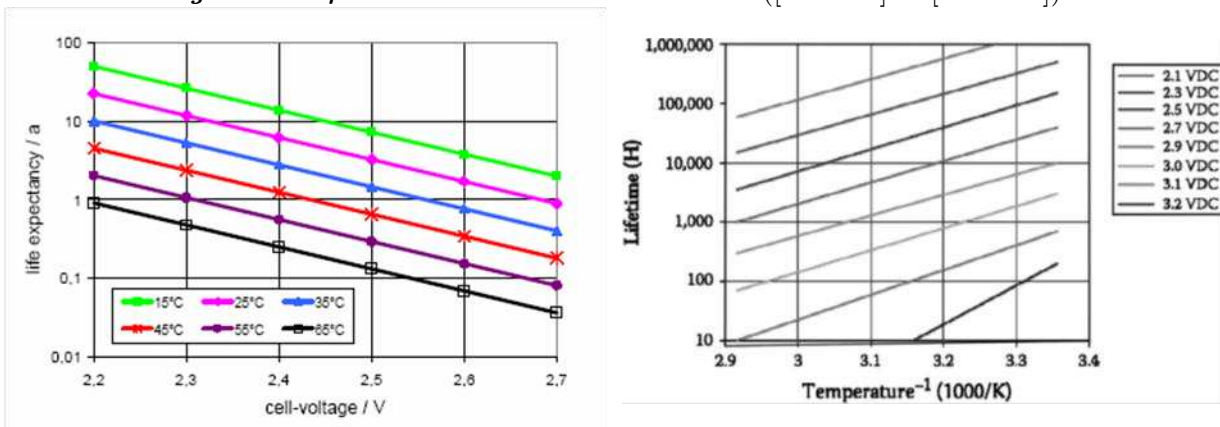




c) Exemples d'assemblages d'hybridation directe PAC-SC (points milieux non raccordés)

Figure III.33 : Montage électrique de puissance

L'avantage d'un tel câblage est que les modules SC sont au plus proche des monocellules, que la symétrie semble conservée dans les quatre cas exposés que et la tenue mécanique est assurée par la rigidité des barres de cuivre. En revanche, la chaleur des PAC (maintenues à 70°C) diffuse à travers les barres de cuivre et maintient certains SC (les modules placés aux extrémités) à une température élevée voire proche de la température maximale recommandée par le constructeur (65°C). On peut voir l'impact de la température sur la durée de vie des modules en **Figure III.34** issue de deux sources différentes ([EPC-02] et [GUA-12]).



a) Source : [EPC-02]

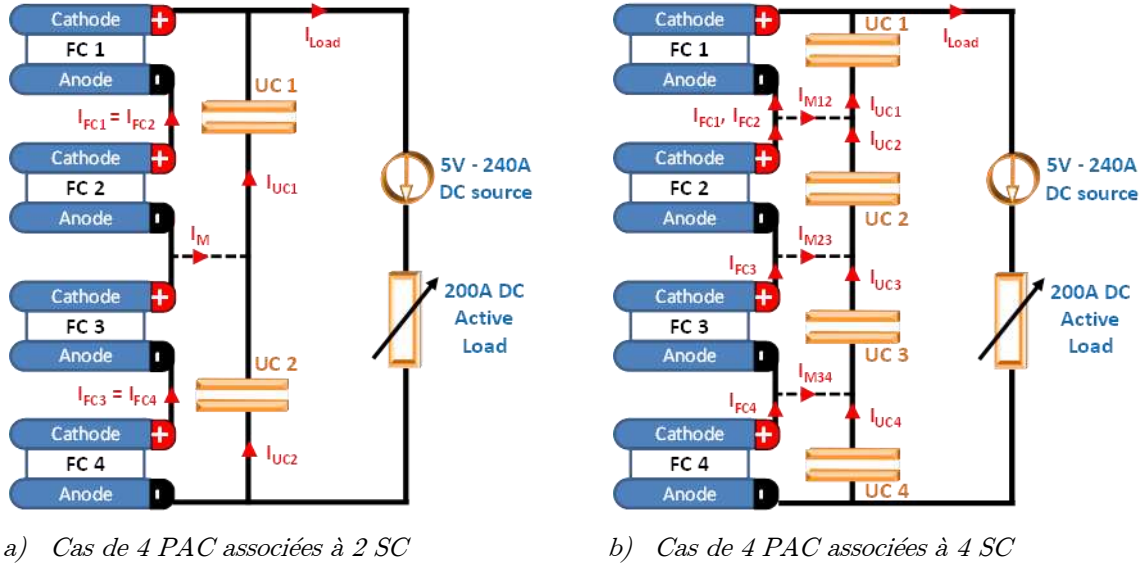
b) Source : [GUA-12]

Figure III.34 : Evolution de l'espérance de vie d'un SC en fonction de la tension et de la température.

Pour allonger la durée de vie des modules SC, on peut se poser la question du refroidissement de ceux-ci, du changement de type de connectique (trouver un bon conducteur électrique mais isolant thermique) ou d'un éloignement plus important entre les composants au prix d'une impédance accrue. Cependant pour la première phase de ces essais, la durée de vie

des composants ne sera pas évaluée. Les SC sont utilisés dans leur gamme préconisée par le constructeur (même si c'est la limite). Ainsi, nous allons poursuivre avec le câblage présenté ci-dessus sans ajouter de refroidissement supplémentaire sur les SC.

Pour tous les essais qui suivent, nous allons adopter les conventions exprimées en **Figure III.35** pour la mesure des courants. Les tensions sont mesurées aux plus près des composants et dans le sens usuel (c'est-à-dire positives lors une utilisation normale).



**Figure III.35 :** Conventions adoptées pour le sens de mesure des courants.

Malheureusement, nous n'avons pas pu refaire des essais pour le montage 1 PAC-1 SC et pour le montage 2 PAC-2 SC dans le temps imparti en tenant compte des améliorations décrites sur la partie électrique et fluïdique.

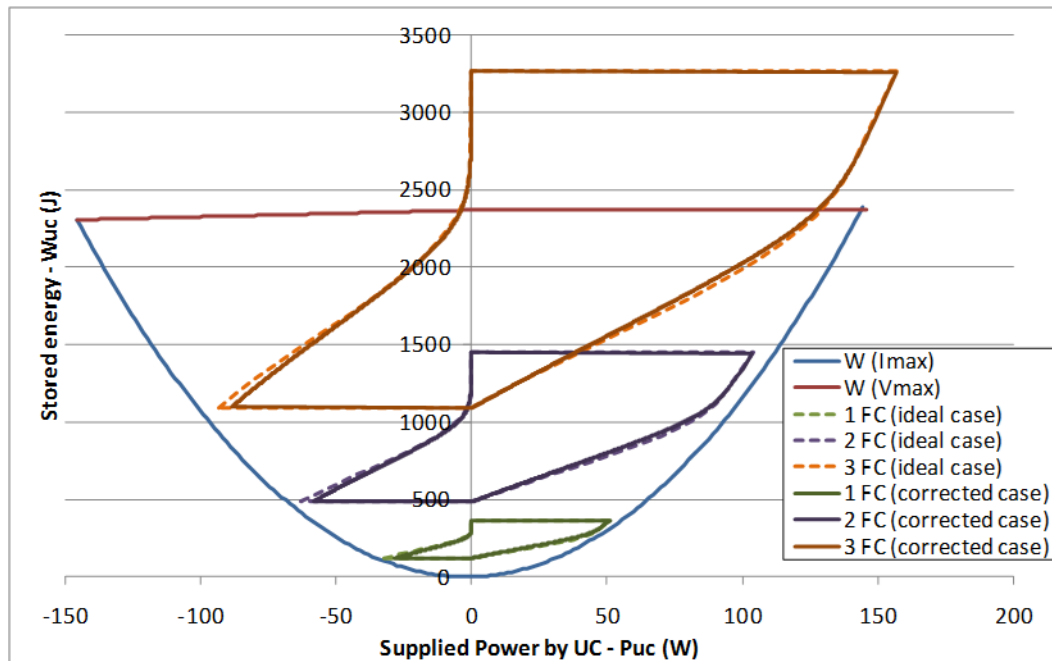
### 3.3.3 Approche énergétique en fonction du nombre de SC

Le montage à 4 PAC-2 SC est celui qui semble le plus pertinent énergétiquement parmi ceux proposés. En effet, les SC étant associés à 2 PAC chacun, leur tension d'utilisation sera doublée (et leur énergie emmagasinable quadruplée). L'impédance BF de deux PAC en série étant doublée en tension par rapport à celle d'une seule PAC, le saut du point de fonctionnement sera amélioré par rapport aux cas d'études précédents.

La **Figure III.36** illustre l'aire maximale que l'on peut occuper dans le plan de Ragone pour l'association d'un SC avec 1 PAC, 2 PAC et 3 PAC. La méthode de correction par saut du point de fonctionnement détaillée dans la partie 3.1.3.2 a été appliquée.

On voit sur ce diagramme que l'association de 2 PAC par SC utilise beaucoup mieux l'énergie emmagasinable dans le SC ainsi que sa puissance disponible. En revanche, pour l'association de 3 PAC par SC, la tension maximale du SC est dépassée de quelques 100mV, une grande proportion de la zone d'utilisation sort de plan limite de Ragone du SC. Compte tenu de la pente verticale (temps longs) en dehors de la zone admissible, il est possible (mais risqué) de réaliser cette association : il suffit de ne pas laisser l'ensemble à vide trop

longtemps. En s'appuyant sur la **Figure III.34**, on peut se poser la question de l'impact sur la durée de vie des SC pour une association 3 PAC -1 SC.



**Figure III.36** : Limite globale et dans le cas hybridé du plan « énergie stockée » — « puissance fournie » pour l'association d'un SC avec respectivement 1 PAC, 2 PAC et 3 PAC

Le cas de 4 PAC associées à 4 SC s'assimile énergétiquement à 4 fois le cas de 1 SC associé à 1 PAC et le cas de 4 PAC associées à 2 SC s'assimile à 2 fois le cas de 1 SC associé à 2 PAC.

Dans le cas où il y a 2 SC, la capacité équivalente du stockage sera doublée ( $C_{UC}/2$ ) par rapport au cas de 4 SC ( $C_{UC}/4$ ). Il est de même pour l'énergie emmagasinable : on stocke 4 fois plus d'énergie par SC mais il y en a deux fois moins....

C'est le principe dual pour la résistance, elle sera doublée pour le cas de 4 SC ( $4 \cdot R_{UC}$ ) par rapport au cas de 2 SC ( $2 \cdot R_{UC}$ ). Rappelons que la résistance  $R_{UC}$  est pénalisante pour l'hybridation car responsable du saut du point de fonctionnement et que la valeur de la capacité est bénéfique (c'est le principe même de l'hybridation).

A ce stade, on peut supposer obtenir un meilleur fonctionnement dans le cas de 4 PAC associées à 2 SC si l'interaction se passe bien.

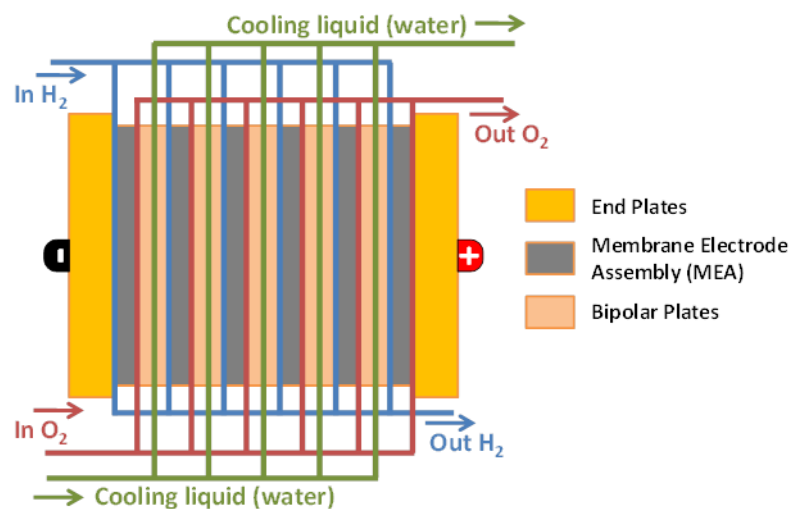
### 3.3.4 Précharge des SC

Rappelons que nous cherchons un fonctionnement de système hybride le plus simple possible. Dans cet objectif et pour se dispenser de systèmes de précharge, nous allons chercher à maîtriser la précharge des SC via la montée en gaz réactif comme cela a été proposé au chapitre II.

Tout d'abord, supposons que notre ensemble de 4 cellules est initialement sous gaz inerte. Lors d'une montée en gaz, il sera difficile d'alimenter les 4 cellules simultanément même si les

distances entre les zones actives et l'arrivée des gaz sont identiques pour notre cas (contrairement à un stack).

On retrouve le même problème sur un stack. La **Figure III.37** (figure inspirée de [THO-07]) illustre le principe de distribution des gaz le long du stack utilisé par la majorité des fabricants. Ainsi, toutes les cellules ne sont pas alimentées au même instant puisqu'elles ne se situent pas à la même distance de l'arrivée des gaz et qu'elles ne possèdent pas rigoureusement les mêmes pertes de charge. Ce phénomène est visible lorsque l'on met un stack en gaz : en observant toutes les tensions, généralement les cellules du bout montent après les cellules proches de l'entrée. Typiquement sur un stack ce temps peut varier de quelques secondes à quelques 10s. Bien que ce phénomène ne soit pas idéal pour nos manipulations, il sera également présent sur les systèmes industriels et reflète une certaine réalité. C'est pourquoi nous ne souhaitons pas dépenser trop d'énergie pour tenter de le réduire.



**Figure III.37 :** Exemple de distribution des gaz dans un stack (figure inspirée de [THO-07])

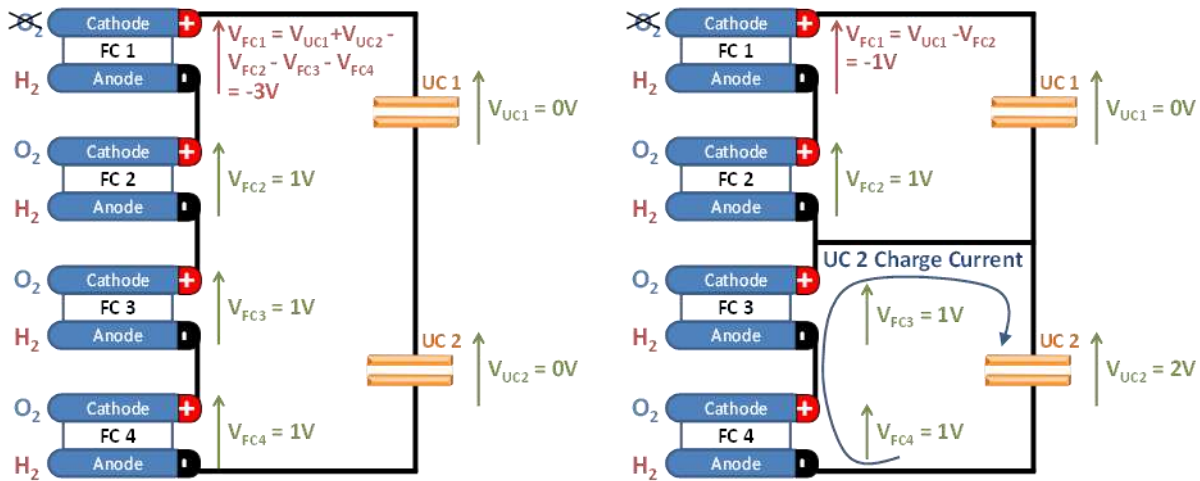
#### 3.3.4.1 Etude de la précharge des SC dans le cas de 4 PAC associées avec 2 SC

Le schéma électrique est représenté sur la **Figure III.35.a**). Cette hybridation nous amène plusieurs questions lorsque plusieurs cellules PAC sont associées au même SC ou lorsqu'il n'y a pas de point milieu :

- Comment se comportent les cellules sous gaz inerte si des cellules voisines sont alimentées en gaz réactifs ? En effet, la branche de SC étant déchargée et à tension nulle, la somme des tensions des PAC doit être nulle.
- Si les tensions de certaines cellules s'installent avant les autres, deviennent-elles négatives pour conserver une somme nulle ?
- Un courant peut-il circuler à travers des cellules qui sont encore sous gaz inerte ?

Il existe peu de modèles permettant la prise en compte d'un inertage ou d'une mise en gaz, ou s'il en existe nous ne les maîtrisons pas à ce jour. C'est pourquoi l'expérimentation semble le

meilleur moyen d'obtenir des éléments de réponse à ces questions. Le risque est de dégrader des cellules par l'application de tensions négatives, en particulier dans le cas où le point milieu n'est pas présent. En effet, le point milieu permet de limiter le 0V appliqué à 2 cellules au lieu de 4 pour ce montage. La **Figure III.38** illustre la projection de la situation décrite pour notre architecture sur un cas extrême et simplifié. Dans ce cas on suppose que 3 cellules PAC sont alimentées en gaz actifs au même instant tandis que la PAC 1 ne l'est pas.



a) Cas d'une architecture 4 PAC/2 SC sans point milieu      b) Cas d'une architecture 4 PAC/2 SC avec point milieu

**Figure III.38** : Cas d'alimentation en gaz actif simultanée de toutes les cellules PAC sauf une (la PAC 1). Schéma de l'influence du point milieu

Des dégradations peuvent exister en cas de tension négative trop importante, entre autre liées à l'électrolyse de l'eau ou à la corrosion du carbone à l'anode. Sans point milieu, le pire cas (pour notre montage) serait la tension de trois cellules appliquée en inverse à la dernière cellule. Dans ces conditions, le carbone se corrode très rapidement. Avec le point milieu, le pire cas est l'application de la tension inverse d'une seule cellule aux bornes de sa voisine, soit l'application de -1V : ce qui semble représenter des dynamiques de dégradation modérées (bien que l'électrode concernée (l'anode) ne soit pas prévue pour subir de tels potentiels). Signalons que ce risque concerne essentiellement l'anode, alors que les dégradations envisagées dans le chapitre II concernaient essentiellement la cathode.

Plusieurs essais de précharge ont alors été effectués dans ce sens. De nombreux paramètres peuvent influencer la précharge tels que la présence ou non du point milieu, les débits sortants, l'électrode utilisée pour la précharge, la température, ou encore l'humidité relative des gaz.

Pour ces essais, le temps ne nous a pas permis de cartographier l'influence de tous ces paramètres. Certains ont donc été fixés arbitrairement :

- Nous avons choisi d'inertier uniquement la cathode. Il faut bien choisir une seule électrode afin de ne pas mélanger les interactions. La cathode est l'électrode qui est au cœur de la réaction, celle qui impose le potentiel positif (l'électrode opposée imposant un potentiel quasi-nul). De plus l'inertage de la cathode donne une chute de la tension plus rapide que celui de l'anode (cf. chapitre II). Cette option nous permet de réaliser plus d'essais dans un temps imparti. Les documents relatifs à la

corrosion du carbone cités au chapitre II semblent converger vers le fait que le front d'hydrogène entrant lors de la mise en gaz est en partie responsable de corrosion du carbone. Ainsi il est possible que l'inertage unique de la cathode empêche certaines de ces dégradations.

- La température ambiante a été retenue. Plusieurs essais d'inertage/mise en gaz seront réalisés avant la campagne d'essai finale sur d'hybridation directe, nous devons réduire autant que possible les dégradations. Une température basse réduit les cinétiques chimiques. D'autant plus que les cellules vont rester de longs instants à l'OCV où l'on sait que la corrosion du carbone est accélérée par le potentiel élevé.
- En ce qui concerne la question de l'humidité relative des gaz : le banc n'est pas équipé pour réguler ces grandeurs. Notre seul moyen d'humidifier les PAC est de leur faire fournir du courant. Les balayages en azote pour l'inertage à la cathode vont assécher les membranes. Afin d'atteindre des conditions d'humidité relativement similaires d'un essai à l'autre, un courant de 0,6A/cm<sup>2</sup> sera prélevé pendant 10min sur les PAC après chaque mise en gaz pour réhydrater les membranes.
- Les deux seuls aspects qui seront rendus variables sont le débit d'alimentation en O<sub>2</sub> permettant de chasser l'azote et la présence ou non du point milieu.
- Hormis la température, les autres paramètres (débits, pressions,...) seront ceux donnés dans le **Tableau III. 1**.

La **Figure III.39** illustre les essais les plus pertinents effectués autour de la précharge des SC, à savoir :

- concernant l'équilibrage : avec point milieu, sans point milieu, avec un point milieu résistif
- concernant les débits : avec débit faible, débit usuel et débit fort.

Sur les débitmètres à bille présents sur le banc, la plus petite graduation est de 30mL/min. Sachant qu'il faut régler chaque PAC une par une, c'est le débit qui a été choisi comme usuel par PAC. La graduation maximale est de 300mL/min. Sachant qu'il est la somme des débits des quatre PAC, le débit maximal sera de 75mL/min/PAC. La fenêtre des mesures pour notre débitmètre est très faible, c'est pourquoi pour les **Figure III.39.c)** et **d)**, les débits réels sont en dehors de cette fenêtre et par conséquent de valeurs inconnues.

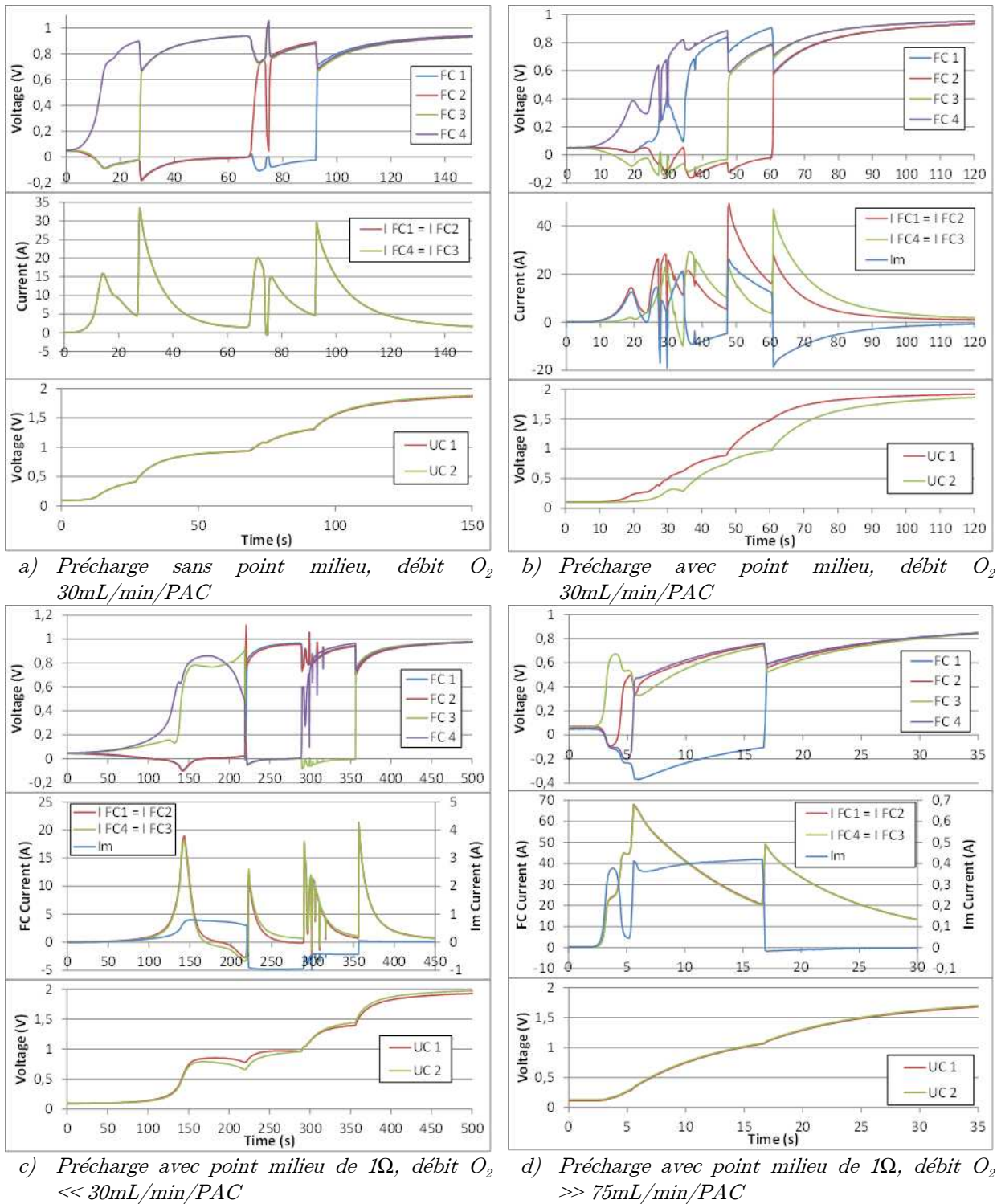


Figure III.39 : Précharge des SC du système 4 PAC — 2 SC par alimentation en gaz réactif aux cathodes.

A l'aide des constatations observées sur la **Figure III.39**, des éléments de réponse aux questions qui ont été posées en introduction de cette partie peuvent être :

- L'influence du point milieu est importante lors de la précharge : on constate qu'en l'absence de celui-ci (**Figure III.39.a**), la tension de la cellule montante se retrouve inversée et partagée sur les trois autres cellules. Alors que lorsqu'il est d'impédance faible, la tension de la cellule montante ne se retrouve inversée que sur une seule.

- Les tensions négatives remontent en même temps que se chargent les supercondensateurs puis, lorsque le front d'O<sub>2</sub> arrive à la deuxième cellule, celle-ci voit sa tension grimper brusquement au détriment des deux autres et ainsi de suite.
- On constate que le courant peut circuler dans les cellules qui possèdent la cathode sous gaz inerte. Alors se pose d'autres questions : quel est l'impact de ces courants sur la durée de vie de la cellule ? Des courants peuvent-ils traverser une cellule si seulement l'anode est sous gaz inerte ? Et si l'on inerte les deux électrodes ? Malheureusement, ces questions requièrent des essais supplémentaires que nous n'avons pas pu réaliser dans le temps imparti. Nous ne pourrions pas apporter de réponse précise à ces questions dans ce manuscrit.

Rappelons que dans ces essais, seulement la cathode a été placée sous gaz inerte. Il est possible que les phénomènes constatés soient différents si l'action est réalisée à l'anode.

En ce qui concerne l'essai avec point milieu (*Figure III.39.b*), celui-ci ne permet pas d'empêcher les tensions de devenir négatives, cependant il en limite l'impact. Lorsqu'une cellule monte, la cellule associée (c'est-à-dire hybridée par le même SC) diminue. L'impact sur les autres cellules est négligeable. Le fait qu'il y ait tout de même un impact est probablement dû à l'impédance du point milieu qui est plus élevée que celle des câbles de puissance étant donnée sa section faible. Dans ce cas, les cellules marchent par couple.

Les essais avec un point milieu de 1Ω (*Figure III.39.c* et *d*) sont très proches de ceux sans point milieu. En effet l'importance de la valeur de la résistance fait que la chute de tension à ses bornes empêche de séparer les couples de PAC de ces interactions. De plus, le courant dérivé est très faible, mais suffisant pour atteindre un régime permanent identique. L'impact est faible sur la différence de charge des SC.

Pour résumer la présence du point milieu semble un élément important pour effectuer ce type de précharge au sein d'un stack possédant un grand nombre de cellules si l'alimentation en gaz actifs des cellules n'est pas simultanée. On imagine que la dernière cellule alimentée en gaz pourrait voir dans un cas extrême la tension inverse de toutes les autres (à la différence près du peu de charge dans les SC qui aura eu le temps de s'effectuer entre temps).

Cependant les courants traversant ce point milieu doivent être conséquents pour que l'impact soit visible (ici on atteint 20A sur la *Figure III.39.b*). Etant donnée la durée limitée de la précharge, on peut miser sur un sous-dimensionnement de la section de ce câble (toujours dans l'espoir d'être facilement connecté sur la tranche des plaques bipolaires) et compter sur son inertie thermique pour supporter ce courant sans destruction.

On peut facilement réduire le courant d'appel en réduisant les débits d'alimentation en gaz. Cependant la relation entre débit de fuite et courant n'est pas linéaire. Il faut atteindre les débits les plus faibles que l'on sache faire avec ces vannes micrométriques pour obtenir une limitation conséquente du courant (*Figure III.39.c*). C'est dans cette configuration que l'on obtient le temps de précharge des SC le plus long.

En revanche un débit trop important semble exagérer l'impact sur les tensions (*Figure III.37.d*). En effet, les tensions des cellules alimentées en gaz augmentent plus vite et donc



celles des cellules non alimentées atteignent des valeurs négatives plus basses. Dans ce cas, la résistance de  $1\Omega$  est bien trop importante pour avoir un impact sur la précharge en si peu de temps. De plus, dans ce cas, on voit clairement des appels de courant très élevés. C'est dans ce cas que l'on obtient le temps de précharge des SC le plus court.

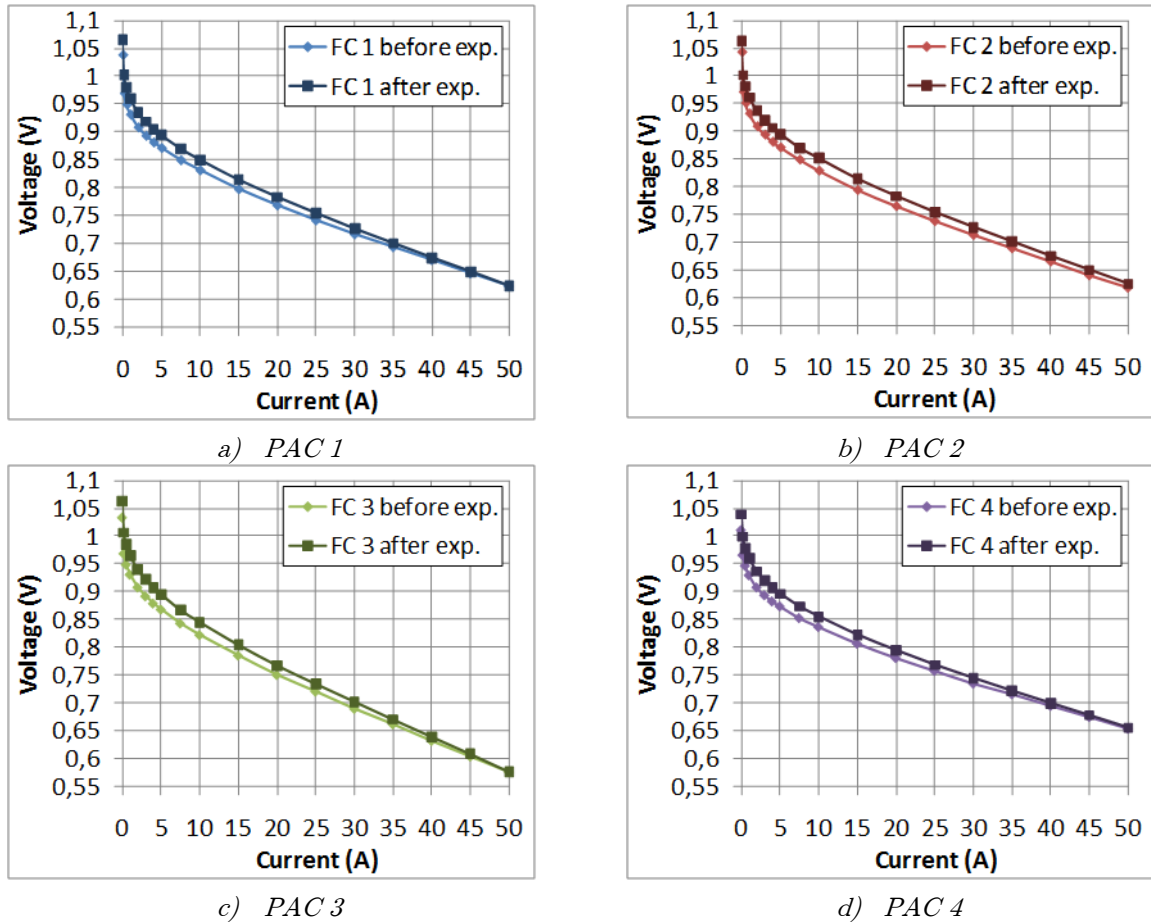
Sur les *Figure III.39.a), b) et c)*, les tensions des cellules possèdent des changements de sens de variation importants et rapides. Il paraît difficile de lier de manière certaine ces événements « chaotiques » qui semblent relativement aléatoires aux débits. Cependant le fait d'avoir des débits très importants semble les supprimer (ou peut-être que leur probabilité d'apparition est moindre étant donné que la durée est plus courte). Le fait d'avoir des débits très faibles semble en augmenter le nombre (ou simplement que leur probabilité d'apparition est plus élevée étant donné que le temps de précharge est plus long).

De même, il ne semble pas y avoir de lien direct avec la présence ou non de l'impédance du point milieu. Le paramètre le plus incertain parmi ceux cités au début de cette partie semble être l'humidité : on peut se demander si ces événements chaotiques ne sont pas liés à des déplacements d'eau dans les membranes, les électrodes ou dans les canaux.

Il y a très probablement moins de temps entre l'alimentation en gaz des différentes cellules dans le cas d'un stack. Pour ce montage, le fait que les vannes micrométriques soient placées en amont du condenseur (ce qui n'est pas le cas pour un stack) provoque des mouvements d'eau lents qui pénalisent beaucoup la stabilité des débits de fuite. Donc, il n'est pas dit que la précharge se comporte de manière complètement identique dans le cas d'un stack.

Au final, il est difficile de prononcer un avis définitif sur la méthode ou sur le montage à employer pour réaliser de telles précharges. En effet, la méconnaissance des dégradations qui peuvent être engendrées par les différents phénomènes et le caractère aléatoire de certains nous empêchent de conclure. Cependant, s'il fallait se prononcer à partir des remarques précédentes, il semblerait que le meilleur compromis pour une précharge des SC par alimentation en gaz réactif ( $O_2$ ) aux cathodes préalablement inertées dans le cadre de notre montage, soit un point milieu non résistif avec l'utilisation de débits d' $O_2$  « intermédiaires » (compris entre 30mL/min/PAC et 75mL/min/PAC dans notre cas).

Nous tenons à insister sur le fait que ces essais ont été réalisés par la limitation du débit entrant à la cathode et qu'ils ne sont à priori pas généralisable à une alimentation par l'anode, contrairement aux essais du chapitre II qui proposaient une influence similaire entre les deux électrodes. En effet, il a été suspecté des déplacements d'eau responsables de certains phénomènes, or l'eau est présente en général en quantités plus réduites à l'anode. De plus, il n'est pas certain qu'une PAC avec l'anode inertée laisse passer le courant de la même manière qu'une PAC avec la cathode inertée.



**Figure III.40 :** Courbes de polarisation avant et après les essais de précharge des quatre PAC.

Afin de vérifier que les performances électriques des PAC n'ont pas été touchées par ces essais, des courbes de polarisation ont été tracées avant et après les expérimentations sur la précharge des PAC (**Figure III.40**). Le protocole utilisé était identique. On observe avec surprise que, pour toutes les PAC, les performances électriques sont légèrement supérieures après l'expérimentation. C'est également ce qu'observe [HIN-12] après avoir effectué des essais en court-circuit sur une cellule.

Quant au fait de l'amélioration de performances, il peut s'agir de la variation d'un paramètre non régulé dans notre cas tel que l'humidification. On peut envisager une modification des couches actives liée à la mise en court-circuit des cellules ou aux mises en gaz/inertages successifs, comme par exemple une dépollution en monoxyde de carbone (CO) à l'anode. En revanche, nous n'avons pas vérifié si cette amélioration des performances électriques est valable sur le long terme ou uniquement sur du court ou moyen terme. Cela ne permet pas de conclure, mais il semblerait à première vue que l'état de santé des cellules n'ait pas été touché par ces essais.

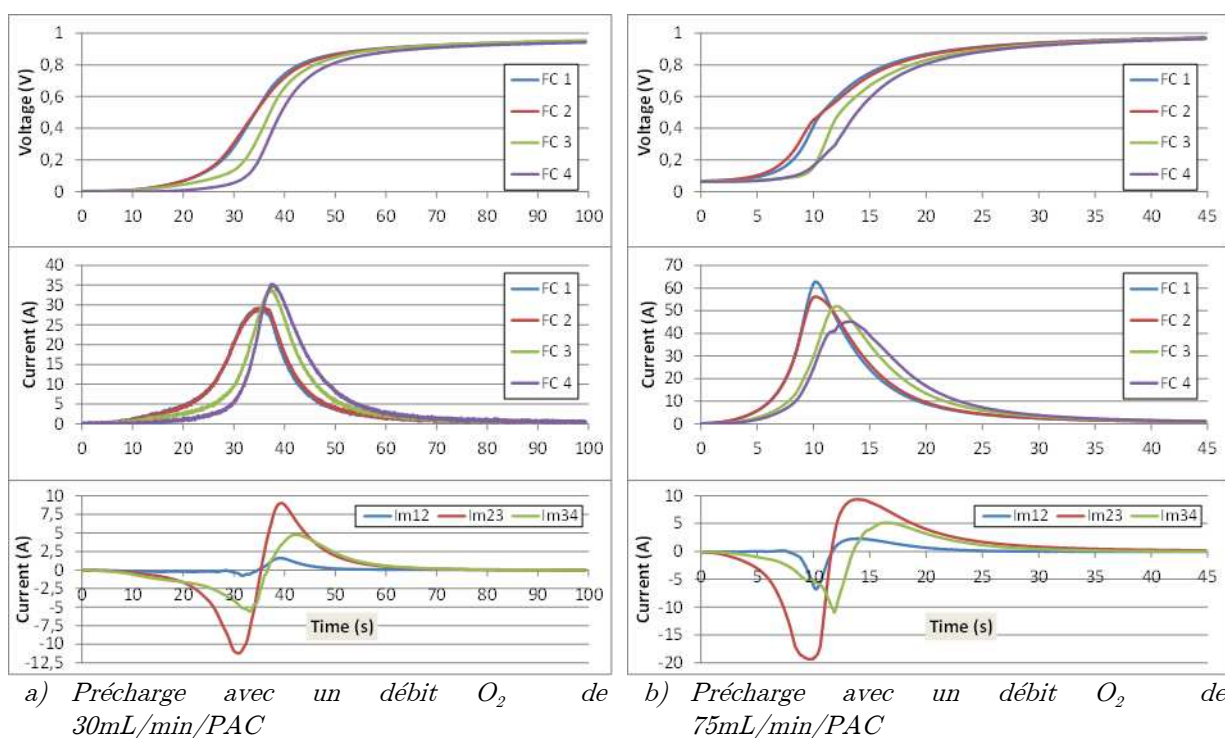
Au passage, on remarque que les PAC 1 et 2 possèdent des performances similaires ( $V(I_{MAX}) \approx 0,62V$ ). Tandis que la PAC 4 possède des performances supérieures ( $V(I_{MAX}) \approx 0,65V$  - elle n'est pas constituée de la même technologie de MEA que les autres) et la PAC 3 possède des performances inférieures ( $V(I_{MAX}) \approx 0,58V$  - Un stockage long et dans de mauvaises conditions a probablement endommagé son état de santé). Les PAC 3 et 4 ont été associées

ensemble (c'est-à-dire hybridées par le même SC) de manière à avoir des performances équivalentes à l'association des PAC 1 et 2.

### 3.3.4.2 Etude de la précharge des SC dans le cas de 4 PAC associées avec 4 SC

Les essais de précharge avec 4 PAC associées à 4 SC sans les points milieux constituent des essais similaires à ceux avec 4 PAC et 2 SC. La principale différence est que la capacité équivalente des SC est divisée par deux dans ce cas. Ainsi les essais présentés ici ne concerneront que l'association de 4 PAC avec 4 SC avec les points milieux reliés.

Etant donnés les degrés de liberté déjà fixés (cathodes inertées puis mises sous gaz actif, température ambiante, humidité relative difficilement maîtrisée), il ne nous reste plus qu'un seul paramètre à faire varier qui est le débit de fuite lié à l'oxygène entrant. Nous avons donc choisi les deux extrêmes des débits que nous sommes en mesure de mesurer avec nos débitmètres à bille, c'est-à-dire 30 et 75 mL/min/PAC (qui sont également les extrêmes des débits recommandés suite aux essais de la *Figure III.39*). Ces essais sont donnés en *Figure III.41*. Les débits d'hydrogène et les pressions sont toujours ceux cités dans le *Tableau III. 1*. Les tensions SC ne sont pas représentées étant données leur ressemblance très proches avec les tensions PAC.



**Figure III.41 :** Précharge des SC du système 4 PAC — 4 SC par alimentation en gaz réactif ( $O_2$ ) aux cathodes.

Tout d'abord, on peut remarquer qu'il n'y a plus de variations brusques des tensions. Le fait qu'il n'y ait pas plusieurs PAC sur le même SC fait qu'elles ne peuvent plus s'imposer les tensions l'une à l'autre. Rappelons que dans le cas de 4 PAC — 2 SC, lorsqu'une cellule montre des variations brusques, la cellule associée montre les variations opposées. Or, ici chaque cellule

PAC possède un « bloc inertiel » qui lui est propre (le SC) et donc ne peut avoir de variation brusque de tension.

En ce qui concerne les courants, de même que pour le cas précédent, on constate bien une augmentation du courant d'appel avec l'augmentation du débit (ce qui est également valable pour le courant des points milieu).

On n'observe plus de courants négatifs, ni de tensions négatives sur les cellules. Cependant, dans cet essai, la zone d'exploration en débits et la présence des points milieu ont été moins contraignantes que pour l'essai précédent. Rappelons que ces conditions ont été choisies justement en fonction des conclusions de la partie précédente.

Dans le cas d'un stack avec cette architecture, si de tels courants d'appel ne dégradent pas les cellules, la raison qui pourrait exiger une limitation du débit d'alimentation en gaz lors de la précharge pourrait être la taille des points milieu. Cette taille pourrait être fortement limitée pour des raisons mécaniques.

De plus, le décalage temporel entre les alimentations en gaz, qui est en partie responsable de la valeur maximale du courant dans les points milieu, est fonction de la symétrie fluïdique. Cette symétrie est difficile à équilibrer dans un montage à cellules séparées tel que celui-ci, mais les fabricants de PAC la maîtrisent mieux lors de la conception d'un stack.

En conclusion, il semble que, pour cette architecture, la précharge de SC par alimentation en gaz actif ( $O_2$ ) aux cathodes soit moins chaotique que pour l'association 4 PAC — 2 SC. Il reste à savoir si les effets chaotiques observés sont néfastes ou pas pour les cellules. La principale contrainte liée à l'architecture 4 PAC - 4 SC réside dans la valeur des courants circulant dans les points milieu qui pourrait exiger des câbles de section importante. En revanche, l'hybridation par l'architecture 4 PAC - 4 SC semble moins performante que pour l'association 4 PAC- 2SC étant donnés les écarts sur la valeur de la capacité globale du montage et la valeur de la résistance série globale.

### 3.3.5 Caractérisations électriques de l'association de 4 PAC avec 2 SC ou 4 SC

Différents essais ont été réalisés dans le but de caractériser sur le plan des performances électriques l'hybridation PAC-SC et l'étude du point milieu. L'analyse et le recul sur les essais précédents (1PAC-1SC et 2PAC-2SC) a permis d'établir des protocoles d'essais plus pertinents. L'enregistreur utilisé possède 12 voies analogiques isolées à acquisition rapide (période d'acquisition minimum de 10 $\mu$ s) et 12 voies analogiques multiplexées non isolées plus lentes (période d'acquisition minimum de 200 $\mu$ s).

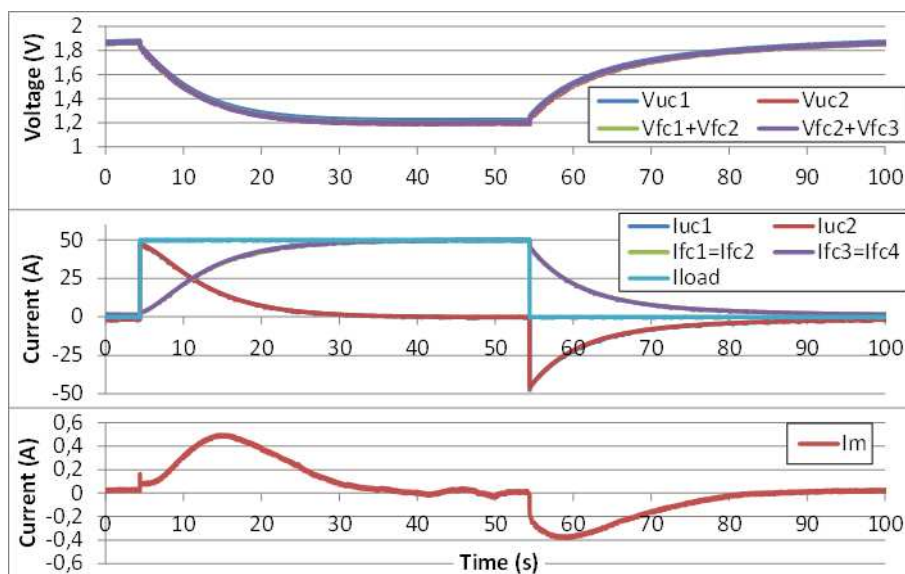
Pour les essais 4PAC - 2SC (*Figure III.35a*), nous avons 6 tensions et 6 courants à acquérir. Ce qui permet de tout acquérir sur les voies analogiques isolées rapides (comme pour les essais précédents).

En revanche, pour les essais 4PAC — 4SC (*Figure III.35.b*), nous avons 8 tensions et 12 courants à acquérir ; il n'est donc pas possible d'acquérir toutes les voies de manière rapide pour ces essais.

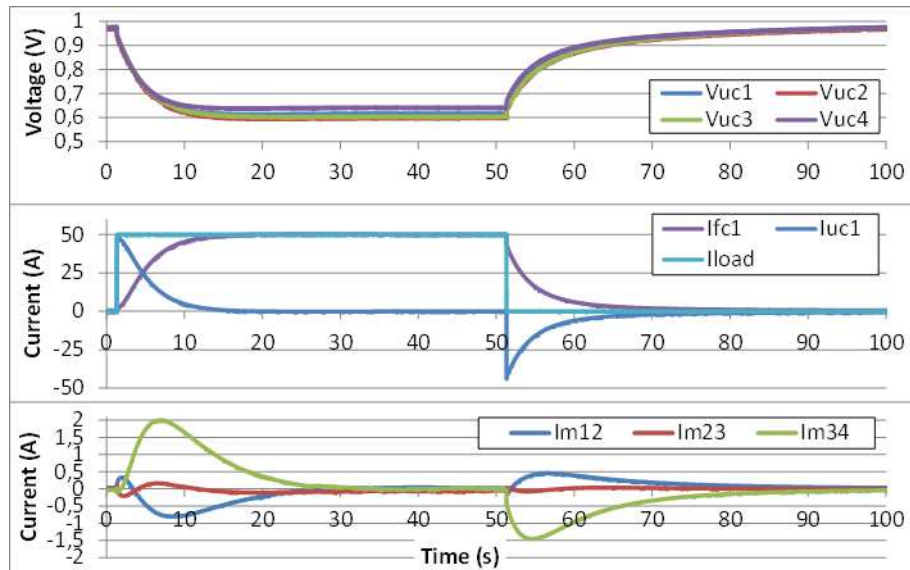
Les voies multiplexées n'étant pas isolées, on ne peut pas y mettre les tensions sans ajout de sondes. Les capteurs de courant étant alimentés par la même alimentation, ils possèdent la même masse. Il a donc été choisi de placer les 8 tensions, les courants milieu (car c'est l'objet principal d'étude de ces essais) et le courant de charge sur les voies rapides. L'inconvénient est que la période minimale d'acquisition sur les voies lentes n'est pas suffisante pour observer les pics rapides (liés à la charge/décharge des condensateurs de double couche) de manière précise.

### 3.3.5.1 Réponse de l'hybridation de 4 PAC avec 2 ou 4 SC à des échelons de courant

Des échelons de courant sont réalisés de la même manière que pour la partie **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** On ne reviendra pas sur les formes des tensions et des courants de PAC puisqu'ils sont similaires à ceux présentés auparavant. On s'attachera principalement au(x) courant(s) milieu(x), et aux avantages d'une hybridation à deux cellules PAC par SC. On peut juste noter qu'étant donnée l'amélioration apportée au câblage, la tension disponible aux bornes de l'ensemble est plus élevée que dans les autres cas. Il n'y a donc presque plus de différence entre tension PAC et tension SC. Les conditions opératoires en termes de fluïdique et de thermique sont celles citées dans le **Tableau III. 1**.



a) Cas de 4 PAC associées à 2 SC



b) Cas de 4 PAC associées à 4 SC

Figure III.42 : Formes d'ondes pour un créneau 0..50A à 10MHz

Rappelons que les 4 PAC ne possèdent pas les mêmes performances électriques (cf. **Figure III.40**) et qu'en particulier la PAC 4 possède une tension plus élevée que les autres à courant nominal. La PAC 4 a été associée avec la PAC 3 dans les essais 4PAC-2SC pour lisser ces différences puisqu'elle possède la tension à courant nominal la plus faible. Cependant on peut les observer dans les essais 4PAC-4SC où cette association n'a plus effet.

On observe tout d'abord que, pour le cas de la **Figure III.42.a**) (4PAC-2SC), le courant milieu possède une amplitude beaucoup plus faible que lors de l'essai à 2 PAC (cf. **Figure III.27**). Les couples de PAC ayant été choisis de manière à être équilibrés entre eux et le câblage étant symétrique pour ce cas, les seules raisons qui provoquent ce courant sont les divergences entre les couples de PAC et celles entre les SC. Le peu de variation « instantanée » dans ce courant milieu lors de l'échelon 0A→50A témoigne du peu de divergence entre les couples de PAC. Malgré tout, il y a un peu plus d'écart pour l'impédance à fort courant (échelon 50A→0A). Tandis que la variation lente de ce courant de point milieu témoigne d'une nécessité de réguler l'état de charge des SC : un couple de PAC peut délivrer une tension plus forte que l'autre couple sur un point de courant identique, ou des valeurs de capacité différentes sont possibles.

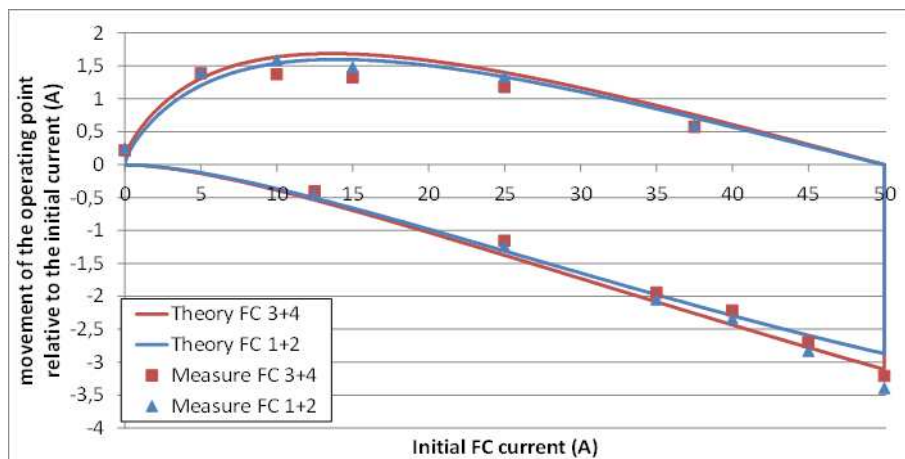
Pour la **Figure III.42.b**) (4PAC-2SC), on observe trois formes de courants milieux différentes. Le courant  $I_{M23}$  est quasiment nul de par la bonne symétrie entre les deux couples adjacents PAC2/SC2 et PAC3/SC3. On peut justifier le fait que les courants  $I_{M12}$  et  $I_{M34}$  soient présents puisqu'en réalité, le circuit n'est pas complètement symétrique. En effet, les PAC aux extrémités (PAC 1 et PAC 4) possèdent seulement une demie barre de cuivre de mise en série chacune (cf. **Figure III.33.a**) associée à leur impédance alors que les autres PAC (PAC 2 et PAC 3) en possèdent 2 demies : une de chaque côté. Il est aussi logique que ces deux courants milieux soient de sens opposés étant donnée la symétrie axiale du montage.

L'impédance plus faible de la PAC 1 (et sa  $\frac{1}{2}$  barre) par rapport à la PAC 2 (et ses deux  $\frac{1}{2}$  barres) entraîne un courant  $I_{M12}$  négatif sur les échelons montants et positif sur les échelons

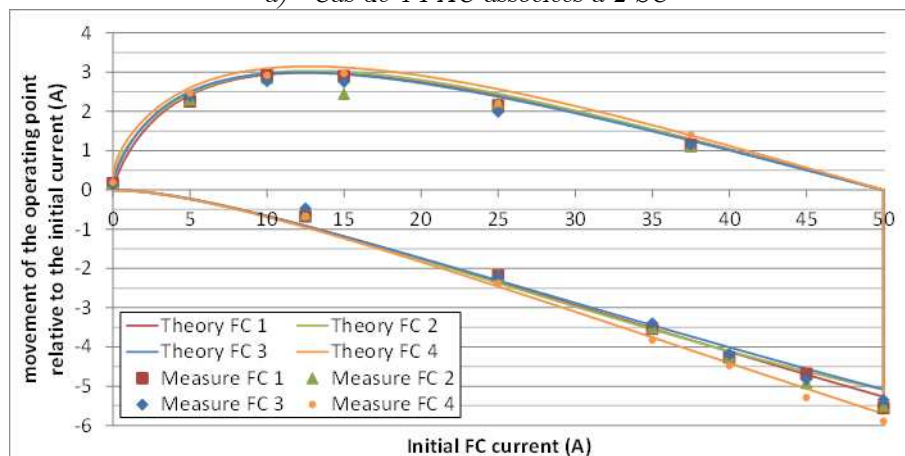
descendants. Le raisonnement est dual pour le cas des PAC 3 et 4 et du courant  $I_{M34}$ . Cependant le fait que la PAC 4 possède de meilleures performances électriques que la PAC 3 (mais aussi une impédance locale plus faible) s'ajoute au phénomène précédent : c'est la raison pour laquelle ce courant est plus important que le courant  $I_{M12}$ .

On profite de ces essais pour valider le principe de saut du point de fonctionnement présenté à la partie 3.1.3.2. Des mesures sur les échelons de courant de charge maximums à partir de différents points (0A→50A, 5A→50A, 10A→50A, ...) montants puis descendants (50A→0A, 45A→0A, 40A→0A, ...) ont été réalisées dans cette optique.

Ces mesures sont illustrées en **Figure III.43**. On observe d'abord que pour le cas 4PAC - 2SC le saut du point de fonctionnement est pratiquement deux fois inférieur au cas 4PAC - 4SC (qui est similaire au cas 1PAC - 1SC). On observe également que, plus l'impédance de la PAC est faible, plus le saut est important.



a) Cas de 4 PAC associées à 2 SC



b) Cas de 4 PAC associées à 4 SC

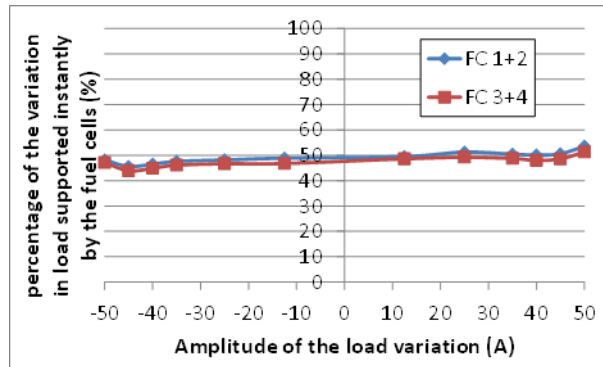
**Figure III.43 :** Comparaison mesure/théorie du saut du point de fonctionnement.

Comme exprimé plus haut, les variations rapides liées à la décharge du condensateur de double couche n'ont pu être étudiées que pour le cas 4PAC — 2SC. Elles sont illustrées en **Figure III.44**. On peut y remarquer :

- qu'elles sont constantes en proportion quel que soit l'échelon et donc indépendantes des courbes de polarisation des PAC.

- qu'elles sont plus élevées avec ce câblage que pour le cas 1PAC - 1SC (cf. section 3.1.3.3) : de l'ordre de 30% pour le cas 1PAC - 1SC contre 50% dans ce cas (4PAC - 2SC).

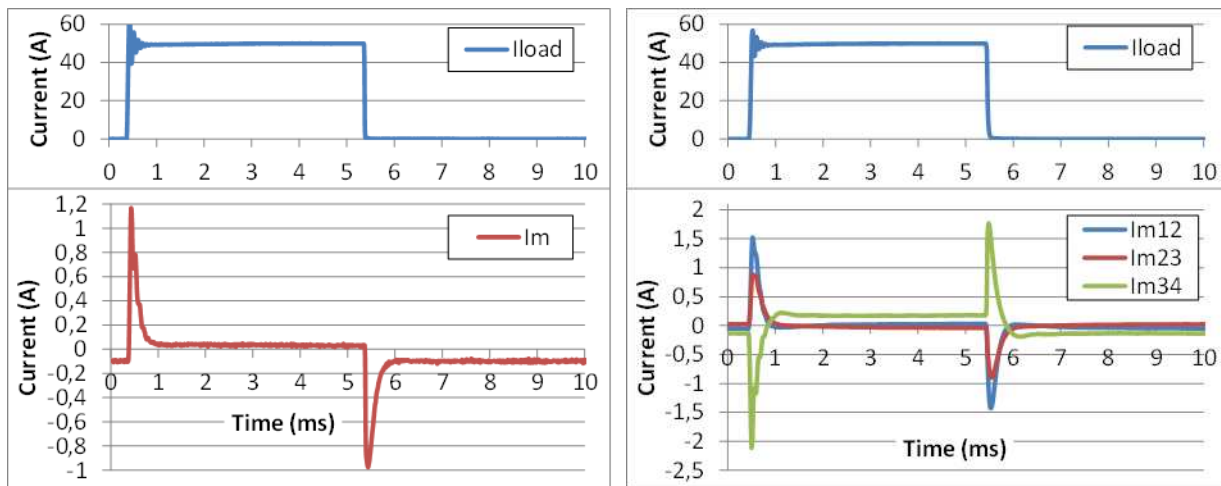
Les résistances globales liées au SC ( $R_{SC}$  + câbles) sont bien inférieures à celles liées aux PAC, ce qui montre que ce n'est pas le seul rapport des résistances qui donne ce pourcentage, auquel cas il serait supérieur à 50%. Les inductances liées aux SC celles liées aux PAC ne sont pas bien connues. En effet, les valeurs que nous avons obtenues par fitting sont très faibles pour les composants (entre  $10^{-8}$  H et  $10^{-7}$  H) et nous doutons de leur exactitude. Il faudrait réaliser des mesures à très haute fréquence ( $>50\text{kHz}$ ) pour avoir plus de précision. Il est possible que le courant de départ de ce pic de charge/décharge des condensateurs de double couche soit lié au rapport des inductances. Cela peut être une combinaison des deux qui est responsable de ce rapport. Nous verrons dans le chapitre suivant que l'importance de cette variation rapide prise en charge par les PAC aurait a priori un impact très limité sur les dégradations possibles sur la PAC.



**Figure III.44 :** Variation rapide du courant au moment de l'échelon supportée par les PAC en fonction de la taille et du sens de l'échelon.

Sur la *Figure III.45* sont illustrés les courants milieu pour un profil créneau à haute fréquence (les autres courants étant similaires à ceux de la *Figure III.16*). On constate, comme pour le cas de 2PAC — 2SC, des pics de l'ordre de l'ampère (et toujours dans le même rapport que la *Figure III.42.b*) pour le cas 4PAC — 4SC). La principale différence réside dans la valeur après ces pics qui ici est pratiquement nulle. On peut en conclure que la symétrie joue beaucoup sur la valeur moyenne du courant milieu étant donné que le seul cas ici où ce courant n'est pas nul est lorsque les deux PAC voisins possèdent des performances éloignées.





a) Cas de 4 PAC associées à 2 SC

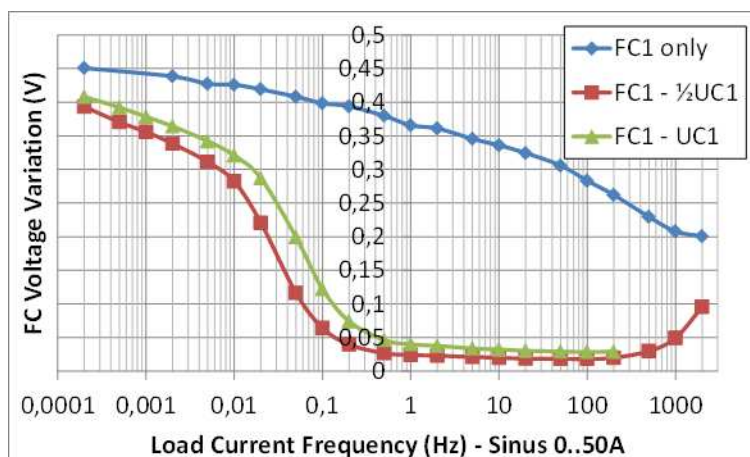
b) Cas de 4 PAC associées à 4 SC

**Figure III.45 :** Illustration des courants milieux pour un ensemble soumis à des créneaux 0A..50A à 100 Hz.

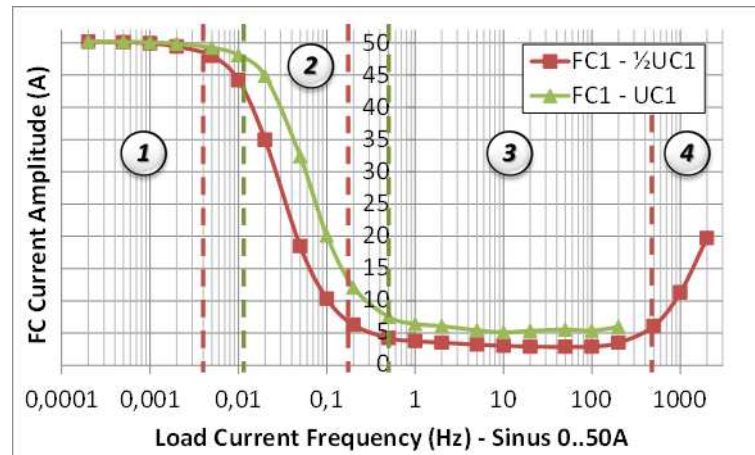
### 3.3.5.2 Réponse de l'hybridation de 4 PAC avec 2 ou 4 SC à des balayages en courant sinusoïdaux et de fortes amplitudes

En ce qui concerne les essais par balayage sinus 0A..50A du courant de charge, les effets sur la tension sont relativement similaires à ceux déjà exprimés. C'est pourquoi ils ne seront pas présentés une fois supplémentaire. Il en est de même pour la prédiction des tracés temporels par la méthode des plans de Ragone.

Cependant, le fait d'avoir des résultats d'essais sur l'architecture à 2 SC, celle à 4 SC et le même montage sans les SC permet une comparaison sur un même câblage. Par souci de place et pour éviter la redondance, seuls les résultats d'une PAC seront présentés étant donnée la similitude. La notation FC - ½UC représente une PAC de l'architecture 4PAC - 2SC et celle FC-UC a été mesurée sur le montage 4PAC - 4SC.



**Figure III.46 :** Variation de la tension PAC en fonction de la fréquence pour des sinus 0..50A — comparaison des différents cas.



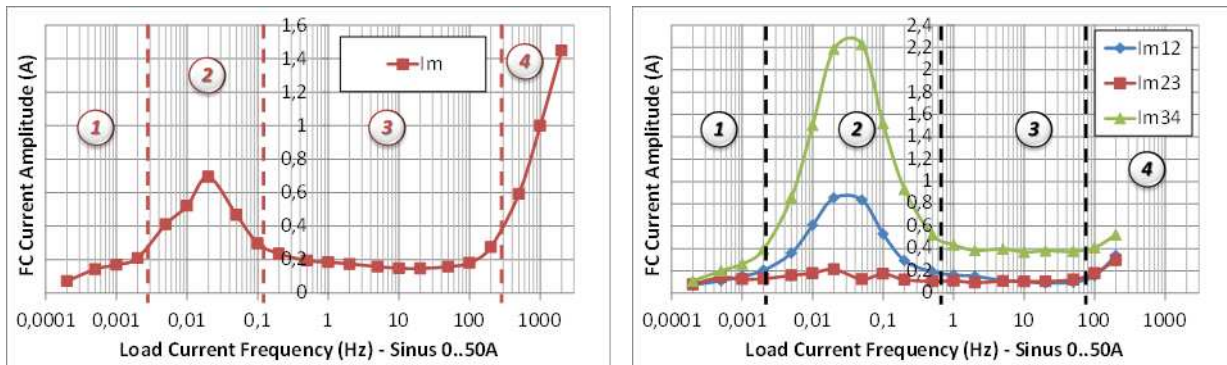
**Figure III.47 :** Amplitude du courant pris en charge par la PAC lors de l'application de sinus 0..50A pour différentes fréquences.

Tout d'abord, on observe sur la *Figure III.46* et la *Figure III.47* l'impact de la plus grande capacité équivalente pour le cas 4PAC — 2SC. Cette valeur de capacité provoque un déplacement de la courbe de variation de la tension PAC et de celle de l'amplitude du courant pris en charge par la PAC d'environ 1/3 à 1/2 décade vers les basses fréquences.

On peut aussi voir l'impact de la résistance plus faible de la branche capacitive dans le cas de 2 SC pour cette courbe. La diminution de la résistance provoque une légère diminution de la variation de tension PAC, de même pour l'amplitude du courant pour les hautes fréquences.

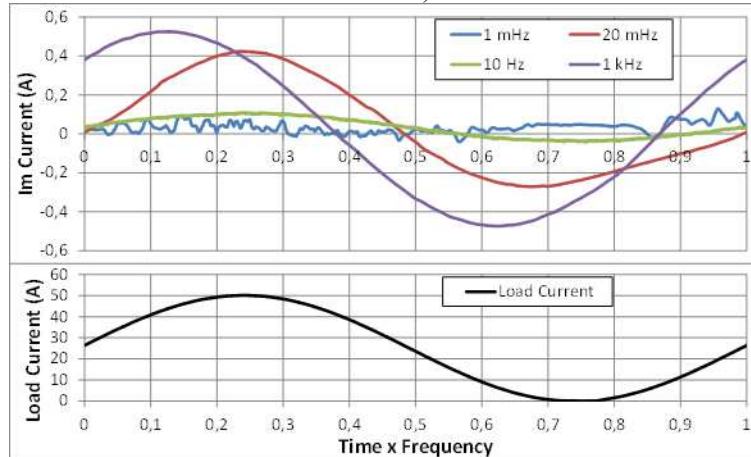
On retrouve les 3 zones exprimées à la partie 3.1.4 dans ces deux courbes (par soucis de lisibilité elles ne sont illustrées que sur la *Figure III.47*). Mais aussi, la quatrième zone (fréquences > 100Hz) qui avait été prédite précédemment est confirmée ici. Dans cette 4<sup>ème</sup> zone, la part du courant pris en charge par la PAC, mais aussi la tension à ses bornes remontent lorsque l'on approche de la constante de temps des variations rapides (liées à la décharge des condensateurs de double couche). Etant données les périodes d'acquisition et la dynamique de la charge active utilisée, il n'a pas été possible de monter plus haut en fréquence. Cette remontée aurait sans doute atteint le niveau des variations rapides observée si cela avait pu être fait (c'est-à-dire 50% soit 25A pour le cas 4PAC — 2SC et une valeur difficile à prédire pour le cas 4PAC — 4SC car ces mesures n'ont pas pu être faites).

Ceci permet de définir une gamme de fréquences optimale pour l'utilisation d'un système PAC-SC hybridé directement : elle va se situer au niveau du plateau où la part du courant pris en charge par les PAC est la plus faible sur la *Figure III.47*, c'est-à-dire dans la zone 3 (les fréquences comprises environ entre 100mHz et 1kHz, mais cela peut varier suivant les cas). Ces conclusions peuvent offrir une aide au choix du dimensionnement.



a) Cas de 4 PAC associées à 2 SC

b) Cas de 4 PAC associées à 4 SC



c) Exemple de formes temporelles du courant  $I_m$  mesuré pour quelques fréquences dans le cas de 4 PAC associées à 2 SC

**Figure III.48 :** Evolution de l'amplitude crête à crête du point milieu en fonction de la fréquence du courant de charge (sinus 0..50A).

Enfin, l'observation de l'amplitude du courant milieu permet de découvrir une zone (zone n°2 parmi les 4 zones précédentes) où son amplitude est forte. Cette zone n'avait pas été observée sur la *Figure III.30* (la forme de la courbe est différente). La principale différence entre les montages réside dans la symétrie.

Le pic dans la zone n°2 correspond à la zone où l'utilisation énergétique du SC est maximale : c'est la zone où la tension aux bornes du SC varie de manière importante et le courant aussi. Tandis que dans la zone 1 : la tension du SC varie beaucoup, mais il ne fournit pas de courant ; et dans la zone 3, sa tension ne varie presque pas, mais il prend en charge une part importante du courant prélevé sur l'ensemble hybridé. On retrouve le décalage d'environ 1/3 de décade dans ce pic lié à la valeur de la capacité équivalente.

### 3.3.6 Décharge forcée des SC dans une association à 4 PAC et 2 ou 4 SC

Nous allons tenter d'apporter quelques éléments de réponse à un point qui n'a pas encore été abordé dans ce chapitre : comment arrêter le système hybridé ?

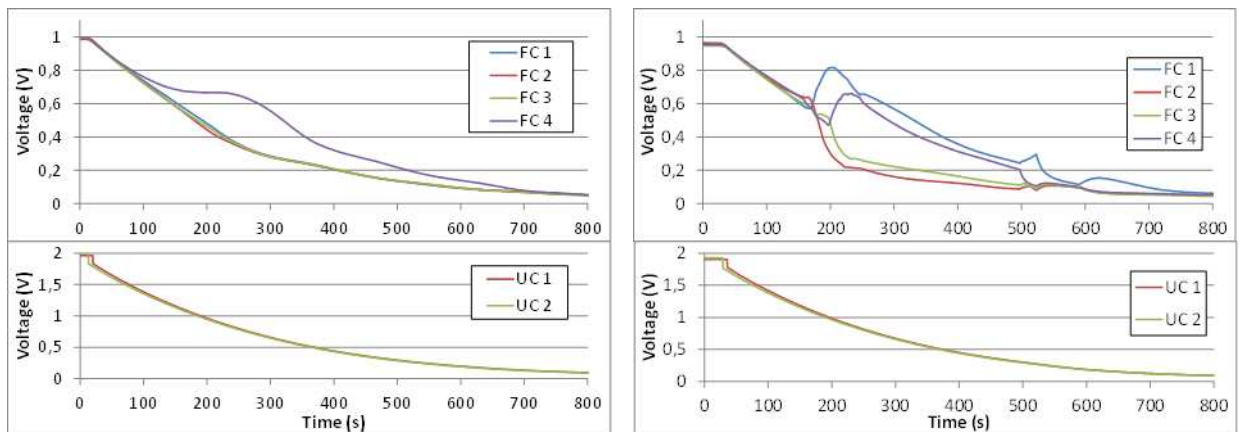
Plusieurs essais ont été réalisés dans cette optique. Au chapitre II, nous avons conclu que le balayage en azote d'une ou des deux électrodes ne permet pas de faire descendre le potentiel rapidement. En effet l'inertie sur la tension liée aux SC est conséquente.

Pour décharger le stockage, nous avons choisi de ne pas utiliser la charge active. Il y a risque de passer en tension négative sur les cellules si la quantité de courant prélevée est trop importante à cause de l'alimentation en série. Nous avons donc opté pour une décharge via une résistance de décharge connectée aux bornes de chaque SC ou aux bornes de l'ensemble des SC. Si l'on cherche à décharger les SC sans chasser les gaz actifs des PAC, ce sont elles qui vont fournir le courant à la résistance de décharge.

Etant données ces remarques, nous proposons de réaliser la décharge en deux étapes : la première où l'on chasse les gaz actifs à la cathode ou aux deux électrodes de la PAC pour les remplacer par de l'azote, la seconde où l'on décharge les SC via la résistance de décharge.

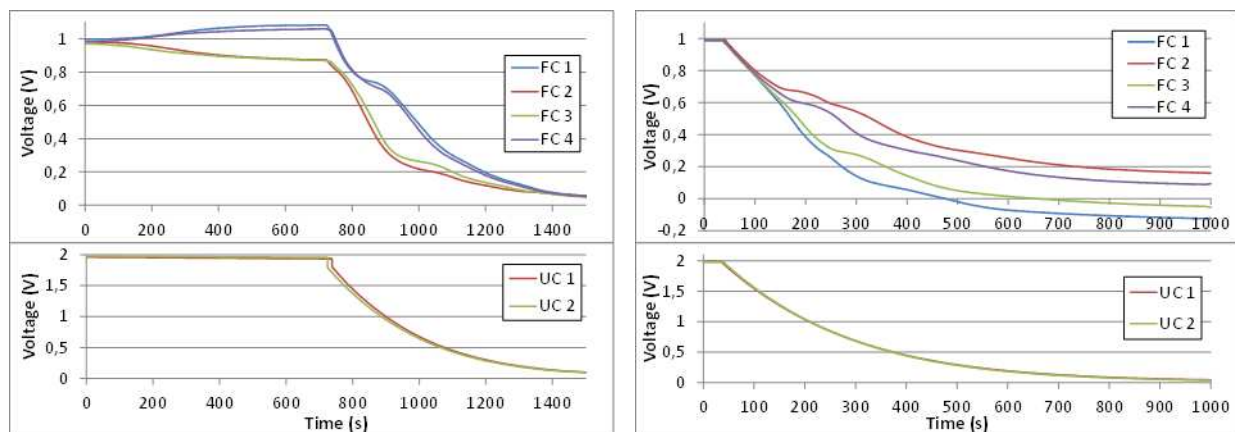
La **Figure III.49** montre différents essais réalisés pour la décharge du système 4PAC - 2SC. Ces essais ont été réalisés en même temps que les essais de précharge (**Figure III.39**) et avec les mêmes conditions, c'est-à-dire : à température ambiante, avec inertage uniquement de la cathode et une humidité non régulée.

La première phase d'inertage non représentée ici est un balayage à l'azote de la cathode aux débits indiqués. Durant cette première phase, aucune variation n'est perceptible sur les tensions. C'est pourquoi, lorsque l'on suppose qu'il n'y a plus de gaz actif à la cathode, des résistances sont connectées sur chaque SC. De manière générale, il s'écoule entre 5 et 10 minutes avant de considérer cette hypothèse établie.



a) Décharge sans point milieu, débit  $N_2$  cathode de 30mL/min/PAC

b) Décharge avec point milieu, variation du débit  $N_2$  à la cathode au cours de la décharge



c) Décharge avec point milieu de  $1\Omega$ , débit  $N_2$  cathode de 30mL/min/PAC d) Décharge avec point milieu, débits  $N_2$  anode et cathode resp. 50 et 75mL/min/PAC

**Figure III.49** : Décharge des SC du système 4 PAC — 2 SC à l'aide d'une résistance de décharge connectée aux bornes de chaque SC.

Dans la majorité des essais de décharge, le système se comporte bien : dans le sens où les tensions chutent simultanément et convergent vers 0V. Cependant dans quelques cas qui sont présentés ici, cela ne se passe comme dans le cas idéal. Les causes sont parfois obscures et le risque encouru sur la dégradation des PAC est méconnu mais possiblement important. Une tentative d'analyse est donnée dans les paragraphes qui suivent.

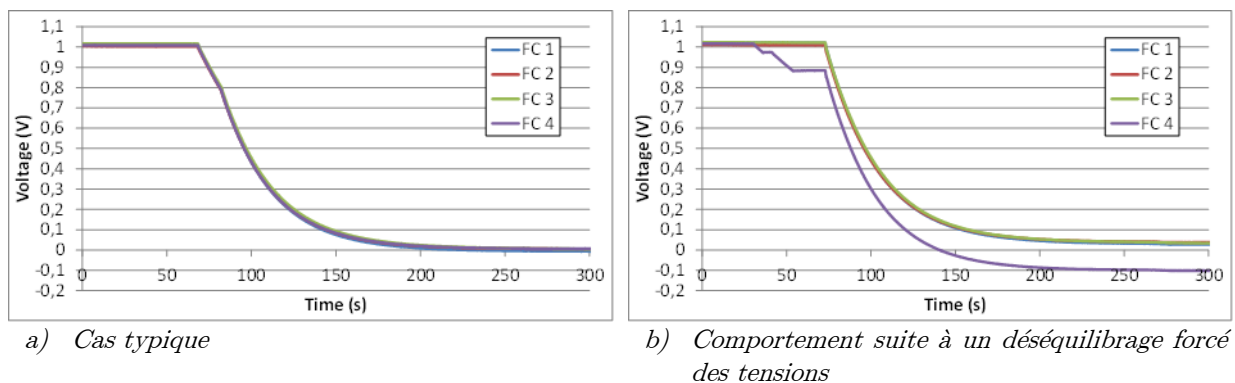
Dans la **Figure III.49.a)** (sans point milieu), on observe que si la tension d'une cellule chute, celles des autres montent et inversement. Ce sont les SC qui imposent la tension aux bornes des cellules. Comme pour la précharge, la somme des tensions des PAC est égale à la somme des tensions des SC. Le risque n'est pas de voir apparaître des tensions négatives mais plutôt des tensions positives élevées (3 cellules à 0Vdc et une à 4Vdc). Nous n'avons pas pu vérifier si ce risque est réel ou non.

Dans la **Figure III.49.b)** (avec point milieu), les débits d'azote sont placés initialement à 30mL/min/PAC. A un instant donné le débit de la PAC 1, puis celui de la PAC 4, sont augmentés à 75mL/min/PAC. On observe alors que les tensions de ces cellules montent au détriment de leur cellule associée. Malgré le fait que l'augmentation du débit assèche les membranes en question, cette augmentation a probablement permis à quelques molécules d' $O_2$  coincées hors de la zone active de se dégager et d'atteindre cette zone active pour en faire croître la tension. Enfin, toutes les tensions convergent vers zéro, ce qui est plutôt rassurant.

Dans l'essai de la **Figure III.49.c)**, la partie intéressante est que l'on observe un déséquilibre qui s'installe entre les cellules lors du balayage initial en azote. Simultanément deux cellules semblent aller vers l'OCV (qui se situent à environ 1,05V) et même un peu plus (la PAC 1 atteint 1,085V). Le fait que ces cellules divergentes soient identiques à celles du cas précédent ne semble pas lié puisqu'il s'est passé plusieurs essais (non présentés ici) entre ces deux, qui ont probablement rétabli l'équilibre entre l'humidité relative des membranes. En revanche, le point commun entre ces deux cellules est leur position extrême dans la mise en série pour l'hybridation, bien que cela ne semble pas permettre de justifier le phénomène. Dans

d'autres essais, on retrouve des cellules différentes soumises à ces variations : ce qui semble écarter l'hypothèse de la position des cellules comme cause. Ce phénomène ne semble pas lié à la résistance du point milieu car cela ne s'est pas produit sur d'autres essais. De plus, il est difficile de savoir si ces tensions auraient pu continuer à croître ou si, lors de la connexion des résistances aux SC, elles avaient atteint leur régime permanent. Enfin, toutes les tensions diminuent de manière à converger vers 0V. Ces essais ont été repris par la suite en remplaçant l'inertage de la cathode par celui de l'anode. On constate l'apparition de phénomènes identiques à ces 3 cas pour lesquels les causes ne sont pas claires.

Enfin, pour l'essai de la **Figure III.49.d**), la mise en gaz inerte a été appliquée simultanément à l'anode et à la cathode. Après l'attente d'un déséquilibre tel que celui observé dans la **Figure III.49.c**) qui n'est jamais apparu, les résistances sont connectées. Dans cet essai, le balayage en gaz a duré plus longtemps que les autres (environ 20 minutes). Au cours de la décharge, on observe que les tensions PAC se déséquilibrent comme pour les cas précédents, à la différence que ce déséquilibre n'est pas rattrapé. Ainsi lorsque les SC sont totalement déchargés, les tensions des PAC d'un même couple sont opposées avec une positive et l'autre négative : ce qui peut être dommageable sur la durée de vie des cellules.



**Figure III.50 :** Décharge des SC du système 4 PAC - 4 SC à l'aide d'une résistance de décharge aux bornes de l'ensemble des SC.

La **Figure III.50** illustre des décharges réalisées sur l'architecture 4PAC-4SC. De même que pour les cas précédents, un inertage est déclenché, puis après quelques minutes, une résistance est connectée aux bornes de l'ensemble des SC.

Etant donné le peu de disparités entre les modules SC, on observe des tensions toujours équilibrées qui baissent simultanément en convergeant vers 0V quelle que soit l'électrode inertée ou même pour l'inertage des deux (illustré sur la **Figure III.50.a**)).

En revanche si l'on part d'un état provoqué où un SC possède une tension plus faible que les autres (cas qui pourrait se produire si une cellule avait une tension à vide plus faible par exemple), on constate que l'ensemble des SC se décharge de la même manière jusqu'à ce que la somme de leurs tensions soit nulle. Au final, on se retrouve avec une tension négative sur un module et légèrement positive sur les trois autres. Il en est de même pour les PAC. C'est un cas proche de celui observé à la **Figure III.49.d**).

En résumé de cette partie : étant donné le caractère aléatoire de certains phénomènes, les causes qui ne sont pas bien identifiées et les risques potentiels sur l'état de santé des cellules liés à l'application de tensions négatives (la littérature est très maigre sur le sujet), il est difficile d'établir un protocole de décharge du système sain. Par mesure de précaution, nous préférons éviter l'application de tensions négative sur les cellules.

Pour une architecture où chaque PAC possède son SC (4PAC-4 SC), il semblerait que la méthode la plus saine et proposant la décharge la plus maîtrisée soit de décharger chaque module SC indépendamment. Ainsi on s'assure de ne pas avoir de tensions négatives sur les cellules et que chacune atteigne 0V. Cependant ce principe de décharge et cette architecture semblent contraignants à installer sur un système industriel : doubler le nombre (et le coût) des SC pour obtenir au final une capacité de stockage divisée par 2, implanter un système de décharge sur chaque module et donc un jeu d'interrupteurs commandés sur chacun... Avec une telle architecture, on retrouve pratiquement les mêmes inconvénients que ceux dans l'association d'un système PAC autonome avec un système SC autonome lui aussi (avec ses circuits d'équilibrage).

Cependant, avec ce type architecture (4PAC — 4SC), le fait de laisser les SC chargés lors de la mise hors tension ne risque pas de faire apparaître des tensions plus élevées sur les PAC, mais le risque reste de consommer du carbone. D'un autre côté, il ne semble pas raisonnable de laisser une architecture 4PAC - 2SC sous tension et gaz inertes puisque des déséquilibres peuvent apparaître.

Pour le cas 4PAC — 2SC, l'inertage d'une seule électrode semble la meilleure solution, l'inertage des deux électrodes ayant créé des déséquilibres lors de la décharge (cf. **Figure III.49.d**).

Pour le cas 4PAC — 4SC, il ne semble pas y avoir d'impact particulier sur ce sujet. Peut-être que le nombre d'essais réalisés n'a pas été suffisamment grand pour avoir un effet statistique sur les phénomènes aléatoires. Une fois les gaz actifs chassés, le risque pour l'état de santé de la PAC est lié à la tension appliquée aux différentes électrodes ; pour les tensions positives, la corrosion du carbone est la principale réaction parasite dégradante. Cette corrosion ne peut se produire qu'au-dessus de 0,207V, et elle commence à prendre des proportions importantes au-delà de 0,8V (cf. chapitre II).

La méthode proposée est donc de faire descendre la tension de l'ensemble en s'arrêtant dès qu'une des tensions de SC approche le 0V. Dans ce cas, la plupart des autres cellules devraient être placées hors de portée d'une dégradation importante du carbone ; l'énergie stockée est alors très faible et les SC finiront leur décharge naturellement à travers les PAC ou leur autodécharge.

Il faut tout de même garder en tête que, pour nos essais, dans la majorité des cas (tous ne sont pas présentés ici), la décharge s'est produite sans encombre et toutes les tensions convergent vers 0V. L'inversion du signe de tension ne s'est produite que dans des cas

particuliers : émulation de défaut de tension à vide sur une cellule ou inertage des deux électrodes pour l'architecture 4PAC — 2SC. En revanche, nous ne savons pas si, pendant la phase d'inertage et avant la phase de décharge dans le cas 4PAC-2SC, un déséquilibre d'une cellule peut entraîner une tension de +2V sur une cellule et 0V sur l'autre avec 2V pour le SC associé.

### 3.4 Conclusion

L'idée reçue que, lors d'échelons de courant, les courants entre PAC et SC se partagent selon le rapport des résistances internes des composants ( $\Delta I_{PAC} = (R_{SC} / (R_{PAC} + R_{SC})) \cdot \Delta I_{CHARGE}$  et  $\Delta I_{SC} = (R_{PAC} / (R_{PAC} + R_{SC})) \cdot \Delta I_{CHARGE}$ ) n'est pas vérifiée. Les courants se partagent avec deux constantes de temps (de l'ordre de la ms et de l'ordre de la s) selon un chemin qui sera exploré plus en détail par simulation dans le chapitre IV. À l'avantage de l'hybridation, la partie « visible » (lorsque l'on ne zoome pas à la ms) du partage des courants s'effectue en fonction du comportement quasi-statique de la PAC : ce qui améliore favorablement la répartition comparée à l'idée reçue précédente.

Concernant la mise en œuvre, il existe des défis au principe d'hybridation directe proposé. Tout d'abord sur un aspect thermique, tant que la PAC est maintenue à température relativement élevée (proche de 70°C), il est difficile d'y placer un ou plusieurs SC au plus proche étant donnée la chaleur conduite par les connecteurs en cuivre. Il est fort probable que dans ces conditions, la durée de vie des SC soit mise à rude épreuve. Il faudrait soit envisager des connecteurs conducteurs électriques mais isolants thermiques (ce qui n'est pas courant), soit envisager l'éloignement des SC par rapport à la PAC (dans ce cas la symétrie du système est à prendre en compte).

Concernant les phases de démarrage, la solution par connexion directe (PAC déjà sous gaz actifs, SC déchargés) ne semble pas raisonnable. Les appels de courant mis en jeu dans ce cas, autant sur la PAC que sur les SC, risquent d'avoir un impact sur leurs durées de vie si l'action est répétée régulièrement. Une solution est de limiter un des deux débits des gaz réactif pour limiter ce courant d'appel

L'association de plusieurs cellules PAC par SC exige tout de même quelques précautions lors des phases de mise en gaz et d'arrêt pour un système connecté directement (sans contacteur intermédiaire). Tandis que, pour l'association d'une cellule PAC par cellule SC, peu de précautions sont nécessaires. Les principaux risques lors des phases de mise en gaz et arrêt pour un système à 1 PAC par SC et un système à 2 PAC par SC, qui ont été relevés lors de ces essais, sont donnés dans le **Tableau III. 3**. Rappelons que ces risques sont potentiels et pas toujours réels et qu'il pourrait être possible de mettre en place des systèmes ou des procédures simples permettant de réduire ces risques que nous n'avons pas imaginés. Également, il faut garder en tête que d'autres intérêts se dégagent d'un système à 2 PAC par SC tel qu'une meilleure répartition des courants ou une meilleure utilisation énergétique des SC. Il y a la possibilité que les phénomènes observés ne soient pas tous dégradants pour les cellules,



cependant notons que la solution avec une PAC par SC et une résistance de décharge par SC semble éviter les risques d'apparitions de tension négatives ou trop élevées sur les PAC, de courants à travers de PAC sous gaz inactifs et les phénomènes de « rejets » de tension déjà mentionnés. Remarquons que cette dernière solution est un des montages principaux mis en œuvre par Nissan<sup>®</sup>, brièvement détaillé dans le chapitre 1 et breveté dans [NIS-05].

Constat sur les PAC	Montage	Phase	Solution proposée
Tensions négatives	• 2 PAC / SC	• Mise en gaz	• Associer 1 PAC par SC
Courants circulant dans une PAC sans gaz actif	• 2 PAC / SC	• Mise en gaz	• Associer 1 PAC par SC
Courant important dans le point milieu	• 2 PAC / SC • 1 PAC / SC	• Mise en gaz	• Le dimensionner en fonction • Accepter un dépassement durant quelques secondes
Tensions élevées	• 2 PAC / SC	• Inertage	• Associer 1 PAC par SC
Tensions négatives	• 2 PAC / SC • 1 PAC / SC	• Décharge dans R	• Décharger les SC avec une résistance par SC
Des tensions « rejetées » d'une PAC sur l'autre	• 2 PAC / SC	• Mise en gaz • Inertage • Décharge	• Associer 1 PAC par SC

Tableau III. 3 : Principaux constats relevés pendant les essais lors des phases de mise en gaz et arrêt pour les montages à 1 PAC par SC et un système à 2 PAC par SC

Hormis ces aspects, des outils et méthodes ont été mis en place pour aider à dimensionner une association directe de PAC et de SC valable quelle que soit l'architecture employée :

- le « saut du point de fonctionnement » nous renseigne sur les variations maximales que pourra subir la PAC,
- l'utilisation des plans de Ragone permet de retrouver les courants et tensions des éléments dans certains cas.
- La distinction du comportement de l'ensemble hybridé en 4 zones permet de situer une zone où l'hybridation sera optimale pour un couple PAC/SC.

Enfin, rappelons que les objectifs d'une hybridation directe sont :

- Réduire/supprimer les recommandations liées au  $dI/dt$  pour l'utilisation de la PAC
- Simplifier la mise en œuvre des auxiliaires, moins d'exigences sur leur rapidité
- Eviter le surdimensionnement de la PAC (pour un profil chahuté)
- Simplification du système : minimisation du nombre de CVS, pas de gestion du stockage (autogéré par la PAC)
- Améliorer le caractère source de tension de la PAC
- Augmenter la durée de vie de la PAC sur une utilisation en profil « intermittent »

La suppression des  $dI/dt$  infinis sur la PAC n'est pas possible par l'hybridation directe si l'ensemble est soumis à des échelons. En revanche, on est capable de les quantifier et de les borner. On est capable également de prédire les  $dI/dt$  maximum que subira la PAC hybridée directement après le saut du point de fonctionnement. Ce qui peut permettre, par un choix adéquat d'association de PAC et de SC, de soulager les auxiliaires tels que les régulations de pression, de débit et surtout le compresseur dans le cas d'une PAC H<sub>2</sub>/Air.

L'hybridation directe permet à l'utilisateur d'effectuer des profils chahutés, voire des échelons de courant sans risques (ou du moins avec des risques limités) pour la PAC et son environnement, avec une réduction sur la variation de tension en sortie occasionnée.

Une réduction des contraintes mécaniques liées aux variations de pression au niveau de la membrane, lors de l'application d'un profil « intermittent », devrait pouvoir en augmenter la durée de vie. Mais dans quelle mesure ? Une comparaison de durée de vie d'une PAC hybridée et une non hybridée sur des essais d'endurance serait nécessaire pour confirmer et quantifier cet aspect.

La modélisation du système doit pouvoir nous donner une première idée sur le fonctionnement intime de la PAC lors de différents profils de courant dans le cas hybridé (et dans le cas non hybridé). Elle doit aussi nous permettre de rechercher les paramètres pouvant être témoins de cette usure que l'on pourra suivre lors d'essais d'endurance. C'est l'objet du chapitre suivant.



# CHAPITRE IV

Simulation et analyse d'une  
hybridation directe

Les chapitres II et III ont porté sur une analyse par l'expérimentation de l'hybridation directe d'une ou plusieurs cellules PAC, avec un ou plusieurs SC.

Des explications théoriques ont été apportées dès que cela était possible. Malgré tout, il nous est apparu nécessaire de mettre en place une simulation de l'hybridation directe afin de confirmer ces éléments de théorie et de pouvoir pénétrer artificiellement au sein des différentes couches de la PAC. Il s'agit aussi de saisir cette occasion pour mettre à l'épreuve le modèle dynamique fort signal, et la paramétrisation associée, développées au laboratoire depuis plusieurs années. Concernant les supercondensateurs, l'expérience du laboratoire étant beaucoup plus limitée, nous nous appuyerons sur les modèles de la littérature. Enfin, nous considérerons le câblage qui joue un rôle prépondérant comme cela a été illustré à plusieurs reprises au chapitre III.

Nous exposerons successivement la modélisation de chacun des éléments (PAC, SC, câblage) avant de nous lancer dans la simulation à proprement parler. Ces simulations se « limiteront » au cas de l'association de 2 cellules PAC et 2 SC avec ou sans point milieu.

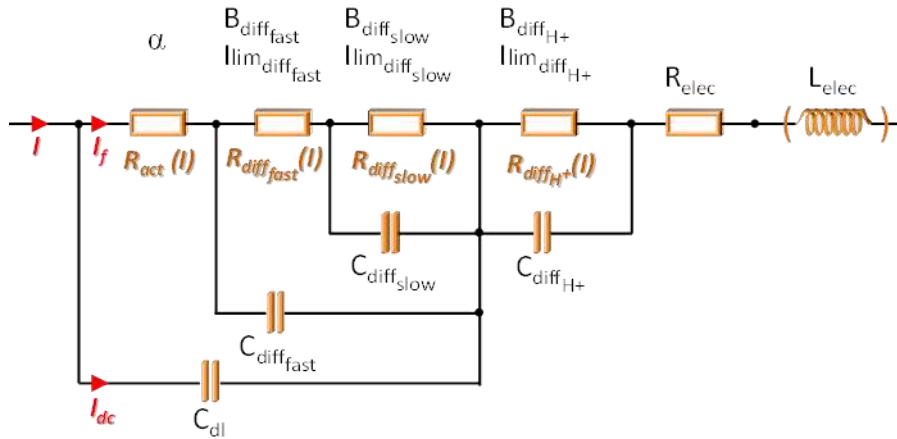
## ***4.1 Modélisation et paramétrisation associée d'une cellule PAC***

Le modèle et l'approche de paramétrisation associée qui seront utilisés résultent de nombreux travaux antérieurs réalisés au laboratoire. Ils ont été formalisés dernièrement dans [RAL1-11]. Nous invitons le lecteur à consulter cette référence pour les détails. L'approche globale utilisée a fait ses preuves appliquée au cas de la PAC H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>, de la PAC H<sub>2</sub>/Air et de l'électrolyseur PEM. C'est pourquoi nous la reprenons dans la présente thèse.

Le temps imparti ne nous a pas permis de consacrer toute la durée voulue pour effectuer cette tâche qui a fait l'objet d'un stage de Master Recherche en parallèle de la dernière année de cette thèse. Ainsi, une partie de ce qui est présenté dans cette section, de même que les simulations proposées dans les sections suivantes, s'inspireront très largement des travaux de Dies Van Laethem et de son rapport [LAE-12].

### **4.1.1 Rappel du modèle dynamique fort signal d'une PAC et du modèle d'impédance qui en découle**

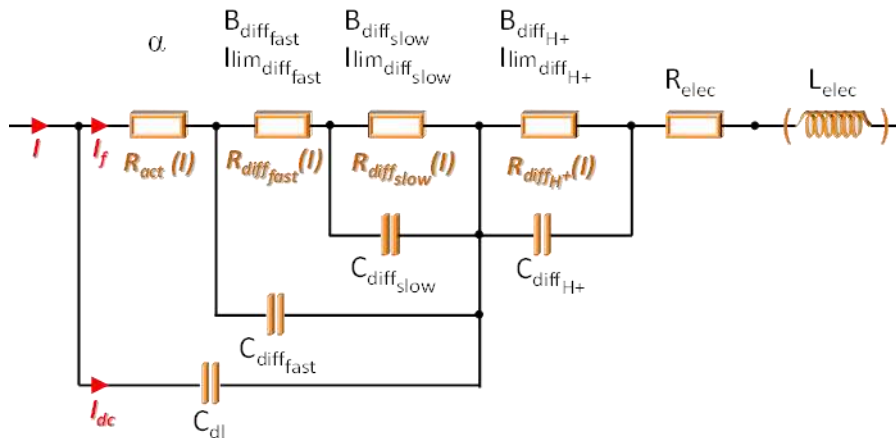
Le modèle dynamique fort signal que nous allons utiliser est rappelé sur la *Figure IV.1*. Il est introduit plus précisément dans l'Annexe 1. Comme déjà signalé, il est présenté plus en détail dans [RAL1-11].



**Figure IV.1** : Modèle dynamique fort signal utilisé avec la liste des paramètres à identifier pour chaque phénomène (notés en noir).

Notre objectif est de déterminer les 15 paramètres (si l'on inclut  $L_{elec}$ ) représentés sur la **Figure IV.1** associés aux phénomènes d'activation, de diffusion des espèces et aux pertes de conduction des charges. Parmi ces paramètres, quatre (les  $C_{diff\ XXX}$  et  $C_{dl}$ ) concernent les aspects dynamiques et tous les autres l'aspect statique.

Dans sa première étape, la méthodologie utilisée pour la paramétrisation de ce modèle reposera sur le modèle d'impédance de la PAC. Ce modèle est obtenu par dérivation de ce modèle dynamique fort signal (seuls les termes du 1<sup>er</sup> ordre sont conservés ; les termes croisés sont négligés). Le modèle d'impédance obtenu est présenté sur la **Figure IV.2**. Toutes les formules définissant les différents paramètres sont détaillées dans l'Annexe 1.



**Figure IV.2** : Modèle d'impédance de la PAC utilisé avec la liste des paramètres à identifier pour chaque phénomène (notés en noir).

Dans [RAL1-11] ce modèle est également appelé « modèle petit signal » car il illustre le comportement dynamique de la PAC pour de faibles excitations en courant autour d'un point de fonctionnement.

Sur la **Figure IV.2**, nous pouvons constater que, suite à l'opération de dérivation, les différentes sources de courant pilotées en tension deviennent alors des résistances puisqu'une

relation de type ohmique relie désormais tension et courant. Ces résistances sont fonction du point de fonctionnement (du courant plus exactement) et varient donc tout au long de la courbe de polarisation (cf. Annexe 1).

Les sources  $E_{rev}$  et  $I_n$  disparaissent en revanche lors de la dérivation ainsi que la dépendance des pertes d'activation au courant d'activation  $I_0$ .

Lorsque l'on observe des spectres d'impédance réels, des non linéarités apparaissent clairement (les demi-cercles théoriques attendus pour chaque couple R//C sont plus ou moins fortement déformés). Ces non linéarités sont à relier notamment aux réseaux de pores qui existent au niveau des électrodes. Ils peuvent aussi matérialiser des couplages dynamiques plus ou moins complexes entre les différents phénomènes. Afin de considérer ces non-linéarités, des puissances non entières sont introduites au niveau de l'impédance de chaque phénomène (cf. Annexe 1) conformément à [RAL1-11]. Nous introduisons alors quatre nouveaux paramètres qu'il s'agira également d'identifier :  $pne_{act}$ ,  $pne_{diffslow}$ ,  $pne_{diffast}$ ,  $pne_{diff H+}$ .

Une puissance non entière égale à 1 correspondra à un R//C idéal (demi-cercle parfait dans le plan de Nyquist). Une puissance non-entière égale à  $\frac{1}{2}$  correspondra à une infinité de circuits R//C (demi-cercle qui se déforme progressivement pour tendre aux HF vers une droite de pente  $45^\circ$  dans un plan de Nyquist normalisé).

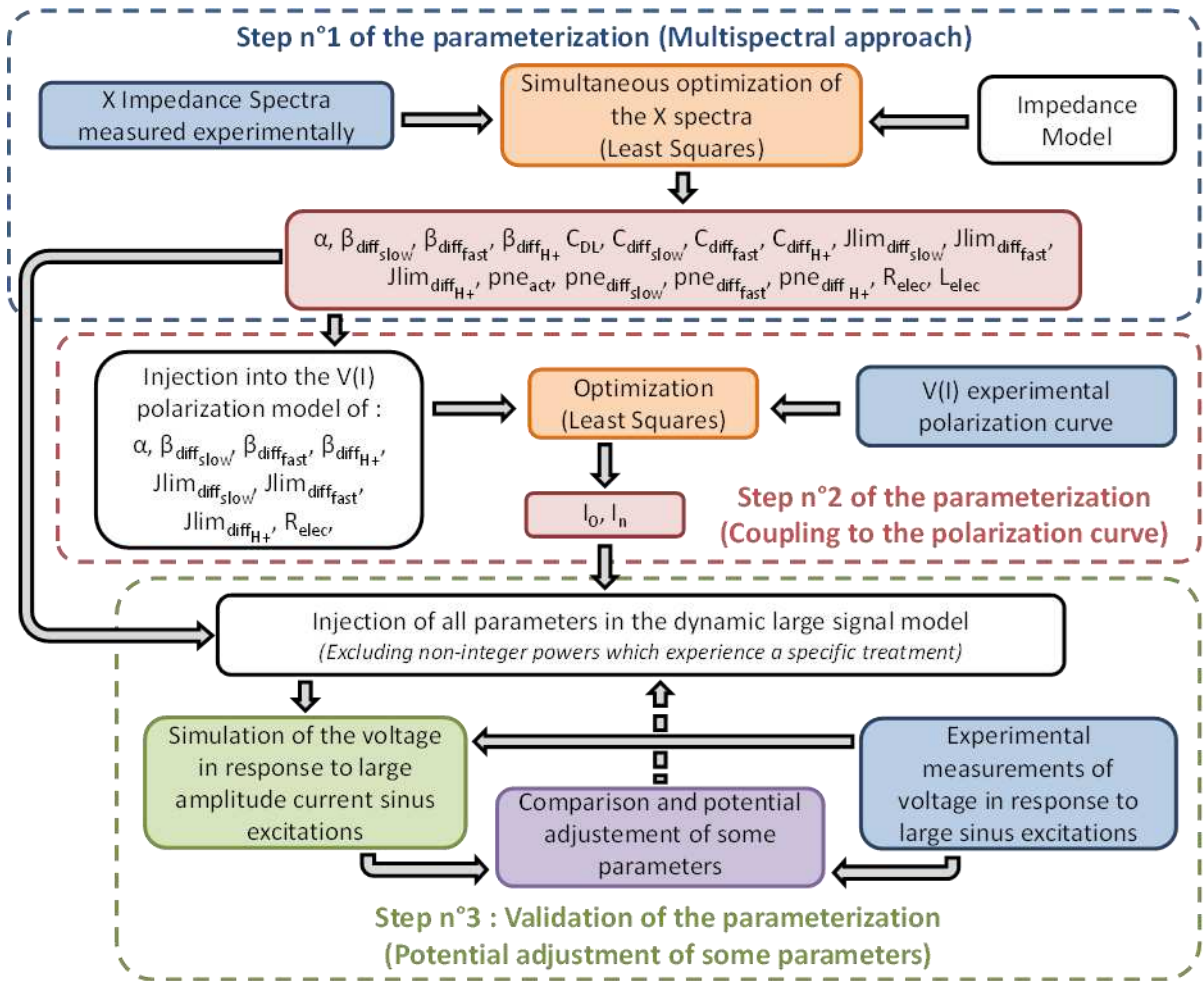
Ces puissances non-entières auront assez peu d'impact aux basses fréquences. Elles seront négligées pour le régime quasi-statique et considérées de manière très simplifiée dans notre modèle dynamique fort signal. Cela pourrait constituer une piste d'amélioration si nécessaire dans le futur.

Finalement, nous avons 19 paramètres à identifier pour bien modéliser le comportement dynamique de la PAC sur une échelle fréquentielle très large, ainsi que le comportement statique.

#### 4.1.2 Procédure de paramétrisation du modèle dynamique fort signal suivie

Comme nous venons de le voir au paragraphe précédent, nous avons à identifier des paramètres statiques et dynamiques pour pouvoir simuler le modèle dynamique fort signal. Nous allons appliquer, pour cette thèse, la méthodologie qui a été proposée et validée dans [RAL1-11]. Signalons que cette méthodologie a été également reprise et validée avec succès dans [ZEI-11].

La méthodologie utilisée est présentée sur la *Figure IV.3*.



**Figure IV.3 :** Procédure de paramétrisation et de validation du modèle dynamique fort signal d'une PAC utilisée.

La méthodologie utilisée est présentée sur la **Figure IV.3** : elle comporte 3 étapes :

- **Première étape (approche multispectre) :** elle s'appuie sur le modèle d'impédance présenté au paragraphe précédent et détaillé en Annexe 1. Comme les grandeurs de ce modèle d'impédance s'adaptent intrinsèquement au courant débité par la PAC ( $R_{act}(I)$ ,  $R_{diffslow}(I)$ ,  $R_{difffast}(I)$ ,  $R_{diffH+}(I)$  et  $R_{elec}(I)$ ), l'approche consiste à identifier par optimisation, à l'aide de plusieurs spectre expérimentaux, un jeu unique de paramètres permettant de tous les décrire. C'est ce qui est appelé « approche multispectre » ans [RAL1-11]. Nous verrons plus loin que le nombre de spectres expérimentaux retenus influe sur la qualité de la paramétrisation. L'optimisation qui est réalisée l'est, en fait, plus exactement sur les parties réelles et imaginaires du modèle d'impédance. Elles sont détaillées, notamment leurs liens avec les différents paramètres et le courant, en Annexe 1. A l'issue de cette première étape, pratiquement tous les paramètres ont été déterminés (cf. **Figure IV.3**)
- **Deuxième étape (couplage à la courbe de polarisation) :** comme vu au paragraphe 4.1.1, certains paramètres disparaissent lors de l'étape de dérivation du modèle fort signal afin d'obtenir le modèle d'impédance. Dans notre cas, exactement deux paramètres disparaissent : le courant d'activation  $I_0$  et le courant parasite interne  $I_n$ .



Nous sommes alors contraints de recourir à la courbe de polarisation pour déterminer les derniers paramètres. Tous les paramètres statiques identifiés, lors de la première étape (cf. *Figure IV.3*), sont d'abord injectés dans le modèle quasi-statique. On procède ensuite à une optimisation sur  $I_0$  et  $I_n$  afin de minimiser l'écart entre ce modèle partiellement paramétré et la courbe de polarisation expérimentale. A l'issue de cette deuxième étape, tous les paramètres du modèle dynamique fort signal ont été identifiés.

- **Troisième étape** (validation du modèle, ajustement éventuel de quelques paramètres) : Notre modèle dynamique fort signal est essentiellement paramétré à partir de caractérisations dynamiques petit signal. L'approche multispectre revient en effet à appréhender le comportement fort signal de la PAC, de proche en proche, à partir des comportements dynamiques petit signal tout au long de la courbe de polarisation. Cette troisième étape a pour objectif de valider que le modèle ainsi paramétré permet bien de prédire le comportement dynamique de la PAC pour des excitations en courant de fortes amplitudes. Comme cela est détaillé sur la *Figure IV.3*, tous les paramètres identifiés lors des étapes 1 et 2 (à l'exception des puissances non-entières) sont injectés dans le modèle dynamique fort signal. Plusieurs simulations sont alors réalisées à partir de courants sinusoïdaux de larges amplitudes expérimentaux. Les réponses en tension du modèle sont ensuite comparées à celles mesurées expérimentalement. Le cas échéant, comme dans [RAL1-11], certains paramètres peuvent être légèrement ajustés pour affiner le comportement du modèle.

#### 4.1.3 Protocole expérimental pour obtenir les données expérimentales nécessaires à la paramétrisation du modèle dynamique fort signal

La méthodologie de paramétrisation que nous allons appliquer requiert de nombreux relevés expérimentaux : courbe de polarisation, spectres d'impédance le long de cette courbe de polarisation et balayages sinusoïdaux en courant de fortes amplitudes à différentes fréquences.

Comme de multiples campagnes sont envisagées, il s'agit d'établir un protocole expérimental clair, répétable et d'une durée raisonnable. Ce protocole, non explicité en détails dans [RAL1-11], est détaillé dans l'annexe 2. Il a été appliqué dans la présente thèse à des monocellules  $H_2/O_2$  de  $25\text{ cm}^2$  dont l'humidité des gaz n'est pas régulée, et dont les débits de fuite sont fixes. L'utilisation d'un débit de fuites fixe est un choix peu usuel. Il résulte d'un compromis (débattu dans le chapitre III) entre le matériel utilisé et l'exigence d'une reproductibilité des essais.

La philosophie de ce protocole, détaillée en Annexe 2, peut tout à fait être réutilisée pour d'autres technologies de piles telles que des PAC alimentées en  $H_2$ /Air, monocellules ou stacks.

Notre protocole d'essais est résumé, pour partie, sur la *Figure IV.4*.

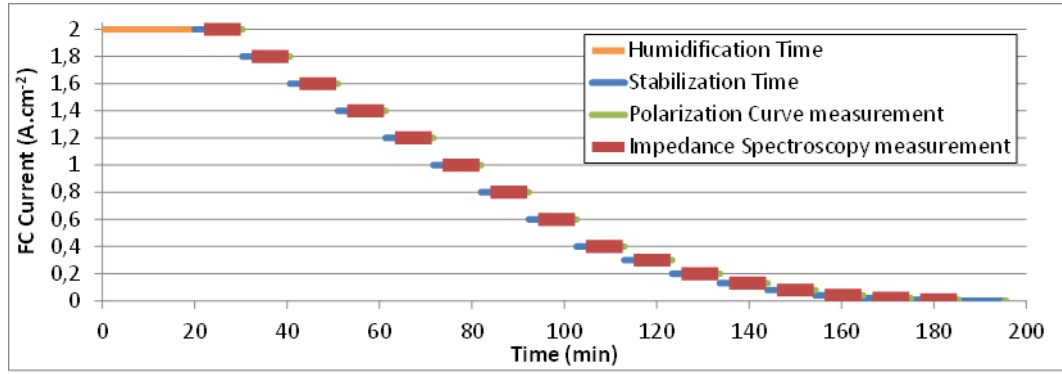


Figure IV.4 : Tracé temporel du protocole de caractérisation.

Nous traçons la courbe de polarisation par escaliers de courant. A chaque palier, nous effectuons une spectroscopie d'impédance. Au total 16 spectres seront tracés et la courbe de polarisation comportera 17 points. Les spectroscopies d'impédance sont des spectroscopies entrelacées [PHL-09] afin d'évaluer la stabilité du point de fonctionnement pendant les mesures. Le domaine fréquentiel est parcouru dans le sens décroissant de 50kHz à 10mHz par répartition logarithmique.

Pour les balayages sinusoïdaux en courant de forte amplitude, les fréquences suivantes ont été considérées : 1mHz, 2mHz, 5mHz, 10mHz, 20mHz, 50mHz, 100mHz, 200mHz, 500mHz, 1Hz, 2Hz, 5Hz, 10Hz, 20Hz, 50Hz, 100Hz, 200Hz, 500Hz.

Au regard du très grand nombre de caractérisations à réaliser et à répéter, tout le protocole a été automatisé.

#### 4.1.4 Application de la première étape d'identification des paramètres du modèle : approches multispectres d'impédance.

##### 4.1.4.1 Paramètres à identifier

La caractérisation ayant été effectuée sur plusieurs points de courant, on cherche à optimiser un seul jeu de paramètres constants. Cette approche est bien justifiée parce qu'on a fait l'hypothèse pendant la modélisation que les paramètres sont indépendants de la densité de courant.

Cependant, l'expérience du laboratoire a montré que la dépendance vis-à-vis du point de fonctionnement pour certains paramètres est nécessaire dans l'absolu. Les seuls paramètres qui sont identifiés avec une dépendance supposée au courant seront la résistance ohmique et les différents courants limites.

Le critère d'optimisation choisi est un critère du type « moindres carrés » qui cherche à minimiser la fonction de l'Equation (IV.1) :

$$\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \frac{(Z_{mes,ij}^{Re} - Z_{mod,ij}^{Re})^2}{(\max(Z_{mes,i}^{Re}))^2} + \frac{(Z_{mes,ij}^{Im} - Z_{mod,ij}^{Im})^2}{(\max(\text{abs}(Z_{mes,i}^{Im})))^2} \quad ; \quad \text{Equation (IV.1)}$$

Où “ $n$ ” désigne le nombre de points de fonctionnement considérés et “ $m$ ” est le nombre de points expérimentaux par point de fonctionnement, donc le nombre de fréquences excitées. “ $Re$ ” indique la partie réelle, “ $Im$ ” la partie imaginaire, “ $mes$ ” une valeur mesurée et “ $mod$ ” une valeur calculée à partir du modèle.

La valeur absolue dans le deuxième dénominateur est nécessaire parce que la pile montre un comportement capacitif ou inductif, dépendant de la fréquence. La notation des différents paramètres pour la suite du chapitre est donnée dans le **Tableau IV.1**.

Paramètres constants				Paramètres fonctions du courant	
Paramètre	symbole	Paramètre	symbole	Paramètre	symbole
Coefficient d'activation	$\alpha$	Capacité équivalente de diffusion	$C_{diffH+}$	Résistance électrique	$R_{elec}$
Coefficient de diffusion des gaz dans la couche d'activation	$\beta_{diff}$ (eq. à $\beta_{diff fast}$ )	Puissance non-entière d'activation	$pne_{act}$	Courant limite de diffusion des gaz dans la couche d'activation	$J_{limdiff}$ (eq. à $J_{dim, diff fast}$ )
Coefficient de diffusion des gaz dans la couche de diffusion	$\beta_{diffle}$ (eq. à $\beta_{diff slow}$ )	Puissance non-entière de diffusion	$pne_{diff}$	Courant limite de diffusion des gaz dans la couche de diffusion	$J_{limdiffle}$ (eq. à $J_{dim, diff slow}$ )
Coefficient de diffusion protonique	$\beta_{diffH+}$	Puissance non-entière de diffusion	$pne_{diffle}$	Courant limite de diffusion protonique	$J_{limH+}$
Capacité de double couche	$C_{dc}$ (eq. à $C_{DL}$ )	Puissance non-entière de diffusion des protons	$pne_{diffH+}$		
Capacité équivalente de diffusion	$C_{diff}$ (eq. à $C_{diff fast}$ )	Inductance	$L$		
Capacité équivalente de diffusion	$C_{diffle}$ (eq. à $C_{diff slow}$ )				

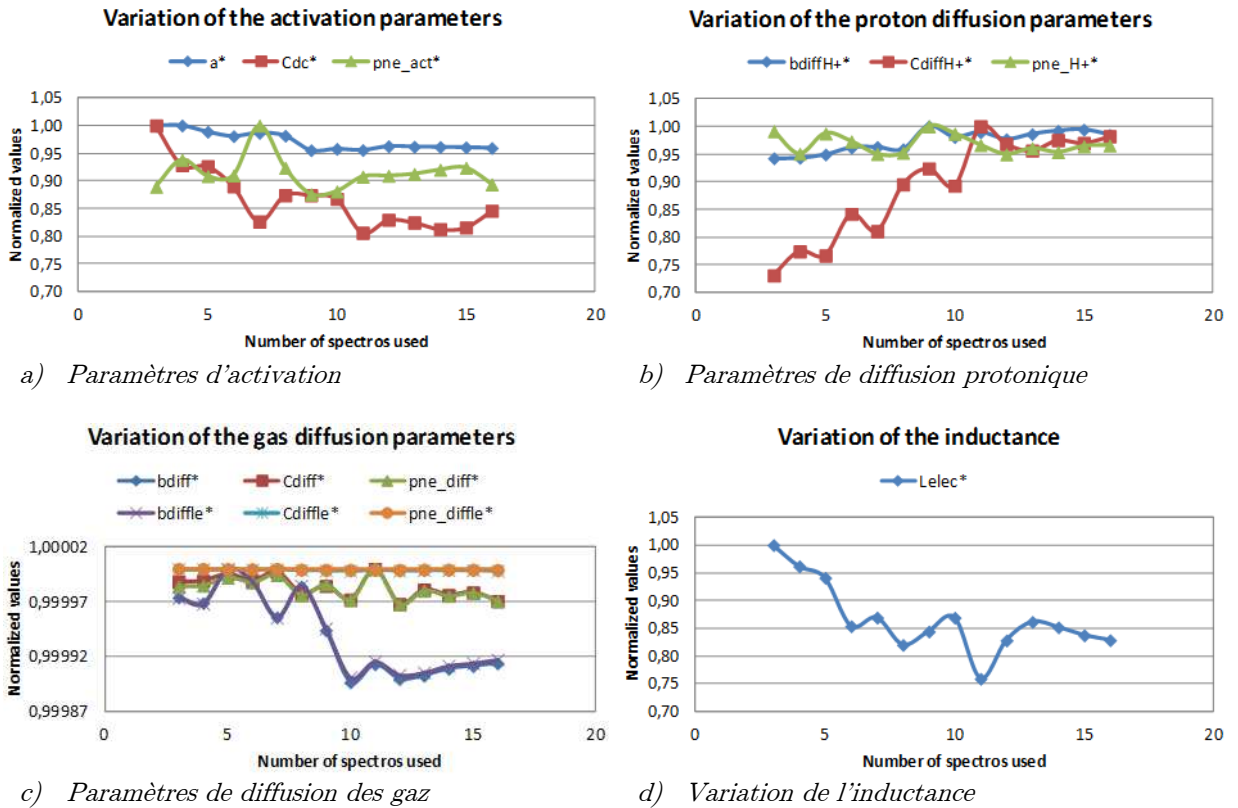
**Tableau IV.1 :** Paramètres constants et fonctions du courant identifiés par la méthode multispectre.

#### 4.1.4.2 Influence du nombre de spectroscopies d'impédance utilisées pour la paramétrisation.

Si nous voulons déterminer un jeu unique de paramètres constants, il est normal de se demander combien de spectroscopies d'impédance il faut prendre en compte afin d'assurer la convergence du jeu de paramètres.

Nous avons refait l'optimisation pour différents nombres de jeux de spectroscopies. Nous avons divisé chaque paramètre par sa valeur maximale rencontrée pendant les itérations afin de le rendre adimensionnel et de mettre tous les paramètres sur la même échelle. Ces paramètres normalisés sont indiqués par une étoile (\*).

La **Figure IV.5** montre le résultat des différentes optimisations pour une des deux monocellules. Chaque optimisation a démarré à partir des mêmes paramètres initiaux et les conditions de convergence étaient toujours les mêmes.



**Figure IV.5 :** Variation des paramètres constants en fonction du nombre de spectroscopies.

Il est clair que, même en tenant compte de 16 spectroscopies, les paramètres n'ont pas tous convergé vers des valeurs complètement figées. Le coefficient d'activation  $\alpha$  et les paramètres décrivant la diffusion des protons semblent converger à partir d'une douzaine de spectres. Par contre, les valeurs pour la capacité de double couche, la puissance non-entière d'activation et l'inductance ne semblent pas complètement stabilisées. Les paramètres de diffusion des espèces ne bougent quasiment pas. Mais nous ne pouvons absolument pas généraliser ce dernier résultat : ceci est une particularité pour les monocellules identifiées comme on le verra dans la prochaine section.

Tenant compte de ces résultats, nous avons effectué l'optimisation finale sur le maximum de spectroscopies, c'est-à-dire 16. Pour les futures identifications, nous conseillons de faire toujours une étude de convergence et d'enregistrer plus de spectroscopies si possible, car, de manière générale, plus il y aura de données, plus l'optimisation sera précise. De plus, certaines PAC n'ont pas la même forme spectrale que celles-ci, les conclusions peuvent être différentes.

#### 4.1.4.3 Paramètres identifiés à l'issue de l'approche multispectre

La **Figure IV.6** montre le résultat de l'optimisation sur quelques spectres d'une des deux monocellules. Pour les fortes densités de courant, nous remarquons immédiatement la présence d'un seul cercle de diffusion (aux fréquences balayées (cf. Annexe 2)) légèrement évasé. Comme évoqué dans les études précédentes du laboratoire, ce n'est pas le cas pour toutes les technologies de cellules. Il est donc normal que nous identifions des impédances de diffusion rapide et de diffusion lente particulièrement petites pour les monocellules caractérisées.

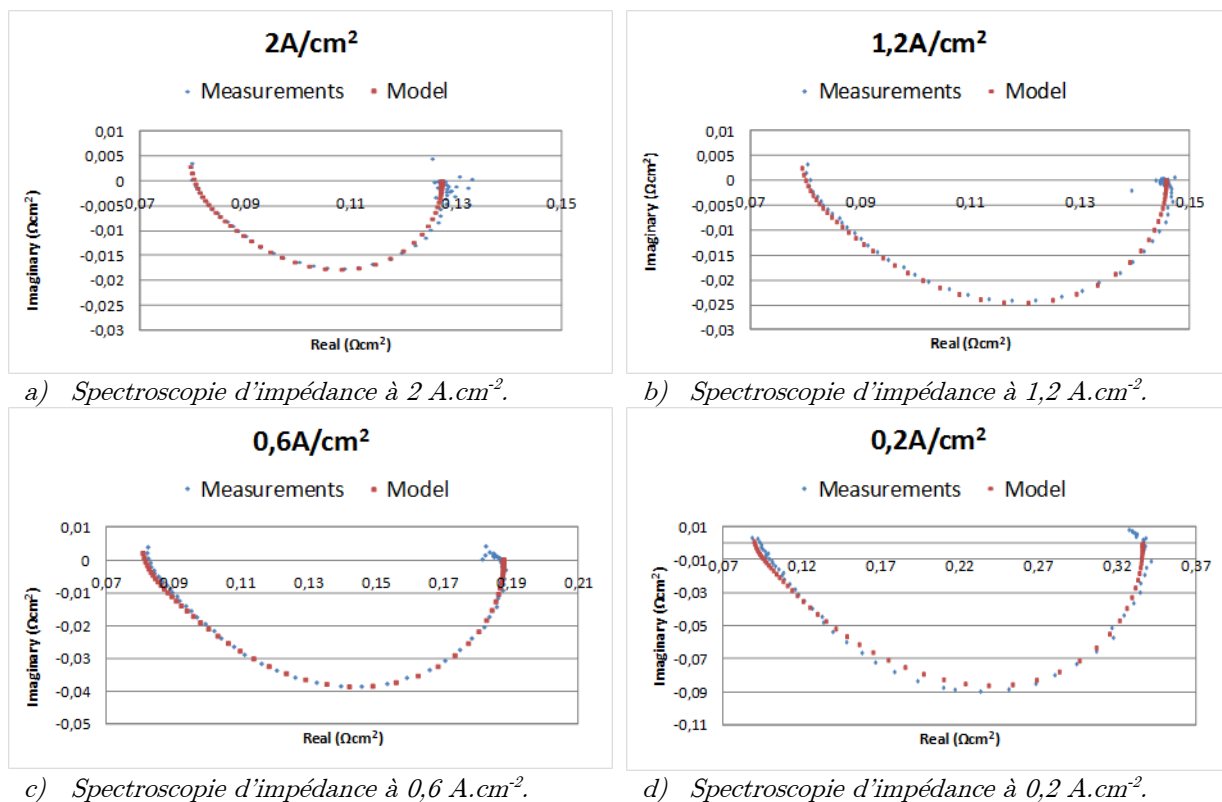


Figure IV.6 : Illustration de quelques résultats de l'optimisation multispectre pour la PAC2

On peut observer deux phénomènes anormaux illustrés en *Figure IV.7*.

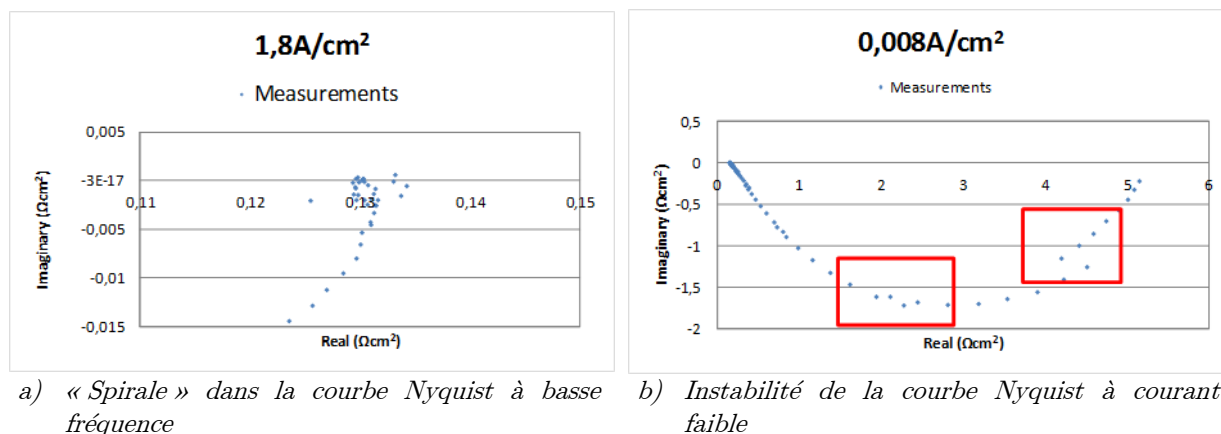


Figure IV.7 : Anomalies observées dans les spectroscopies

Pendant l'optimisation, tous les points de mesures ont été pris en compte, sauf les basses fréquences inférieures au premier point dont la partie imaginaire devient positive que nous avons à l'heure actuelle du mal à expliquer (*Figure IV.7.a*).

Le modèle utilisé ne permet pas de rendre compte de ce type de forme spectrale. L'impact de cette spirale étant très faible sur le comportement général de la cellule, le meilleur choix semble de ne pas en tenir compte.

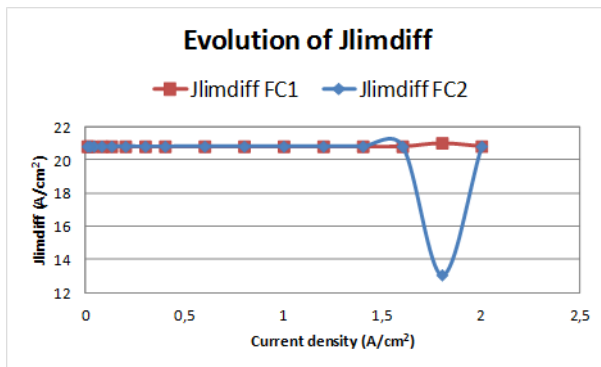
Nous avons choisi de ne pas supprimer les points instables (*Figure IV.7.b*), marqués par des « sauts » de la courbe Nyquist, puisque les supprimer consisterait à ne pas tenir compte

d'une partie importante des spectres à très bas courant. L'optimisation réalisée moyenne ces phénomènes dont une explication est proposée dans l'annexe 2.

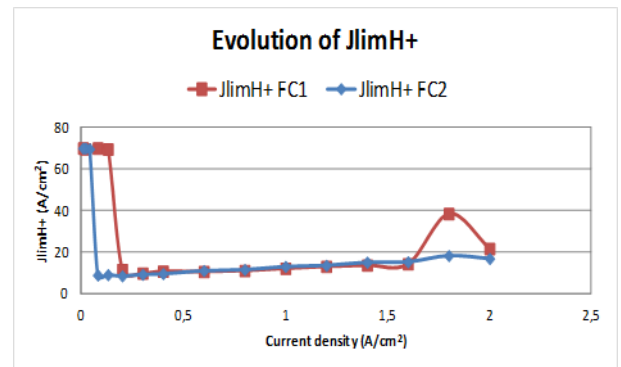
Le **Tableau IV.2** donne le résumé des paramètres constants identifiés. Le résultat de l'identification des paramètres dépendants du courant est représenté dans la **Figure IV.8**. Les impédances de diffusion très petites se manifestent par des coefficients de diffusion et des capacités équivalentes très élevées.

paramètre	PAC 1	PAC 2	unité
$\alpha$	0,3727	0,3791	$\emptyset$
$\beta_{diff}$	1010	1011	$\emptyset$
$\beta_{diffle}$	1051	1052	$\emptyset$
$\beta_{diffH+}$	0,03484	0,03106	$\emptyset$
$C_{de}$	0,02135	0,02779	F.cm <sup>-2</sup>
$C_{diff}$	39,67	39,67	F.cm <sup>-2</sup>
$C_{diffle}$	39,99	39,99	F.cm <sup>-2</sup>
$C_{diffH+}$	0,02891	0,02354	F.cm <sup>-2</sup>
$P_{ne act}$	0,6653	0,6259	$\emptyset$
$P_{ne diff}$	0,9897	0,9899	$\emptyset$
$P_{ne diffle}$	0,9999	0,9999	$\emptyset$
$P_{ne diffH+}$	0,3971	0,4211	$\emptyset$
$L$	6,467e-08	1,753e-08	H.cm <sup>2</sup>

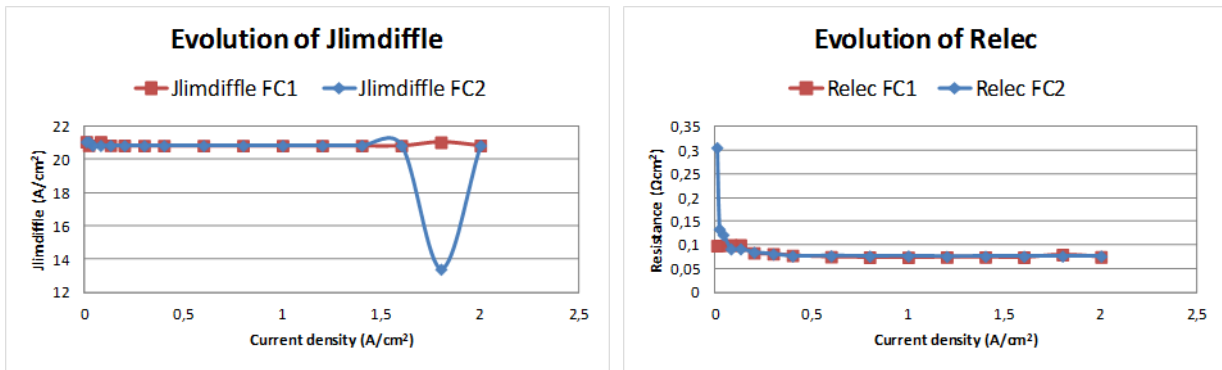
Tableau IV.2 : Paramètres constants identifiés pour les deux monocellules.



a) Evolution du courant de diffusion rapide.



b) Evolution du courant de diffusion protonique.



c) Evolution du courant de diffusion lente.

d) Evolution de Relec.

**Figure IV.8 :** Evolution des paramètres dépendants de la densité de courant pour les deux monocellules.

On constate une grande différence entre les résistances électriques  $R_{elec}$  des deux monocellules à basse densité de courant. Il faut signaler qu'à basse densité de courant, l'inductance de la PAC 1 n'est pas assez importante pour pouvoir déterminer la coupure du diagramme de Nyquist avec l'axe réel. Les valeurs identifiées ne sont pas obtenues par mesure directe mais par extrapolation, leur sens physique est limité.

Quant aux densités de courants limites de diffusion, l'identification donne lieu à des valeurs anormales à une densité de courant de  $1,8 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Ces points singuliers donnés par l'optimiseur rappellent que l'unicité de la solution n'est pas garantie dès que l'identification est réalisée à partir d'un seul spectre d'impédance. Il peut être difficile pour l'optimiseur de séparer les différents phénomènes de diffusion surtout si l'information contenue dans le spectre n'est que partielle.

Si nous lissons ces points singuliers, les résultats sont peu modifiés. Nous constatons que nous aurions pu considérer les courants limites comme constants quitte à avoir de l'imprécision sur les basses densités de courant. On peut tenir le même discours pour  $R_{elec}$ .

#### 4.1.5 Application de la seconde étape d'identification des paramètres du modèle : couplage à la courbe de polarisation.

Pour l'identification de  $J_n$  et  $J_o$ , plusieurs fonctions d'erreurs ont été essayées. En effet l'optimisation sur la courbe de polarisation avec tous les autres paramètres précédents déjà fixés ne permet pas de faire correspondre parfaitement modèle et mesure à la fois aux densités de courant faibles, moyennes et fortes. La fonction d'erreur retenue est celle donnée par l'**Equation (IV.2)** :

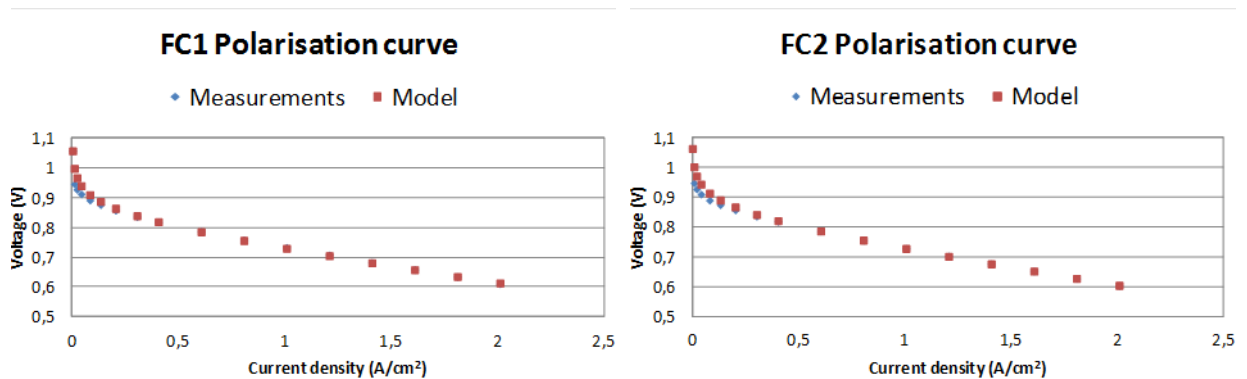
$$\frac{(V_{mes,1} - V_{mod,1})^2}{\max(V_{mes})^2} + \sum_{i=2}^n \frac{(J_{mes,i}(V_{mes,i} - V_{mod,i}))^2}{\max(V_{mes})^2} \quad : \quad \text{Equation (IV.2)}$$

Où “ $V$ ” représente la tension aux bornes d'une monocellule, “ $mes$ ” indique une valeur mesurée, “ $mod$ ” une valeur calculée par le modèle et “ $i$ ” est le numéro du point sur la courbe de polarisation ( $i=1$  représentant le point à densité de courant nulle et  $i=n$  le point à densité de courant max).

L'intérêt de cette fonction d'erreur pondérée par la densité de courant pour tous les points (sauf celui à densité nulle) est d'avoir à la fois une très bonne précision sur la tension à vide et sur les forts courants. Les paramètres ainsi obtenus sont donnés dans le **Tableau IV.3** et les courbes de polarisation en **Figure IV.9**.

paramètre	PAC 1	PAC 2	unité
$J_0$	8,363E-05	8,420E-05	A.cm <sup>-2</sup>
$J_n$	0,002408	0,002178	A.cm <sup>-2</sup>

**Tableau IV.3 :** Densités de courants d'activation et de courants parasite interne identifiés.



a) Courbe de polarisation de la PAC 1

b) Courbe de polarisation de la PAC 2

**Figure IV.9 :** Comparaison mesures/modèle pour les courbes de polarisation

#### 4.1.6 Implantation du modèle dynamique fort signal d'une cellule PAC

Nous avons implanté notre modèle de simulation dans le logiciel PSIM®. Tous les paramètres statiques et dynamiques constants, à l'exception des puissances non-entières, sont directement implantés à l'issue des deux étapes d'identification paramétrique précédentes.

En revanche la complexité du modèle ainsi défini nous amène à effectuer quelques simplifications supplémentaires sur les paramètres dépendants du courant. Ces simplifications (qui seront détaillées dans les paragraphes suivants) permettent de réaliser le modèle avec des éléments relativement usuels du logiciel de simulation de circuits électriques :

- Certaines puissances non-entières ont été fixées à 1.
- La résistance électrique est représentée par la plus petite des résistances identifiées par la méthode multispectre.
- Les densités de courants limites sont représentées par la moyenne des valeurs identifiées par la méthode multispectre.



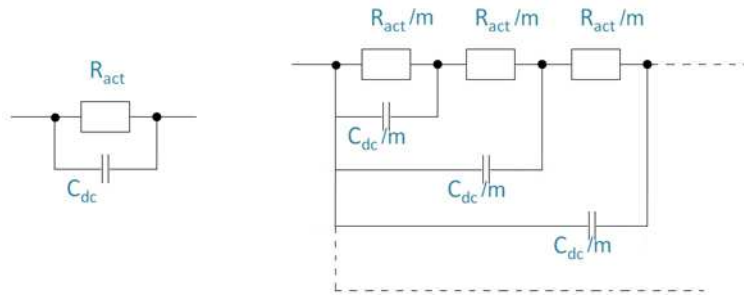
#### 4.1.6.1 Traitement des puissances non entière

Il est impossible de représenter une impédance à puissance non-entière par un circuit électrique avec un nombre fini d'éléments discrets. Par exemple, nous savons qu'une puissance 1/2 correspond à une ligne de transmission : c'est-à-dire une cascade infinie de dipôles RC, ou une imbrication infinie de dipôles élémentaires. Les puissances non entières très inférieures à l'unité sont  $p_{n_{act}}$  et  $p_{n_{diff\ H^+}}$ . Nous essayons de nous approcher de l'impédance théorique de la pile en distribuant les impédances d'activation et de diffusion protonique sur plusieurs couches. Il est inutile de tenter de distribuer les impédances de diffusion lente et rapide étant donné leur facteur de puissance obtenu très proche de l'unité ; de plus elles sont négligeables comparé aux autres mécanismes de pertes pour ces cellules.

Les valeurs des éléments R et C sont divisées par le nombre de couches retenues, comme illustré sur la **Figure IV.10**. Il ne faut pas perdre de vue que ce sont bien des sources de courant qui sont codées dans le modèle de simulation, et non pas de simples résistances. Il ne suffit donc pas de diviser les expressions  $I=f(V)$  par le nombre de couches  $m$ , mais il faut les modifier de la manière suivante:

$$J_{act} = J_0 e^{m \frac{\alpha n F}{RT} \eta_{act}} - J_0 e^{-m \frac{(1-\alpha) n F}{RT} \eta_{act}} \quad : \quad \text{Equation (IV.3)}$$

$$J_{H^+} = J_{limH^+} (1 - e^{-m \frac{\beta_{diffH^+} n F}{RT} \eta_{diffH^+}}) \quad : \quad \text{Equation (IV.4)}$$



**Figure IV.10 :** Impédance d'activation distribuée [RAL1-11].

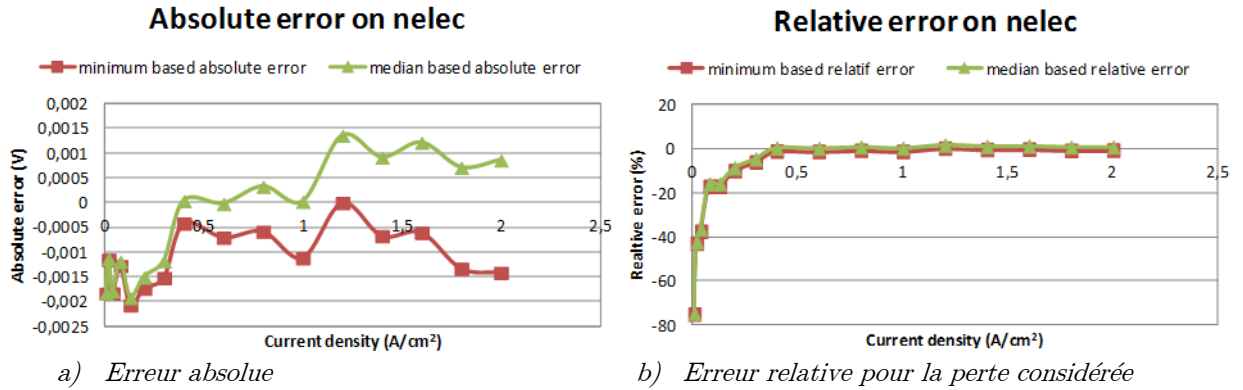
La distribution des couches complexifie rapidement le modèle. Ainsi le compromis qui a été choisi est de distribuer en deux boucles imbriquées les phénomènes d'activation et les phénomènes de diffusion protonique.

#### 4.1.6.2 Résistance électrique retenue

La résistance électrique est variable avec la densité de courant puisqu'elle est principalement déterminée par la résistance de la membrane. Cette résistance est fonction du taux d'hydratation de la membrane. A forte densité de courant, plus d'eau est produite donc le taux d'hydratation de la membrane augmente et sa résistance diminue. Comme la résistance est à peu près constante à partir de  $0,5 \text{ A.cm}^{-2}$  et la chute de tension associée est égale à  $r_{elec} * J$ , il semble que nous pouvons approximer  $r_{elec}$  par une valeur constante sans faire de grandes erreurs.

Si on regarde **Figure IV.8.d**), on voit immédiatement qu'il ne sert à rien d'essayer d'approximer la résistance électrique variable par sa valeur maximale ; de plus l'influence sur la

chute de tension engendrée est plus importante à densité de courant importante. On peut écarter aussi la valeur moyenne qui engendrerait trop d'erreurs. Le choix reste entre approximer la résistance par sa valeur minimale ou médiane. La *Figure IV.11* résume les résultats pour une des deux cellules.



**Figure IV.11** : Quantification de l'erreur commise pour les deux approches visant à fixer Rélec par rapport au modèle dépendant du courant.

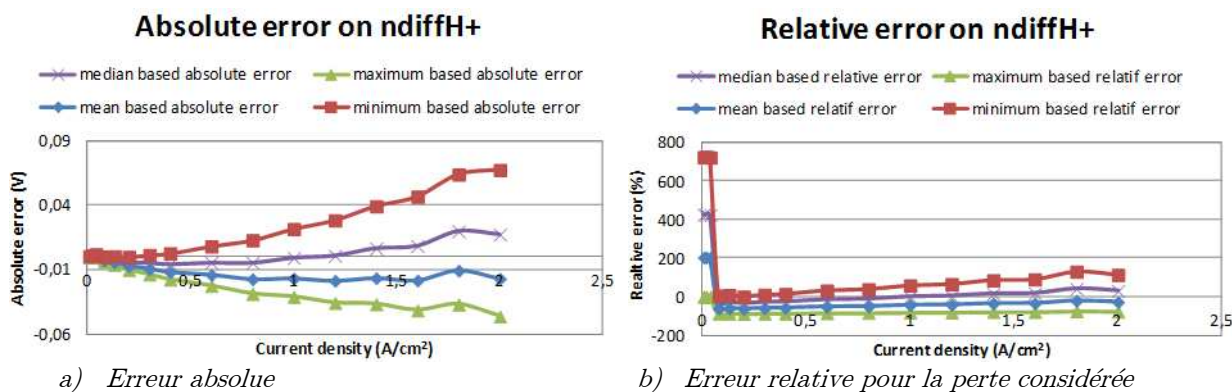
L'erreur commise sur la tension étant très faible (<2mV) et équivalente quelle que soit la méthode employée, nous avons choisi arbitrairement la valeur minimale

#### 4.1.6.3 Densités de courants limites retenues

Concernant, les courants de diffusion lente et rapide illustrés en *Figure IV.8.a)* et *c)*, ceux-ci sont pratiquement constant (hormis pour le point à valeur anormale qui a été écarté). Ainsi, on conçoit aisément que ces courants puissent être approximés par leur valeur moyenne sans provoquer d'erreur importante.

Cependant le cas n'est pas aussi évident pour le courant de diffusion protonique illustré en *Figure IV.8.b)*. Il est tout à fait normal que la densité de courant limite de diffusion protonique change en fonction du point de fonctionnement, puisque la production des ions H<sup>+</sup> est aussi fonction du point de fonctionnement. Nous n'avons pas essayé de modéliser le mécanisme et nous n'essaierons pas d'expliquer l'allure de la courbe observée. Ce qui est important ici c'est que nous cherchons à simplifier notre modèle en considérant ce courant limite constant.

Il y a quatre possibilités pour obtenir un courant limite constant qui viennent immédiatement à l'esprit : on peut prendre la moyenne, la médiane, le maximum ou le minimum des courants limites. La *Figure IV.12* compare les quatre approches pour une des deux piles. Bien sûr d'autres possibilités existent : par exemple le choix du courant limite associé au courant maximal.



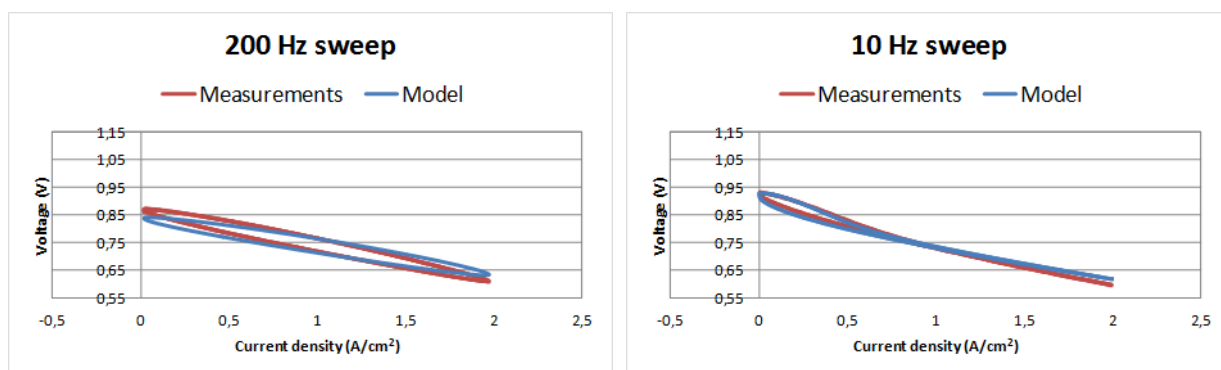
**Figure IV.12 :** Quantification de l'erreur commise pour les deux approches visant à fixer le courant de diffusion protonique par rapport au modèle dépendant du courant.

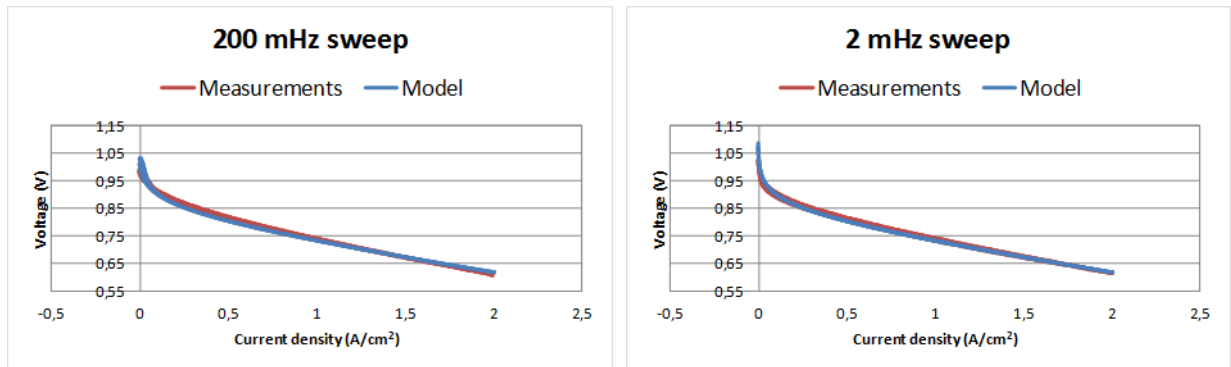
Il est clair que les approches « minimum » et « maximum » ne sont pas du tout adaptées. Les deux autres approches sont très proches en termes de performance. Nous avons choisi arbitrairement la valeur moyenne.

#### 4.1.7 Application de la troisième étape de la procédure d'identification paramétrique : validation du modèle avec des balayages sinus de fortes amplitude

Avant d'utiliser le modèle pour prédire le comportement de la pile, il faut le valider. Nous effectuons des balayages « fort signal » (c'est-à-dire des ondulations sinus allant de 0A à  $I_{max}$  à différentes fréquences) et nous comparons les résultats des simulations avec les mesures.

Le courant injecté dans le modèle est identique au courant mesuré pendant les balayages afin de faciliter la comparaison entre les deux. La **Figure IV.13** montre quelques résultats de la validation dans le cas de la PAC 1.





c) Balayage 200mHz PAC1.

d) Balayage 2mHz PAC1.

**Figure IV.13 :** Illustration de quelques balayages fort signal : comparaison mesure/simulation pour la PAC 1.

Les simulations et mesures semblent plutôt (très) bien correspondre. Cette validation sera complète si la simulation de l'hybridation directe est satisfaisante.

Néanmoins, nous distinguons 4 types d'erreurs commises par le modèle que nous retrouvons systématiquement pour les deux piles :

- A basse fréquence (<100mHz), la tension à vide est trop élevée.
- A moyenne fréquence (100mHz à 10Hz), la tension à pleine charge est un peu trop élevée.
- L'hystérésis à moyenne et forte densité de courant est trop petite aux basses fréquences.
- Le modèle ne peut pas reproduire le croisement de la courbe à basse fréquence.
- La courbe de polarisation subit une rotation à haute fréquence (>10Hz).

La cause d'une tension à vide trop élevée est normalement liée à une densité de courant parasite interne  $J_n$  trop petite. Cependant, la courbe de polarisation du modèle présente une tension à vide qui correspond parfaitement aux mesures. Ce courant est suffisamment grand par rapport au courant d'activation  $J_0$  pour justifier l'emploi de la loi de Tafel dans le modèle pendant le processus d'identification. En revanche,  $J_n$  a été omis dans les expressions des pertes par diffusion et par conduction, mais cette omission représente une erreur inférieure à 0,2mV sur la tension à vide. D'autres éléments peuvent être mis en cause tels qu'un décalage dans les capteurs de courant utilisés pendant les mesures (créant ainsi une caractérisation légèrement erronée) ou un état hydrique de cellules différent entre la courbe de polarisation et les balayages sinus.

Nous ignorons l'origine de l'erreur en hystérésis aux basses fréquences. Est-elle due à l'absence des puissances non-entières ? Nous pensons plutôt à un phénomène physique non-modélisé lié à l'état hydrique. Il a été en effet illustré dans [ZEI-11] que l'état hydrique de la pile a un impact fort sur l'hystérésis de la courbe de polarisation à très basse fréquence et que la dynamique de la variation de l'état hydrique, par son effet sur la diffusion protonique, est à l'origine du croisement de la courbe expérimentale.

Nous nous posons aussi des questions sur la tension à pleine charge qui est trop élevée à moyenne fréquence : est-ce une extension du phénomène de rotation de la courbe de polarisation que nous observons à haute fréquence ?

## 4.2 Modélisation et paramétrisation d'un supercondensateur

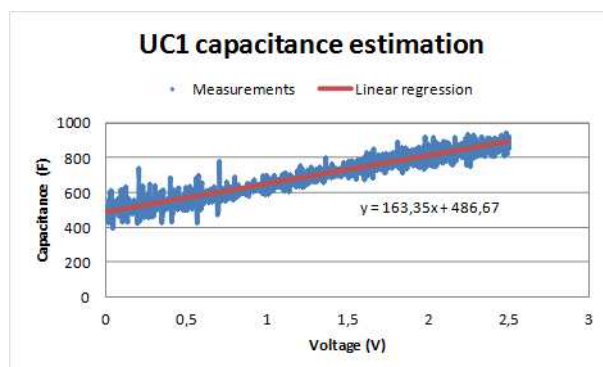
Cette section est dédiée au choix d'un modèle de supercondensateur ainsi qu'à sa paramétrisation.

### 4.2.1 Limitations du modèle RC classique

Le laboratoire n'a pas une grande expérience dans le domaine de la modélisation des supercondensateurs. Nous avons choisi, dans un premier temps, de représenter les SC par le modèle le plus simple possible, c'est à dire le modèle RC série. Cette représentation sera utile pour effectuer certains raisonnements. Cependant ce modèle est assez limité pour des simulations fines. En effet, la capacité n'est pas constante mais varie avec la tension aux bornes du composant. Mais aussi d'autres phénomènes tels que les redistributions des charges sont présents et ne peuvent pas être représentés par ce modèle.

La **Figure IV.14** illustre une estimation de la capacité d'un SC en fonction de la tension. L'estimation a été effectuée par la formule de l'**Equation (IV.5)** réalisée à courant constant de 10A ; les sauts de tension initiaux et finaux n'ont pas été pris en compte pour s'affranchir le plus possible des pertes résistives.

$$C_{SC} = I \frac{\delta t}{\delta V} \quad : \quad \text{Equation (IV.5)}$$



**Figure IV.14 :** Estimation de la capacité du SC en fonction de la tension.

Notons que la variation de capacité observée par cette méthode dépend du niveau de courant utilisé puisque l'effet de ligne associé à la porosité des électrodes et des phénomènes de redistribution possède un impact pouvant être interprété comme tel. La réalisation de cet essai à plusieurs niveaux de courants aurait donné une information supplémentaire sur la part de la redistribution dans la variation réelle de la valeur de capacité.

### 4.2.2 Rapide état de l'art de la modélisation de SC

Etant donnée notre faible expérience en termes de modélisation dynamique de supercondensateurs, et au regard du temps imparti, nous ne pouvons pas nous permettre de choisir un modèle trop complexe ou un modèle nécessitant une caractérisation avec du matériel que nous n'avons pas.

Le modèle théorique (donné dans [CON-99]) possède une infinité de branches RC (à valeurs non linéaires) en série et parallèle, c'est pourquoi des simplifications sont requises. Il est d'abord nécessaire de regarder les modèles existants dans la littérature puis d'en choisir un. Cependant de nombreux modèles de supercondensateurs existent. On peut diviser les principaux modèles selon les sous-groupes suivants :

- Modèles à branches capacitives
- Modèles par ligne de transmission
- Modèles fréquentiels

Les sections qui suivent s'attacheront à décrire brièvement une partie (non exhaustive bien sûr) de ces modèles. Nous nous attacherons à en dégager quelques avantages/inconvénients au regard de la modélisation recherchée pour notre application. Nous invitons fortement le lecteur à se référer aux documents cités s'il désire plus d'informations sur les modèles présentés.

### ***4.2.2.1 Modèle de SC à branches capacitives***

Le groupe des modèles à branches capacitives peut se diviser en deux : les modèles dont les capacités sont indépendantes de la tension (modèles linéaires), et les modèles où celle-ci varie (modèles non linéaires).

#### 4.2.2.1.1 Modèles linéaires

La modélisation la plus simple d'un supercondensateur est composée d'une résistance en série avec une capacité idéale (repris dans [WAN-08]). Il s'agit de la modélisation précédemment évoquée (modèle RC), mais elle ne permet pas de rendre compte de tous les phénomènes existants au sein d'un supercondensateur.

Un autre modèle classique est issu de la modélisation précédente en ajoutant une résistance en parallèle à la capacité idéale. Ceci permet d'ajouter l'effet d'autodécharge au sein du supercondensateur.

Ces deux modèles (R-C et R-(C//R)) sont très utiles car ils sont peu demandeur en puissance de calcul pour simuler le comportement d'un supercondensateur. En revanche, la simplicité évidente de ces modèles ne permet pas de faire correspondre expérimentation et simulation sur des profils fortement dynamiques.

Un autre modèle linéaire proposé et très largement employé dans la littérature (cf. [DOU-03], [ATC-06], [WAN-08]) est le modèle à 5 branches issu des travaux de J.R. Miller et A.F. Burke [MIL-94]. Ce modèle décrit le comportement d'un supercondensateur au moyen de 5 branches RC à valeurs linéaires.

Ensuite repris par plusieurs personnes, on trouve notamment ce modèle dans les travaux de [DOU-03] où des simplifications sont proposées (modèles 4 branches, 3 branches et 2 branches) ainsi que les domaines de validité de ces simplifications. Mais, bien que ce modèle imite physiquement la nature distribuée des électrodes du supercondensateur, il ne rend pas compte de la variation de la valeur de la capacité

#### 4.2.2.1.2 Modèles non linéaires

D'autres auteurs se basent sur des considérations énergétiques pour établir un modèle comportemental. C'est le cas de R. Bonert et L. Zubieta qui exposèrent le premier véritable modèle de supercondensateur de puissance [BON-97], [ZUB-00]. La première branche de ce modèle possède une capacité variable en fonction de la tension (fonction affine) ; les deux autres branches sont utilisées pour illustrer des horizons de temps différents tels que les redistributions.

Comme on peut le constater, entre autres dans [AYA-04], [BEL-01], [FAR-07] et [DIA-08], bien souvent ce modèle est repris dans la littérature et simplifié par un modèle à deux branches. Cette simplification permet de reposer la partition de l'énergie électrostatique suivant deux échelles de temps : une rapide et une lente. L'avantage de ce modèle est que l'extraction des paramètres ne requiert pas de processus d'optimisation. La caractérisation fait appel à des mesures à courant constant et suit une logique précise conduisant à un circuit équivalent unique (détaillée dans [BEL-01])

#### 4.2.2.2 Modèles de SC par ligne de transmission

##### 4.2.2.2.1 Modèle de F. Belhachemi

[BEL-01] a amélioré le modèle précédent en remplaçant la première branche qui est désormais linéaire par une ligne de transmission (qui pourra être discrétisée en un nombre fini d'éléments). De plus, il a ajouté quelques cellules RC non linéaires après cette ligne pour modéliser plus finement les différentes constantes de temps, en particulier les redistributions lentes. L'ordre de la ligne de transmission est à choisir en fonction du degré de précision souhaité et de la puissance de calcul disponible. Par exemple [AYA-04] emploie dans ses travaux l'ordre 1, c'est-à-dire une simple représentation RC série, tandis que [BEL-01] se limite à 10 branches RC pour cette ligne de transmission. [BEL-01] atteint les limites du modèle au voisinage d'une fréquence de fonctionnement de 1kHz due à l'absence de terme inductif série.

##### 4.2.2.2.2 Modèle de W. Lajnef

Selon les auteurs de [LAJ-04] et de [LAJ1-04], les modèles précédemment présentés ne sont pas totalement satisfaisants, pour une application aux véhicules électriques par exemple, pour les raisons qui suivent :

- Ils reprochent au modèle de R. Bonert et L. Zubieta [BON-97], [ZUB-00] (modèle non-linéaire à 3 branches) de décrire le comportement du supercondensateur pour des temps longs uniquement. Selon les auteurs, les paramètres du modèle sont obtenus avec des essais à courant constant. De ce fait, la constante de temps de chaque branche est choisie arbitrairement et sans connaissance préalable du supercondensateur ou du comportement de celui-ci.
- En ce qui concerne le modèle de J. R. Miller [MIL-94] (modèle linéaire à 5 branches), ce modèle est une représentation physique de la nature distribuée des électrodes d'un

supercondensateur. Cependant, il ne prend pas en compte la dépendance de la valeur des capacités avec le niveau de tension.

- A propos du modèle de F. Balhachemi [BEL-01] (modèle non-linéaire par ligne de transmission), il prend en compte autant les dynamiques rapides que les phénomènes lents. Cependant, il lui est reproché que la ligne de transmission possède une expression analytique nécessitant une discrétisation pour permettre une simulation en circuit électriques équivalents. De plus comme pour le modèle de R. Bonert et L. Zubieta [BON-97], [ZUB-00] (modèle non-linéaire à 3 branches), les paramètres sont extraits à partir d'essais à courant constant.

En revanche, le modèle par ligne de transmission semble approprié puisqu'il n'est pas nécessaire de prendre en compte les temps longs (>10min) pour une application aux véhicules électriques. Ainsi, les auteurs de [LAJ-04] et de [LAJ1-04] ont souhaité proposer un autre modèle, destiné à leur application. C'est pourquoi W. Lajnef & al. proposent un modèle constitué d'une branche RC associée à une ligne de transmission à capacité variable d'ordre 4. La particularité de ce modèle est que la dépendance de la valeur des capacités avec le niveau de tension est effectuée sur la ligne de transmission. L'extraction des paramètres s'effectuent par spectroscopie d'impédance et essais à courant constant.

#### 4.2.2.3 Modèles fréquentiels de SC

Beaucoup de travaux basent leur modélisation sur des spectroscopies d'impédance à tension donnée et à courant moyen nul. Cette méthode de caractérisation permet de décrire correctement les comportements fréquentiels d'un supercondensateur. Cependant on leur reproche souvent de ne pas assez décrire les comportements sur des échelles de temps très longues. De plus, l'extraction des paramètres exige une optimisation différente et souvent plus complexe que dans le cas d'essais à courants constants.

On peut penser qu'en descendant très bas en fréquence avec une spectroscopie d'impédance, le modèle issu peut décrire aussi bien les hautes fréquences que les basses.

C'est dans ce sens que [BUL-02] propose une représentation d'un supercondensateur par une association série d'un terme inductif, résistif et d'une impédance complexe des électrodes poreuses ( $Z_p$ ). L'expression de cette dernière impédance est donnée en **Equation (IV.6)**. Elle est responsable de la pente à 45° dans le plan de Nyquist normalisé et approche une capacité idéale pour les très basses fréquences.

$$Z_p(j\omega) = \frac{\tau \cdot \coth(\sqrt{j\omega \cdot \tau})}{C \cdot \sqrt{j\omega \cdot \tau}} \quad : \quad \text{Equation (IV.6)}$$

Enfin, un dernier modèle proposé dans ce bref état de l'art est le modèle proposé par F. Rafik [RAF-06]. Il trouve son originalité dans le nombre limité de composants permettant de prendre en compte la dépendance de la capacité du supercondensateur, de la résistance série et de la redistribution des charges électriques aux aspects suivants : fréquence, tension et température. Ce modèle est basé sur celui proposé par R. Bonert et L. Zubieta ([BON-97], [ZUB-00]) qui donne une description de la dépendance de la tension aux basses fréquences. En



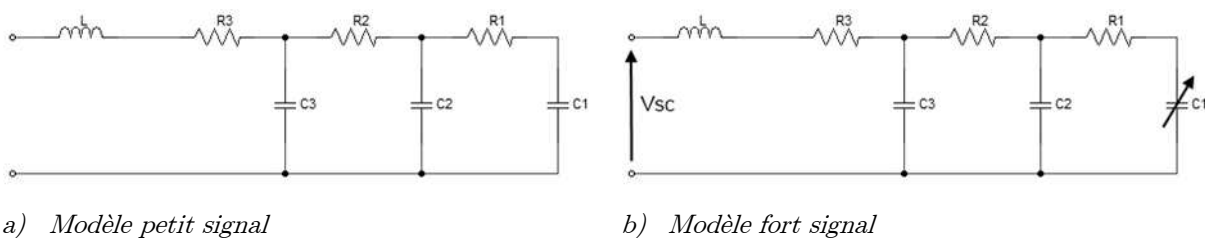
revanche, des circuits sont greffés à ce modèle pour rendre compte des différentes dépendances citées.

### 4.2.3 Choix d'un modèle de supercondensateur pour nos travaux

Etant donné le matériel dont nous disposons, le degré de modélisation désiré et le contexte de cette première étude, nous ne nous intéressons pas, dans un premier temps, à l'influence de la température sur les modules. En revanche, il nous semble essentiel de disposer d'un modèle qui puisse rendre compte de la variation de la valeur de capacité globale du module, de l'inductance de ligne, ainsi qu'une partie de la redistribution des charges.

L'enjeu de la modélisation d'un supercondensateur recherchée pour ces travaux consiste à trouver un modèle qui soit à la fois fidèle aux très basses et aux très hautes fréquences. Ce modèle doit pouvoir être facilement implanté en équivalent circuit électriques pour pouvoir être simulé sur le logiciel utilisé (PSIM®)

Compte tenu de l'état de l'art effectué, il semblerait qu'un modèle à branches capacitatives non linéaire puisse répondre à tous les critères précédents. Ce choix résulte évidemment de compromis entre difficulté de caractérisation, simplicité du modèle (et de son implantation) et performances de celui-ci. Les modèles présentés comportent entre 2 et 3 branches. Notre choix se porte sur le modèle à 3 branches RC illustré en **Figure IV.15**. Les paramètres de ce modèle pourront être extraits avec une approche multispectre relativement similaire à celle employée pour la modélisation des PAC. L'approche semble simplifiée dans ce cas compte tenu du nombre réduit de branche RC comparé au modèle de la PAC. Par analogie avec la modélisation d'une PAC, on peut suggérer un modèle « petit signal » qui serait issu d'une caractérisation autour d'un point de fonctionnement à tension donnée. L'approche multispectre propose d'appréhender le comportement fort signal du SC, de proche en proche, à partir des comportements dynamiques petit signal. Ainsi le modèle « fort signal » issu de cette approche devrait pouvoir décrire le comportement du SC sur toute sa plage de tension.



**Figure IV.15 :** Modèle d'impédance à trois branches proposé pour les supercondensateurs

### 4.2.4 Caractérisation et paramétrisation du modèle retenu pour le SC

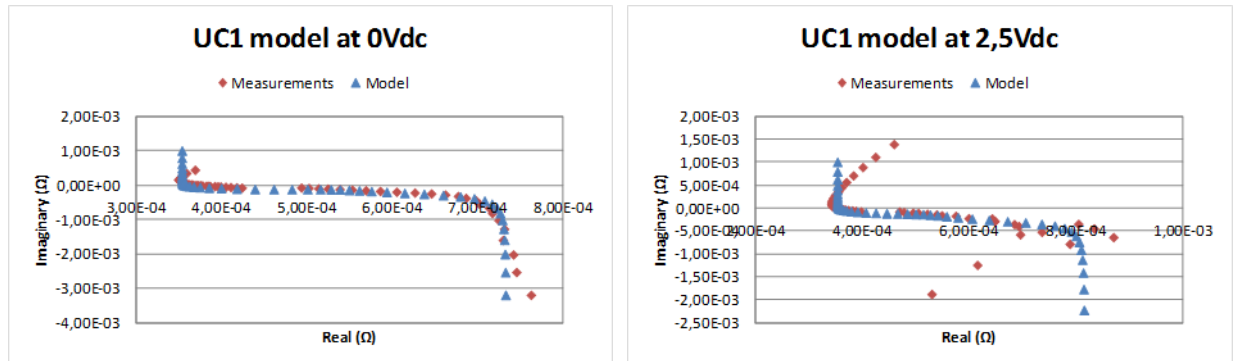
Des mesures de spectroscopies d'impédance autour de six points de fonctionnement allant de 0 à 2,5Vdc ont été réalisées. Nous identifions par l'optimisation les paramètres du modèle petit

signal à trois branches pour chaque point de fonctionnement. Chaque paramètre prend donc une valeur plus ou moins différente pour chaque niveau de tension.

Pour l'implantation sous forme de modèle circuit, il n'est pas pratique que tous les paramètres soient fonction de la tension aux bornes du composant. Nous cherchons à généraliser le modèle petit signal à un modèle fort signal en limitant le nombre de paramètres variables au strict minimum, à savoir idéalement une seule capacité fonction de la tension. Pour passer du modèle petit signal au modèle fort signal, plusieurs approches ont été testées :

- Nous fixons tous les paramètres à leur valeur moyenne (cas de référence que nous savons d'avance imparfait).
- Nous fixons tous les paramètres à leur valeur moyenne, sauf le paramètre le plus variable que nous rendons fonction de la tension  $V_{sc}$ .
- Nous fixons tous les paramètres à leur valeur moyenne, sauf le paramètre le plus variable. Nous refaisons l'optimisation pour ce dernier paramètre et nous le rendons fonction de  $V_{sc}$ .
- Nous fixons le paramètre le moins variable à sa valeur moyenne et nous refaisons l'optimisation pour les autres paramètres. Nous répétons ce processus jusqu'à ce que nous arrivions à un seul paramètre variable.

A notre surprise, c'est la deuxième approche qui nous livre le meilleur résultat, même si elle semble moins fine que les deux dernières approches. Dans la littérature, la dépendance de ce paramètre variable ( $C_1$ ) est choisie avec une fonction affine de la tension ; c'est donc de cette manière que nous allons lier la dépendance de ce paramètre avec la tension.



a) Plan de Nyquist à 0Vdc

b) Plan de Nyquist à 2,5Vdc

**Figure IV.16 :** Comparaison du modèle fort signal du SC avec les mesures

On constate que le spectre d'impédance expérimental devient « oblique » au HF et pour les tensions fortes. Cela peut s'expliquer par plusieurs raisons. D'abord le matériel utilisé n'est pas prévu pour caractériser des composants de forts calibres en courant. Il y a deux manières de piloter l'appareil : soit en potentiostat (source de tension), soit en galvanostat (source de courant).

Une utilisation en potentiostat serait l'idéal pour s'assurer d'être sur un point stabilisé ; cependant, l'effet capacitif du SC caractérisé entraîne une dépendance de la valeur du courant le traversant à la fréquence de la mesure. Les butées en courant exigent d'aller en dessous de la limite basse de l'ondulation AC en tension admissible par l'appareil pour obtenir des signaux sinus.

L'utilisation en galvanostat est alors employée, par contre le courant de mesure ne peut pas dépasser 0,3 Arms. Or, à faible fréquence cette ondulation de courant ne représente pas une ondulation suffisamment significative sur la tension pour être correctement mesurée par l'appareil. En effet, la tension est à valeur DC constante et l'appareil adapte son calibre en fonction : il ne peut plus détecter facilement des valeurs AC très petites. Cet aspect semble prendre plus d'ampleur avec l'augmentation de la tension DC.

Avec ce mode de pilotage (source de courant), la stabilité du point de fonctionnement pour les basses fréquences n'est plus garantie. Le matériel utilisé n'est pas le mieux approprié pour cette caractérisation : l'idéal serait une alimentation 4 quadrants qui puisse supporter les forts courants à basse tension et avec des dynamiques importantes.

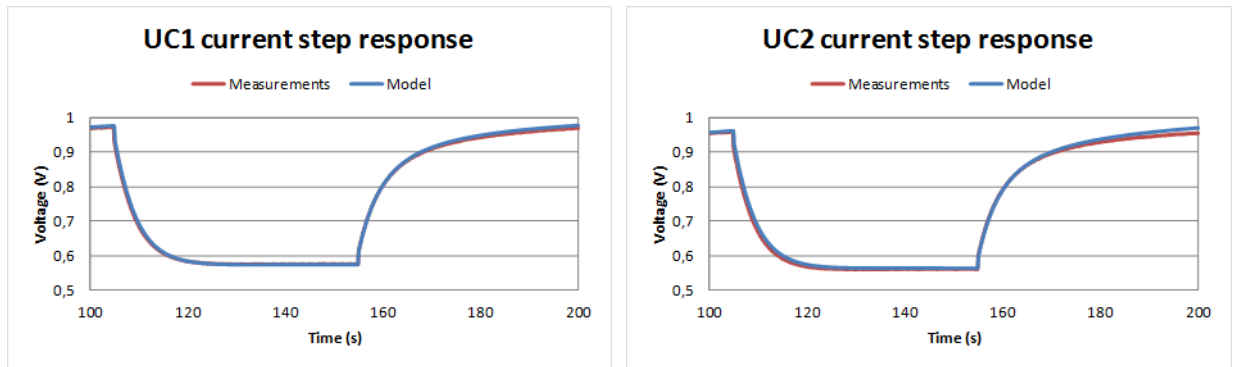
Nous allons nous contenter de ces mesures malgré certains points observés qui peuvent nous sembler hasardeux, en particulier pour les tensions élevées.

paramètre	SC 1	SC 2	unité
$C1$	$80,88 * V_{sc} + 260$	$76,37 * V_{sc} + 209,6$	F
$C2$	212,5	260,3	F
$C3$	35,01	39,42	F
$R1$	0,5061	0,7596	m $\Omega$
$R2$	0,2328	0,2567	m $\Omega$
$R3$	0,3539	0,3820	m $\Omega$
$L$	16,06	54,03	nH

Tableau IV.4 : Paramètres identifiés pour les deux SC.

#### 4.2.5 Validation du modèle

Nous validons ici le modèle sur des créneaux de 50A issus de mesures sur l'hybridation directe. Notons que ces créneaux étant appliqués à l'ensemble PAC/ SC hybridé, le courant traversant les SC ne possède pas une forme de créneau. Dans ce cas, le courant traversant le SC démarre à une valeur importante puis converge vers zéro. Pour cette validation, le courant mesuré dans le SC est donné en entrée du modèle et on observe sa réponse en tension. La réponse en tension du modèle est illustrée sur la *Figure IV.17*. Elle semble satisfaisante sur cet essai rapide de validation.



a) Réponse du supercondensateur 1

b) Réponse du supercondensateur 1

**Figure IV.17 :** Validation du modèle de SC fort signal sur des créneaux de courant de 0A à 50A appliqué à un ensemble PAC/SC hybridé directement

Cette validation correspond aux simulations de l'hybridation directe que nous allons présenter dans la suite. La différence est que lors de la simulation, le courant mesuré ne sera pas donné. Le courant dans le SC sera issu du partage des courants donné par les modèles.

### 4.3 Modélisation du câblage

L'architecture modélisée dans ce chapitre est l'architecture à deux monocellules et deux supercondensateurs illustrée dans le chapitre III. Les PAC et les SC sont reliés entre eux par des câbles dont nous devons tenir compte dans le modèle.

L'impédance d'un câble, défini par sa longueur L et son diamètre D (ou une section S), peut être déterminée approximativement de la manière suivante ([GRO-04]) :

$$r = \rho \frac{L}{S} \quad : \quad \text{Equation (IV.7)}$$

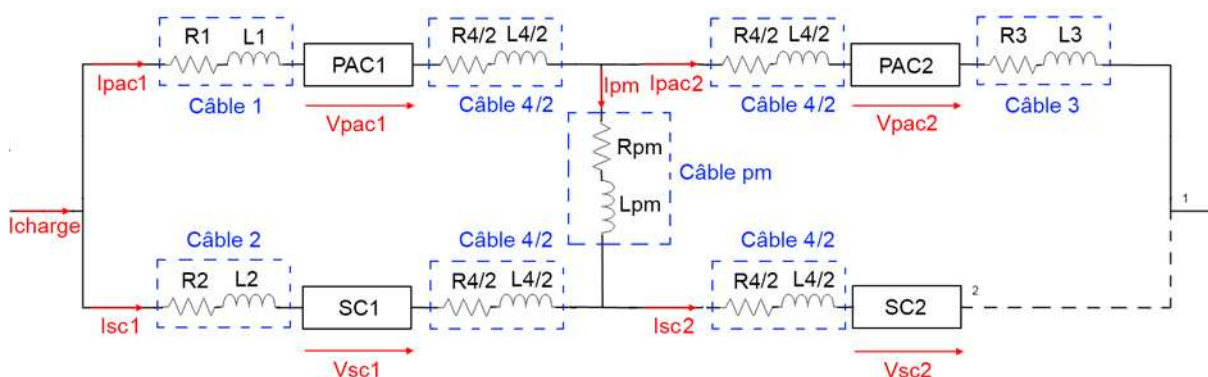
$$l = 2L \left[ \ln \left( \frac{2L}{D} \left( 1 + \sqrt{1 + \left( \frac{D}{2L} \right)^2} \right) \right) - \sqrt{1 + \left( \frac{D}{2L} \right)^2} + \frac{\mu}{4} + \frac{D}{2L} \right] \quad : \quad \text{Equation (IV.8)}$$

Cependant, cette formule ne tient pas compte des connexions, c'est à dire de la résistance de contact due au pressage des cosses sur le câble, ou encore de la présence d'un contacteur dans le montage. Les diamètres des câbles étant importants et les longueurs réduites, ces connexions ont probablement un impact non négligeable. Ainsi nous préférons effectuer une caractérisation par mesures plutôt qu'une estimation théorique. En revanche l'approche théorique permet de valider la pertinence des mesures.

Une caractérisation par spectroscopies d'impédance à l'aide de l'appareil utilisé pour la caractérisation des SC a été effectuée. Les câbles étant faiblement impédants, le mode de caractérisation le mieux adapté semble être par galvanostat (source de courant). L'avantage de cette caractérisation par rapport à celle des SC est qu'ici, à courant moyen nul, la tension moyenne est nulle elle aussi. L'appareil peut alors choisir un calibre de mesure en tension très petit pour observer de très petites variations (le courant maximal de la mesure étant de

0,3Arms) : la mesure est de meilleure qualité. Nous avons choisi un simple modèle R-L pour modéliser les câbles ; les éléments R et L sont extraits par optimisation sur la courbe de Nyquist donnée par le galvanostat.

Le schéma de câblage est donné en **Figure IV.18**. Le point milieu noté “*pm*” sera connecté ou non suivant les cas d'étude. La connexion entre le point 1 et 2 est supposée parfaite (impédance nulle) car elle est réalisée sur une borne du SC2.



**Figure IV.18 :** Schéma de câblage du système étudié

La caractérisation de l'impédance du point milieu a malheureusement été omise durant les campagnes d'essais. Les grandeurs de ce câble sont extraites par les formules théoriques précédentes. On peut retrouver les grandeurs obtenues dans le **Tableau IV.5**.

Câble	Résistance (mΩ)	Inductance (μH)
<b>1</b>	1,464	0,9153
<b>2</b>	0,8179	0,5245
<b>3</b>	0,2229	0,5358
<b>4</b>	0,1799	0,3405
<b><i>pm</i></b>	0,94	0,160

**Tableau IV.5 :** Paramètres des câbles.

#### 4.4 Conclusion sur la modélisation des différents composants

Dans cette partie nous avons introduit la modélisation sous forme de circuits électriques d'une pile à combustible PEM telle qu'elle a été mise au point au laboratoire Laplace. Nous avons paramétré le modèle à l'aide de mesures de spectroscopies d'impédance et de la courbe de polarisation. Une première validation de ce modèle a ensuite été effectuée à l'aide de balayages sinusoïdaux fort signal. La validation finale sera déterminée par la simulation de l'hybridation directe.

Néanmoins, cette partie suscite quelques questions concernant le processus d'identification paramétrique. Combien de spectroscopies sont nécessaires pour assurer la convergence définitive

des paramètres? Comment faut-il traiter les points de mesure aberrants ? Comment s'assurer de l'unicité de la solution obtenue ?

Il semblerait qu'un minimum de 12 spectroscopies soit nécessaire sur ce type de cellules pour obtenir une stabilisation des valeurs de paramètres. Bien que le modèle se comporte déjà très bien, le laboratoire Laplace continue les travaux sur ce modèle en améliorant le processus d'identification des paramètres (en particulier par des algorithmes mieux adaptés) de manière à le rendre de plus en plus robuste et universel. Cela pourrait bien être un pas vers une caractérisation de l'état de santé d'une cellule puisque ce modèle permet de dissocier les différentes pertes pour chaque densité de courant.

Dans un deuxième temps, nous avons caractérisé et modélisé les supercondensateurs qui seront utilisés pour hybrider les piles. Au regard de notre faible expérience en termes de caractérisation des supercondensateurs au laboratoire, nous avons décidé de commencer celle-ci en vue d'un modèle simple mais performant. Le modèle choisi résulte d'un compromis entre ces deux aspects puisqu'il l'un va souvent à l'encontre de l'autre.

Enfin, un modèle simple du câblage a été proposé.

Partant de ces modèles, la partie suivante s'attachera à simuler l'hybridation directe et permettra, non seulement de valider ou d'invalidier ces modèles, mais aussi d'appréhender plus finement certains mécanismes qu'il est difficile de décrire suite aux seules expérimentations menées dans le chapitre III.

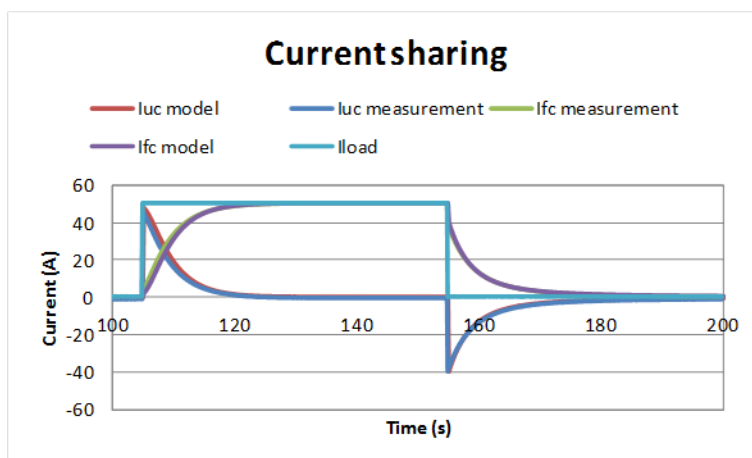
### ***4.5 Simulation de l'hybridation directe***

Dans cette partie, nous comparerons certaines expérimentations du chapitre III aux simulations du modèle fort signal qui a été construit et paramétré dans les parties précédentes. Les comparaisons seront effectuées dans le cadre de créneaux de courant à plusieurs fréquences et à plusieurs amplitudes, et de balayages « fort signal » à plusieurs fréquences. Afin de garantir la meilleure comparaison possible, le courant de charge utilisé pour les simulations sera égal à la mesure du courant de charge pendant les essais. Ainsi, le courant de charge et les paramètres des composants sont les seules données d'entrée pour les simulations. Ces simulations sont concentrées sur les essais sans le point milieu pour l'association de 2 PAC et 2 SC. En fonctionnement normal, les résultats diffèrent assez peu avec ou sans point milieu, comme nous le verrons.

#### **4.5.1 Observation à l'échelle des temps "longs" (qq 10s) du comportement de la simulation**

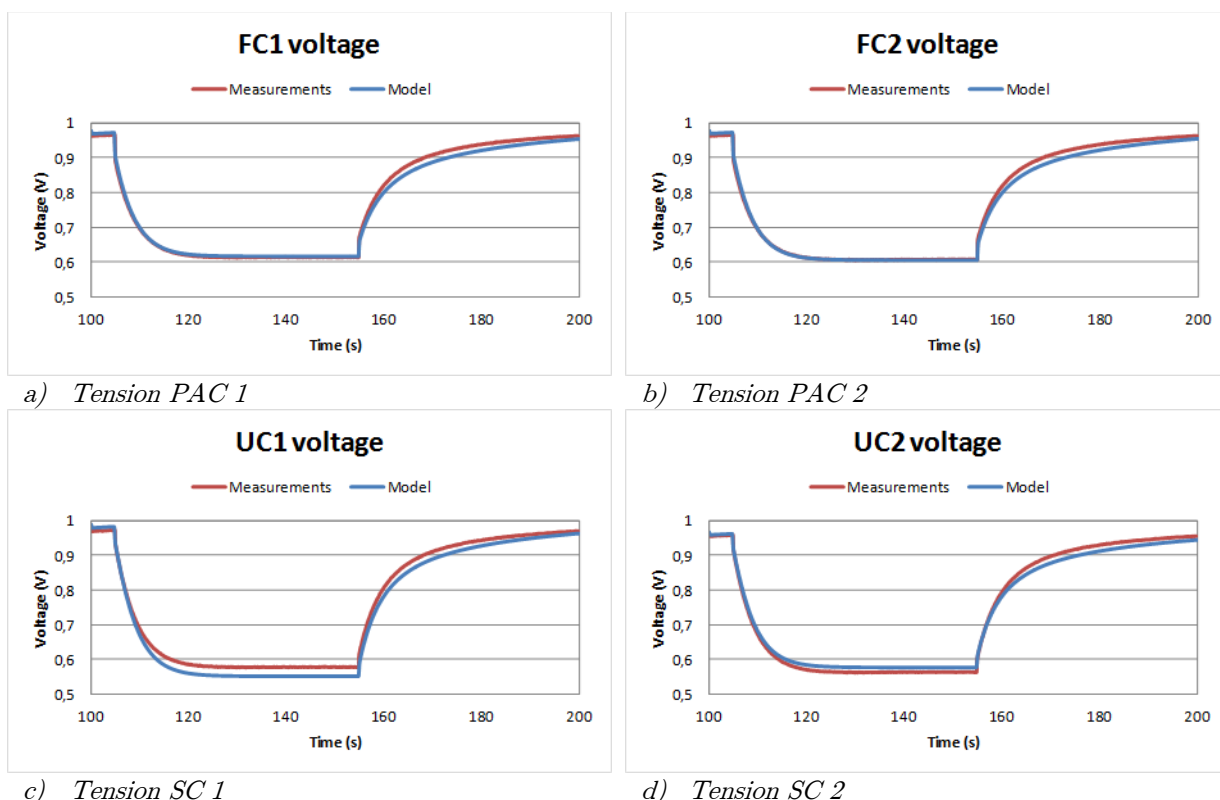
Nous appliquons des créneaux de courant de charge au système hybride, à une fréquence de 10mHz et avec une amplitude de 50A. Un échelon de 0 à 50A correspond à un échelon de 0 à

$J_{max}$  pour les monocellules PAC, où  $J_{max}$  est la densité de courant maximale recommandée pour ces monocellules en régime permanent. Il s'agit donc d'une excitation « fort signal ».



**Figure IV.19 :** Répartition des courants d'une PAC et d'un SC suite à l'application d'un créneau de courant BF (comparaison mesure/simulation).

La répartition des courants retrouvée par simulation illustrée en *Figure IV.19* correspond plutôt (très) bien aux mesures à l'exception d'un écart un peu plus prononcé sur l'échelon montant.



**Figure IV.20 :** Comparaison mesure/simulation pour les tensions des différents éléments.

Par contre, pour les tensions PAC, nous observons la situation inverse : un écart est présent sur l'échelon descendant. Pourtant, le courant simulé et le courant mesuré sont très proches sur cette partie de l'échelon. En effet, si le modèle fournit une erreur sur le partage des courants,

inévitablement cette erreur sera reportée sur les tensions et même amplifiée à cause de l'imperfection des modèles. Malgré tout, les résultats sont plutôt satisfaisants.

Après avoir retravaillé sur le modèle, l'erreur persiste. On conclut donc à deux causes possibles. Les variations observées ici (50 secondes entre un point à 50 A et un point à 0 A) sont plus rapides que celles effectuées lors de la caractérisation (près de 3 h entre un point à 50 A et un point à 0 A). Ainsi, dans cet essai, la dépendance au courant de certains paramètres n'a peut-être pas eu le temps de se matérialiser : par exemple l'humidification est un phénomène qui nécessite plus de 50 s pour s'homogénéiser correctement. Ou alors, la dynamique du dipôle d'activation ou du dipôle de diffusion protonique est différente sur l'échelon descendant.

Au niveau des tensions des SC, là encore les résultats sont globalement satisfaisants. Malgré tout, la tension du SC 1 est trop basse à fort courant et trop élevée à faible courant ; cela semble témoigner d'une surestimation de la résistance série de ce SC. De nouveau, la dynamique sur l'échelon descendant n'est pas parfaite. Le modèle employé est relativement simple et la caractérisation effectuée est loin d'être une des plus abouties. Ainsi on peut imaginer de nombreux paramètres responsables de cet écart comme la température lors de la caractérisation très différente de celle lors de l'utilisation.

#### 4.5.2 Observation à l'échelle de temps "courts" du comportement de la simulation

##### 4.5.2.1 Mise en évidence d'une certaine finesse de la modélisation

Maintenant faisons un zoom sur les échelons montants et descendants des créneaux de courant étudiés ci-dessus illustré en *Figure IV.21*.

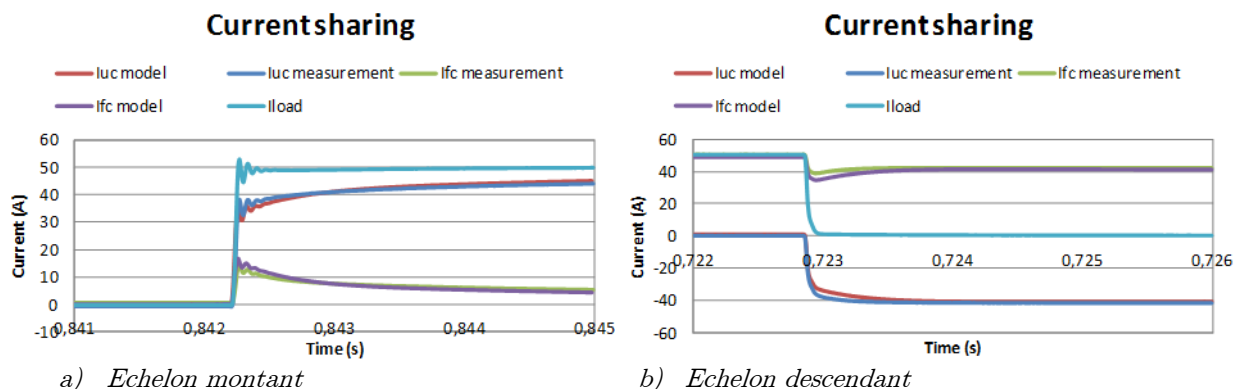


Figure IV.21 : Validation du modèle SC fort signal sur des créneaux de courant

Le modèle prédit plutôt bien les dépassements aux instants des échelons que l'on a observés au chapitre III, ce qui est rassurant. Après ce phénomène très rapide, la répartition des courants évolue différemment dans les deux cas. Sur l'échelon descendant, la pile prend une plus grande portion du courant de charge, ce qui est visible à l'échelle de temps longs (cf. *Figure IV.19*). De plus, la constante de temps observée est plus petite sur cet échelon. Nous



pensons que ces différences entre les deux échelons peuvent être dues à la variation de la résistance d'activation en fonction du courant et à la variation de la résistance de membrane en fonction de l'hydratation.

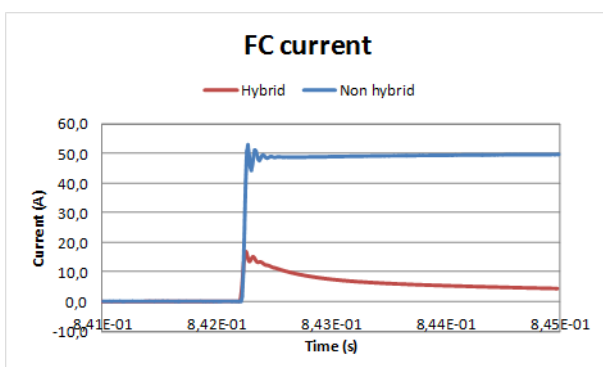
Nous invitons le lecteur à se reporter au chapitre III où une explication théorique est fournie concernant le « saut » de point de fonctionnement, c'est à dire la valeur du courant vers laquelle la PAC tend quelques millisecondes après l'échelon. Nous allons, dans la suite, mettre en évidence que le phénomène très rapide se produisant est du fait des phénomènes de double couche.

#### 4.5.2.2 Rôle des phénomènes de double couche dans le cas hybridé et non hybridé

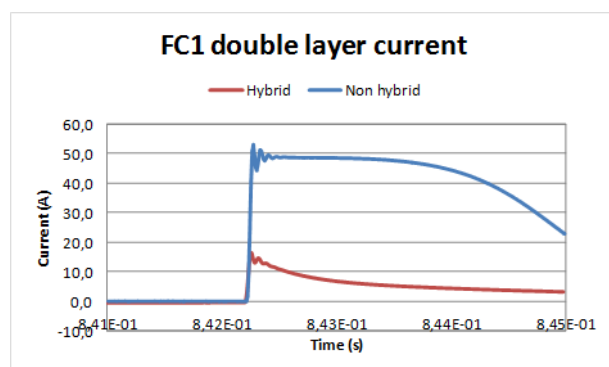
Il est important de comprendre que nous pouvons seulement utiliser la simulation pour prédire les performances du système à l'échelle où la simulation s'est montrée une « bonne » reproduction de la réalité. La correspondance parfaite est un graal bien difficile à obtenir, c'est à chacun de décider ce qu'est une bonne correspondance entre simulations et mesures. A notre échelle, nous sommes globalement satisfaits.

Jusqu'ici, nous avons observé que les résultats de la simulation correspondent plutôt bien aux mesures. Par conséquent, nous pouvons utiliser la simulation pour prédire les performances du système avec cette excitation particulière qu'est l'échelon de courant et sur cette échelle de temps. Afin d'illustrer l'effet bénéfique de l'hybridation, nous comparons la simulation du système hybridé à une simulation d'un système non hybridé.

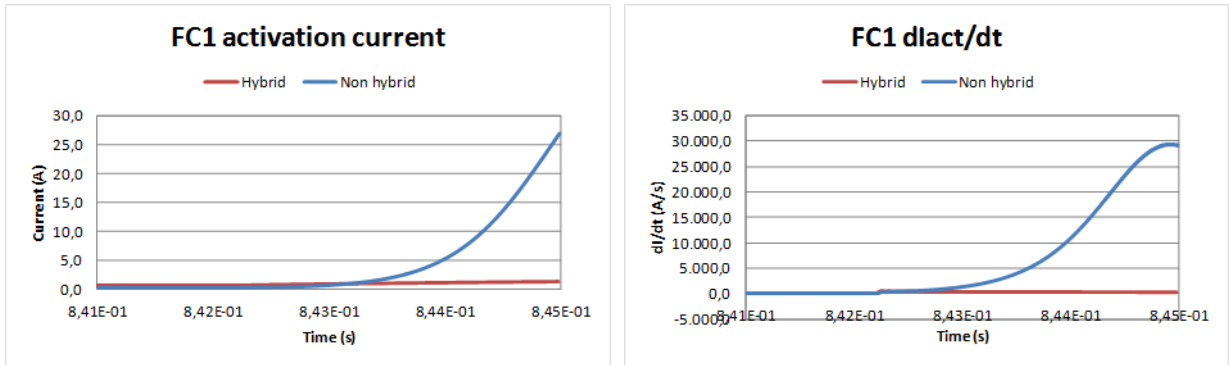
Bien que la modélisation effectuée précédemment corresponde globalement vu de l'extérieur des bornes des composants, il est bien difficile de vérifier que c'est également le cas pour les couches internes. Dans le cas réel, nous n'avons pas en effet accès aux mesures des courants dans les couches internes de la PAC (double-couche capacitive et couche d'activation). Gardant cela en tête, nous allons exploiter le modèle pour pénétrer à l'intérieur des différentes couches.



a) Courant de PAC



b) Courant dans la double couche



c) Courant d'activation

d) Dérivée temporelle du courant d'activation

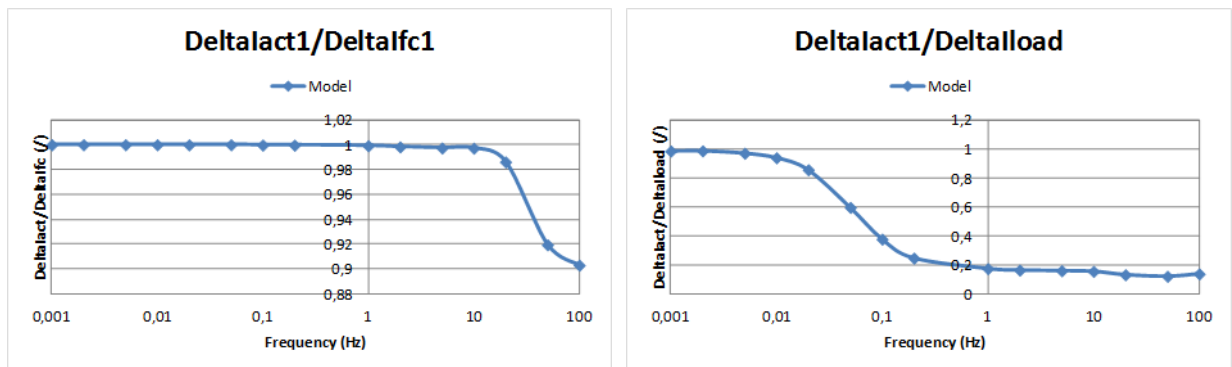
**Figure IV.22 :** Comparaison PAC hybridé - non-hybridé: observation des courants internes à la PAC 1 lors de l'échelon montant.

Dans le cas hybridé, on observe en **Figure IV.22** que le pic observé à l'instant de l'échelon ne transite pratiquement que par le condensateur de double couche (c'est pourquoi on le qualifiera de pic capacitif) tandis que la couche d'activation ne le voit pas.

On remarque, dans le cas non hybridé, que ce condensateur de double couche offre également une protection au courant d'activation ; cependant cette protection est de l'ordre de quelques ms, tandis que la protection offerte dans le cas hybridé est bien plus longue (**Figure IV.22.c**).

Suite aux études déjà menées au laboratoire (comme celles de [FON-05] et [RAL1-11]) et ailleurs dans la communauté scientifique, l'hypothèse que le condensateur de double couche protège la PAC des variations très rapides avait déjà été proposée. La capacité de double couche filtrant le courant de charge, on peut penser que moins le courant d'activation est dynamique, plus la PAC est préservée. En effet, ce courant d'activation est l'image de la consommation en gaz actifs et donc des variations de pressions rapides qui peuvent être engendrées sur la membrane.

On peut essayer de comparer les capacités de filtrage dans les deux cas (hybridé et non hybridé) en regardant les amplitudes des courants traversant la couche d'activation pour des sinus à différentes fréquences. C'est l'objet de la **Figure IV.23**.



a) Cas non hybridé

b) Cas hybridé

**Figure IV.23 :** Variation du courant d'activation par rapport à la variation du courant de charge.

Il est dommage que dans ces simulations la fréquence des ondulations sinus n'ait pas été plus élevée, en particulier pour le cas de la PAC non hybridée. Cependant, [FON-05] a montré que cette protection était efficace pour filtrer les fréquences d'un convertisseur statique (qq kHz à qq 10kHz) et, dans cette courbe (*Figure IV.23.a*), on constate qu'elle est complètement inefficace en dessous de 10Hz. Ce qui peut nous donner une idée de la gamme fréquentielle de protection offerte par le seul condensateur de double couche.

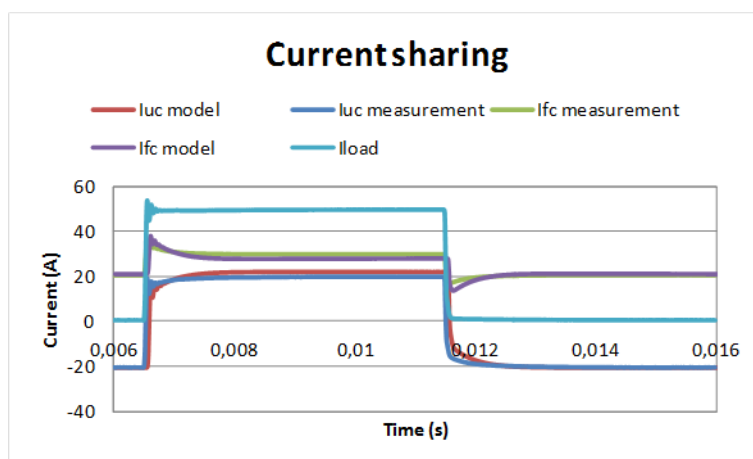
En revanche, pour le cas hybridé, cette protection va être efficace pour les mêmes fréquences, et le reste de la protection sera assuré par le SC. Ainsi ces pics rapides sont à priori totalement pris en charge par le condensateur de double couche.

Ainsi on peut résumer de la manière suivante :

- Pour les fréquences supérieures à qq 100 Hz : la zone d'activation est à priori protégée par le condensateur de double couche interne.
- Pour les fréquences comprises entre qq 100 Hz et qq 10 mHz à 100 mHz : la zone d'activation est à priori protégée par le SC externe.
- Pour les fréquences inférieures à 100 mHz : le compresseur et/ou les détendeurs (suivant si la PAC est de technologie H<sub>2</sub>/Air ou H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>) seront tout à fait capables de répondre à ces dynamiques sans occasionner de variations significatives de pression aux bornes de la membrane. La couche d'activation est à priori protégée de ce point de vue.

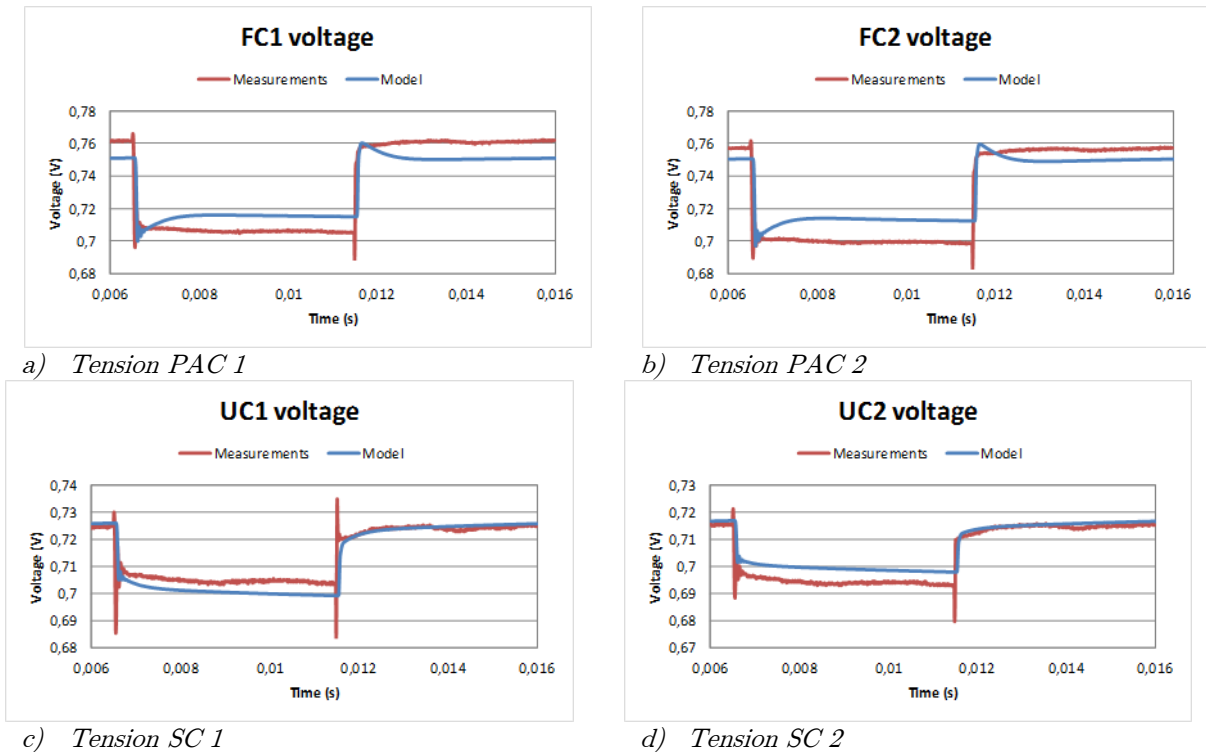
#### 4.5.3 Observation à des échelles de temps intermédiaires (qq 10ms à qq 100ms) du comportement de la simulation

On peut poursuivre la validation du modèle avec des essais à des échelles de temps intermédiaires, comme par exemple l'application de créneaux 0A..50A à 100 Hz.



**Figure IV.24 :** Répartition des courants d'une PAC et d'un SC suite à l'application d'un créneau HF (comparaison mesure/simulation).

La répartition des courants retrouvée par simulation illustrée en *Figure IV.24* correspond plutôt bien aux mesures à l'exception de petits écarts. Le saut initial du courant de la PAC est légèrement trop grand et le saut du courant du SC est légèrement trop petit.

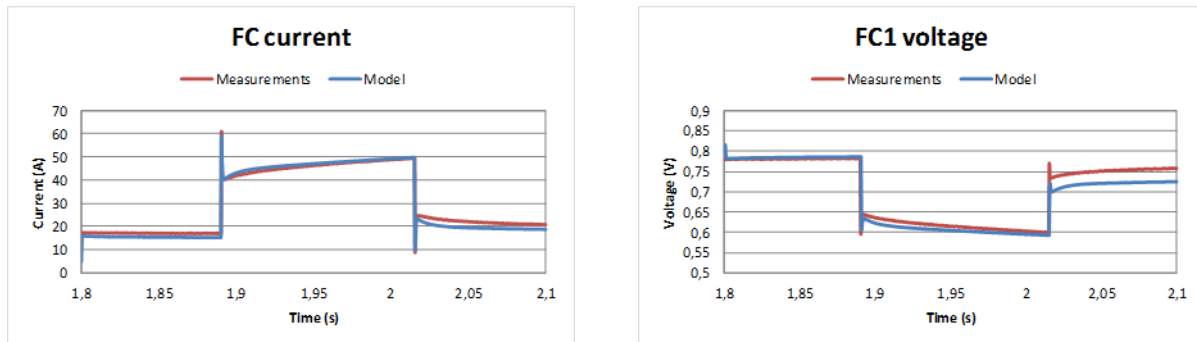


**Figure IV.25 :** Comparaison mesure/simulation pour les tensions des différents éléments pour l'ensemble soumis à des chéneaux HF.

Les formes de tension entre simulation et expérimentation diffèrent en revanche plus ou moins sensiblement. D'abord en simulation, on retrouve les pics capacitifs rapides alors qu'ils ne se voient pas sur l'expérimentation. Ceci est d'ailleurs étrange puisque la cellule réelle fournit un pic de courant à cet instant, celui-ci devrait avoir un impact sur la tension de la cellule via la résistance électrique de celle-ci. On constate que le régime pseudo permanent est également différent d'environ 10mV entre mesure et simulation. Nous ne voyons pas d'explication claire à ces constats si ce n'est que la modélisation utilisée touche à ses limites ou que les mesures sont légèrement erronées. En effet, dans d'autres cas tels que celui qui sera présenté après, ces pics sont visibles sur la tension de PAC mesurée. Nous ne parvenons pas à justifier leur absence dans le cas présent.

De nombreux cas ont en fait été utilisés pour valider le modèle et proposent des similitudes (très) satisfaisantes : à vrai dire tous ceux présentés dans le chapitre III, comme par exemple les essais sinus de fortes amplitudes à différentes fréquences (moins contraignants pour la simulation que le cas d'échelons). Ils ne seront pas présentés ici par économie de place sauf un ultime qui permet d'appuyer le dernier point du paragraphe précédent : il s'agit du cas de l'impulsion de courant.

Des impulsions à 180 A à 1Hz (rapport cyclique de 12,5% pour garantir un courant moyen en dessous de 25A) sont appliquées à l'ensemble hybridé et illustrée en **Figure IV.26**.



a) Courant dans les PAC

b) Tension d'une PAC (la PAC 1)

**Figure IV.26** : Courant et tension de PAC pendant une impulsion de courant de charge de 180A  
— Comparaison mesure/simulation

On remarque les pics rapides présents autant sur le courant que sur la tension, à la fois pour la mesure et pour la simulation (l'échelle de temps est ici beaucoup plus grande que sur la **Figure IV.25**). Les amplitudes de ces pics semblent correspondre entre la mesure et la simulation pour les deux cas. Ce dernier point conforterait l'hypothèse du défaut de mesure de tension dans le cas précédent. En revanche, on relève aussi un écart sur le régime pseudo permanent de la tension modélisée après l'impulsion.

Notons que cet essai n'aurait pas pu être réalisé sur une cellule non hybridée (rappelons que sa surface est de  $25\text{cm}^2$ , ce qui aurait représenté  $7,2\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$ ), ou alors au prix de conséquences importantes sur son état de santé (à-coups de pression, tension négative liée à l'alimentation série, etc...). Cela fait partie d'un des avantages de l'hybridation directe : ici, l'ensemble hybridé peut fournir 3,6 fois son courant nominal (180A) pendant 125ms sans que la PAC ne dépasse son courant nominal (50A) en régime pseudo permanent.

L'impact sur la cellule est probablement proche de celui qu'aurait eu une impulsion de 50A (courant nominal) pendant 125ms lorsque le courant vaut 18,6A appliqué à une cellule non hybridée. Cet impact plus réduit (mais tout de même important) représente le même courant moyen : 22,5A et le même courant max pour la PAC. C'est pourquoi même sur une cellule hybridée une très grande impulsion peut avoir des conséquences sur son état de santé ou sur sa durée de vie.

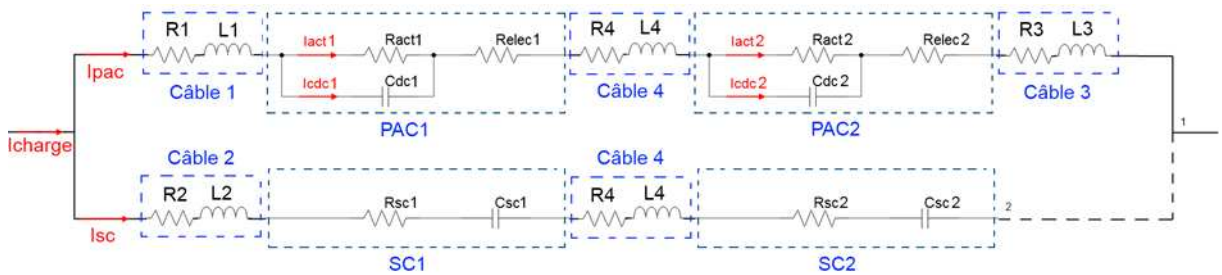
Enfin, nous pouvons retenir de cette modélisation qu'elle permet de donner un partage des courants très proche de la réalité quelles que soient les échelles de temps considérées. En revanche, la précision est un peu moins bonne sur les tensions avec un écart entre les tensions mesurées et les valeurs simulées de 3 à 5% pour le créneau à 100Hz.

#### 4.5.4 Analyse théorique du système hybride par une approche de linéarisation

Le système étudié n'est pas du tout un système du premier ordre. Pourtant, l'évolution temporelle des courants et des tensions à l'échelle des temps « longs » indique un comportement proche d'un premier ordre : le système a donc un mode dominant. Une tentative de quantification de ce comportement et de calcul des modes dominants ou des constantes de temps équivalentes sera proposée. Le but est d'améliorer l'interprétation des simulations.

Pour les calculs suivants, nous approximons une PAC par son modèle d'impédance où les phénomènes diffusifs sont négligés : un dipôle d'activation  $R_{act}-C_{dc}$  en série avec une résistance électrique  $R_{elec}$  (**Figure IV.27**). Les câbles sont représentés par des dipôles RL série et les SC par des dipôles RC série.

A ce stade, nous faisons abstraction de la variabilité des résistances d'activation en fonction du courant et de celle des capacités des supercondensateurs en fonction de la tension. Rappelons que les points 1 et 2 sont en fait confondus. Dans un premier temps, le point milieu n'est pas considéré.



**Figure IV.27 :** Système simplifié pour la détermination du mode dominant.

Avec cette modélisation la fonction de transfert du courant dans les PAC est :

$$\frac{I_{pac}}{I_{charge}} = \frac{z_{sc}}{z_{pac} + z_{sc}} \quad : \quad \text{Equation (IV.9)}$$

Avec :

$$z_{pac} = (r_1 + r_3 + r_4 + r_{elec1} + r_{elec2}) + p(l_1 + l_3 + l_4) + \frac{r_{act1}}{1 + pr_{act1}c_{dc1}} + \frac{r_{act2}}{1 + pr_{act2}c_{dc2}} \quad : \quad \text{Equation (IV.10)}$$

$$z_{sc} = (r_2 + r_4 + r_{sc1} + r_{sc2}) + p(l_2 + l_4) + \frac{1}{p} \left( \frac{1}{c_{sc1}} + \frac{1}{c_{sc2}} \right) \quad : \quad \text{Equation (IV.11)}$$

Reste à calculer les pôles. Malheureusement l'expression est trop complexe pour être évaluée de manière analytique. Même un logiciel de calcul symbolique ne s'en sort pas. Il faut donc faire un choix pour les valeurs des résistances d'activation et les capacités des supercondensateurs. Nous n'avons pas trouvé de solution systématique à ce problème. Un processus itératif nous a amenés à calculer les valeurs pour un courant de charge de 7,5A, un choix que nous discuterons ci-dessous. Nous trouvons les valeurs suivantes pour les pôles :

$$p_1 = -0,1853 \quad p_2 = -306,4 \quad p_3 = -746,9 \quad p_4 = -3271$$

Il n'y a pas de pôles positifs, ce qui est plutôt rassurant et témoigne de la stabilité du système. Même si nous n'avons pas obtenu des expressions analytiques pour les pôles, nous sommes assez confiants face à la classification suivante :

Mode	Rapidité relative	Origine
$-1/p_1$	lente	Interaction PAC - SC
$-1/p_2$	Rapide	Interaction capacité de double couche - éléments résistifs
$-1/p_3$		
$-1/p_4$	très rapide	Interaction inductance - capacité de double couche

**Tableau IV.6 :** Classification des modes du système sans point milieu.

#### 4.5.4.1 Mode dominant lent pour un système hybride 2 PAC/2 SC

Ce système a un mode dominant, avec une constante de temps  $\tau_{dom}$  associée au pôle le plus lent (5,4 s) qui correspond bien à la constante de temps du courant de la PAC que l'on peut observer en *Figure IV.19* par exemple.

En second lieu nous pouvons nous interroger sur la généralisation de l'étude analytique menée avec le modèle d'impédance, comme nous l'avons fait ici. Quel que soit le point de fonctionnement pour lequel nous calculons les valeurs paramétriques, le modèle nous sort un pôle dominant. Si le point de fonctionnement se trouve dans la zone linéaire de la courbe de polarisation, la constante de temps associée varie peu. Par exemple, le point de fonctionnement à 5A donne  $\tau_{dom}$  égale à 6,8 s, le point à 50 A donne  $\tau_{dom}$  égale à 3s. Mais, autour de 0,1A la constante de temps devient égale à 212s.

La non-linéarité de la loi de Butler-Volmer nous empêche de généraliser les conclusions de l'étude analytique proposée ici. Malheureusement, nous n'avons pas réussi à trouver une approche systématique permettant de la linéariser. Nous sommes donc de l'opinion que nous pouvons sans problème généraliser les conclusions qualitatives, mais nous ne pouvons pas généraliser les conclusions quantitatives.

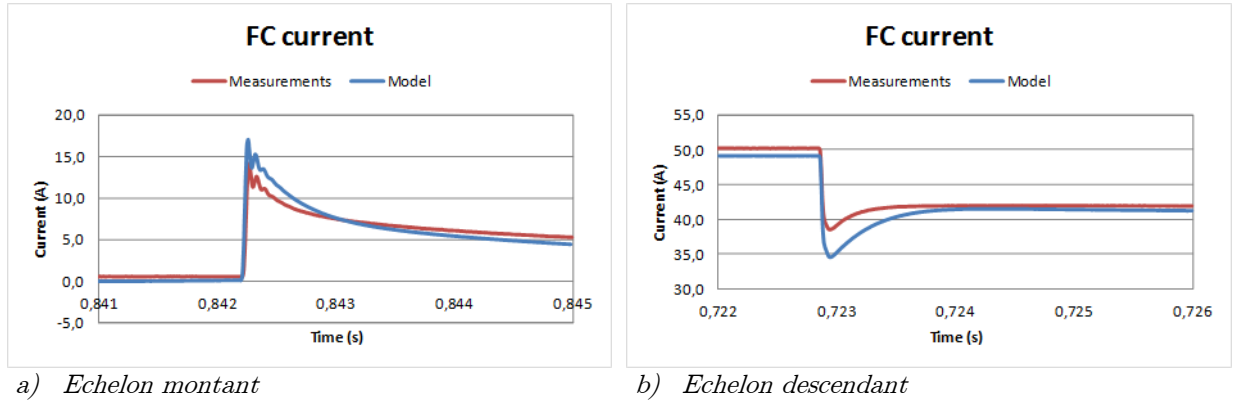
Nous concluons que le système étudié a un mode dominant et que la constante de temps associée à ce mode diminue (de manière exponentielle) avec l'augmentation du courant moyen injecté dans le système.

#### 4.5.4.2 Répartition théorique du courant à l'instant de l'échelon

Maintenant, faisons un zoom sur les échelons montants et descendants des créneaux de courant étudiés ci-dessus. Essayons d'abord de quantifier la répartition des courants à l'instant d'un échelon, à partir du modèle précédent :

$$\lim_{s \rightarrow \infty} \frac{z_{sc}}{z_{pac} + z_{sc}} = \frac{l_{sc}}{l_{pac} + l_{sc}} \quad ; \quad \text{Equation (IV.12)}$$

Tous les paramètres dans cette expression sont indépendants du courant et il semble alors théoriquement impossible d'observer une répartition différente pour les deux échelons. Bien que l'amplitude semble se maintenir entre le cas montant et le cas descendant en simulation, une légère diminution apparaît pour l'échelon descendant lors de l'expérimentation (**Figure IV.28**).



**Figure IV.28** : Courant de PAC lors d'échelons de courant de charge montant et descendant - zoom

Nous remarquons que la correspondance entre simulation et mesure n'est pas très bonne au moment de l'échelon, même si cela reste acceptable. La surestimation du saut de courant de PAC peut être due à des erreurs sur l'évaluation des inductances qui n'est pas toujours évidente compte tenu de très hautes fréquences mises en jeu lors de la mesure.

La quantification de ces sauts est de plus difficile compte tenu de l'imperfection des échelons réalisés par la charge. En effet l'échelon montant n'a pas une dynamique infinie et montre des oscillations (visibles en **Figure IV.21**), tandis que l'instant de l'échelon descendant est relativement long. Il faut garder en tête que **Equation (IV.12)** n'est valable que pour un échelon parfait, ce qui est impossible à réaliser en réalité. Ainsi il est difficile de conclure sur la quantification précise de ces sauts. Cependant on peut remarquer que la constante de temps observée sur ces zooms peut être la constante liée à  $p_2$  (3,2 ms), celle liée à  $p_3$  (1,34ms), ou une combinaison des deux. Puisque nous ne disposons pas d'une expression analytique pour ces constantes et puisqu'elles sont du même ordre de grandeur, il est très difficile de les distinguer.

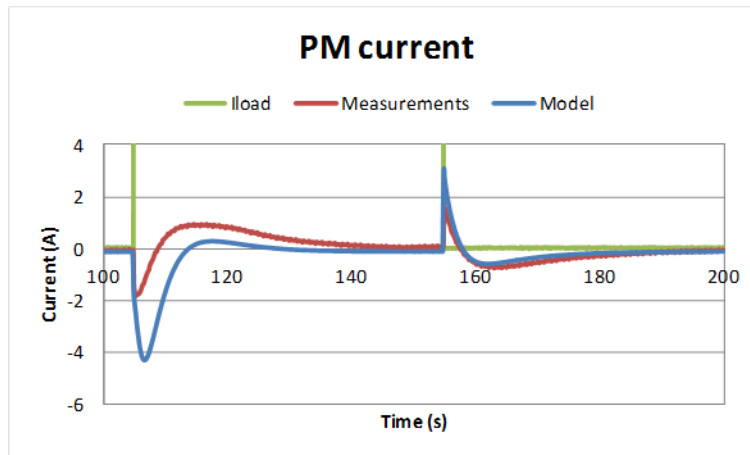
#### 4.5.5 Influence du point milieu

Si l'on reprend le calcul des pôles de la section précédente pour l'appliquer au schéma possédant un point milieu, les équations se complexifient et deux pôles supplémentaires sont ajoutés : il y a désormais un lent et un très rapide pour chaque couple PAC-SC. Il a été difficile de conclure sur l'impact des différents pôles dans la partie précédente, cela est d'autant plus difficile désormais.

Le courant de point milieu est responsable de l'équilibrage des deux condensateurs. Il s'agit d'abord de vérifier que le point milieu obtenu en simulation est fidèle à celui mesuré. On peut observer en **Figure IV.29** les courants de point milieu simulés et mesurés pour un créneau de



courant de charge de 50 A à 10 mHz - la même excitation que celle utilisée pour les créneaux basse fréquence dans le système sans point milieu.



**Figure IV.29** : Courant de point milieu: comparaison simulation - mesures, créneaux de courant de charge 0A..50A à 10mHz

On observe d'abord des formes similaires entre le courant mesuré et le courant simulé ; ce qui n'est pas une chose évidente car ce courant est fonction, entre autres, de chaque élément et donc son comportement résulte de la pertinence du modèle de chaque élément. En particulier pour l'échelon descendant, celui-ci est très proche de celui mesuré. En revanche pour l'échelon montant, la forme globale semble correspondre mais l'amplitude n'est pas bonne.

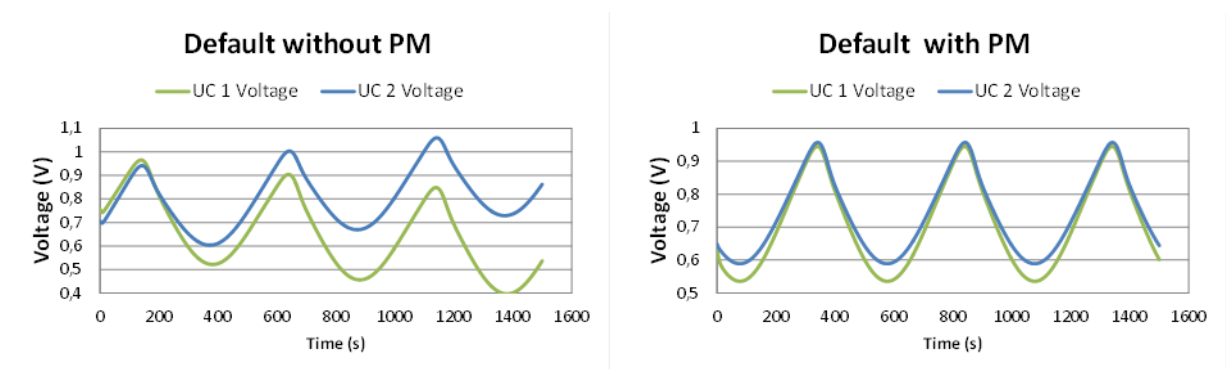
Plusieurs explications peuvent être proposées : la première est que le point milieu modélisé est 4 fois moins impédant (en résistance et en inductance) que celui dans le cas réel. Nous devons reconnaître qu'il y a eu confusion entre mise en série et mise en parallèle de deux câbles lors du passage de l'expérimentation à la simulation. L'impédance de ce câble jouant un rôle mineur, nous avons décidé de ne pas reprendre tous les travaux suite à cette constatation.

La seconde explication qui nous semble plus probable, et déjà évoquée à la 4.1.7 est le fait que le modèle de la PAC 1 possède une tension à vide légèrement trop élevée par rapport à la réalité. Cette tension plus élevée entraîne alors une tension du SC 1 plus élevée que la réalité lorsque le courant est nul et donc juste avant l'échelon montant. Ainsi à l'instant de l'échelon, la tension du SC 1, supérieure à celle du SC 2, entraîne (par des tensions respectives appliquées aux PAC pratiquement identiques à celles des SC) un courant de la PAC 1 inférieur à celui de la PAC 2. Or  $I_{PM} = I_{PAC1} - I_{PAC2}$ , ce qui in fine, rend compte d'un courant de point milieu excessif sur la simulation. Ce défaut de la tension à vide sur la modélisation de la PAC 1 exagère ainsi la valeur négative du courant du point milieu.

Des améliorations sont toujours possibles dans la modélisation : pour bien faire il aurait fallu corriger la tension trop élevée du modèle de cette cellule avant d'en observer ici l'impact.

Cette déformation n'est pas visible sur l'échelon descendant puisqu'aux courants de PAC considérés, les tensions observées par les deux modèles sont très proches de celles des cellules réelles.

La correspondance entre simulation et expérimentation permet alors de pouvoir envisager d'éventuels défauts par simulation. Par exemple sur la **Figure IV.30**, une résistance de  $4,5\Omega$  a été introduite en parallèle du SC 1 de manière à forcer un déséquilibre. Puis on soumet l'ensemble hybridé à une ondulation sinus de 0A à 50A à 2mHz. On observe que dans le cas où le point milieu n'est pas présent, un déséquilibre sur les tensions entre les SC se crée et s'accroît. A priori, aucun élément ne pourrait redresser ce déséquilibre si ce n'est en annulant ce défaut ; ce qui sera fait lorsque la tension du SC 1 aura atteint 0Vdc. Tandis que pour le cas avec point milieu, un déséquilibre entre les tensions persiste, mais celles-ci ne divergent pas. Cela montre une fois de plus la nécessité du point milieu ou, à défaut, d'un système d'équilibrage.



a) Simulation sans le point milieu

b) Simulation avec le point milieu

**Figure IV.30** : Simulation d'un système hybride 2 PAC -2 SC défectueux soumis à un profil de charge sinus 0A..50A à 2mHz

#### 4.5.6 Conclusion sur la simulation de l'hybridation

La simulation de l'hybridation directe était un défi que nous nous étions lancés en commençant ces travaux. En effet, il ne semble pas si évident de pouvoir retrouver les partages de courant autant sur des horizons de temps longs que sur des horizons de temps courts voire très courts. Nous nous attendions à nous heurter aux limites des modèles, puisque dans ces partages, les interactions entre les impédances des éléments jouent un rôle très fort. Ainsi une erreur dans l'estimation de ces impédances peut avoir un impact important sur les résultats de simulation. Cette simulation est possible mais au prix d'une modélisation fine des éléments.

Enfin, la pertinence des modélisations, qui a été montrée tout au long de cette partie par la correspondance proche entre simulation et expérimentation, permet d'envisager de multiples pistes d'explorations qui n'ont malheureusement pas pu être bien investiguées faute de temps. En effet, il est désormais très facile d'envisager :

- un défaut sur un élément (PAC ou SC),
- un déséquilibre dans le circuit comme la vieillissement prématurée d'un élément,
- diverses dissymétries dans le câblage (ou bien une symétrie et un équilibre parfait),
- diverses versions d'équilibrage ou de point milieu,
- etc.

Ce ne sont pas les idées qui manquent quant aux recherches possibles sur l'hybridation directe pour arriver à une proposition de solution proche de l'industrialisation.

## 4.6 Conclusion du chapitre

Ce chapitre avait pour objectif de simuler une hybridation directe de 2 cellules PAC associées à 2 SC avec et sans point milieu. A cette fin, il nous fallait disposer de modèles de tous les composants du système : PAC, SC et câblage.

Nous nous sommes appuyés sur le modèle de PAC développé au laboratoire ainsi que sur la méthode de paramétrisation associée. Nous nous sommes rendu compte que le processus de paramétrisation, basé jusqu'ici sur neuf spectres d'impédance, n'était pas optimal. En fait, les résultats de ce processus sont fortement dépendants du nombre de spectroscopies utilisé, des erreurs de mesure et des conditions initiales de l'optimiseur. Ce modèle étant destiné à l'utilisation sous un logiciel de simulation de circuits électriques, certaines simplifications relatives aux paramètres dépendants du courant et aux puissances non entières ont été nécessaires. Une approche pour améliorer la précision du modèle à haute fréquence en distribuant les phénomènes d'activation et de double couche a été présentée. Au final, nous avons validé toute la pertinence de ce procédé de paramétrisation via le comportement très satisfaisant du modèle.

Concernant la modélisation des supercondensateurs, nous avons retenu un modèle à 3 branches dont seul un élément est variable avec la tension. Bien que nous ne sommes pas très satisfaits des procédés de caractérisation et de paramétrisation déployés, le modèle s'est bien comporté. Malgré tout, les procédés utilisés mériteraient d'être repris en profondeur.

Quant à elle, la modélisation des câbles par de simples circuits R-L série semble satisfaisante.

La dernière partie qui illustre la finalité de ce chapitre concerne les simulations d'une hybridation directe de 2PAC-2SC. Nous avons observé que, soumis à des excitations fort signal de type créneaux, le modèle de simulation est très fidèle à la réalité aux basses fréquences. Par contre, à moyenne et à haute fréquence, il existe toujours un écart de quelques pourcents entre simulation et mesures, en particulier sur les tensions. Nous avons cherché à expliquer ces erreurs que l'on peut regrouper sous deux principales hypothèses : soit il s'agit d'une erreur de paramétrisation, soit le modèle théorique n'est pas capable de représenter parfaitement le comportement de la pile à cette échelle de temps où il ne prend pas en compte tous les phénomènes physiques au sein du composant.

Cependant la simulation effectuée s'est avérée satisfaisante à notre niveau (car l'objectif visé n'est pas évident), en particulier concernant le partage des courants prédit très proche de la mesure. La fiabilité démontrée de la simulation a permis d'émettre des hypothèses solides sur les interactions, et sur des points particuliers tels que la nature capacitive (double couche) des pics rapides de courant qui se produisent à l'instant même d'un échelon de courant.

La comparaison entre un raisonnement analytique et les mesures a montré que nous pouvons seulement faire des prédictions qualitatives sur le comportement du système en termes de constante de temps. Des prédictions quantitatives sont difficiles à cause de la nature fortement non-linéaire des composants. Dans ce cas, la simulation prouve tout son intérêt.

Enfin, ce chapitre ouvre de nombreuses perspectives de travail de modélisation d'une PAC :

- Augmentation de la précision du modèle HF
- Prise en compte de l'alimentation des gaz
- Simulation d'un stack entier (pas si simple que mettre n monocellules en série)
- Modélisation des mise en gaz/arrêt de PAC, bien que cet objectif paraisse très complexe et optimiste
- Utilisation de la simulation pour le dimensionnement
- Etude des défauts
- Etc.



# CHAPITRE V

Essais de systèmes hybrides  
PAC/SC pour le projet ISS  
à puissances significatives

Dans ce chapitre est présentée l'application d'une hybridation PAC-SC à un cas d'étude spécifique dans l'aéronautique. Nous avons fait le choix de présenter les essais et analyser les résultats mais aussi de donner certains détails techniques des dispositifs réalisés pour permettre la mise en œuvre d'essais à puissance significative (5kW fournis par la PAC, 10kW crête consommés) des systèmes hybrides PAC/SC. Ainsi, le lecteur qui désire mettre en œuvre une installation similaire pourra s'inspirer des réflexions menées, des solutions techniques employées, en évitant les erreurs commises. Dans cette optique, nous proposons ce chapitre suivant ce déroulement :

- Présentation de l'étude théorique : résumé des travaux antérieurs
- Présentation de la partie matérielle : mise en œuvre des architectures
- Présentation de la partie logicielle : mise en œuvre des stratégies de commande
- Résultats expérimentaux
- Comparaison, analyses et conclusions

## ***5.1 Approche théorique, projet ISS***

Une introduction aux systèmes hybrides à base de PAC dans un contexte aéronautique a déjà été faite dans le chapitre I ; il est toutefois utile d'en reprendre brièvement quelques aspects.

### **5.1.1 Contexte de l'étude : projets CELINA et ISS**

Dans le contexte de l'avion plus électrique (MEA : More Electrical Aircraft, [WEI-93], [CUT-02]) notamment porté par le projet Européen MOET (More Open Electrical Technologies), les besoins en énergie électrique d'un avion sont appelés à augmenter en particulier grâce aux avancées récentes de l'électronique de puissance [ROS-07]. Or un avion peut être sujet à diverses pannes et entre autres une perte totale des moteurs ou de la génération électrique. Ces pannes doivent naturellement rester acceptables [MEH-89]. Dans la majorité des gros avions, une turbine éolienne (RAT- Ram Air Turbine) est alors déployée pour assurer la production d'électricité et alimenter un réseau de secours [BOL-09]. Les actionneurs de commandes de vol récents et futurs étant électriques [BOT-00], [BOS-04], le profil de charge à fournir par ce réseau de secours est très intermittent (*Figure V.1*). L'augmentation de la demande en puissance électrique devient très contraignante pour la structure de l'avion qui doit inclure une turbine éolienne de plus en plus volumineuse. Des études récentes ont examiné le remplacement de cette turbine par une pile à combustible [GAR-07]. De plus, un système à pile à combustible présente d'autres avantages vis-à-vis des propriétés du système RAT actuel [WOR-09]: son fonctionnement est indépendant de la vitesse et de l'altitude de l'avion ; la pile à combustible peut être arrêtée à tout moment si les moteurs principaux sont récupérés alors que l'éolienne ne peut être rétractée une fois déployée ; enfin, la maintenance pourrait être réduite.

Rappelons que la pile à combustible fait réagir indirectement (oxydoréduction) de l'hydrogène avec de l'oxygène. Plusieurs stratégies sont alors possibles pour la fourniture de gaz

[GAR-07]. L'hydrogène pourrait être produit à bord à partir du reformage du kérosène [LEN-05], [IBA-06] ou être embarqué sous forme comprimé. L'oxygène pourrait être prélevé à l'air ambiant à l'aide d'un compresseur ou être embarqué sous forme comprimé. Si tous les cas ont été envisagés et évalués dans [GAR-07], la solution la plus pertinente dans le cas de l'application secours semble d'embarquer les deux gaz sous forme comprimée s'affranchissant de la délicate étape de reformage du kérosène et de la quantité et/ou la qualité de l'air en cas de situation de secours. C'est cette solution  $H_2/O_2$  qui est étudiée et validée expérimentalement dans le présent chapitre.

L'application de secours pourrait constituer une des premières introductions de cette technologie dans le monde aéronautique. Les études sur les applications dans l'aéronautique des piles à combustible dépassent d'ailleurs le seul cas du groupe de secours [CUR-10]. Une pile à combustible pourrait remplacer la turbine à gaz qui réalise actuellement la fonction APU (Auxiliary Power Unit) qui alimente l'avion en électricité lorsque celui-ci est au sol. Cela permettrait de diminuer le bruit et les émissions en gaz de l'avion au sol. Plus généralement, l'introduction de PAC dans les avions permet d'envisager de nouvelles fonctions telles que le roulage au sol sans consommation d'énergies fossiles (green taxi) ou encore la réutilisation des « déchets » usuels d'un système PAC comme la chaleur pour le dégivrage des ailes, l'eau produite pour les sanitaires ou l'air appauvri en oxygène pour l'inertage des réservoirs de kérosène. En Allemagne, le projet ELBASYS étudie diverses applications autour de piles à combustible [WOR-09] : groupe de secours, système pile à combustible multifonctions (électricité, eau, inertage), "green taxi" au sol. L'intégration des piles à combustible dans l'aéronautique semble devoir passer par une multifonctionnalité de façon à pouvoir rivaliser avec les autres technologies actuelles très intégrées ainsi que détaillé au chapitre 1.

Etant donné le caractère très intermittent du profil de secours à satisfaire (*Figure V.1*), il est intéressant d'associer à la source d'énergie principale une source à forte puissance massique afin d'éviter de la surdimensionner. Ainsi, la RAT actuelle a déjà fait l'objet d'études d'optimisation (réduction de sa taille et de sa masse) en association à des supercondensateurs [ROB-11], [RAF-10] au regard de la durée des intermittences à satisfaire (pics de fortes puissances mais relativement peu énergétiques). Dans le cas du groupe de secours à pile à combustible, il s'agit également de ne pas surdimensionner la pile à combustible [JIA-06]. Mais, d'autres motifs peuvent également justifier ce type d'hybridation. Par exemple, dans le cas d'un fonctionnement  $H_2/Air$ , cela permet aussi de palier la dynamique de la compression d'air [ZHA1-08].

Les travaux présentés dans ce chapitre s'inscrivent dans la continuité des travaux menés dans le cadre du projet européen CELINA (Fuel Cell Application in a New Configured Aircraft) qui s'est achevé en juillet 2008. Plusieurs architectures électriques ont été étudiées [GAR-07] pour associer la pile à combustible et les supercondensateurs. Le projet CELINA a fait place au projet ISS (Innovative Solutions for Systems) dont une des finalités est la validation expérimentale des architectures qui ont été retenues. C'est dans le contexte de cette validation expérimentale que ce chapitre est présenté.

Après avoir détaillé les fonctionnements des architectures hybrides retenues pour le cahier des charges de notre étude (40kW de puissance moyenne), nous présenterons leur pilotage



énergétique au plan théorique avant d'aller vers leur déclinaison pratique. Les détails des moyens mis en œuvre pour effectuer des essais sur des systèmes hybrides PAC/SC à une puissance moyenne de 5kW seront exposés et discutés. Enfin, la dernière partie sera consacrée à la validation expérimentale qui a été menée à échelle réduite (1/8) : dans un premier temps avec un émulateur de pile à combustible, puis dans un second temps avec une pile à combustible.

### 5.1.2 Objectifs du projet CELINA

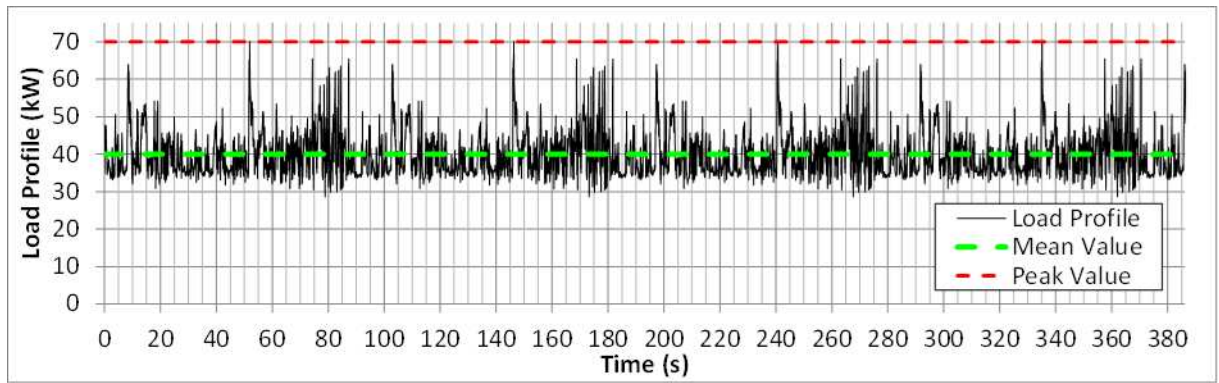
De nombreuses charges utilisées en dernier secours peuvent être considérées comme constantes. En effet les équipements électroniques (calculateurs) et les éléments de dégivrage absorbent une puissance constante et pendant toute la période de la mission de secours. D'autres équipements tels que pompes à carburant, équipements radio et phares absorbent une puissance constante lorsqu'ils sont utilisés. En revanche, certaines charges sont très variables, en particulier les actionneurs à commande de vol qui exigent une puissance très fluctuante, dépendant des conditions de vol pendant la quasi-totalité de la mission.

Lors de l'approche au sol, la vitesse de l'avion est réduite, ce qui impose de grands débattements des gouvernes de commande de vol pour diriger l'avion. Ceci entraîne une consommation de forte puissance. De plus, avant l'atterrissage, de nombreuses manœuvres sont effectuées par le pilote afin d'ajuster le positionnement de l'avion face à la piste. La mission de vol retenue (*Figure V.1*) concerne donc un cas d'approche au sol d'un avion à basse vitesse en milieu turbulent avec des manœuvres commandées par le pilote. Cette mission est définie comme la principale mission dimensionnante de notre étude [LAN-06], [GAR-07], c'est-à-dire une puissance consommée fortement variable qui atteint les pics de consommation les plus élevés.

Ce profil de mission comporte une puissance moyenne de 40kW ainsi que des pics de consommation atteignant 70kW, soit une différence de 30kW entre puissance moyenne à fournir et puissance maximale dimensionnante pour le système. Si l'on définit un Over Sizing Rate (OVSr) par l'*Equation (V.1)*.

$$\text{OVSr} = \frac{\max(\text{power}) - \text{mean}(\text{power})}{\max(\text{power})} = \frac{70.10^3 - 40.10^3}{70.10^3} = 0,42 \quad : \quad \text{Equation (V.1)}$$

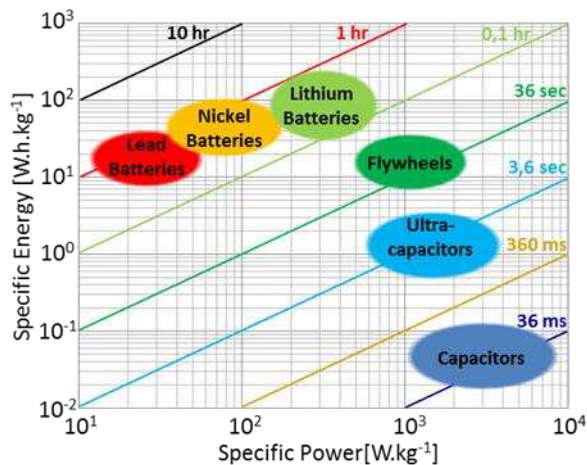
Un OVSr proche de zéro signifie que la puissance consommée ne varie pas, tandis qu'un OVSr proche de l'unité signifie que la puissance dimensionnante n'est utilisée qu'occasionnellement. De plus, de manière générale une pile à combustible exige des auxiliaires fluidiques qui possèdent de faibles dynamiques de réponse, or en mission de secours la puissance demandée doit être disponible immédiatement. Par conséquent, l'hybridation semble s'imposer dans ce cas d'étude.



**Figure V.1** : Profil de charge type pour le dimensionnement du réseau de secours électrique (phase d’approche).

Le nouveau standard avionique qui semble se dessiner en termes de niveau de tension est une tension de bus continu à  $-270\text{Vdc}/0\text{Vdc}/+270\text{Vdc}$  [EID-10], [RAV-09].

La **Figure V.2** extraite de [MOU-10] classe les différentes sources en fonction de leur énergie massique et de leur puissance massique.

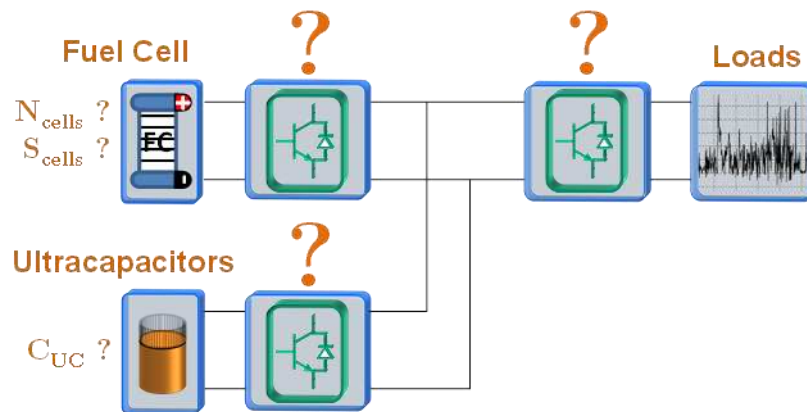


**Figure V.2** : Caractéristiques puissance massique / énergie massiques des principales sources de stockage et de propulsion existantes— extrait et adapté de [MOU-10] et [FLY-04].

Un bon candidat à l’hybridation est le supercondensateur pour ses qualités de forte puissance massique, de facilité de gestion d’état de charge, de durée de vie et de cyclabilités élevées avec une énergie stockable/restituable suffisante pour notre profil de mission [LAN-06], [ROB-11], [MAX-12].

Les travaux de [GAR-07] dont la validation expérimentale est présentée ici ont traité le dimensionnement de différentes architectures d’hybridation entre PAC et SC avec les objectifs suivants :

- Choix d’architectures électriques pour connecter un système PAC dans un réseau électrique aéronautique.
- Dimensionnement et simulation de la conversion de puissance (convertisseurs statiques DC/DC)
- Optimisation globale du système



**Figure V.3 :** Objectifs de dimensionnement du projet CELINA.

Comme illustré sur la **Figure V.3**, l'étude a consisté à déterminer le nombre idéal de convertisseurs, comment dimensionner le système PAC (surface, nombre de cellules) et le stockage (capacité) suivant l'architecture pour permettre d'assurer la mission exigée. L'architecture présentée ici est la plus générale, il s'agit ensuite d'envisager la suppression progressive des convertisseurs un à un sachant que le système final doit respecter les exigences du réseau électrique mais aussi être optimisé en termes de poids, de volume et de coûts (bien que ce dernier critère ne soit pas primordial dans le domaine aéronautique). Ainsi toutes les solutions envisageables ne satisfont pas les mêmes critères, mais pour satisfaire aux exigences du réseau au moins un convertisseur est nécessaire. L'électronique de puissance doit alimenter le bus continu en  $-270\text{Vdc}/0\text{Vdc}/+270\text{Vdc}$  soumis au profil de charge de la **Figure V.1** avec un seul stack comme source d'énergie.

Plusieurs critères ont été mis en œuvre pour réaliser un premier dimensionnement de la solution. La question est de déterminer le nombre optimal de cellules à mettre en série et leur surface pour constituer la pile à combustible. On peut surdimensionner la surface des cellules pour réduire la consommation en gaz. Ainsi on économise de la masse sur le stockage des gaz mais on alourdit la pile à combustible, il s'agit de trouver un compromis. Un critère important dans le dimensionnement de l'électronique de puissance est la tension minimale de la pile à combustible : à puissance équivalente, le courant traversant les semi-conducteurs est d'autant plus important que la tension de la pile est basse.

En ce qui concerne le stockage en supercondensateurs, les éléments sont choisis dans les catalogues des constructeurs. Il s'agit de déterminer la capacité totale ainsi que la tension minimale à 50% de la tension maximale permettant d'exploiter 75% de la capacité énergétique. La tension maximale permet de déterminer le nombre d'éléments à connecter en série. La capacité permet alors de déterminer le nombre de branches en parallèle.

### 5.1.3 Résumé de l'étude théorique menée dans CELINA

Les travaux effectués constituent le prolongement expérimental de l'étude théorique effectuée par simulation par [GAR-07] : nous consacrons donc quelques pages de ce chapitre à en résumer les éléments principaux ayant abouti à un dimensionnement. Parmi plusieurs

solutions envisageables, présentées au chapitre I, les trois architectures retenues ainsi que leurs gestions énergétiques sont décrites ci-après.

### 5.1.3.1 Descriptif théorique du système.

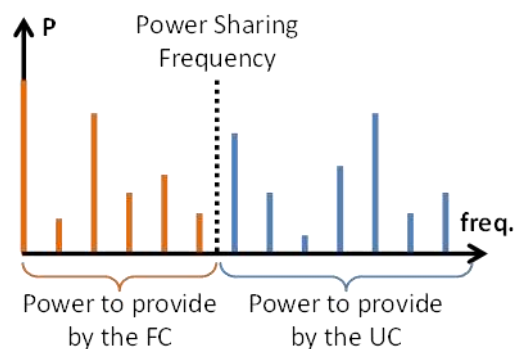
#### 5.1.3.1.1 Principe de partition fréquentielle de la puissance

L'hybridation au sens énergétique se définit comme l'association de plusieurs sources présentant des propriétés complémentaires en termes d'énergie, de puissance, et de dynamiques associées. Dans notre cas l'association est réalisée avec :

- une source de forte énergie massique (pile à combustible) qui supporte mal les variations rapides de puissance [SCH1-05], [THO-07] ;
- une source de forte puissance massique (supercondensateurs) dont le bilan énergétique est nul en valeur moyenne, aux pertes près (stockage).

L'idée directrice de cette hybridation énergétique est donc d'attribuer de faibles variations de puissance à la pile à combustible en reportant les pointes de puissance sur les supercondensateurs tout en assurant une puissance nulle en valeur moyenne afin de maintenir leur état de charge.

Pour cela plusieurs méthodes existent dont certaines ont été présentées au chapitre I : parmi les méthodes directes, la partition fréquentielle des puissances [CHA-98], [TUR-12], [TUR1-12] illustrée sur la *Figure V.4* a été retenue, [GAR-07]. Cette méthode consiste à attribuer les composantes de basses fréquences de la puissance absorbée par la charge à la source d'énergie, ici la PAC, et celles de hautes fréquences au stockage, ici les supercondensateurs, au moyen d'un filtrage caractérisé par une fréquence de partition ou plusieurs fréquences dans le cas d'hybridations multiples [TUR1-12] [TUR2-12].



**Figure V.4** : Principe d'hybridation par filtrage fréquentiel illustré dans le plan Puissance - fréquence.

Cette fréquence de partition joue un rôle déterminant dans le dimensionnement du stockage. En effet, à capacité de stockage donnée : plus cette fréquence est basse, plus le niveau énergétique des supercondensateurs fluctuera. Autrement dit : étant données les contraintes imposées aux supercondensateurs (niveau de tension max à ne pas dépasser et niveau minimum de réserve d'énergie), une fréquence de filtrage impose une capacité minimale de stockage à mettre en œuvre pour que le système puisse fonctionner. Dans notre cas cette fréquence de

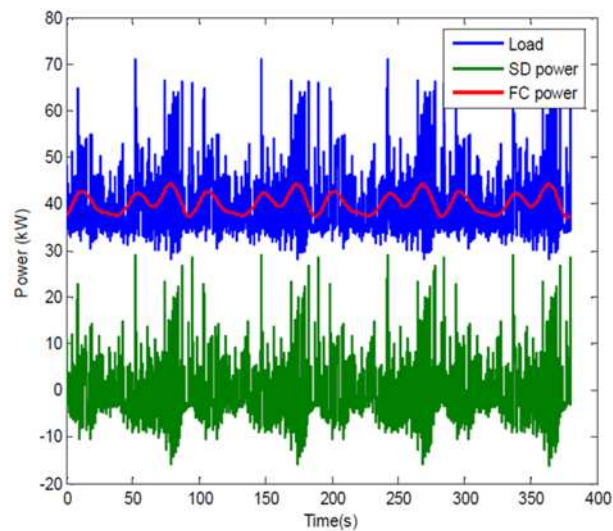
filtrage permet de déterminer la capacité du stockage sa tension de référence. Cette fréquence a été préconisée par un constructeur de piles à combustible à 50mHz, permettant aux auxiliaires de réguler correctement et aisément l'alimentation en gaz (pressions et débits) malgré les variations de consommation de la pile.

En pratique, c'est via un filtrage du courant de charge que cette gestion énergétique est implantée. Afin d'obtenir une bonne coupure dans le partage des puissances, le filtrage est réalisé par un filtre du 2nd ordre de la forme :

$$\frac{I_{load_{LF}}}{I_{load}}(p) = \frac{\omega_c^2}{p^2 + 2.m.\omega_c.p + \omega_c^2} \quad ; \quad \text{Equation (VI.1)}$$

Avec  $m = \sqrt{2}/2$  et  $\omega_c$  la pulsation de coupure désirée.

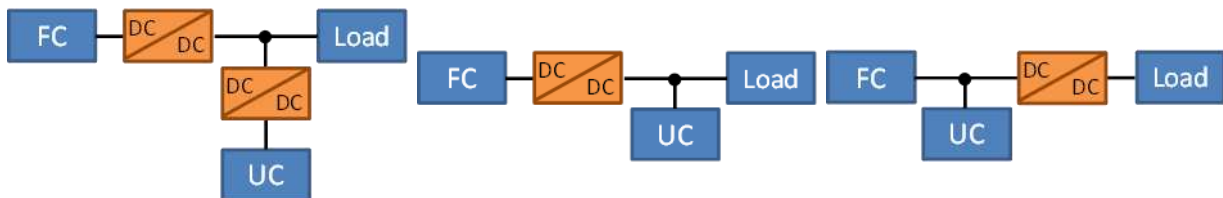
La **Figure V.5** illustre l'exemple du partage fréquentiel obtenu avec le profil de mission donné à la **Figure V.1** et la fréquence de filtrage est de 50mHz. Dans le cas présenté, idéal, on ne considère pas les pertes dans les éléments ni la consommation des auxiliaires.



**Figure V.5** : Mise en œuvre du partage fréquentiel pour une fréquence de 50mHz [GAR-07].

### 5.1.3.1.2 Définition des architectures

Les trois architectures retenues sont illustrées en **Figure V.6**.



a) Architecture n°1 à deux convertisseurs

b) Architecture n°2 à SC connectés au bus

c) Architecture n°3 Hybridation directe

**Figure V.6** : Schématisation des architectures retenues.

L'optimisation de chacune de ces architectures, suivant les deux critères masse et consommation d'hydrogène, a produit les résultats présentés sur la **Figure V.7**. Elle a permis

de déterminer les dimensionnements optimaux pour un système de 70kW avec 4h d'autonomie. Plus de détails sont donnés dans [GAR-07].

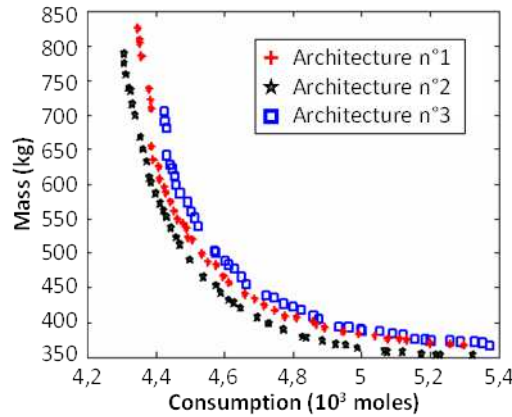


Figure V.7 : Résultats d'optimisation pour les architectures retenues [GAR-07].

En première analyse, l'architecture n°2 avec les supercondensateurs directement connectés au bus semble mieux répondre aux critères retenus. Cependant d'autres critères peuvent être envisagés tels que la qualité et la stabilité de la tension aux bornes des charges, le taux d'utilisation du stockage, la facilité de mise en œuvre des convertisseurs, la capacité de filtrage par le stockage de la puissance à fournir par la pile à combustible ou encore la robustesse du système complet. Après analyse, les avantages et inconvénients peuvent être résumés dans le **Tableau V.1** issu de [GAR-07] et dont deux couleurs ont été modifiées : la masse-consommation de l'architecture n°1, initialement en vert est passée en orange compte tenu de la **Figure V.7**, le contrôle de la tension de bus de l'architecture n°2 est passé de rouge à orange en référence aux conclusions de ce chapitre. Le compromis gagnant dépend de la pondération attribuée aux différents critères. Une pondération uniforme conduit au classement donné par le **Tableau V.1**.

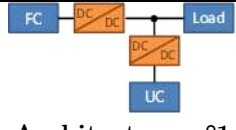







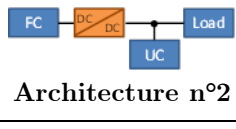







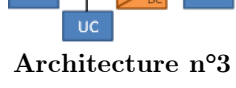







	Mass-Consumption	DC bus control	UC use	Power Electronics	Filtering Capacity	Reliability	Overview ( $\sum$ coeff.)
 Architecture n°1	 0	 +1	 +1	 -1	 +1	 -1	 +1
 Architecture n°2	 +1	 0	 -1	 +1	 0	 +1	 0
 Architecture n°3	 -1	 +1	 -1	 0	 -1	 +1	 -1

Tableau V.1 : Aperçu des principaux avantages et inconvénients liés aux architectures.

### 5.1.3.1.2.1 Architecture n°1 à deux convertisseurs

D'après les avantages et inconvénients donnés au **Tableau V.1**, la solution qui semble dégager le meilleur compromis avec une pondération uniforme est la solution à deux convertisseurs statiques (architecture n°1). Cette solution offre les stabilités de bus et capacités de filtrage les plus élevées, une masse et une consommation intermédiaires, mais une mise en œuvre et une fiabilité à prouver car l'architecture sollicite beaucoup l'électronique de puissance.

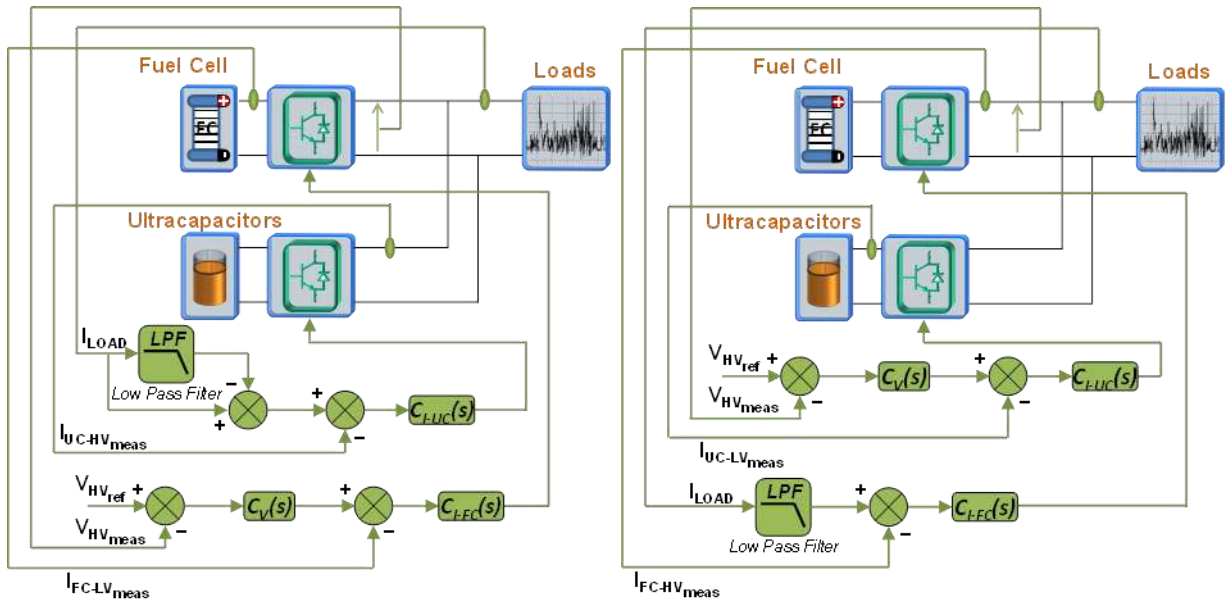
Cette architecture n°1 à deux convertisseurs statiques offre un degré de liberté pour le contrôle de la tension de bus. Trois éléments sont connectés au bus continu : les charges, le stockage et son convertisseur, la pile à combustible et son convertisseur. Or un seul de ces éléments à la fois peut piloter la tension de bus, et cela est exclu pour les charges. Il reste donc deux possibilités pour réguler la tension de bus : via le convertisseur de la pile à combustible ou via le convertisseur de stockage. Ces deux solutions sont illustrées sur la **Figure V.8**. Dans certains cas, il y a un intérêt particulier à confier la gestion de la tension de bus au stockage ; par exemple avec une turbine éolienne (RAT) à laquelle on peut alors associer une MPPT (Maximum Power Point Tracking) [LAN-06], [RAF-10]. Pour le cas d'une pile à combustible, aucun intérêt particulier ne semblait se dégager avant les essais expérimentaux.

Dans la continuité des travaux antérieurs, il a été choisi de réaliser une partition fréquentielle des puissances. Ainsi les composantes « hautes fréquences » (HF) de la puissance requises par l'application doivent être fournies par les supercondensateurs, et les composantes « basses fréquences » (BF) par la PAC ; cette partition étant réalisée par filtrage du courant de charge.

La principale différence entre les deux stratégies candidates au contrôle du bus est la suivante :

- dans le cas où c'est la pile à combustible qui impose la tension du bus DC (architecture n°1-1 - **Figure V.8.a**) : le convertisseur associé au stockage doit fournir les composantes HF du courant de charge, et ainsi ne laisser que les composantes BF à la PAC et son convertisseur pour contrôler le bus.
- dans le cas n°1-2 (**Figure V.8.b**) la pile à combustible ne doit fournir que les composantes BF car son convertisseur reçoit directement cette consigne, le stockage étant en charge de maintenir la tension sur ce bus. On peut imaginer qu'avec cette solution, si l'on perd le stockage, la tension aux bornes de la charge n'est plus contrôlée, sauf si une reconfiguration de la commande est effectuée.

Les deux systèmes obtenus avec ces deux stratégies de gestion de l'architecture n°1 sont dénommées par la suite Architecture n°1-1 et Architecture n°1-2 comme illustré sur la **Figure V.8** puisque chacune d'elle requiert les mêmes essais de validation qu'une architecture à part entière.



a) Contrôle de la tension de bus le CVS-PAC : Architecture n°1-1      b) Contrôle de la tension de bus par le CVS-SC : Architecture n°1-2

**Figure V.8 :** Les deux stratégies de gestion pour l'architecture n°1

#### 5.1.3.1.2.2 Architecture n°2 à un convertisseur

L'architecture n°2, bien que la plus performante en possède l'inconvénient de ne pas permettre la régulation de tension de bus proprement dite. Le stockage étant directement connecté au bus, la tension varie avec l'état de charge des SC, lui-même variable pour réaliser la fonction « filtrage » (**Figure V.9**). En contrepartie des de la tension de bus, cette solution présente l'avantage d'économiser un convertisseur, donc d'épargner les pertes afférentes et d'observer un gain en fiabilité au niveau de l'électronique de puissance. En revanche cette solution ne permet pas de faire varier la tension du stockage sur sa pleine échelle et donc d'en profiter pleinement (malgré tout, c'est la solution la plus légère).

.Si la PAC fournit exactement la valeur moyenne du courant de charge alors les supercondensateurs voient un courant moyen nul et leur tension oscille autour d'une valeur moyenne fixe.

Avec ce système de pilotage un contrôle d'état de charge est indispensable, une nécessité moins évidente avec les stratégies de l'architecture n°1. Sans ce contrôle, la tension de bus n'est pas maîtrisée. Pour fonctionner dans ces conditions le système doit être idéal, sans pertes, le filtre initialisé à la valeur moyenne et le stockage préchargé.



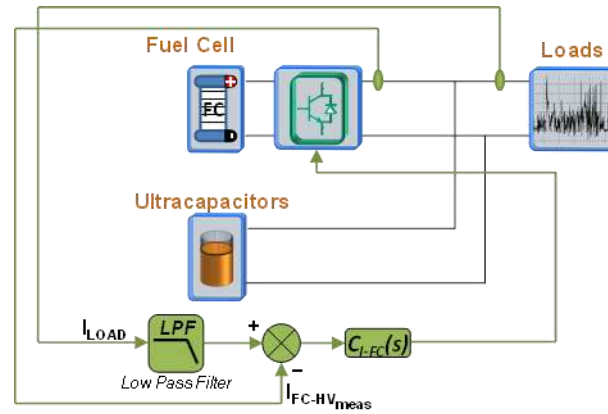


Figure V.9 : Pilotage de l'architecture n°2

Le dimensionnement du stockage se fait alors suivant 3 critères : - la nature du profil de charge ;

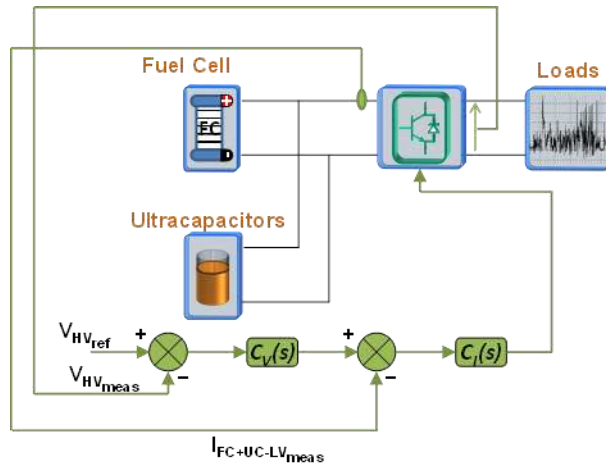
- les variations de tension tolérées sur le bus continu ;
- la capacité à filtrer le courant de la pile à combustible.

Ainsi le contrôle de l'état de charge du stockage (et par conséquent de la tension de bus) doit réaliser un compromis entre de faibles ondulations de bus ou sur la PAC.

Le principe de pilotage de l'architecture n°2 tel qu'illustré sur la **Figure V.9** (cas idéal sans pertes) est donc beaucoup plus simple que ceux de l'architecture n°1 et utilise moins de mesures. Les dynamiques exigées pour le convertisseur sont liées au choix de la fréquence de partage des puissances (power sharing) et sont donc lentes et donc moins exigeantes pour le convertisseur. De même les mesures présentent des variations lentes, ce qui permet un traitement du signal et une immunité au bruit très simple à assurer.

#### 5.1.3.1.2.3 Architecture n°3 : hybridation directe

Bien que l'architecture n°3 présente le moins bon rapport masse/consommation des trois architectures étudiées, elle possède l'avantage d'une « autogestion énergétique ». Sa mise en œuvre est simplifiée puisque l'état de charge du stockage n'a pas à être contrôlé, et qu'il n'y a pas de compromis à déterminer sur la dynamique de la tension de bus. En revanche, comme l'architecture n°2, cette solution présente l'inconvénient de ne pas utiliser pleinement (à 75%) la capacité du stockage contrairement à l'architecture n°1. Elle possède également l'inconvénient de faire transiter toute la puissance demandée par la charge par le convertisseur (mais aussi les pertes inhérentes) ce qui se ressent en termes de masse et de pertes. Tandis que pour l'architecture n°2 une partie de la puissance est directement fournie par le stockage aux charges, sans intermédiaires.



**Figure V.10 :** Pilotage de l'architecture n°3

Comme pour le cas précédent, cette architecture possède un principe de pilotage illustré en **Figure V.10** très simple et employant peu de mesures comparé à ceux de l'architecture n°1. L'avantage de cette solution est qu'elle utilise un principe de régulation usuel (structure cascade) et indépendant de l'hybridation.

Contrairement aux autres architectures, aucune modification du principe général de pilotage présenté ne sera nécessaire pour rendre cette solution opérationnelle.

### 5.1.3.2 Dimensionnement par simulation

Cette partie, qui s'appuie sur les dimensionnements effectués dans [GAR-07], met en évidence par simulation l'impact des pertes dans les convertisseurs et dans le stockage sur le dimensionnement final.

#### 5.1.3.2.1 Dimensionnement pour un cas idéal, sans pertes

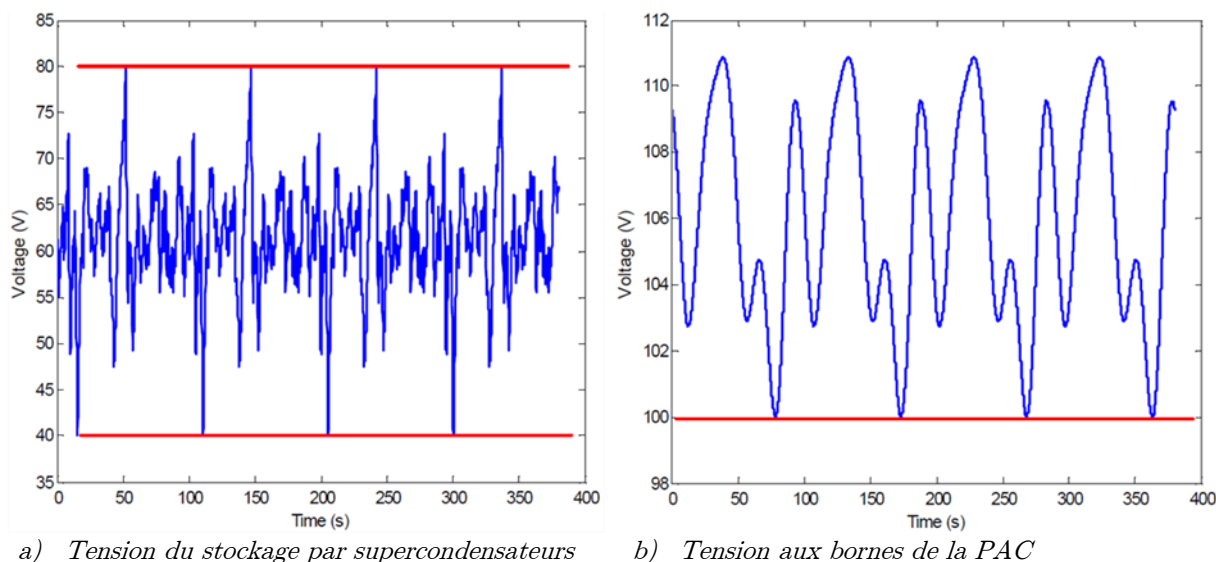
Prenons l'exemple d'un dimensionnement extrait de [GAR-07] afin d'observer l'impact des pertes et des boucles de régulations. Un choix représentatif de Le dimensionnement de l'architecture n°1, architecture intermédiaire en terme de rapport masse/consommation et qui offre le plus de degré de liberté est représentatif quelle que soit la stratégie. Le pilotage des convertisseurs est supposé idéal ; ainsi il n'y a pas de différence observable sur le dimensionnement entre l'architecture n°1-1 et n°1-2. Le **Tableau V.2** présente un exemple de dimensionnement avec un choix arbitraire de critères. Par la suite ces critères seront laissés variables de manière à optimiser la masse du système global et sa consommation en gaz.

- FC minimal voltage (V) = 100
- UC maximal voltage (V) = 80
- UC maximal discharge (%) = 50
- Cut-off frequency (Hz) = 0,05
- Fuel cell max current density (A.cm<sup>-2</sup>) = 0,5
- Switching Frequency (Hz) = 20 000
- Number of parallel converter branches = 4

FC surface (cm <sup>2</sup> )	FC cell number	C(F)	V <sub>storageT=0</sub> (V)
627,7	154	9,83	61,16

**Tableau V.2** : Exemple de dimensionnement du système hybride idéal pour l'architecture n°1.

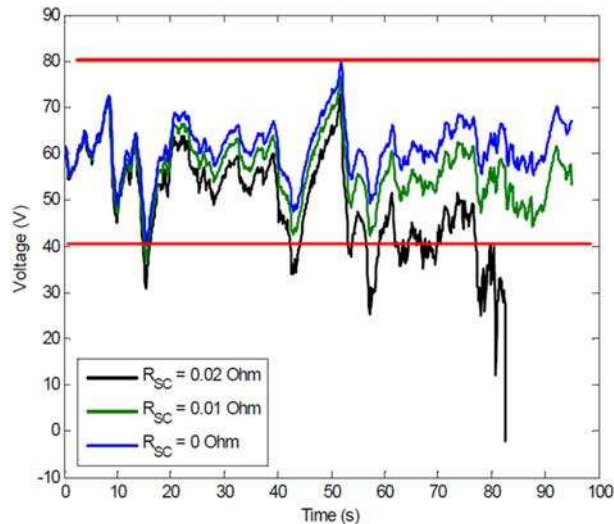
La **Figure V.11** montre l'évolution des tensions du stockage par supercondensateurs et de la pile à combustible au cours de la mission pour le dimensionnement proposé au **Tableau V.2**. A partir d'un modèle idéal, l'état de charge du stockage ainsi que la tension aux bornes de la pile à combustible respectent les bornes fixées.



**Figure V.11** : Evolution de la tension du stockage et de la pile à combustible au cours de la mission pour le dimensionnement précédent. [GAR-07].

### 5.1.3.2.2 Impact des pertes dans le système

Attachons nous maintenant à considérer quelques pertes dans le système et notamment dans les éléments de stockage (résistance interne des supercondensateurs). On observe comme illustré à la **Figure V.12** que l'état de charge du stockage ne respecte plus les bornes fixées mais qu'il évolue assez rapidement vers la décharge complète car l'énergie dissipée par les pertes internes au stockage n'est pas régénérée : l'application ne peut dès lors plus fonctionner au-delà du temps de décharge.

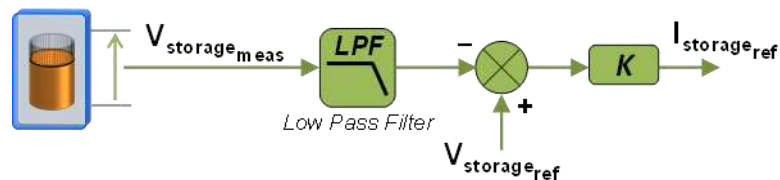


**Figure V.12 :** Evolution de la tension des supercondensateurs en considérant différentes résistances internes. [GAR-07].

La solution proposée pour maintenir l'état de charge du stockage dans les bornes requises est d'ajouter une boucle de régulation de type proportionnel couplée avec un filtre passe-bas portant sur la tension des supercondensateurs, comme illustrée sur la *Figure V.13*. La difficulté du choix de ce correcteur réside dans le choix de la valeur du gain proportionnel :

- Avec un gain trop faible, le correcteur ne peut maintenir l'état de charge dans les bornes.
- Avec un gain trop élevé, la tension du stockage ondule à la fréquence du filtre passe-bas placé sur la mesure de la tension des supercondensateurs.
- Sans ce filtre passe-bas, une partie des variations hautes-fréquences de la tension des supercondensateurs est reportée sur le courant fourni par la pile à combustible, ce que l'on cherche précisément à éviter.

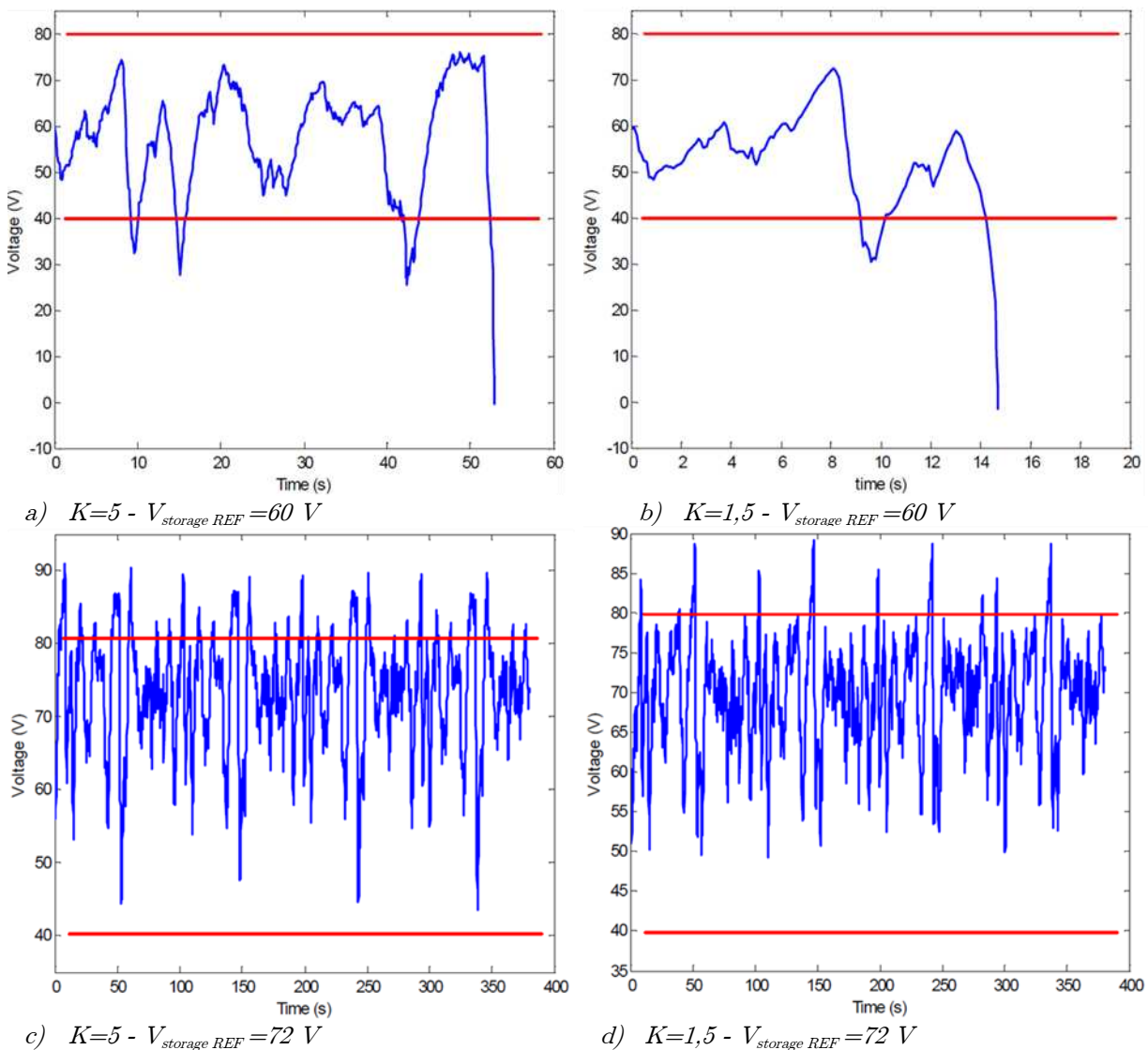
De plus, le respect des bornes de tension choisies pour le stockage est fortement lié à la tension de référence de celui-ci. Cette boucle doit être insérée dans la commande du convertisseur associé à l'organe régulé en courant, à savoir: le stockage pour l'architecture n°1-1 et la pile à combustible pour l'architecture n°1-2. En effet, le convertisseur qui régule la tension de bus ne possède plus d'autre degré de liberté pour assurer cette fonction supplémentaire.



**Figure V.13 :** Illustration de la boucle de régulation de l'état de charge du stockage nécessaire pour compenser les pertes.

Selon [GAR-07], cette boucle de gestion de l'énergie avait déjà été proposée dans [SAI-04] et [RAË-05]. D'autres auteurs tels que [LAN-06] ont proposé une boucle de gestion de l'état de charge similaire où le filtre est supprimé et le gain proportionnel remplacé par un régulateur Proportionnel Intégral (PI). Les deux gestions de l'énergie conduisent à une fonction transfert du second ordre en boucle fermée identique et sont donc équivalentes.

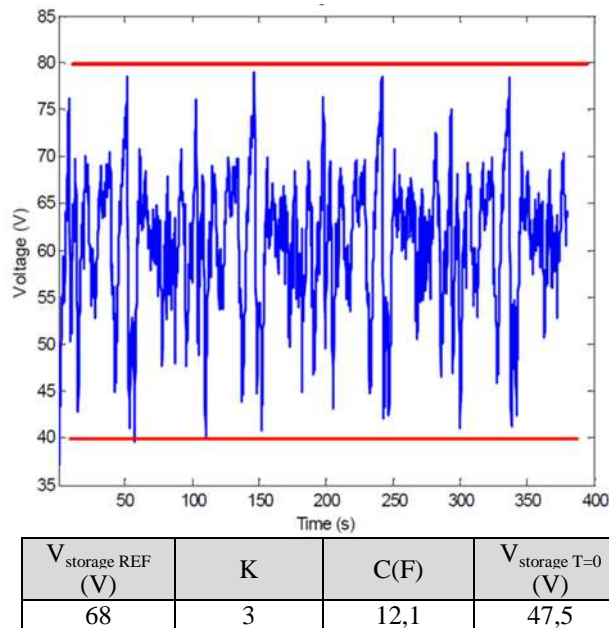
La **Figure V.14** illustre différents choix de la tension de référence  $V_{storage REF}$  et du gain  $K$  de la boucle de régulation de l'état de charge du stockage. On observe l'importance du choix de ces valeurs pour la stabilité du système. Avec une tension de référence trop faible, l'état de charge moyen ne permet pas de réaliser entièrement la mission. Avec une tension trop élevée, le risque est de dépasser les valeurs maximales de tension admises pour les supercondensateurs. Le choix de ces paramètres peut contribuer à réduire (ou à augmenter s'ils sont mal choisis !) la taille de l'organe de stockage. Par la suite le choix de ces valeurs est donc pris en charge par l'algorithme de dimensionnement du système.



**Figure V.14** : Exemple de choix divers des valeurs des paramètres de la boucle de régulation de l'état de charge.

Le résultat d'un tel redimensionnement du stockage et de sa boucle de régulation, au moyen d'un algorithme d'optimisation est donné la **Figure V.15**. La prise en compte des pertes dans le stockage avec l'ajout d'une boucle de maintien de l'état de charge entraîne un redimensionnement d'environ 23% plus élevé du stockage que pour le système idéal sans pertes. Elle permet également de déterminer les critères (tension de référence, gain proportionnel et

tension minimale initiale du stockage) permettant de réaliser la mission en respectant les bornes fixées sur l'état de charge du stockage mais aussi en exploitant au mieux celui-ci.



**Figure V.15** : Exemple de variation d'état de charge du stockage obtenu introduction de la compensation des pertes.

### 5.1.3.2.3 Conclusion sur le dimensionnement par simulation

Les simulations effectuées ont permis de dégager des avantages et des inconvénients théoriques pour chaque stratégie avec la méthode de pilotage proposé. Il s'agit ensuite d'effectuer une validation expérimentale de ces conclusions théoriques pour les différentes architectures et stratégies. C'est ce qui a pu être fait dans le cadre du projet ISS auquel la suite du chapitre est dédiée.

## 5.2 Mise en œuvre matérielle des essais

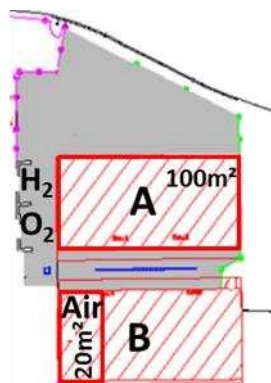
En préambule, nous devons préciser que, comme dans bien des expérimentations, le matériel disponible influence de nombreux choix. Nous avons donc choisi de présenter dans un premier temps la partie matérielle, ce qui de justifier différents choix effectués en termes de dimensionnement et de pilotage.

### 5.2.1 Description des installations, matériels et spécifications

La mise en place d'essais significatifs nécessite des moyens spécifiques, en particulier avec les PAC pour l'usage de l'hydrogène. Ainsi un descriptif des locaux et du banc d'essai qui a été employé dans ces travaux est brièvement présenté dans cette partie avant de passer au descriptif du banc d'essai.

### 5.2.1.1 Locaux et installations

Au cours de l'année 2010, nous avons pu bénéficier de nouveaux locaux ; initialement vides, ils ont été aménagés de manière à accueillir des prototypes de PAC, d'électrolyseurs (ELYZ) et des dispositifs électriques. Des illustrations sont données en **Figure V.16** et **Figure V.17**. Des détails sur la mise en œuvre sont donnés dans [RAL1-11], dont l'auteur fait partie des acteurs principal de ces aménagements.



a) Plan extérieur des locaux



b) Bâtiment A vu de l'extérieur et zone de stockage des gaz



c) Zone de stockage  $H_2$



d) Zone de stockage  $O_2$  et  $N_2$



e) Compresseur d'air et circuits de séchage.

**Figure V.16 :** Illustration des locaux : partie extérieure et zone « gaz ».

L'enceinte du bâtiment principal a été divisée en trois parties, une zone réglementée ATEX (Atmosphères Explosives) alimentée en gaz depuis l'extérieur et permettant d'accueillir les prototypes électrochimiques. C'est dans cette zone que les essais à 4 cellules présentés dans le chapitre III ont été réalisés. Cette zone accueille également un banc dédié à l'étude d'empilements de cellules (stacks) (**Figure V.17.b**) pouvant aller au-delà de 5kW. Les quantités en gaz actifs présents dans la zone de stockage extérieure permettent une autonomie de 28h avec une production de 5kW électriques et 140h à 1kW. Cette zone ainsi que la gestion de la sécurité qui y est liée est détaillée dans [RAL1-11].

Une seconde zone qui sera détaillée dans la partie suivante est la zone électrique (**Figure V.17.d**) qui accueille les prototypes électriques : alimentation, charges, stockage (SC, batteries plomb, batteries Li-ion) convertisseurs et nœuds d'interconnexion. Sa particularité est qu'elle possède une forte puissance électrique disponible et une forte capacité à évacuer les calories car toute l'énergie dissipée sous forme thermique dans les charges doit être évacuée vers l'extérieur.

Enfin, la zone de supervision (*Figure V.17.c*) permet de piloter tous les prototypes électriques, d'orienter les connexions entre les éléments mais également le pilotage fluïdique du banc stack et aussi de récupérer les mesures : la plupart de l'expérimentation se déroule donc uniquement depuis cette salle confortable, ce qui est nécessaire compte tenu des nuisances sonores importantes émises par certains prototypes électriques (ventilation bruyante et certains découpages dans le domaine audible).

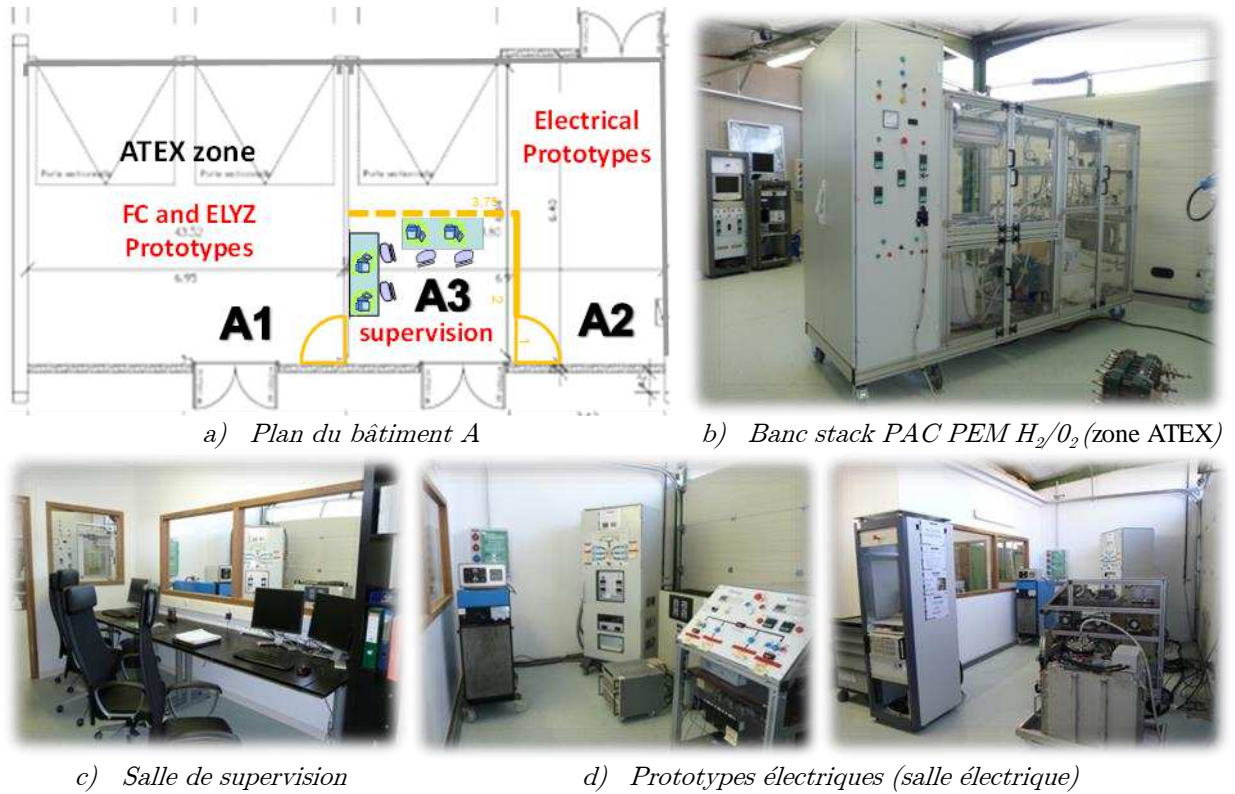


Figure V.17 : Illustration de la partie intérieure du bâtiment A d'essais

### 5.2.1.2 Banc d'essais modulaire reconfigurable

Le banc d'essais utilisé est issu de plusieurs travaux au laboratoire dans des domaines divers liés aux réseaux maillés HVDC (High Voltage Direct Current) dans l'aéronautique : entre autres [BAU-09], [KOD-09] et [GIR-10]. Il a évolué au fil des années ce qui a permis à une partie de ce banc (supervision et un nœud électrique : EPC) d'être utilisée pour ces essais. La particularité de ce banc est d'être très modulable, il permet par simple jeu de contacteur de sélectionner un moyen de stockage (différentes valeurs de capacité pour des assemblages de SC, différentes batteries), de choisir un chemin à travers convertisseur ou un chemin direct, de placer ou non des capacités de bus puis de démarrer des séquences ou de générer des profils pour chaque élément. Le schéma de ce banc modulaire est donné en *Figure V.18*.



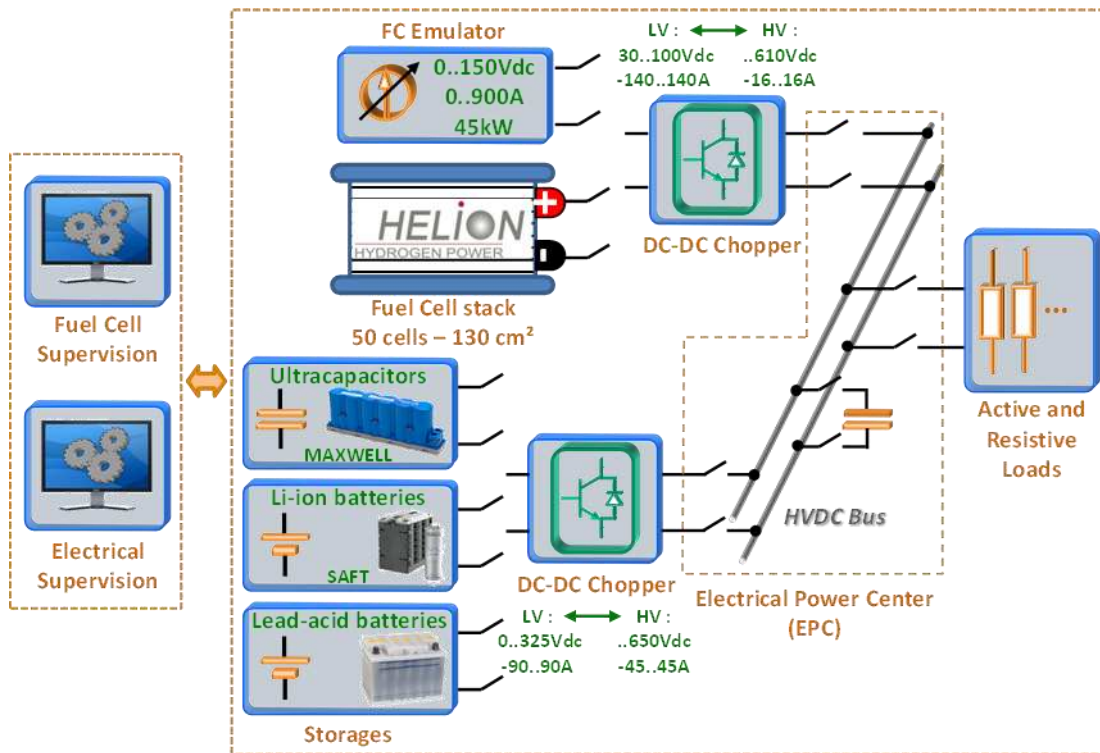


Figure V.18 : Schéma et structure du banc de test pour l'expérimentation.

Le **Tableau V.3** récapitule les principales caractéristiques des éléments du banc. Compte tenu de limites, il n'est pas possible de reproduire une hybridation PAC/SC avec le profil décrit en **Figure V.1** à l'échelle 1:1.

<p style="text-align: center;"><b>Superviseur</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle dSPACE DS1005</li> <li>• 93 Entrées/Sorties Numériques</li> <li>• 72 Entrées/Sorties Analogiques</li> <li>• Boucle de temps de 5kHz à 10kHz</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Electrical Power Center (EPC)</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Connexion de 6 éléments (contacteurs, fusibles, mesures V, I)</li> <li>• Précharge sur 3 éléments</li> <li>• Courant : 50A max par élément</li> <li>• Tension : 650Vdc max</li> <li>• Capacité de bus de 4,2mF (avec précharge)</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>CVS PAC</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Côté BT : 30Vdc..100Vdc à -140A..140A</li> <li>• Côté HT : <math>V_{BT}</math>..650Vdc à -16A..16A</li> <li>• 3 bras entrelacés à 18kHz soit 54kHz de découpage apparent</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>CVS Stockage</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Côté BT : -325Vdc..325Vdc à -90A..90A</li> <li>• Côté HT : <math>V_{BT}</math>..650Vdc à -45A..45A</li> <li>• 3 bras entrelacés à 9kHz soit 27kHz de découpage apparent</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>Charges Actives HT (x2)</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle H&amp;H ZS5660</li> <li>• Tension : 1Vdc...600Vdc</li> <li>• Courant : 0A..80A</li> <li>• Puissance : 5,6kW max</li> <li>• Pilotage V, I, P, R interne ou externe</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Charge Active BT</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle NHR 4700 DC Load</li> <li>• Tension : 1Vdc...120Vdc</li> <li>• Courant : 0A..1200A</li> <li>• Puissance : 6kW max</li> <li>• Pilotage V, I, P, R interne ou externe</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>Charge résistive 1</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Plan de charge triphasé 6,9kW</li> <li>• Réglages 50%, 20% 20%, 10%</li> <li>• Résistance 7,7<math>\Omega</math>..690<math>\Omega</math></li> <li>• Vmax : 230Vdc..690Vdc</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Charge résistive 2 (x2)</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Plan de charge triphasé 10kW</li> <li>• Réglages 50%, 25% 10%, 10%, 5%</li> <li>• Résistance 5,3<math>\Omega</math>..950<math>\Omega</math></li> <li>• Vmax : 230Vdc..690Vdc</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>Batteries Plomb-acide (x8)</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Technologie bloc gel</li> <li>• Capacité nominale : 70Ah</li> <li>• Tension nominale : 12Vdc</li> <li>• Charge max : C/4</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Supercondensateurs (x35)</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle : MAXWELL BMOD0058 E016 B02</li> <li>• Capacité : 58F</li> <li>• Tension maximale : 16,2Vdc</li> <li>• Courant nominal : 20Adc</li> <li>• Equilibrage : passif</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>Batteries Li-Ion BT</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle : SAFT ELISA V3</li> <li>• Capacité nominale : 60Ah</li> <li>• Tension nominale : 25Vdc (28Vdc max)</li> <li>• Courant nominal : -60A..300Adc</li> <li>• Equilibrage : actif</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Batterie Li-Ion MT</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle : SAFT ISS Power demonstrator</li> <li>• Capacité nominale : 7Ah</li> <li>• Tension nominale : 216Vdc (240Vdc max)</li> <li>• Courant nominal : -6A..100Adc</li> <li>• Equilibrage : actif</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>Alimentation BT</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle : ACORE RG 2094</li> <li>• Tension : 0Vdc...150Vdc</li> <li>• Courant : 0A..900Adc</li> <li>• Puissance max : 45kW</li> <li>• Pilotage V, I, interne ou externe</li> </ul>	<p style="text-align: center;"><b>Alimentation HT</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modèle : REGATRON TCP 16.800.400S</li> <li>• Tension : 0Vdc...1000Vdc</li> <li>• Courant : 0..40Adc</li> <li>• Puissance max : 32kW</li> <li>• Pilotage V, I, P, interne ou externe</li> </ul>

**Tableau V.3 :** Résumé des principales caractéristiques des éléments du banc.

### 5.2.1.3 Emulations. Supervision. Sécurité.

La validation expérimentale présentée dans ce chapitre s'est déroulé en plusieurs étapes :

- Emulation de la PAC. Le remplacement de la PAC par une alimentation pilotée émulant la PAC et moins contraignante qu'une pile réelle en termes de coût de combustibles et de risques de dégradation apparait une étape indispensable. L'utilisation de l'émulateur permet d'ajuster et de valider le fonctionnement des boucles de régulations et des capteurs, et de pousser les stratégies aux limites afin de

tester les déclenchements de sécurité avec des risques minimales pour le matériel.  
Utilisation de batteries plomb-acide ou de charges actives à la place des SC

Les SC sont des organes qui peuvent devenir dangereux lors d'utilisation en dehors des gammes permises (en température ou tension). D'une part, comme avec tout dispositif de stockage d'énergie, en cas de défaut majeur à minima l'énergie stockée peut être libérée en un instant très bref, créant ainsi une onde de choc. D'autre part, les SC contiennent de l'acétonitrile, un composé dérivé du cyanure très volatile, très nocif et inflammable. C'est pourquoi il est important de disposer de sécurités bien testées, validées et pouvant fonctionner à coup sûr.

Le remplacement du stockage par des batteries bien connues ou par une charge active apporte les mêmes avantages que précédemment. Sur la partie électrique, plusieurs niveaux de sécurité existent, l'ordre croissant des alertes est le suivant:

- allumage voyant témoignant d'une tension élevée,
- blocage de la commutation dans les convertisseurs,
- séparation de tous les organes entre eux par ouverture de tous les contacteurs,
- coupure de l'alimentation du banc, impliquant la séparation des organes (déclenchement manuel).

#### 5.2.1.3.1 Pilotage du banc : supervision

Le banc d'essai présenté se pilote à travers un superviseur qui présente une interface sous ControlDesk® représentée en *Figure V.19*, sa programmation se faisant sous Matlab®/Simulink®.

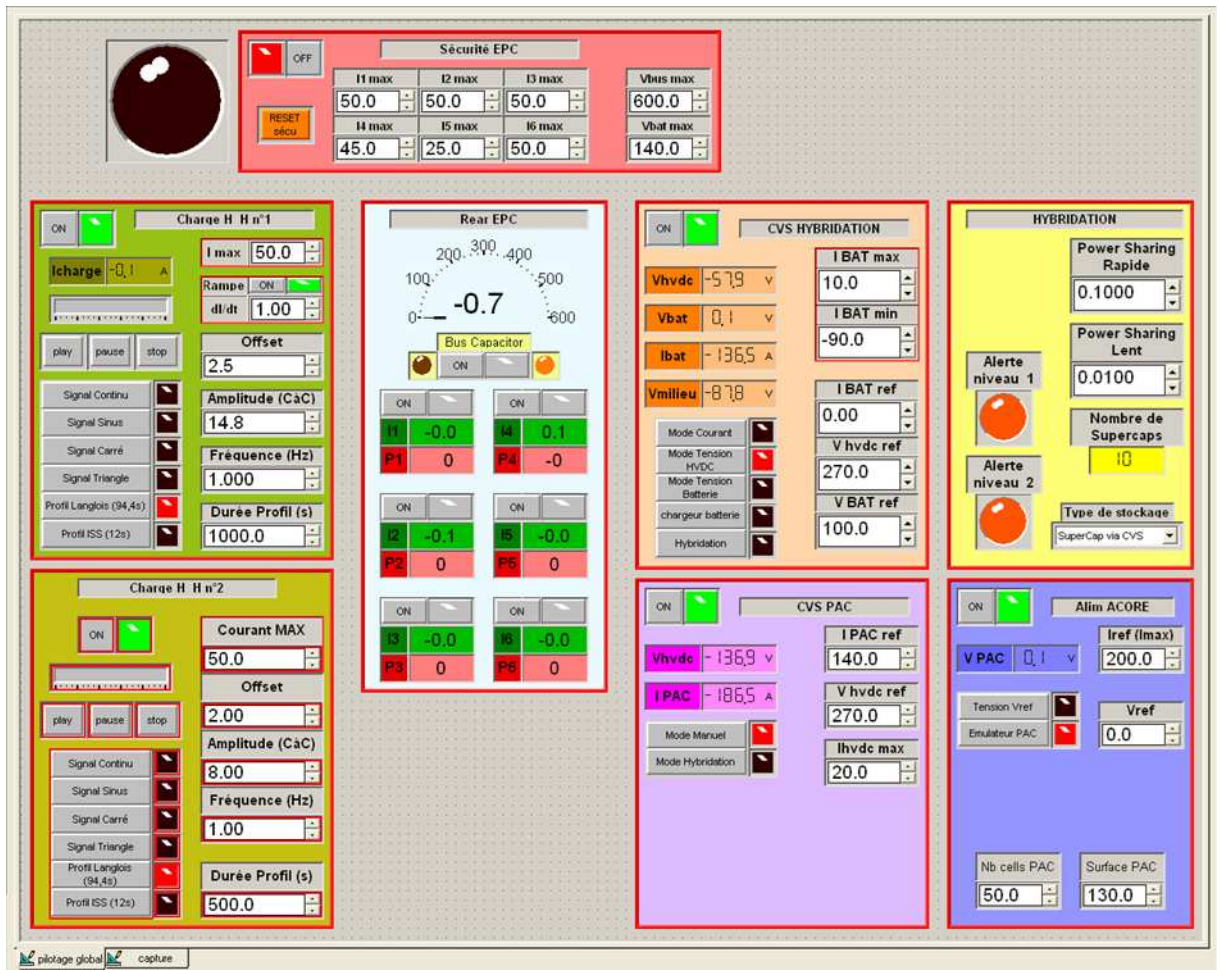


Figure V.19 : Interface de pilotage du banc

Etant donné qu'il y a de nombreux organes sensibles à piloter dans ce banc, l'ergonomie du pilotage a été particulièrement étudiée pour prévenir de fausses manœuvres, par exemple le déclenchement des sécurités du banc PAC provoquant un inertage intempestif du stack avec mise sous azote. Cette opération nécessaire pour la sécurité du matériel et des personnes a un impact encore méconnu sur la durée de vie et l'état de santé du stack compte tenu des risques d'écart sur les pressions encourus.

L'interface présente une zone spécifique pour chaque organe simplifiée au maximum:

- Charges actives avec différents profils possibles réglables en offset et amplitude, possibilité de limiter la pente, choix de la fréquence lorsque cela est possible et une limitation sur la durée. Possibilité de démarrer/arrêter/mettre en pause le profil ou éteindre la charge à tout moment.
- Alimentation avec les limitations classiques tension/courant d'une alimentation à caractéristique rectangulaire et munie d'un mode « émulation de PAC » qui permet de choisir le nombre de cellules et la surface équivalente du stack émulé (section 0). Possibilité de mise à zéro rapide de toutes les consignes.
- Convertisseurs statiques avec les différents moyens de pilotage et des limitations possibles sur chaque grandeur. Avec sa structure particulière (décrite à la section 5.2.4), le CVS associé au stockage offre des possibilités supplémentaire et permet

notamment une régulation de la tension côté basse tension. Possibilité de mise à zéro rapide de toutes les consignes et de l'interdiction des commutations.

- Cœur électrique permettant la connexion/déconnexion de chaque élément du bus HVDC. Des informations sur les tensions, courants et puissances sont disponibles. Possibilité de déconnexion de tous les organes entre eux.
- Un bloc d'hybridation qui reste essentiellement « de contrôle », pour s'assurer que le bon nombre de module SC est pris en compte (section 5.2.5), de l'état de la régulation d'état de charge, etc. Il permet aussi de définir la fréquence de partition de la puissance (power sharing) et celle de démarrage.
- Un bloc de sécurité qui déconnecte automatiquement certains organes en cas de d'atteinte d'un des seuils de sécurité par ouverture des contacteurs et en mettant à zéro toutes les consignes de l'organe concerné. Les seuils sont réglables et comprennent les mesures sur les tensions et sur les courants.

L'interface permet une acquisition des grandeurs électriques, cependant pour les résultats présentés nous avons choisi d'acquérir les données par des sondes et un appareil indépendants.

L'idée de départ était de faire jouer le profil de mission par un autre superviseur indépendant de manière à ne pas assumer la génération du profil et la gestion d'énergie par le même calculateur, afin de garantir une validation indépendante. En effet, avec ces deux fonctions sur le même superviseur, il est tout à fait possible que la supervision générant le profil anticipe sur la gestion énergétique. Comme la gestion énergétique est basée sur des mesures externes de courants et de tensions détaillées dans la section 5.3, il n'y a pas de communication entre les organes à l'intérieur du programme, les seules données communes étant les mesures effectuées sur le banc.

#### 5.2.1.3.2 Choix d'un profil de mission

Pour les profils de mission, nous ne pouvons pas employer le profil de mission à l'échelle 1:1 en pratique, ce qui pose le problème de mise à l'échelle du profil, soit : quel niveau de tension choisir ? Quelle puissance moyenne de charge appliquer ? Quelle puissance crête pour définir l'OVSR ?

##### 5.2.1.3.2.1 *Choix d'une tension de bus*

Compte tenu des nouveaux standards sur les réseaux maillés HVDC en aéronautique (exprimé en partie 5.1.2) :  $-270\text{Vdc}/0\text{Vdc}/+270\text{Vdc}$ , et compte tenu de notre matériel le choix de la tension se situe entre  $0\text{Vdc}/+540\text{Vdc}$  et  $0\text{Vdc}/+270\text{Vdc}$ . Il semble plus pertinent de choisir un demi-bus, c'est-à-dire une tension  $0\text{Vdc}/+270\text{Vdc}$  puisque la tension  $540\text{Vdc}$  n'est pas un niveau prévu dans l'aéronautique. Le banc ayant été dimensionné pour  $600\text{Vdc}$ , l'utilisation d'une tension plus basse permet un facteur d'échelle moins important sur les courants circulants comparé au système réel.

### 5.2.1.3.2.2 Choix d'un facteur d'échelle de profil

Concernant le profil de mission, regardons les éléments qui peuvent borner ce profil (en valeur moyenne et en valeur maximale). Le stack peut fournir un courant maximum de l'ordre de 250A (>8kW électrique), mais ce banc stack n'est aujourd'hui capable de dissiper que 5kW thermiques. [RAL-11]. Le CVS PAC est limité à 140A ce qui ne permet pas d'utiliser la puissance maximale du stack, mais limitant également à 5kW la puissance électrique maximale que l'on peut prélever sur le stack.

Le CVS PAC possède un fort gain en tension, avec une structure boost relativement usuelle (30Vdc côté BT pour 650Vdc côté HT soit un gain supérieur à 20) ; le rendement de l'ordre de 90% (dépendant du point de fonctionnement) n'est donc pas des meilleurs, soit Pmax de l'ordre de 4500W en sortie. Il faut noter que la puissance moyenne liée au stockage et son convertisseur ne peut être nulles en pratique (compte tenu des pertes dans les SC et le CVS), et que ces pertes doivent in fine être fournies par la PAC. Malgré l'hybridation, la puissance à fournir par la PAC oscille à basse fréquence autour d'une valeur moyenne inférieure à sa valeur max. Le profil de mission doit être identique pour toutes les architectures.

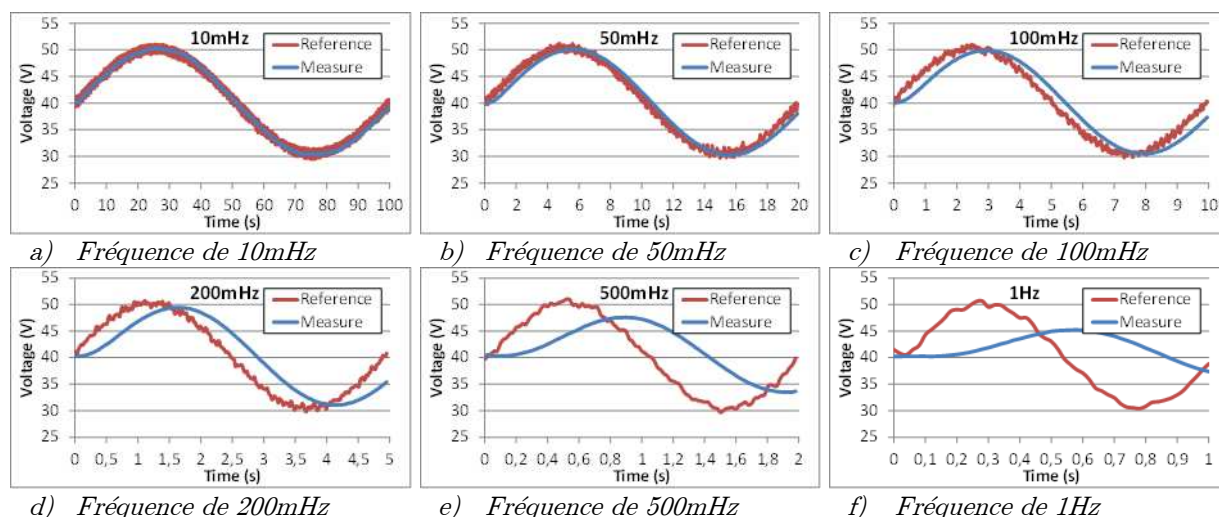
Compte tenu de toutes ces remarques, nous avons donc choisi une puissance moyenne de charge de 4kW que l'on peut utiliser sans jamais atteindre la saturation sur le CVS PAC pour chaque architecture.

Le profil présenté (*Figure V.1*) possède un OVSR de 0,42 tandis que ce même profil employé pour l'application RAT dans [LAN-06] possède une OVSR de 0,50. Nous souhaitons pourvoir fournir le pic de puissance max lorsque le stockage est à demi-tension par rapport à sa tension de référence, compte tenu des limitations du CVS stockage (-90A..90A) dont la structure est détaillée dans [RAF-10], cela représente une puissance de 4500W avec un stockage à 50Vdc, soit une approximation à 4kW fournis côté HT en considérant les pertes (CVS et SC). Le choix du profil a alors été orienté vers un OVSR de 0,50 sur le bus (4kW de puissance moyenne, 8kW de puissance crête). Ce rapport est plus sévère pour le système qu'un OVSR de 0,42 mais permet de l'utiliser à ses capacités maximales compte tenu des niveaux de tensions PAC et SC. Notons que l'OVSR et les puissances max peuvent être considérées différemment si l'on prend en compte les puissances fournies par les organes (PAC ou SC) et non les puissances disponibles sur le bus. La tension de référence du stockage est placée à 100Vdc (architecture n°1).

Ainsi l'expérimentation est réalisée avec un facteur d'échelle d'environ 1/10 sur les puissances par rapport aux résultats de simulation de [GAR-07]. De plus ayant été réalisée sur un demi bus HVDC (c'est-à-dire 0Vdc/+270Vdc au lieu de -270Vdc/0Vdc/+270Vdc), cela représente finalement un facteur d'échelle 1/5 sur les puissances mises en jeu sur ce demi bus. Ce choix nous semble être le meilleur compromis compte tenu des caractéristiques du matériel dont nous disposons.

## 5.2.2 Emuler une PAC

L'hybridation de la pile à combustible par des supercondensateurs implique que celle-ci sera peu sollicitée dynamiquement. Un émulateur de son comportement quasi-statique est donc a priori suffisant. En outre l'alimentation BT dont nous disposons semble posséder un filtre sur la consigne externe de l'ordre de 0,5Hz (voir essais illustrés en **Figure V.20**). Avec de telles dynamiques, il est inutile de chercher à utiliser un modèle de PAC performant dynamiquement.



**Figure V.20** : Comparaison consigne/mesure sur l'alimentation BT pour des consignes tension sinus 30Vdc..50Vdc à différentes fréquences

Dans l'essai de la **Figure V.20**, l'alimentation a été soumise à une charge constante de 2,5kW. Comme cette alimentation fait preuve par ailleurs d'une excellente robustesse face à des variations brusques de courant (faible variation de tension engendrée), cela nous amène à émettre l'hypothèse d'un filtrage de la consigne. D'autant plus que dans ces essais, seulement 15% des capacités en courants de l'alimentation sont utilisées (140A pour 900A max).

L'émulateur de pile à combustible consiste donc en une source de tension programmable pour laquelle sa tension de sortie est ajustée en fonction de son courant débité de manière à correspondre à la courbe quasi-statique d'une pile à combustible suivant la fonction (extraite de [FON-07], [RAL-11]) donnée par l'**Equation (V.2)**. Le modèle est prévu pour être modulaire, c'est-à-dire pour pouvoir jouer des scénarii avec diverses valeurs de surface de cellule et de nombre de cellules mises en série afin d'émuler un stack. Ainsi tous les paramètres sont donnés en densité (par  $\text{cm}^{-2}$ ) pour une seule cellule.

$$V_{FC} = N \cdot \left( E^0 + \frac{R \cdot T}{n \cdot F} \right) \cdot \ln \left( P_{H_2} \cdot P_{O_2}^{1/2} \right) - \frac{R \cdot T}{\alpha \cdot n \cdot F} \cdot \ln \left( \frac{J + J_n}{J_0} \right) - R_{eq} \cdot J \quad : \quad \text{Equation (V.2)}$$

Avec :

- N : Nombre de cellules du stack
- $E^0$  : Potentiel standard du couple redox  $O_2/H_2O$  ( $E^0=1,229V$ ) [V]
- R : Constante des gaz parfaits ( $R=8,314 \text{ J.mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) [ $\text{J.mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ]
- T : Température de la membrane [K]
- n : Nombre d'électrons mis en jeu dans la réaction (2)

- $F$  : Constante de Faraday ( $F=9,649.104 \text{ C.mol}^{-1}$ ) [ $\text{C.mol}^{-1}$ ]
- $P_{\text{H}_2}$ - $P_{\text{O}_2}$  : Pressions partielles respectives de l'hydrogène et de l'oxygène [Bars].

Et les paramètres suivants sont extraits par fitting de la courbe de polarisation mesurée sur un PAC réelle ;  $J = I/S$  étant la densité de courant (en  $\text{A.cm}^{-2}$ ) traversant la membrane émulée. :

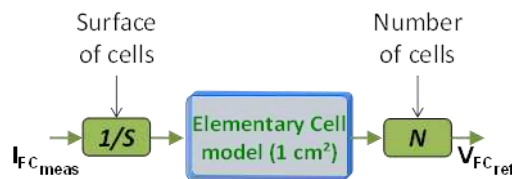
- $\alpha$  : Coefficient de transfert d'activation
- $J_n$  : Densité de courant équivalent de crossover [ $\text{A.cm}^{-2}$ ]
- $J_0$  : Densité de courant d'activation [ $\text{A.cm}^{-2}$ ]
- $R_{\text{eq}}$  : Résistance surfacique équivalente de diffusion et de la membrane [ $\Omega.\text{cm}^2$ ]

Le fitting a dans un premier temps été réalisé à l'aide des monocellules étudiées dans le chapitre III (**Tableau V.4.**), puis dès réception du stack, les valeurs des paramètres ont été remplacées par celles obtenues à partir d'une mesure de la courbe de polarisation du stack. Cette méthode de fitting à partir d'une courbe de polarisation ne permet pas de bien distinguer les différentes pertes entre elles, c'est pourquoi certains paramètres sont très différents de la modélisation fine et possèdent un sens physique limité. Cela change peu l'allure générale de la courbe.

Paramètre	Valeur	Unité
$\alpha$	0,5549	$\emptyset$
$J_n$	$3,069.10^{-3}$	$\text{A.cm}^{-2}$
$J_0$	$3,681.10^{-7}$	$\text{A.cm}^{-2}$
$R_{\text{eq}}$	$1,119.10^{-1}$	$\Omega.\text{cm}^2$

**Tableau V.4** : Paramètres de l'émulateur extraits depuis une monocellule du même fabricant que le stack (HELION Hydrogen Power).

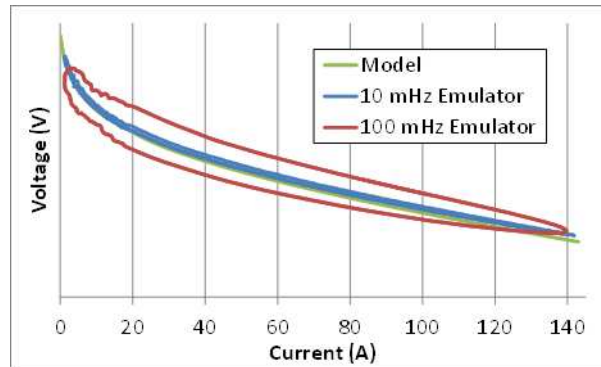
On peut noter que l'extrapolation du modèle d'une monocellule au stack correspond à une distance relativement importante entre les deux organes :  $25\text{cm}^2$  pour une cellule contre  $130*50=6500\text{cm}^2$  pour le stack : une monocellule représente donc 0,38% de la surface totale du stack. L'implémentation du modèle est illustrée en **Figure V.21**.



**Figure V.21** : Implémentation du modèle extrapolé de l'émulateur.

Même avec ce modèle statique, l'impact du filtre de consigne de l'alimentation BT n'est pas négligeable ainsi qu'on peut l'observer sur la **Figure V.22**. Etant donné le caractère statique de l'émulateur, la courbe « aller » aurait dû être confondue avec la courbe « retour », quelle que soit la fréquence. Par cet effet, ce filtre aurait pu jouer un rôle équivalent à la capacité de double couche qui a un effet similaire sur la tension (cf. Chapitres II et IV) si sa fréquence avait été au moins une décade plus haute. Les performances obtenues suffisent cependant aux objectifs recherchés avec cet émulateur, d'autant que l'expérimentation sera réalisée avec le stack réel par la suite pour une version plus aboutie des résultats.





**Figure V.22 :** Comportement mesuré de l'éémulateur PAC face à des excitations en courant sinus 0..140A à basses fréquences (modèle issu du stack)

L'alimentation utilise le réseau triphasé  $f=50\text{Hz}$  comme source d'énergie et possède très probablement un redressement par pont de diode qui crée des harmoniques à  $6f$  soit  $300\text{ Hz}$ . Ainsi, le courant fourni par cette alimentation possède une ondulation à  $300\text{Hz}$  d'environ  $8\text{A}$  ce qui est peu ( $<1\%$ ) si l'on considère la gamme maximale que peut fournir cette alimentation DC mais cela représente près de  $6\%$  du courant maximal dans notre cas. L'alimentation émet également des ondulations à  $11\text{kHz}$  probablement dues au découpage. L'ondulation à  $300\text{Hz}$  traverse le convertisseur, se retrouve sur la tension du bus et n'est pas rejetée par la charge active. Ainsi, dans toutes les mesures utilisant l'éémulateur, on observe une ondulation à  $300\text{Hz}$  sur chaque grandeur.

Ici apparaissent les limites d'une expérimentation par cet émulateur, afin d'être certains de ne pas avoir d'harmoniques supplémentaires dans la source, nous devons utiliser des sources indépendantes du réseau EDF tels que des batteries ou le stack. La solution batterie permet uniquement de mettre en évidence l'origine de ces ondulations et de s'assurer qu'elles ne proviennent pas d'un convertisseur ou de la charge puisqu'il est évident que cette source d'énergie ne peut pas fournir indéfiniment.

### 5.2.3 Précharger le stockage

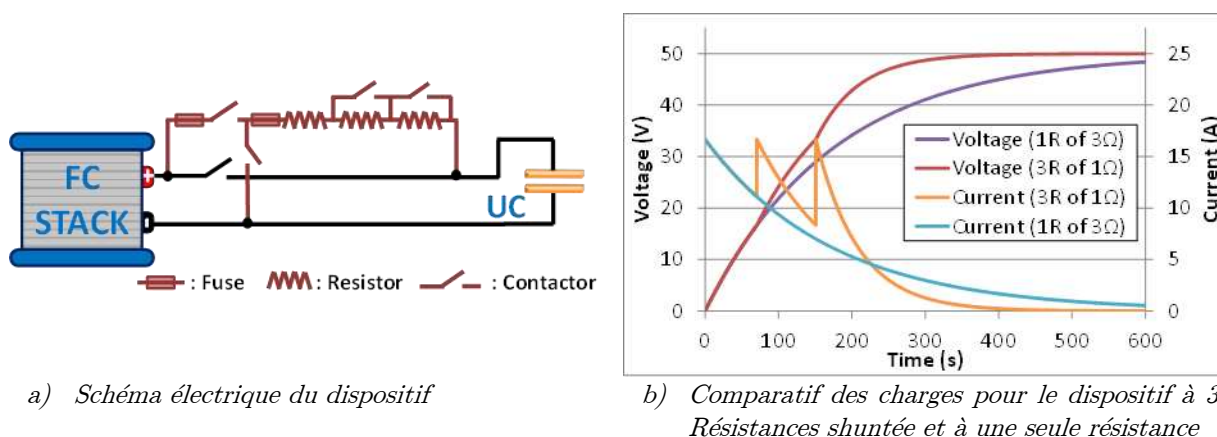
Les conditions initiales de l'hybridation sont : stockage chargé à sa valeur nominale et source principale (PAC) à zéro. On essaie ici de se placer dans une situation proche de l'aéronautique : lorsque la panne totale de la génération électrique apparaît, le réseau de secours doit être déployé en quelques secondes tout au plus. Dans notre cas, on suppose que l'énergie de la PAC est disponible immédiatement mais qu'à l'instant  $t=0$  celle-ci ne fournit pas de puissance. Pour permettre un démarrage relativement en douceur de la PAC tout en alimentant les charges, le stockage doit être chargé initialement et prendre en charge cette période de transition. Dans une application réelle on peut très bien imaginer que le stockage soit initialement préchargé et maintenu en charge par le réseau électrique encore en état de marche. Cependant, dans ce banc de test nous ne disposons que de la PAC ou de l'éémulateur pour réaliser cette fonction : avant de lancer une expérimentation tout est à vide et déchargé.

En ce qui concerne l'émulateur, étant donné que l'alimentation peut être pilotée en tension ou en courant il est très facile de réaliser cette précharge. C'est la consigne limitante qui prend la main sur la régulation, c'est ce que l'on appelle un pilotage carré à cause de la forme dans un plan  $V(I)$  : exemple  $I_{ref}=10A$ ,  $V_{ref}=10V$ , si l'impédance de charge est de  $10\Omega$ , l'alimentation délivrera 10V et 1A (limitation en tension), si l'impédance est de  $0,1\Omega$  l'alimentation délivrera 1V et 10A (limitation en courant). Lors de la charge des SC, on s'assure ainsi de ne jamais dépasser aucune des deux limitations. Cependant cela n'est pas le cas pour le stack car il possède peu de limitations en dehors de sa tension à vide. Ainsi, suivant les architectures utilisées, différentes procédures ont été mises en place.

Pour l'architecture n°1 (2 CVS), l'opération est simple puisqu'il suffit de monter le bus HVDC à tension donnée par le stack et son convertisseur, puis de réaliser la même opération qu'avec l'alimentation (pilotage carré : limitation tension et courant) à l'aide du convertisseur de stockage. Cependant pour l'architecture 1-2 (2 CVS avec régulation de la tension de bus par le stockage), cela exige un changement de mode : le CVS de stockage doit prendre la main sur la tension de bus initialement régulée par le CVS PAC. Lors de telles commutations, les régulations inactives sont inhibées (les intégrateurs sont gelés pour ne pas diverger) et il est difficile d'effectuer une reprise sans à-coups sur les courants. Or, un des principes de l'hybridation étant de limiter ou de supprimer les à-coups de courant sur la PAC, ces opérations doivent se passer en douceur. L'utilisation préalable de l'émulateur est très importante pour régler ces phases et les procédures étant donné qu'il ne craint pas les variations de charge.

Pour l'architecture n°2, étant donné le caractère survolteur de la PAC vers les SC (sur le bus HVDC), en réalisant une connexion directe (fermeture des contacteurs PAC, CVS ou SC) la précharge des SC se ferait naturellement à la tension de la PAC en passant par les diodes du CVS mais avec un appel de courant très important. Il y a donc un risque pour le convertisseur, pour les SC et pour la PAC. Nous avons choisi de mettre en place une précharge résistive pour permettre cette étape. La suite de la précharge : monter la tension des SC de  $V_{PAC}$  à 270Vdc, peut être réalisée par la limitation en courant et tension du CVS PAC.

L'architecture 3 nécessite également un système de précharge puisqu'il n'y a pas de composant intermédiaire entre la PAC et les SC et donc pas de moyen pour maîtriser le courant de charge. Le dispositif résistif évoqué pour l'architecture précédente devra remplir également cette fonction, sa taille en sera influencée. Un schéma de principe est donné en *Figure V.23*.



**Figure V.23 :** Dispositif de précharge résistive des SC par la PAC

Le dispositif permet de réaliser la précharge des SC par la PAC mais aussi leur décharge en fin d'expérimentation ou pour recommencer des essais depuis le début. En limitant le dispositif à une seule résistance, il y a un choix à faire entre un fort appel de courant lors de la fermeture du contacteur ou un long temps de précharge.

Pour le dimensionnement de ce dispositif, nous avons considéré la PAC comme une source de tension, ce qui est une approximation très grossière mais permet un dimensionnement maximisé et donc plus robuste.

Dans notre cas nous avons choisi de ne pas dépasser 20A d'appel de courant (on obtient 16,7A en considérant la PAC comme source de tension parfaite à 50Vdc et une résistance de  $3\Omega$ ). Or, avec cette résistance le temps de précharge pour l'architecture 3 qui possède 58F de stockage est très long : environ 15 minutes pour atteindre 95% de précharge. En court-circuitant des résistances lorsque le courant diminue, cela permet d'écourter le temps de précharge sans augmenter la valeur du courant d'appel, dans notre cas il est réduit à 7 minutes avec une convergence vers les courants faibles plus importante (**Figure V.23.b**).

L'énergie à dissiper est identique à celle stockée pour les deux cas (cas d'une source de tension parfaite), soit 72,5kJ ou 172 W en moyenne pendant 7 minutes avec un pic à 835W, ce qui représente un système dissipatif relativement conséquent.

Le système de précharge étant connecté en parallèle du contacteur de puissance du banc stack, la section des câbles ne permet pas de dériver un courant très important, de plus une mauvaise gestion des contacteurs pourrait permettre un court-circuit de la PAC et des SC, des fusibles ont été ajoutés (**Figure V.23.a**).

#### 5.2.4 Présentation et commande des CVS à haut gain en tension

Qu'ils soient dédiés au stockage ou à la PAC, les convertisseurs utilisés possèdent des gains élevés en tension. Pour le stockage, celui-ci pouvant être à tension nulle, le gain en tension du convertisseur associé doit pouvoir théoriquement atteindre l'infini. Concernant la PAC, le convertisseur a été spécifié pour pouvoir atteindre un gain de 20. Cette section présente brièvement les topologies de ces deux convertisseurs ainsi que les moyens mis en place pour obtenir le pilotage désiré.

### 5.2.4.1 CVS associé au stockage : CVS-STO

La mise en place de ces essais a permis le lancement d'une architecture prototype de convertisseur DC-DC réversible en courant à gain en tension très élevé. Cette structure est présentée en **Figure V.24**, elle est divisée en deux convertisseurs indépendants qui ont été nommés 'left' et 'right' pour simplifier les explications. La puissance est choisie par convention positive du côté BT (Basse Tension) vers le côté HT (Haute Tension), mais en pratique chacun des sous-convertisseurs réalise les deux fonctions buck et boost puisque les interrupteurs sont réversibles en courant. Chaque sous-convertisseur possède 3 bras entrelacés pour permettre la réduction de l'ondulation du courant de sortie tout en permettant l'augmentation de sa valeur moyenne. La particularité de ce convertisseur est que la partie BT est flottante : le niveau de flottement est choisi par la tension  $V_{mid}$ . Ainsi, pour une tension BT très faible, on peut choisir un niveau  $V_{mid}$  proche de  $V_{HVDC}/2$  et avoir des rapports cycliques pour chacun des sous-convertisseurs proches de 0,5. Avec de tels rapports cycliques, la commande des interrupteurs est simplifiée, en particulier les contraintes sur les temps morts qui sont moins sévères par rapport à une structure classique possédant un gain en tension équivalent.

Par défaut le choix de  $V_{mid}$  est placé à  $(V_{HVDC}-V_{storage})/2$  de manière à avoir la tension de stockage centrée par rapport à  $V_{HVDC}$  et 0Vdc, mais d'autres stratégies de choix de la tension de flottement peuvent être choisies telles qu'une minimisation de l'ondulation du courant de sortie permise par l'entrelacement des bras, etc. Une autre particularité de cette structure est que la tension  $V_{storage}$  peut également être négative, ce qui est plutôt un inconvénient qu'il faudra surveiller pour notre application. Ce convertisseur ayant également servi aux essais d'hybridation RAT et SC, des détails supplémentaires sur la structure et le pilotage sont donnés dans [RAF-10].

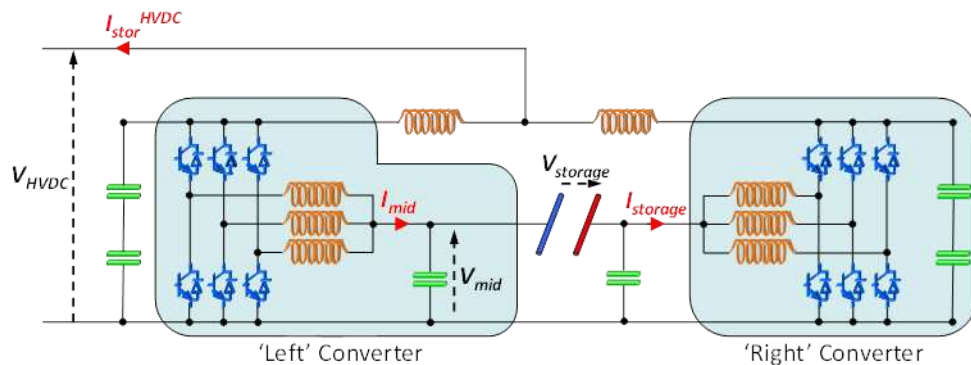


Figure V.24 : Structure du convertisseur de stockage

### 5.2.4.2 CVS associé à la PAC : CVS-PAC

Le convertisseur associé à la PAC, CVS-PAC, possède quant à lui une structure plus classique, il s'agit d'un convertisseur à 3 bras entrelacés, cependant le gain possible en tension est assez fort pour une telle structure (jusqu'à 22). Il y a possibilité de rendre ce convertisseur réversible en courant (pour alimenter un électrolyser ou une PAC réversible par exemple) mais cette option n'est pas utilisée dans nos essais.

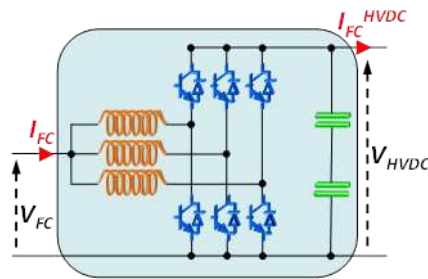


Figure V.25 : Structure du convertisseur de PAC

### 5.2.4.3 Compensation des pertes

Dans la stratégie de pilotage de l'architecture 1-2 donnée en **Figure V.8.b)** et dans l'architecture n°2 (**Figure V.9**), c'est le courant de sortie du CVS-PAC que l'on pilote. Le cas est similaire pour le CVS associé au stockage dans l'architecture n°1-1 de la **Figure V.8.a)**. Or, comme pour la plupart des convertisseurs, la possibilité de pilotage offerte naturellement est le courant pour la partie BT et la tension pour la partie HT, ce mode de pilotage en courant n'est pas permis par la nature du convertisseur. Un moyen de piloter le courant côté bus est d'appliquer le rapport des tensions au courant de référence du stockage, mais cette transposition suppose un rendement unitaire du convertisseur et, sans action spécifique, en pratique le courant final observé sur le bus sera inférieur à celui exigé.

Prenons l'exemple du cas du convertisseur associé au stockage, le raisonnement étant identique pour le CVS-PAC. En convention générateur pour le stockage, on peut assimiler la puissance côté HT du convertisseur comme la somme de la puissance côté BT et des pertes dans le convertisseur, les puissances étant le produit des tensions et des courants. Afin d'obtenir le contrôle du courant de bus via ce convertisseur, la méthode choisie est l'ajout d'une boucle de compensation des pertes du convertisseur.

Les pertes sont principalement situées dans les organes qui font transiter des forts courants c'est-à-dire les diodes, IGBT, et inductances, on peut écrire l'approximation de l'équation **Equation (V.3)** où  $I_{HVDC}$  et  $I_{BT}$  représentent respectivement les courants côté haute tension (bus HVDC) et côté stockage du convertisseur.  $P$  représente les pertes, uniquement celles des interrupteurs et inductances sont considérées ici.

$$I_{\text{storage}}^{\text{HVDC}} \cong \frac{I_{\text{storage}}^{\text{BT}} \cdot V_{\text{storage}} + P_{L+\text{Diodes}+\text{IGBT}}}{V_{\text{HVDC}}} \quad : \quad \text{Equation (V.3)}$$

La formule précédente n'est pas valable sur des échelles de temps très courtes (à l'échelle du découpage par exemple) où d'autres phénomènes tels que les chutes de tension liées aux variations de courant dans les inductances entrent en jeu. Toutefois, en valeur moyenne et à des échelles de temps relativement courtes, cette équation permet de piloter le courant du côté HT du CVS à travers le pilotage du courant du côté BT.

Cependant une mesure dynamique des pertes n'est pas évidente, c'est pourquoi la solution proposée utilise une linéarisation d'ordre 2 du calcul théorique des pertes en fonction du courant mesuré côté BT et de la tension côté HVDC.

Les pertes dans les diodes et les IGBT sont estimées par les formules classiques issues de [KOD-09], les pertes par commutation et conduction sont prise en compte et données en **Equation (V.4)** et en **Equation (V.5)**.

$$P_{IGBT}(V,I) = P_{condIGBT} + P_{commIGBT} = (V_{CE0} \cdot \bar{I}_r + R_r \cdot I_{eff,r}^2) + (E_{ON}(V,I) + E_{OFF}(V,I)) \cdot f_{dec} \quad \text{Equation (V.4)}$$

$$P_{Diode}(V,I) = P_{condDiode} + P_{commIGBT} = (V_{D0} \cdot \bar{I}_d + R_d \cdot I_{eff,d}^2) + E_{REC}(V,I) \cdot f_{dec} \quad \text{Equation (V.5)}$$

Les valeurs  $V_{CE0}$ ,  $R_r$  et  $V_{D0}$ ,  $R_d$  sont extraits par linéarisation d'ordre 1 des courbes  $I_C(V_{CE})$  pour les IGBT et  $I_D(V_D)$  pour les diodes fournies par les fabricants. Les courbes des énergies perdues par commutation  $E_{ON}(I_C)$ ,  $E_{OFF}(I_C)$  et  $E_{REC}(I_D)$  sont également fournies par les fabricants, elles ont été linéarisés à l'ordre 1 et pondérées par le rapport de la tension HVDC mesurée sur la tension de référence utilisée par le constructeur.

En ce qui concerne les courants traversant les composants : les grandeurs efficaces et moyennes qui interviennent dans équations précédentes pour le cas de la diode et de l'IGBT sont estimées à partir des rapports cycliques qui eux-mêmes sont déduits à partir des mesures des tensions  $V_{HVDC}$ ,  $V_{MID}$  et  $V_{storage}$ .

Enfin, les pertes dans les inductances et le câblage sont estimées selon leur résistance interne par l'**Equation (V.6)**. C'est en réajustant la valeur de cette résistance que la totalité des pertes du convertisseur calculées sont égalisées aux pertes mesurées sur quelques points de mesure à courant et tension fixe. Cela permet d'y inclure les résistances du câblage, celles des autres composants qui n'ont pas été pris en compte et de corriger les différences statiques entre calcul et observé.

$$P_L(I) = R_L \cdot I_L^2 \quad \text{Equation (V.6)}$$

La fonction finale calculée est relativement complexe pour permettre de cartographier les pertes dans les interrupteurs en fonction du courant et de la tension mesurées mais la méthode est simple pour avoir un contrôle du courant de sortie du CVS.

En revanche, bien que cette méthode ait fonctionné pour nos essais, il est probable qu'elle ne soit pas fiable sur la durée puisqu'en vieillissant, les caractéristiques des composants (et principalement les interrupteurs) sont altérées.

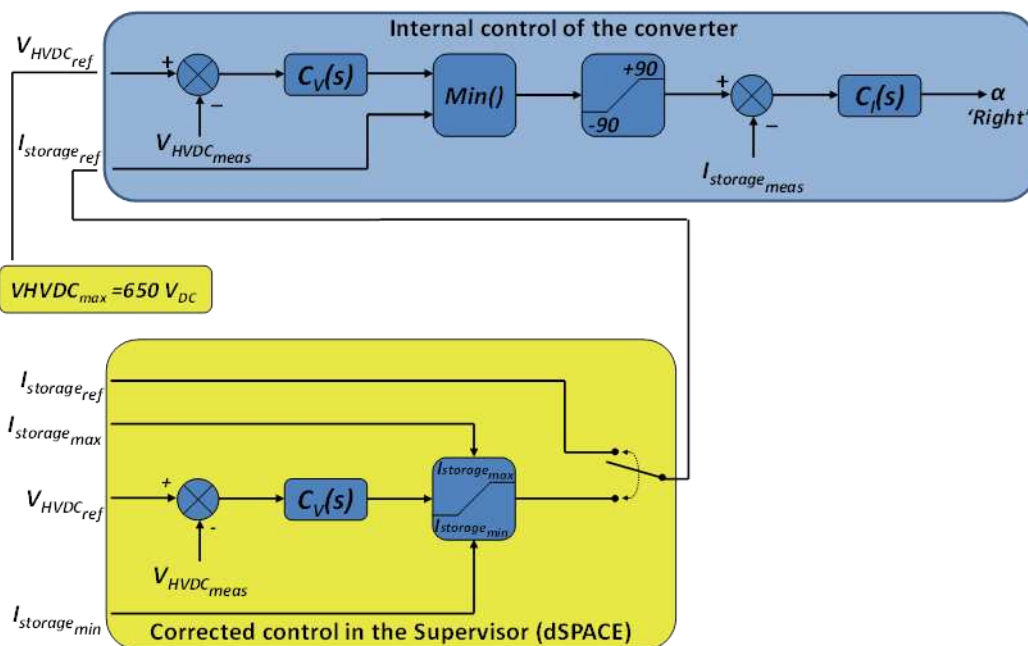
#### 5.2.4.4 Pilotages V-I

Les deux convertisseurs (CVS-PAC et CVS-stockage) ayant été construits par le même fabricant, ils possèdent des schémas de régulation interne similaires, illustrés dans le cadre bleu de la **Figure V.26**. La particularité ce schéma de régulation est qu'avec des fonctions très simples, il permet un pilotage carré du convertisseur. Bien que cela fonctionne très bien avec des grandeurs positives, le cas n'est pas identique pour les grandeurs négatives. En effet si la régulation de tension  $C_V(s)$  exige un courant de -90A (courant négatif max du CVS) lorsque la tension du bus dépasse la tension de référence, alors la fonction  $\min()$  sélectionnera ce courant quel que soit la valeur de  $I_{BATref}$ . Ainsi il n'est pas possible de limiter le courant négatif (courant

de recharge du stockage), or pour le cas d'une batterie par exemple c'est une donnée très importante.

Pour ce faire la solution qui a été mise en place est de reprendre la boucle de régulation de tension autre part et d'y insérer une saturation positive et négative réglable en aval de la régulation de tension (cadre en jaune). En fixant la consigne de tension du CVS à sa valeur max en permanence, la fonction  $\min()$  sélectionnera toujours le courant  $I_{BATref}$  qui sera issu d'une consigne directe ou de la sortie du régulateur repris dans la supervision.

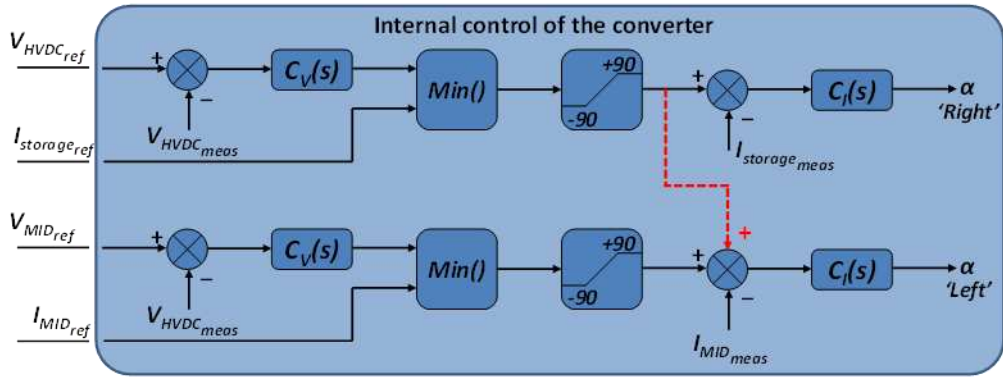
L'inconvénient de cette méthode est qu'il faut refaire la synthèse du régulateur : sans les données du constructeur il est difficile d'arriver aux mêmes performances. D'autant plus que cela exige beaucoup de puissance de calcul au superviseur qui est relativement basse fréquence comparé à la fréquence de découpage (la fréquence d'exécution des tâches du superviseur se situe entre 5kHz et 10kHz pour notre cas suivant le nombre de fonctions demandées).



**Figure V.26** : Contrôles internes et repris dans la supervision du CVS de stockage partie 'right' — cas similaires pour la partie 'left' et le CVS PAC

Le courant traversant l'organe BT dans le CVS de stockage doit circuler par les deux sous-convertisseurs 'left' et 'right', or le convertisseur 'left' est nécessairement en régulation de tension pour maintenir le flottement du stockage. Ainsi lors d'une variation de courant sur la partie 'right', la partie 'left' rattrape l'écart par rapport à la chute de tension  $V_{mid}$  pénalisant la dynamique de l'ensemble.

Une modification apportée : le lien (en rouge) illustré sur la **Figure V.27** permet au CVS 'left' d'anticiper cette chute de tension et de ne plus être tributaire des variations du CVS 'right'. Ainsi les performances du convertisseur ont été améliorées, cependant il va de soi que cette modification n'a pas pu être faite en interne du CVS, elle a été reprise dans le superviseur au même titre que les régulations de tension [RAF-10].



**Figure V.27** : Modification apportée aux régulations du convertisseur de stockage — lien entre CVS ‘right’ et CVS ‘left’

Le CVS-PAC possède la même structure que celle de la **Figure V.26** (en bleu), cependant il possède un switch physique permettant de bloquer les courants négatifs et donc dans notre cas (courants positifs), l’astuce précédemment décrite en **Figure V.26** n’est pas indispensable. Cependant, comme pour l’alimentation BT, ce convertisseur possède un filtre sur l’entrée de la tension (de l’ordre de 1Hz) ce qui empêche la commutation rapide entre mode tension et mode courant. Pour effectuer cette commutation, on doit envoyer une consigne à la valeur max et l’autre à la valeur désirée et vice-versa. Si l’on souhaite éviter ce filtre, cette modification devient indispensable, cependant nous ne sommes pas parvenus aux mêmes dynamiques que celles du constructeur avec notre boucle de régulation de tension. Cette solution n’a finalement pas été mise en place pour ce convertisseur (le problème est repoussé au jour où la partie BT réversible en courant sera utilisée...)

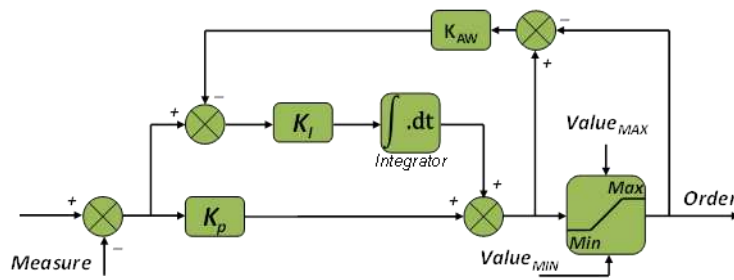
L’inconvénient de placer des régulations en amont de limitations est la nécessité d’ajouter un dispositif anti-windup. La plupart de nos régulations sont de type proportionnel intégral, et lorsque la limitation en courant est atteinte, il y a des fortes chances que la tension désirée ne soit pas à sa référence. Ce qui implique que durant tout ce temps, l’intégrateur intègre la différence entre référence et mesure. Or avec un intégrateur numérique, la valeur peut monter très haut ! (dans un système analogique ce phénomène a moins d’impact car les AOP saturent vite).

Il existe une multitude de manières de réaliser un anti-windup [WUT-10], [ANI-10], la plus simple étant de limiter la sortie de l’intégrateur à la valeur désirée. Cette méthode n’est pas la plus efficace, de plus dans notre cas la valeur limite varie suivant le choix de l’utilisateur. Une méthode très utilisées dans la littérature est la méthode dite par suivi (illustrée en **Figure V.28.a**), cependant les auteurs ont des avis différents sur la manière de choisir le gain  $K_{AW}$  ([FOR-06], [HAE-11], [ANI-10]), de plus elle nécessite un gain supplémentaire à choisir pour chaque régulation à limiter.

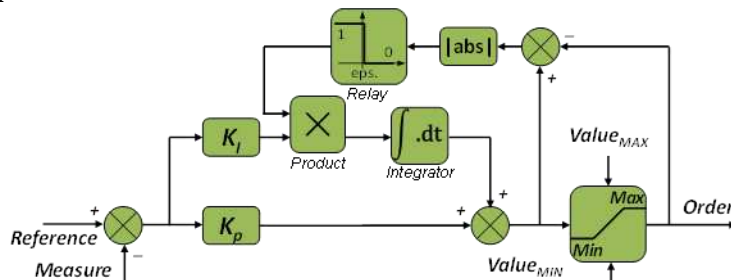
C’est pourquoi, après essai de plusieurs méthodes, nous avons implanté une méthode (illustrée en **Figure V.28.b**) qui gèle l’intégrateur dès que la limitation est enclenchée. En remplaçant l’entrée de celui-ci par zéro, il reste à sa valeur durant toute la durée de la saturation, puis lorsque l’on sort de la saturation (quand l’écart ref/mes change de signe), la régulation reprend son cours normal à partir de l’instant où la saturation s’était activée. Cette méthode



s'est montrée très efficace et performante, d'autant plus qu'elle n'est pas fonction des dynamiques du régulateur et ne nécessite aucun calcul supplémentaire.



a) *Anti-Windup commun*



b) *Anti-Windup implanté*

**Figure V.28 :** Schéma de deux des méthodes d'Anti-Windup testée sur le banc.

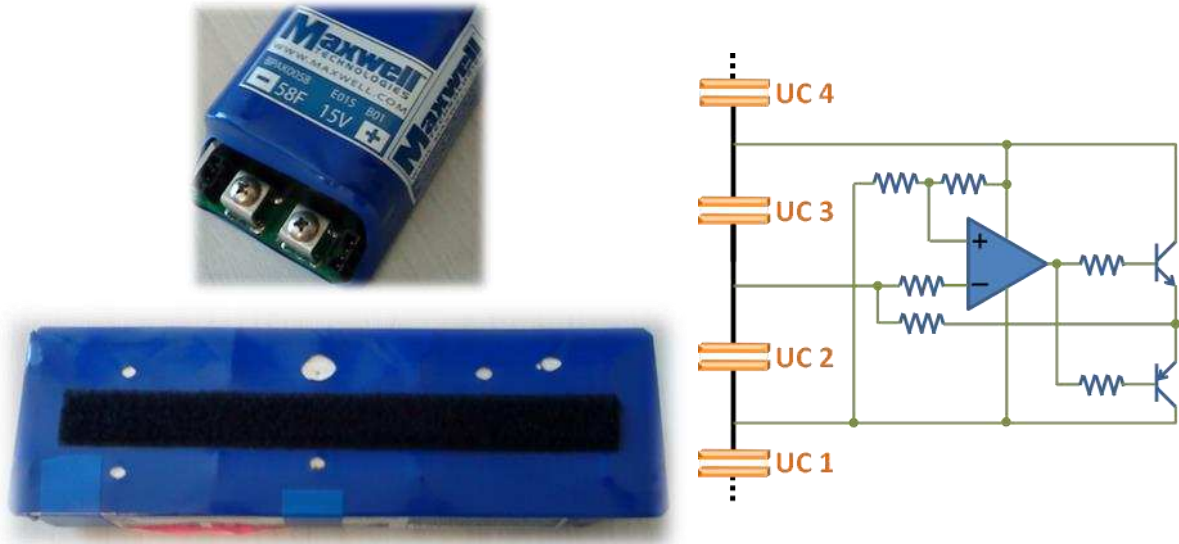
### 5.2.5 Choisir les supercondensateurs de stockage

Cette partie est consacrée au choix des éléments supercondensateurs SC du stockage. Il a été choisi de considérer des supercondensateurs industriels disponibles dans le commerce. Il s'agit de définir le nombre de modules à associer compte tenu de leurs caractéristiques. Le choix de la tension maximale considérée pour chaque module SC découle d'une expérience que nous avons eue avec une type précis de modules et que nous avons choisi de relater d'une part pour justifier ce choix et d'autre part pour qu'elle puisse profiter au lecteur qui travaille sur un sujet similaire.

Suites aux essais réalisés, un bref retour d'expérience est proposé en Annexe 3.

#### 5.2.5.1 Choix d'une tension de référence, équilibrage des SC.

Suite à une expérience malencontreuse avec des modules SC, nous avons choisi de déclasser la tension maximale d'utilisation. Disposant initialement de modules Maxwell BPAK0058 E015 B01 58F-15V avec équilibrage actif, nous avons choisi d'assembler 9 modules en série pour une tension de référence de 100Vdc et une tension max de 135Vdc pour les essais d'hybridation RAT présentés dans [RAF-10]. A la fin de ces essais (quelques dizaines d'heures), tous les modules présentaient des marques de plastique fondu (*Figure V.29.a*) ce qui nécessitait un diagnostic.

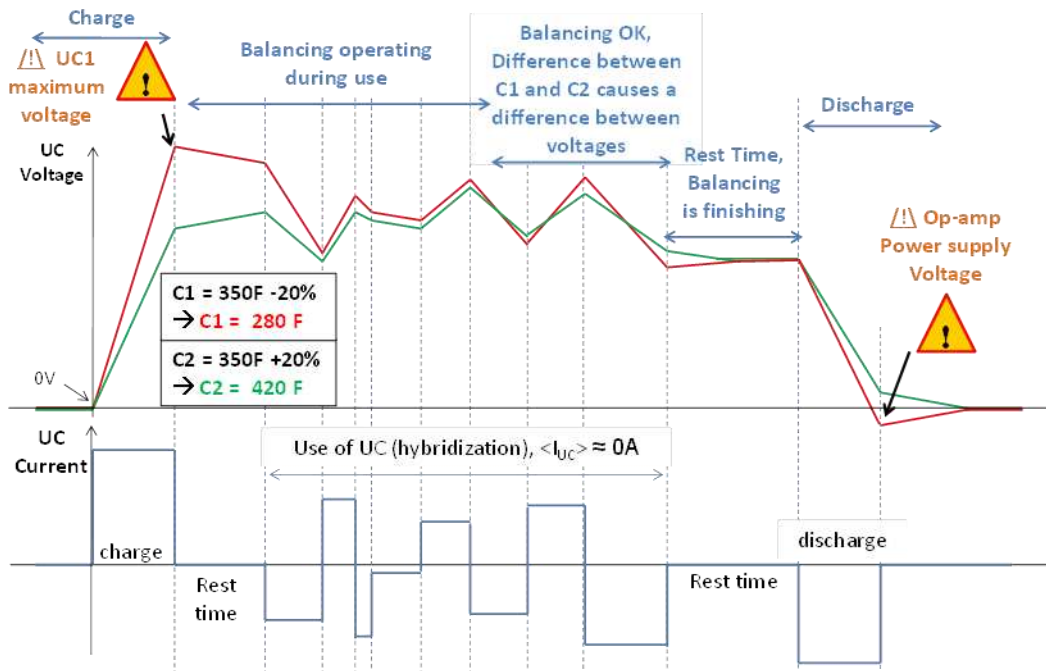


a) Photos du type de module et des dégradations vues de l'extérieur du module. b) Schéma du circuit d'équilibrage observé

**Figure V.29 :** Dégradations observées sur les AOP du circuit d'équilibrage des modules SC

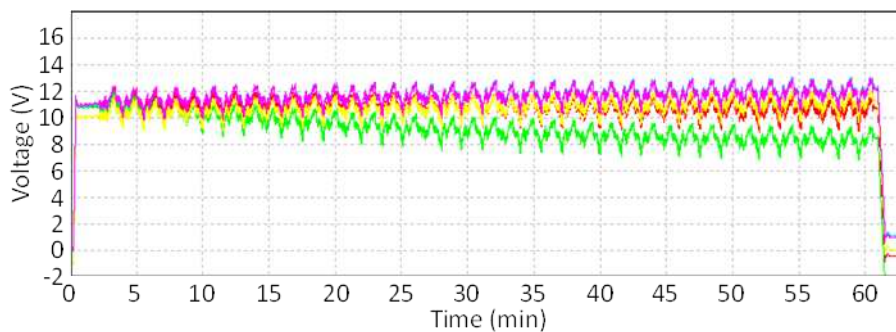
Chaque module est constitué de 6 SC élémentaires et les datasheets du constructeur annoncent une tolérance de  $\pm 20\%$  sur la valeur de la capacité. Le circuit d'équilibrage, observé après démontage de modules altérés, est donné en **Figure V.29.b** : on remarque que l'amplificateur opérationnel (AOP) du circuit est alimenté par les tensions des SC voisins, ce qui est important pour la suite.

Le pire cas, celui de deux SC de capacités extrêmes en série, illustré en **Figure V.30**, est peu probable en réalité. Le circuit d'équilibrage peut dériver des courants de l'ordre de 100mA tout au plus alors qu'un équilibrage dynamique devrait pouvoir dériver une part du courant nominal équivalente à celle de la dispersion possible entre les capacités. L'équilibrage disponible n'est donc pas dynamique mais opère lentement. Dans ces conditions il peut apparaître des tensions négatives sur certains modules ou sur certains SC élémentaires à l'intérieur des modules (tension non mesurable de l'extérieur). Si une tension négative ne dégrade pas immédiatement un SC organique, les AOP supportent rarement le fait d'être alimentés à l'envers ! C'est pourquoi le mécanisme proposé sur la **Figure V.30** suppose une dégradation consécutive à une alimentation inverse des AOP ou à un défaut de dimensionnement des circuits d'équilibrage.



**Figure V.30 :** Proposition d'un mécanisme de dégradations des AOP du circuit.

Compte tenu de la dégradation, les tensions des modules ne s'équilibrent plus du tout entre elles (**Figure V.31**), avec des écarts de tension allant jusqu'à 40% entre les modules alors que la tension de l'ensemble des modules (non représentée ici) reste à la même valeur moyenne. On peut penser que certains circuits d'équilibrages sont restés ouverts après destruction et d'autres fermés et donc que le fait d'utiliser des modules avec les circuits d'équilibrage endommagés semble contribuer au déséquilibre car il est très rapide. Lors de la décharge de l'ensemble, cet écart de 4Vdc persiste, on a ainsi des modules à tension positives, d'autres à tensions négatives pour une somme nulle.



**Figure V.31 :** Constatation du défaut d'équilibrage sur les modules (6 modules parmi les 9 sont représentés).

Pour obtenir un équilibrage efficace sur des régimes dynamiques, étant donnée la dispersion des capacités, le système d'équilibrage devrait dériver un courant de l'ordre de 20 à 40% du courant max d'utilisation, (90 Ampères dans notre cas, soit 18 à 36 Ampères. Le circuit d'équilibrage nécessite donc au minimum un interrupteur fort courant (transistor, MOS, etc...) ainsi qu'un circuit de supervision. Le coût d'un supercondensateur élémentaire de ce type (350F — 2,5V) était à l'époque des essais de l'ordre de 15€, le coût d'un interrupteur fort courant dépasse bien souvent celui d'un supercondensateur sans prendre en compte le refroidissement et

la commande de cet interrupteur. On comprend donc que la plupart des circuits d'équilibrages ne dérivent seulement que de faibles courants (de 50mA à 300mA) opérant de manière très lente, de plusieurs minutes à plusieurs heures. Pour charger/décharger les supercondensateurs en étant équilibré en permanence avec ce type de circuits d'équilibrage, il faudrait employer un courant qui ne dépasse pas 1 Ampère. Les constructeurs travaillent essentiellement sur la mise au point de modules avec de très faibles dispersions entre les capacités pour éviter des systèmes d'équilibrages exigeants.

Considérant risqué de continuer d'utiliser ces modules nous avons choisi d'en acheter de la génération ultérieure munis de circuits d'équilibrages passifs (dont les références sont données dans le **Tableau V.3**). L'inconvénient des circuits passifs est que pour ne pas perdre une part importante de l'énergie stockée, les résistances sont de fortes valeurs (environ  $120\Omega$ ), soit une constante de temps RC supérieure à 10h et donc un équilibrage encore très lent. L'avantage est que les circuits passifs sont beaucoup plus robustes. Et par sécurité nous avons choisi de déclasser ces modules en tension.

En supposant le pire cas, c'est-à-dire un module élémentaire la plus faible capacité et tous les autres la plus forte capacité, il faut veiller à ne pas dépasser  $(C_{\min}/C_{\max}) \cdot V_{\max}$  en moyenne sur tous les modules pour assurer ne pas dépasser la tension max du module faible. Avec une tension maximale de 2,5Vdc par élément, et -20%/+20% de dispersion, cela implique une tension maximale de 1,67 Vdc par élément, soit 10Vdc par module. On n'utilise désormais que 44% de l'énergie qu'il est possible de stocker. Les nouveaux modules présentent des disparités maximales annoncées de 0%/+20% pour une tension maximale de 16,2Vdc par module. Soit, par le raisonnement précédent, une tension maximale pratique de 13,5 Vdc par module (environ 70% d'utilisation énergétique). Nous avons donc retenu par sécurité une tension max de 13Vdc. Pour notre système, compte tenu des régulations (cf. section 5.3.5), la tension maximum peut aller jusqu'à 130% de la tension de référence dans le pire cas ; ce qui nous donne le choix d'un module par tranche de 10Vdc en valeur de référence.

#### 5.2.5.2 Mise en série de modules SC

Afin de limiter les disparités, il est conseillé d'assembler des modules issus d'une même série achetés en même temps et d'éviter d'assembler des modules aux vécus différents. La tension de référence du stockage de l'architecture 1 est de 100Vdc (cf. partie 5.2.1.3.2.2) soit 10 modules et celle de l'architecture n°2 est de 270 Vdc (tension du bus HVDC) soit 27 modules. Les 16 modules de l'architecture n°3 seront pris dans ceux utilisés avec l'architecture n°2. Disposant de 35 modules, les marges en tension étant larges, nous avons utilisé 10 modules en série pour l'architecture n°1 et 25 modules pour l'architecture n°2, ce qui justifie les valeurs de capacités des architectures n°1 et 2. Une photographie des 35 modules mis en série est donnée en **Figure V.32**.

Pour l'architecture n°3, la limitation en tension est déterminée par la PAC (à environ 50Vdc), ce qui représente 4 modules en série pour une utilisation en dessous 13Vdc par module soit 14,5F par branche de 4 modules, le courant nominal des modules étant de 20A, nous avons

fait le choix arbitraire d'avoir au moins 50% du courant nominal de la PAC admissible dans les SC. Ce qui nécessite la mise en parallèle de 4 branches de 4 modules (80A de courant nominal) soit 16 modules. Finalement la capacité équivalente de cet assemblage de 16 modules est celle d'un seul module avec une tenue en tension est 4 fois plus élevée.

Les 58F associés à la PAC, sont proches de la capacité dimensionnée par [GAR-07] (55,6F), mais notre PAC fournit 10 fois moins de puissance. Cependant le stack utilisé dans [GAR-07] possédait 152 cellules (environ 152Vdc à vide) soit une énergie max de  $1,27.10^3$  kJ pour une puissance de stack 10 fois plus élevée. Notre stack comporte 50 cellules (soit environ 50Vdc à vide), soit une énergie emmagasinable de  $1,45.10^2$  kJ pour une puissance moyenne 10 fois plus faible (4kW contre 40kW). Entre l'architecture testée et celle de [GAR-07] on retrouve bien un rapport des puissances maximales identique à celui des énergies emmagasinables.

Pour des raisons de sécurité, le choix des capacités permettant l'hybridation pour ces essais a donc été dicté par les caractéristiques en courant et en tension des briques élémentaires que nous possédions (modules Maxwell BMOD0058 E016 B02) et non par les capacités comme cela se fait plus souvent.

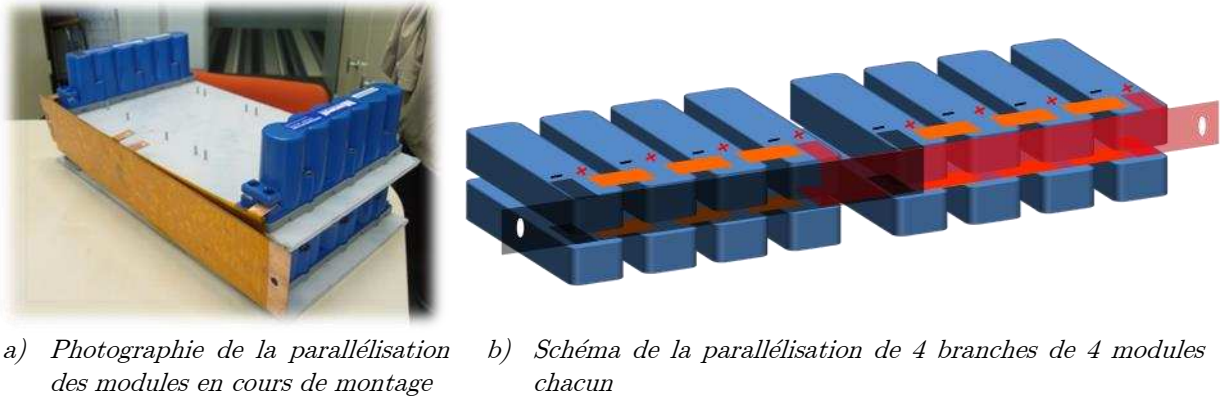


**Figure V.32 :** Photo des 35 modules en série pour un essai à 400Vdc.

### ***5.2.5.3 Mise en parallèle de modules SC***

L'assemblage pour l'architecture n°3 requiert un peu de réflexion sur le montage. Supposons que tous les SC soient identiques, il faut alors avoir un montage parfaitement symétrique si l'on souhaite un équilibrage des courants entre les branches en parallèle. En effet une branche plus résistive risque de laisser passer moins de courant et d'avoir une tension légèrement plus faible, ce qui risque de provoquer des phénomènes de redistribution supplémentaires. Nous en avons choisi une solution à deux étages illustrée en **Figure V.33** par économie de surface. Dans chaque branche, le courant parcourt la même distance de bus-bar de cuivre. La compacité du bloc nous permet de le placer sur un charriot et de le déplacer aisément pour les divers essais.

Nous avons choisi les 16 modules ayant la résistance la plus faible parmi le groupe de 25. Chaque branche possède un des quatre module à résistance la plus élevée parmi les 16 et un des quatre à résistance la plus faible, les autres étant répartis de manière à avoir une somme des résistances identique sur chaque branche série. (cf. Annexe 3)



**Figure V.33** : Photographie et schéma du montage en parallèle de 4 branches de 4 modules SC pour l'architecture n°3.

### 5.2.6 Conclusion sur la mise en œuvre matérielle

Cette partie a permis de reprendre les architectures qui avaient été retenues lors l'étude théorique [GAR-07] et de définir la mise en œuvre des essais de validation en tenant compte du matériel disponible. Le profil de mission a été adapté aux contraintes des convertisseurs, et ce même profil pourra être joué par répétition du motif sur les durées désirées. Le stockage a été défini à partir d'associations série ou séries/parallèles de modules SC identiques en respectant les limitations en tension de ces modules.

L'introduction de limitations dans la commande des convertisseurs et la compensation de leurs pertes permet une plus grande flexibilité sur leur pilotage. Des essais de validation de telles architectures nécessitent de nombreux tests avant l'utilisation sur une PAC réelle. La mise en place d'un émulateur de pile à combustible à partir d'une alimentation régulée en tension permet de régler et tester les séquences d'utilisation (mise en route, précharges, changement de mode de pilotage, arrêt), les sécurités, mettre à jour l'échelle des capteurs, valider la commande des convertisseurs, etc... Le tout est muni d'une supervision dont la puissance de calcul est conséquente.

Ces installations développées et, étape incontournable, fiabilisées en termes de sécurité, les essais de validation proprement dits ont pu être menés à bien : ils font l'objet des sections suivantes.

### 5.3 Mise en œuvre du pilotage énergétique retenu

La partie précédente ayant présenté la partie « hard » de l'expérimentation, c'est-à-dire la description du matériel et des moyens mis en place pour utiliser ce matériel, la suite logique est la partie « soft » représentant la partie logicielle ou plus exactement la stratégie de gestion de l'hybridation qui fait des sections suivantes., Après une description plus finie des stratégies déjà présentées, incluant les remarques de la section 5.2, un exposé des moyens mis en place pour y parvenir est proposé. Enfin les résultats issus de ces architectures électriques et des ces stratégies de gestion seront discutés.

Nous avons vu que l'application de la méthode de partage fréquentiel nécessite quelques compléments pour fonctionner dans des bonnes conditions en pratique, notamment une boucle de régulation de l'état de charge des SC. La section qui suit présente ces « compléments » qui ne concernent que les architectures n°1 et n°2, l'architecture n°3 étant « autogérée » énergétiquement.

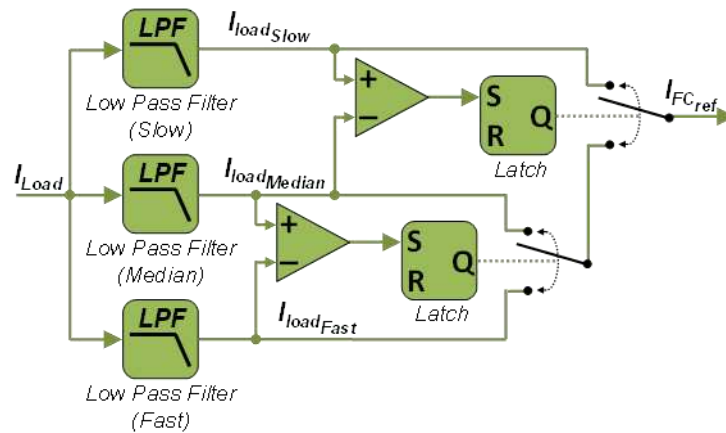
### 5.3.1 Problématique du démarrage du filtrage fréquentiel

Un filtrage efficace pour la pile à combustible implique une fréquence de coupure basse du filtre de partage fréquentiel (de quelques 10mHz à 100mHz). Cela implique un temps de démarrage important du filtre qui correspond à la « montée du courant » de la pile à combustible. Pendant ce démarrage c'est donc le stockage qui fournit l'énergie nécessaire aux charges et qui se retrouve complètement déchargé lorsque le courant de la pile à combustible atteint le courant moyen spécifié. Avec certaines architectures cela met en péril la mission qui risque de ne plus être satisfaite (perte de la régulation du bus HVDC par exemple). Au démarrage se pose donc la problématique d'initialisation de ce filtre.

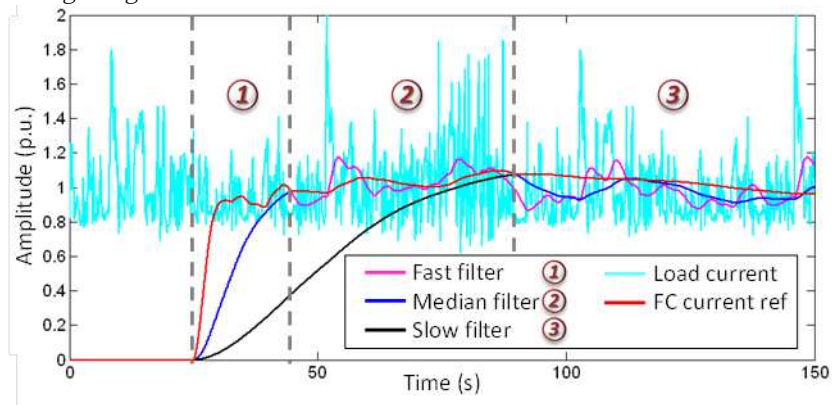
Pour démarrer le filtre rapidement, plusieurs méthodes ont été envisagées, la première est celle de l'initialisation à une valeur donnée. Cependant, supposons que nous ne connaissons pas le régime permanent, on ne peut alors pas initialiser le filtre à sa valeur en régime permanent ni à la valeur du courant à l'instant de démarrage (auquel cas on risquerait de démarrer sur un pic). Pour résoudre ce problème, on pourrait coupler une limitation de pente à la PAC qui permettrait une montée de la PAC à courant maîtrisé jusqu'à ce que le filtre prenne le relais. L'inconvénient de cette méthode est que si l'on sort du cas dimensionnant, par exemple un courant moyen très élevé lors des premières minutes de démarrage, il faudrait pouvoir « sortir » exceptionnellement de la limitation de pente de manière à subvenir aux besoins. En effet, le stockage ayant été dimensionné sur un profil donné il ne peut pas restituer plus d'énergie et dans un cas exceptionnel la PAC devrait pouvoir fournir plus rapidement que d'ordinaire au détriment d'une infime partie de sa durée de vie. Cela implique une limitation dont la pente varie en fonction de l'état de charge du stockage, ce qui représente une stratégie tout entière à mettre en œuvre pour cette phase. Une autre solution à partir de filtrage fréquentiel est proposée.

La solution que nous avons retenue pour pallier ces difficultés est une commutation successive de filtres de plus en plus lents pour arriver au filtre final souhaité. L'avantage du filtre est que, à fréquence de coupure donnée, le temps d'établissement est identique quel que soit l'échelon. La solution choisie démarre par un filtre rapide (dont la fréquence de coupure dépend des dynamiques acceptables par la pile à combustible et ses régulations fluidiques), tandis que d'autres filtres plus lents démarrent au même moment. Etant donné l'ordre (2) et le facteur d'amortissement des filtres ( $\sqrt{2}/2$ ), ceux-ci possèdent naturellement un léger dépassement, ce qui fait que leurs valeurs vont inévitablement se croiser pour un profil borné. Aux instant de croisement, un aiguillage vers le filtre de fréquence plus basse est effectué, sans

saut de valeur Afin d'empêcher le retour d'un filtre de fréquence basse vers un filtre de fréquence plus haute, les aiguillages sont réalisés de manière irréversible grâce à des comparateurs couplés à des bascules R-S illustré en *Figure V.34.a*).



a) Méthode d'aiguillage des filtres



b) Illustration de la commutation des filtres (simulation).

**Figure V.34 :** Démarrage du partage fréquentiel par commutation de filtres.

La *Figure V.34.b*) illustre le principe de commutation de filtre exposé. Le courant en rouge est le courant demandé à la pile à combustible : les instants de commutation du filtre 1 (mauve) au filtre 2 (bleu) puis au filtre 3 (noir) lors des croisements de ceux-ci sont visibles et continus. La fréquence médiane est la moyenne géométrique de la fréquence rapide et de la fréquence lente.

*Remarque :* Dans tous les essais présentés dans ce chapitre, le filtre final (*Slow Low Pass Filter*) a été placé à 10mHz, comme dans les travaux de [LAN-06] tandis que dans les simulations de [GAR-07] la fréquence de partage des puissances est choisie à 50mHz.

### 5.3.2 Compensation des pertes par estimation

Quelle que soit l'architecture ou la stratégie mise en œuvre (hormis l'architecture n°3), se pose la problématique de la compensation des pertes dans le système (dans les convertisseurs et dans le stockage lui-même) qui sont elles-mêmes dépendantes des stratégies de gestion. En effet, si l'on applique les stratégies théoriques de gestion de l'architecture 1, ces pertes ne sont pas



fournies par la source PAC mais prélevées sur l'énergie du stockage qui se décharge jusqu'à ce que le système s'arrête (cf. *Figure V.12*). Il est donc nécessaire de forcer la PAC à fournir ces pertes. Nous proposons deux manières complémentaires de compenser ces pertes : la première par compensation théorique, la seconde par régulation de l'état de charge du stockage.

Pour l'architecture n° 1-1 (2 CVS et contrôle du bus par la PAC), les pertes associées au convertisseur de la PAC, CVS-PAC, sont automatiquement prises en compte puisque ce convertisseur régule la tension de bus. Du fait de sa nature, cette régulation va automatiquement demander à la PAC de fournir un courant légèrement plus important que s'il n'y avait pas de pertes dans ce convertisseur. Le convertisseur de stockage, CVS-STO, doit fournir les hautes fréquences du courant de charge. Or, étant donné le caractère survolteur de ce convertisseur c'est le courant dans le stockage qui est piloté et non le courant côté bus comme souhaité. Il est donc impératif d'y inclure les pertes du convertisseur (cf. section 5.2.4.3) sous peine d'un courant côté haute tension du convertisseur plus faible que celui escompté en raison des pertes. Les composantes qui ne sont pas prises en charge par le stockage se retrouvent dans le courant de la PAC, ce qui dégrade la qualité de cette hybridation. En fournissant les pertes liées à la partie hautes fréquences à partir du stockage on approche une compensation parfaite des hautes fréquences de la puissance des charges. La valeur moyenne de ces pertes n'influe pas la boucle de régulation de l'état de charge du stockage puisqu'elles sont vues comme une charge supplémentaire et passent donc à travers le filtre passe-haut du partage fréquentiel de la stratégie (cf. section 5.1.3.1). La difficulté de cette opération réside dans l'estimation des pertes : si celle-ci n'est pas assez précise et dynamique ou si elle est déphasée, une part de haute fréquence se retrouve dans le courant de PAC. L'idéal serait cependant un convertisseur DC-DC bidirectionnel en courant pour lequel on pilote le courant côté haute tension car la qualité cette estimation est sensible au vieillissement des composants.

Pour l'architecture n° 1-2 (2 CVS et contrôle du bus par le stockage), le convertisseur de stockage opérant en régulation de tension, la non prise en compte des pertes n'influe pas sur la prise en charge des hautes fréquences du courant de charge comme dans le cas précédent. En revanche, le convertisseur associé à la pile à combustible est un convertisseur DC-DC unidirectionnel en courant survolteur dans le sens pile à combustible  $\rightarrow$  bus. Sa nature permet de piloter le courant de la pile à combustible ou la tension de bus, or nous souhaitons ici encore piloter le courant injecté dans le bus. De même que pour le cas précédent les pertes sont compensées par estimation théorique et considérées comme une charge supplémentaire. Elles traversent donc le filtre passe-bas du partage fréquentiel et sont compensées en valeur moyenne.

Contrairement au cas précédent, la compensation n'impacte cependant pas la performance de l'hybridation car elle agit en basses fréquences dans la boucle de régulation de l'état de charge qui prévient la décharge totale du stockage. Cette compensation n'est donc pas indispensable avec la régulation de l'état de charge ; pour autant son réel intérêt à soulager cette régulation sera mis en évidence dans la suite.

Ainsi dans les deux stratégies de gestion de l'architecture n°1 nous avons introduit une compensation des pertes par une estimation théorique de celles-ci prenant en compte : commutation, conduction, blocage pour les composants actifs, résistives pour les composants passifs du convertisseur et le stockage. Pour l'architecture n°1-1, les seules pertes liées au convertisseur de stockage sont compensées par l'ajout d'une boucle qui corrige le courant de stockage. Pour l'architecture n°1-2, les pertes de chacun des convertisseurs sont compensées par l'ajout d'une boucle qui corrige la consigne du courant de PAC. La justification sera fournie en section 5.3.4.2.

Pour l'architecture 2, étant donné que c'est la commande du courant côté haute tension du convertisseur PAC qui est désirée, la compensation des pertes inhérentes à ce convertisseur est ajoutée. Cette compensation joue le même rôle que pour l'architecture n°1-2, soulageant la régulation d'état de charge. En revanche, pour l'architecture n°3, c'est la tension du bus qui est régulée par le convertisseur PAC et il n'y a pas besoin de réaliser de compensation.

Néanmoins toutes ces estimations sont issues de calculs théoriques et ne sont donc pas exactes, la moindre erreur provoquant un courant dans le stockage à valeur moyenne non nulle et donc une évolution vers la décharge complète ou vers la surcharge. C'est pourquoi l'ajout d'une régulation de l'état de charge du stockage est indispensable. Elle est détaillée dans la partie suivante

### 5.3.3 Boucle de recharge par niveaux

Les pertes dans les convertisseurs sont relativement importantes : quelques 100W de pertes reportées sur le stockage le déchargent en quelques minutes.

Si l'on utilise une régulation d'état de charge proportionnelle, la tension de référence ne sera jamais suivie en valeur moyenne (erreur statique non nulle due à ce type de régulation). Si l'on ajoute une action intégrale, la régulation étant très lente doit permettre à la tension de stockage de respirer, il est très difficile de bien positionner le gain intégral :

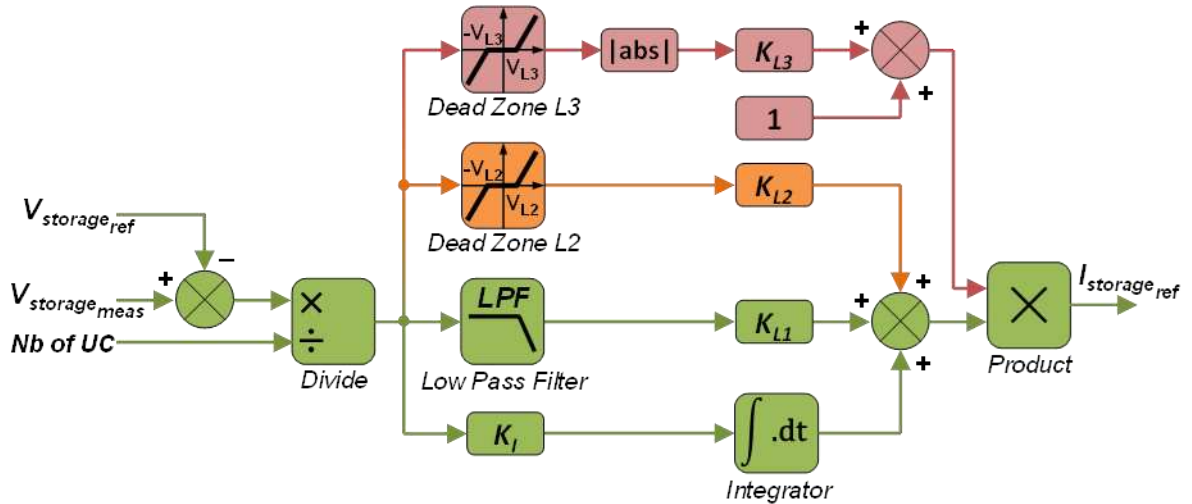
- Si ce gain est faible, l'erreur statique va mettre très longtemps avant d'être corrigée.
- Si ce gain est suffisamment grand pour rattraper l'erreur statique dans un horizon temporel de l'ordre de la fréquence de power sharing alors on observe des ondulations importantes qui ne semblent jamais s'amortir sur un profil de mission variable en permanence : les perturbations vues par la régulation d'état de charge sont très importantes puisque sa seule information d'entrée est la mesure de tension.

La solution retenue est donc de privilégier la compensation des pertes (détaillée précédemment) de manière à obtenir une hybridation aussi proche que possible du cas idéal sans la boucle de recharge. Ainsi la régulation charge n'a plus qu'à fournir un courant relativement faible. Dans ces conditions, un régulateur proportionnel suffit puisque l'erreur statique sera très faible. Il est d'ailleurs très difficile d'estimer l'erreur statique car le profil bouge en permanence et l'état de charge aussi : sur quel horizon de temps considérer l'erreur statique ? Une très légère action intégrale a tout de même été ajoutée pour corriger l'écart en valeur moyenne par rapport à l'estimation. Cette action très faible qui influe sur un long

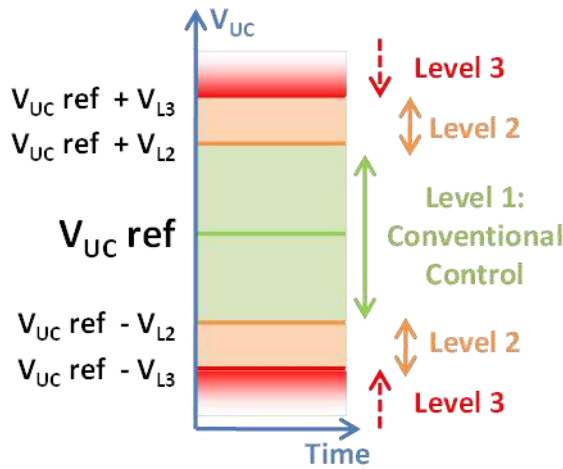
horizon de temps et suffit pour compenser l'écart éventuel dû au vieillissement des composants. Ainsi, il n'y a pas d'oscillations rajoutées par la boucle de recharge et l'erreur statique s'annule.

La régulation telle qu'utilisée pour le dimensionnement théorique illustrée dans la partie 5.1.3.2.2 est fortement dépendante du profil et des conditions initiales. Or le système a été dimensionné pour un profil de mission type mais le profil réel d'utilisation est inconnu. La régulation de l'état de charge doit donc rester robuste face à des variations aléatoires autour du profil type, afin de maintenir le système en fonctionnement quel que soit le profil, quitte à utiliser un mode dégradé. La problématique de cette boucle de régulation est qu'elle ne doit ni être trop rapide sous peine de dégrader l'hybridation, ni trop lente sous peine d'atteindre les niveaux max et min du stockage. Cette régulation doit en quelques sortes être « mauvaise » pour permettre au stockage de « respirer ». C'est pourquoi nous proposons la régulation donnée en *Figure V.35* qui se base sur plusieurs niveaux :

- Lors d'une mission « usuelle » (sur le profil dimensionnant) la régulation reste en mode classique (Niveau 1 - gain normal), avec les paramètres pour lesquels le système a été dimensionné. En restant dans ce mode, l'utilisation du stockage est optimale pour l'hybridation. Le gain proportionnel est placé en aval d'un filtre, sans ce filtre une variation instantanée de l'état de charge entraîne une variation instantanée du courant de recharge (et donc de PAC), ce qui porte défaut au principe d'hybridation.
- Si un imprévu surgit, la régulation se « durcit » en passant au niveau 2 (gain plus élevé) : la régulation conventionnelle est toujours active mais un gain supplémentaire lui est ajouté sans passer par la mesure filtrée de la tension. On considère que si la variation de charge est suffisamment forte et rapide, la régulation conventionnelle pourrait ne pas avoir le temps d'agir compte tenu de son filtre. La contrepartie est que dans ce niveau la PAC assume des variations plus rapides de puissance.
- Si cela ne suffit pas, elle se « durcit » d'autant plus que l'écart se creuse grâce au niveau 3 (gain en augmentation constante) : les deux niveaux de régulations précédents sont toujours actifs mais le courant exigé est multiplié en fonction de l'écart par rapport au niveau 3. Ce troisième niveau est très efficace pour ramener rapidement l'état de charge du stockage aux niveaux 2 et 1.
- Enfin si cela ne suffit pas, au-delà d'un seuil supplémentaire la sécurité déclenche l'ouverture des contacteurs du stockage.



a) Schéma de la régulation de l'état de charge du stockage



b) Principe de fonctionnement de l'état de charge du stockage

**Figure V.35 :** Schéma et principe de la régulation sur niveaux de l'état de charge des supercondensateurs.

La régulation repose sur la tension ramenée à un seul module, l'avantage de cette méthode est qu'elle permet de laisser les modules respirer suivant les mêmes dynamiques quel que soit leur nombre. Cela est possible tant que les modules utilisés sont identiques et tant qu'il n'y a pas de branches parallèles de modules. Cette régulation est autant valable pour les deux stratégies de l'architecture n°1 que pour l'architecture n°2 qui possède beaucoup plus de modules.

*Remarque :* La fréquence du *Low Pass Filter* a été placée à 50 mHz (fréquence de partage de puissance désirée dans [GAR-07]) dans tous les essais présentés dans ce chapitre. Notons que cette fréquence est plus rapide que celle du partage des puissances (10mHz), comme dans les travaux de [LAN-06]. Les gains  $K_{L1}$ ,  $K_{L2}$ ,  $K_{L3}$  et  $K_I$  valent respectivement : 5, 2.5, 2 et 0.01. Le niveau  $V_{L2}$  et  $V_{L3}$  valent respectivement 1,5V et 2V (cf. raisons exprimées en section 5.2.5)

### 5.3.4 Pilotages modifiés avec compensation des pertes

Compte tenu des études précédentes, les vrais schémas de pilotage opérationnels de chaque architecture se trouvent assez considérablement complexifiés par rapport à ceux illustrant simplement le principe de base présentés dans la section 5.1.3.1.2.

#### 5.3.4.1 Architecture n°1-1 : le CVS-PAC régule la tension de bus

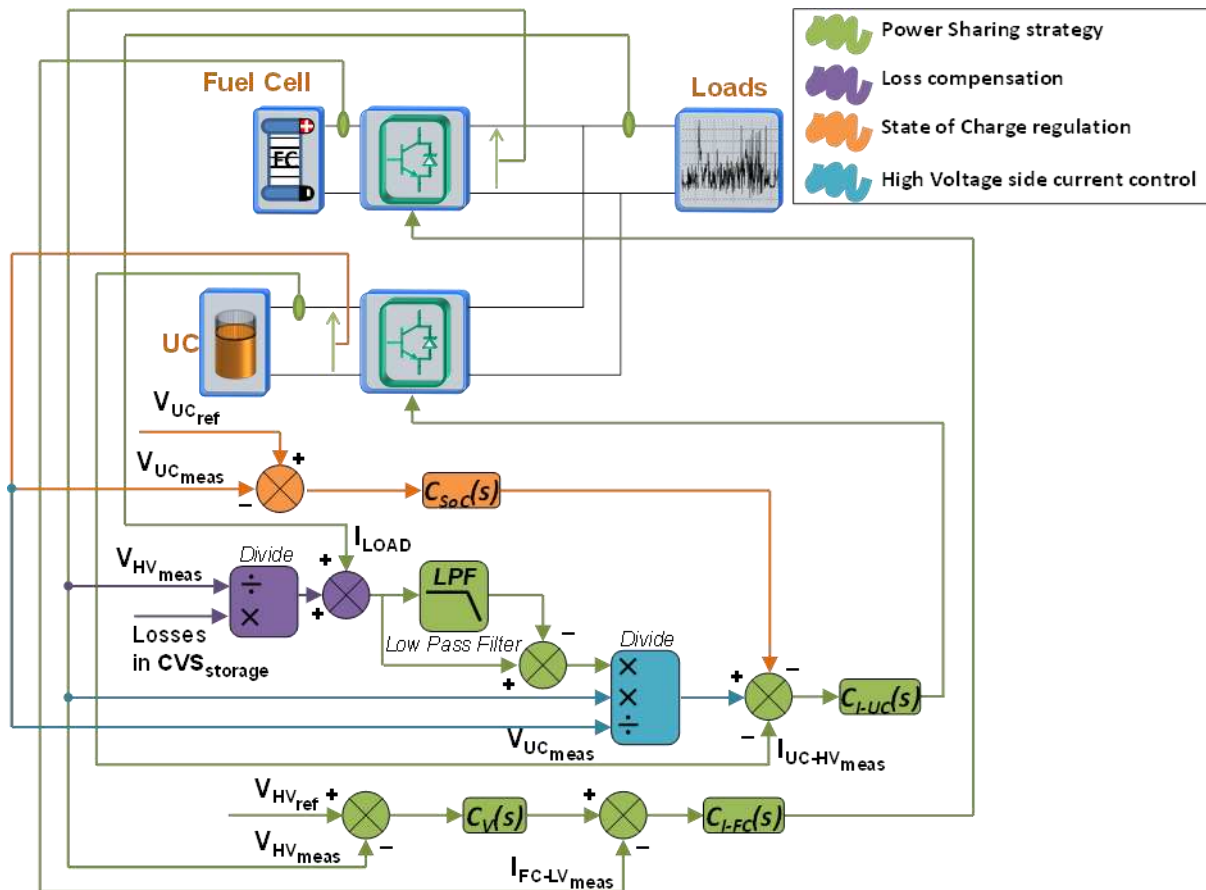


Figure V.36 : Pilotage de l'architecture n°1-1 avec compensation des pertes (contrôle de la tension de bus par le CVS-PAC).

La **Figure V.36** montre le nouveau schéma de pilotage de l'architecture n°1-1 (contrôle de la tension de bus par CVS-PAC). La différence matérielle par rapport au schéma de principe présenté en **Figure V.8.a)** est l'ajout d'un capteur de tension du stockage pour évaluer son état de charge. On peut noter la complexité ajoutée par les artifices nécessaire au pilotage du courant du côté haute tension du convertisseur de stockage en violet et en bleu clair. Le fait de ne pas pouvoir piloter les courants de chaque côté de ces convertisseurs contraint à réaliser de nombreuses opérations, ce qui exige une bonne qualité et fiabilité des mesures sur le système. Ici l'état de charge du stockage est auto-régulé grâce à la commande directe du CVS-STO en demandant ou fournissant plus ou moins de courant.

5.3.4.2 Architecture n°1-2 : le CVS-STO régule la tension de bus

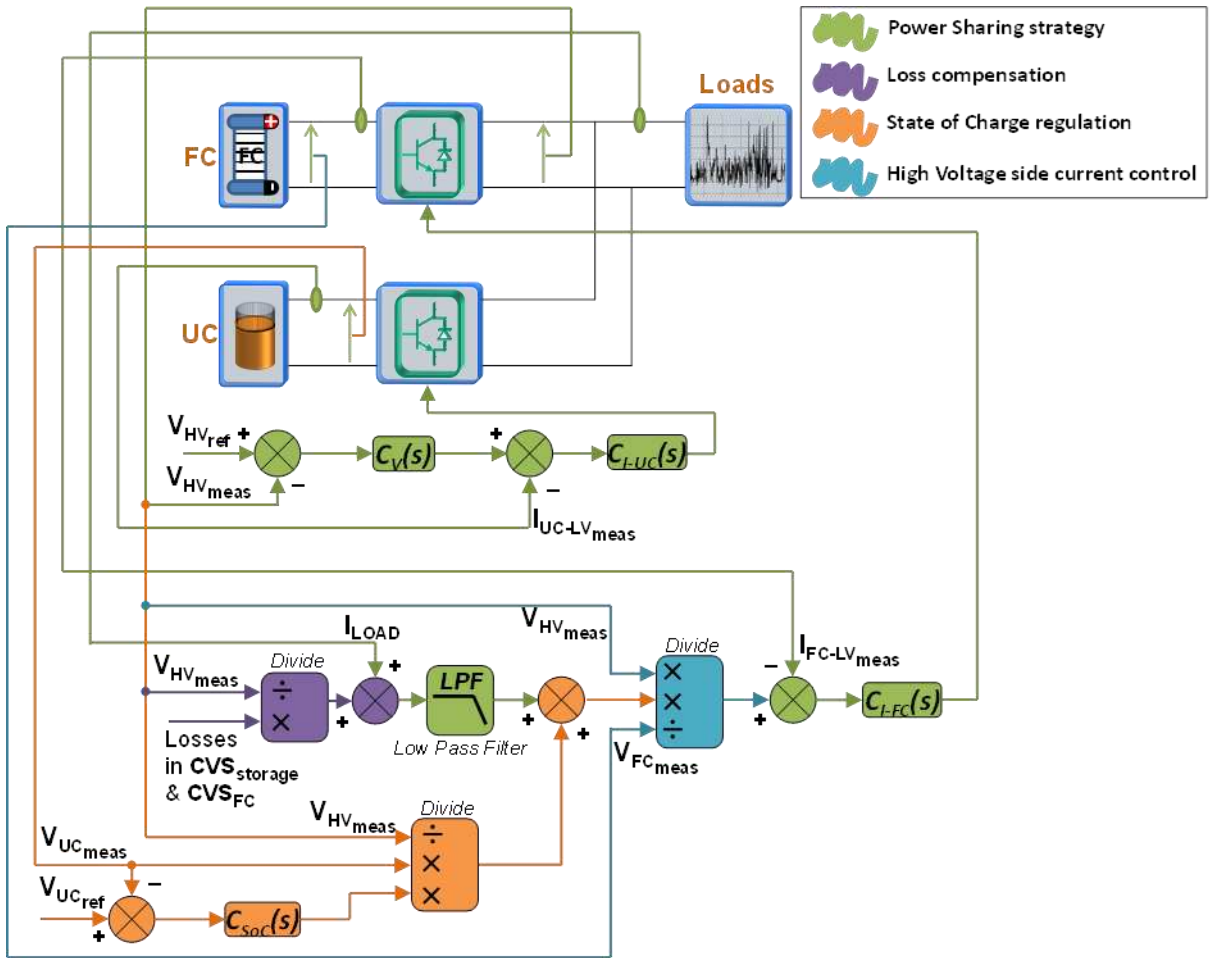


Figure V.37 : Pilotage de l'architecture n°1-2 avec compensation des pertes (contrôle de la tension de bus par le CVS-stockage).

La **Figure V.37** montre le nouveau schéma de pilotage de l'architecture n°1-2 (contrôle de la tension de bus par le CVS-stockage). Notons qu'un capteur de la tension du stockage est ici aussi nécessaire pour la régulation de l'état de charge. Mais le pilotage du courant côté haute tension du convertisseur-PAC nécessite aussi dans ce cas un capteur de tension aux bornes de la PAC. Ce capteur n'avait pas été prévu dans l'installation de départ puisque nous avons choisi de ne pas faire communiquer la salle hydrogène et la salle électrique hormis par les câbles de puissance. Un capteur de tension étant déjà situé sur la PAC dans la salle hydrogène, un autre a été rajouté à l'entrée du convertisseur PAC pour réaliser cette fonction en salle électrique. De plus ce capteur placé au plus proche du convertisseur permet de prendre en compte les chutes de tension dans les câbles de puissance.

La régulation d'état de charge spécifie un courant équivalent à fournir au stockage. Comme c'est ici le CVS-PAC qui maîtrise le courant injecté dans le bus, il faut transformer cette consigne en courant à fournir par la PAC, d'où les opérations successives. Ce courant à fournir par la PAC est impacté par les pertes des deux convertisseurs traversés pour parvenir au stockage, ce qui justifie l'intérêt particulier de la compensation des pertes pour limiter l'erreur sur la régulation d'état de charge.

### 5.3.4.3 Architecture n°2 : le CVS-PAC régule la tension de bus

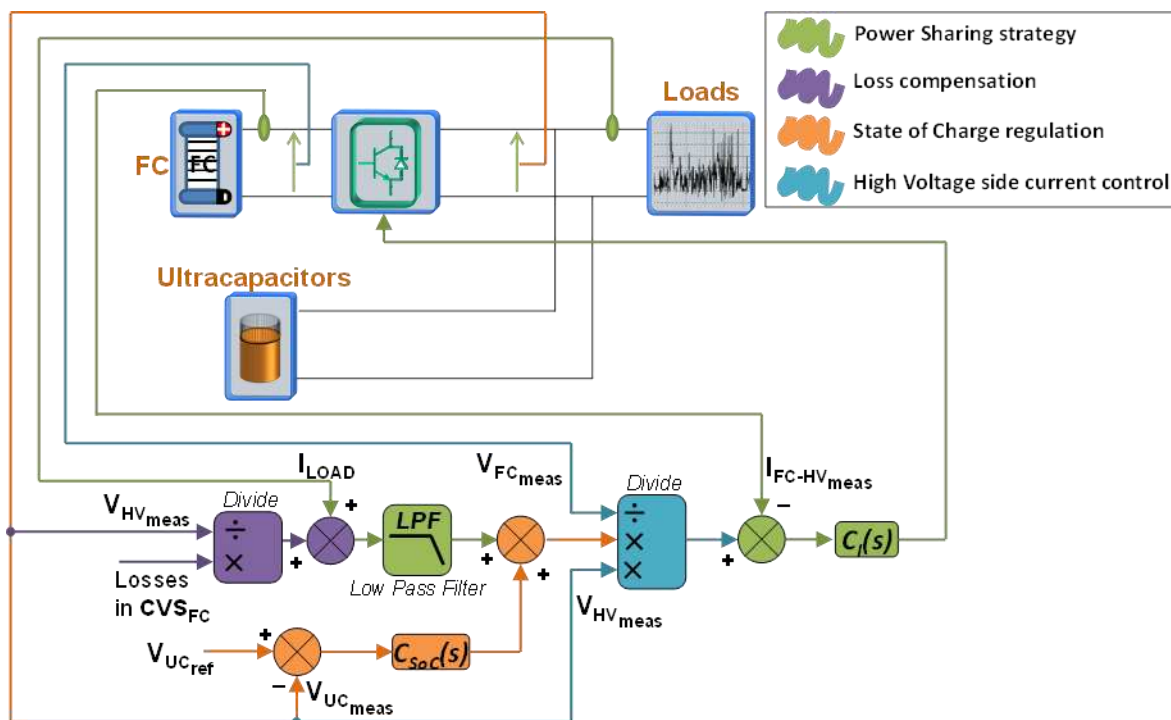


Figure V.38 : Modifications apportées au pilotage de l'architecture n°2.

Le principe de régulation de l'architecture n°2 (un seul CVS et stockage directement connecté au bus), illustré en **Figure V.38**, se rapproche beaucoup de celui de l'architecture n°1-2 avec le CVS-PAC piloté en régulation de courant côté haute tension, ce qui nécessite un capteur de tension PAC.

Dans chaque architecture, la partition fréquentielle s'opère par un partage des courants mis en jeu sur le bus HVDC, ce qui nécessite dans chaque cas le contrôle du courant côté HVDC d'un convertisseur. Enfin la complexité de ces régulations exige une puissance de calcul relativement conséquente dans le superviseur :

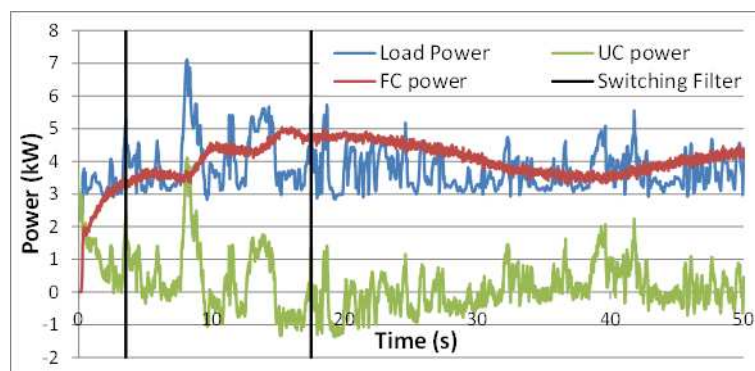
- calculs conséquents pour l'estimation des pertes,
- mise à l'échelle des courants : courants BT  $\rightarrow$  courants HT et inversement,
- filtrages multiples pour le démarrage,
- plusieurs niveaux de régulation pour l'état de charge,
- reprise des régulations de tension des convertisseurs.

### 5.3.5 Validation expérimentale : tests aux limites

L'objet des travaux présentés dans cette section est de valider les principes précédents, à savoir : la commutation des filtres, la boucle de recharge et la compensation des pertes. Afin de pousser ces stratégies jusqu'à leurs limites, parfois jusqu'au déclenchement des sécurités, il est préférable d'utiliser l'émulateur.

### 5.3.5.1 Commutation des filtres lors du démarrage

La problématique de démarrage de l'hybridation, évoquée à la section 5.3.1, doit être validée expérimentalement pour vérifier notamment la stabilité de la commutation des filtres avec la boucle de recharge du stockage. Cet essai étant réalisé au moyen de l'émulateur de PAC, on observe des ondulations à 300Hz ainsi que souligné au 522, malgré le filtrage des mesures. La **Figure V.39** illustre ce démarrage : au début la totalité de la puissance consommée par les charges est fournie par le stockage dont l'état de charge diminue en conséquence très rapidement. La régulation de celui-ci réagit en faisant croître la puissance fournie par la pile à combustible afin de recharger. L'émulateur de Pile à combustible atteint rapidement sa puissance nominale. On distingue aisément les instants où le filtre de partage fréquentiel commute grâce aux harmoniques présents sur la puissance fournie par la pile à combustible.



**Figure V.39** : Démarrage avec commutation de filtres pour l'Architecture n°1-1 alimentée par l'émulateur (filtres de mesure à 100hz)

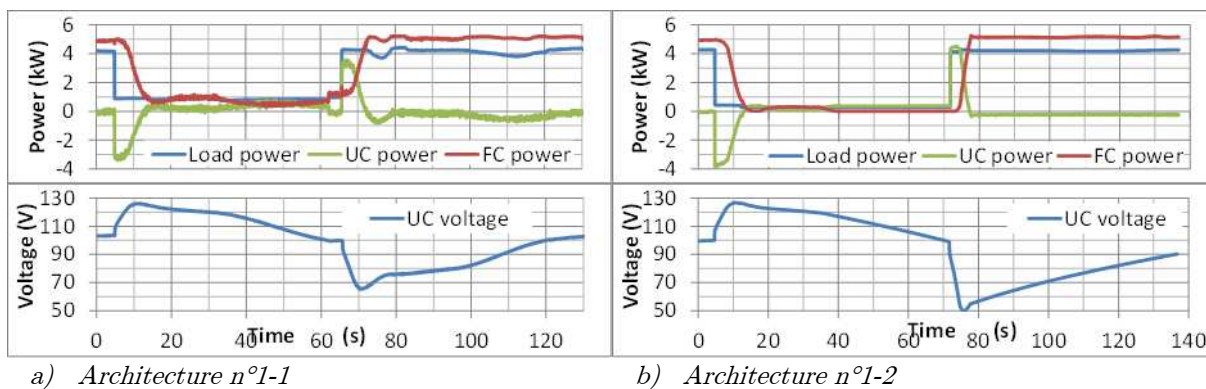
Ces essais ont également été réalisés avec les deux autres architectures avec des résultats similaires qu'il serait superflu de présenter

### 5.3.5.2 Régulation de l'état de charge du stockage

Avant de conduire les essais principaux en conditions normales, il s'agit de traiter toutes les situations mettant en jeu les sécurités en cas de défauts et assurées par le « bloc de sécurité » de la supervision (illustré en **Figure V.19**) qui peut déconnecter des éléments s'il détecte un défaut. Plusieurs situations doivent être explorées. Si au cours du fonctionnement toutes les charges se déconnectent subitement, alors la totalité de la puissance de PAC s'injecte dans le stockage puis diminue : la tension maximale atteinte dans le stockage doit rester dans les valeurs admises. Inversement, si l'hybridation fonctionne à charge nulle et si l'on connecte une charge au courant nominal, la totalité de la puissance est d'abord prélevée au stockage dont l'état de charge va diminuer rapidement le temps que la PAC monte en puissance.

Il s'agit alors que la régulation d'état de charge maintienne une tension suffisante aux bornes du stockage. L'utilisation de l'émulateur se prête très bien à ces essais permettant d'éprouver la stabilité de la gestion énergétique dans les deux situations présentées qui constituent deux pires cas.

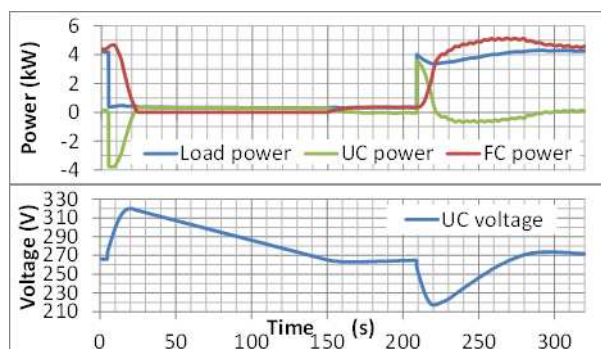




**Figure V.40 :** Essais de stabilité de la boucle de recharge sur l'architecture n°1.

La **Figure V.40** illustre ces essais. L'impact des niveaux de la boucle de régulation est difficile à observer puisque dans tous les cas le CVS-PAC atteint ses limitations : limitation à 0A suite à l'échelon descendant et limitation à 140A suite à l'échelon montant. La boucle a beau demander plus, la PAC ne peut fournir. Nous avons vu à la section 5.2.1.3.2.2 que le CVS-PAC ne peut délivrer qu'une puissance en sortie de l'ordre de 4500W. A cette puissance, il ne reste aucune marge. La charge a donc été choisie à 4200W pour laisser 300W de marge. Il en est de même pour la partie basse, où le stockage ne pourra pas se décharger si la charge est nulle. A la date de ces essais, le CVS-PAC pouvait difficilement réguler correctement une tension de bus si la charge était inférieure à 800W (il a ensuite été renvoyé chez son fabricant pour corriger ce défaut), c'est pourquoi la charge résiduelle a été choisie plus importante pour l'architecture n°1-1. Sinon pour la charge résiduelle, la même marge a été choisie, c'est à dire 300W.

Sur la **Figure V.40.a)**, le CVS-PAC perd la régulation de la tension de bus lorsqu'il atteint ses limitations, c'est pourquoi des fluctuations apparaissent sur la puissance de charge car elle est en régulation de courant. Enfin, l'état de charge du stockage ne présente aucun danger dans les deux cas, la récupération de l'état de charge de référence est en revanche très longue puisque le courant autorisé dans le stockage est très faible. Les pertes non négligeables du convertisseur sur apparaissent avec la somme  $P_{UC} + P_{FC}$  supérieure à  $P_{LOAD}$ .



**Figure V.41 :** Essais de stabilité de la boucle de recharge sur l'architecture n°2.

Dans l'essai de l'architecture n°2, l'état de charge est l'image directe de la tension de bus (et réciproquement), la charge prélevant un courant sur le bus, sa puissance varie. Avec la chute de la tension de bus, le CVS-PAC doit fournir un courant plus important à puissance égale. La

limitation du courant de sortie du CVS-PAC l'empêche de fournir sa puissance maximale, d'où la forme arrondie lors de l'échelon positif.

Remarquons que dans ce cas, de même que pour l'essai de l'architecture n°1-1 où le contrôle du bus est perdu durant quelques instants, la norme MIL-STD-704F extraite de [DOD-04] sur les réseaux continus en aéronautique n'aurait pas été respectée,, mais ce banc expérimental n'a pas été dimensionné pour respecter ces normes à ce stade aussi bien pour les bandes passantes des convertisseurs que pour le stockage, l'objectif étant seulement de réaliser une première validation expérimentale de ces architectures. En outre le fait d'utiliser les convertisseurs si proche de leurs butées ralentit énormément la récupération de l'état de charge de référence.

Finalement on constate une stabilité satisfaisante et une utilisation optimale du stockage puisque, dans le pire cas, la tension approche de très près la butée haute (130Vdc pour l'architecture n°1) et en niveau bas il atteint une décharge de 75% par rapport à l'état de charge de référence (50% de  $V_{ref}$ ).

Compte tenu de son « autogestion énergétique » ces essais pour l'architecture n°3 sont sans objet.

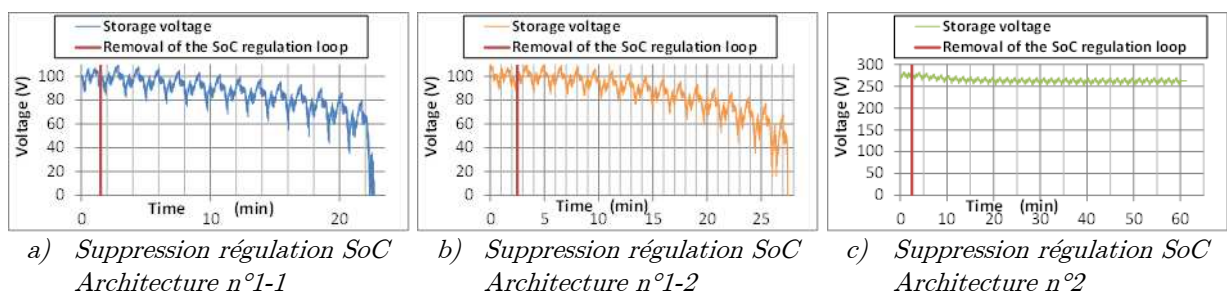
### 5.3.5.3 Compensation des pertes

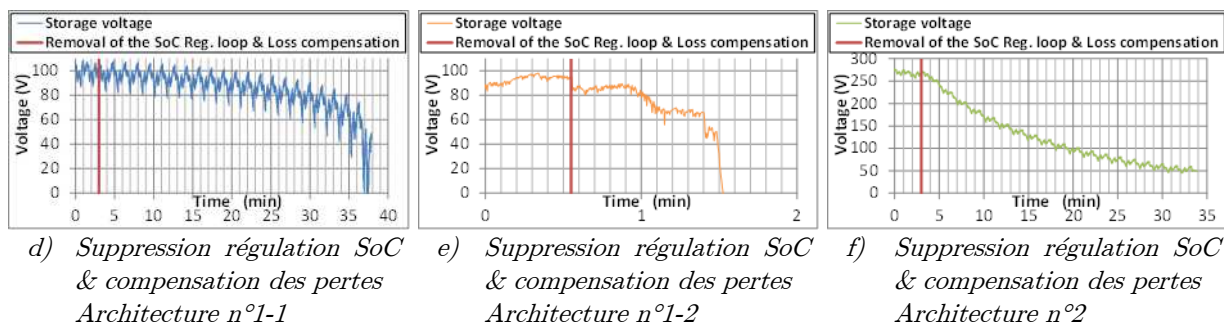
Différents essais ont été réalisés dans le but de valider l'intérêt de la boucle de compensation des pertes.

Tout d'abord, si l'on supprime cette boucle dans l'architecture n°1-1, le courant de charge est moins bien compensé et la PAC voit plus d'ondulations mais pour les architecture n°1-2 et n°2, l'état de charge du stockage évolue plus facilement vers la décharge, ce qui est « rattrapé » par la régulation d'état de charge. Il est donc nécessaire de supprimer également la boucle de régulation d'état de charge pour mieux mettre en évidence les conséquences.

Ainsi pour chaque architecture (sauf l'architecture n°3) deux essais ont été effectués : le premier en supprimant uniquement la boucle de régulation d'état de charge, le second en y ajoutant la suppression de la compensation des pertes. De cette manière nous pouvons observer les temps parcourus jusqu'à la décharge totale du stockage.

Le CVS associé au stockage pouvant permettre des tensions négatives, les courants pouvant atteindre des valeurs très importantes, les limitations et sécurités mises en place vont jouer leur rôle en déconnectant les éléments. Compte tenu du risque ces essais ont été réalisés avec l'émulateur. Les essais sont présentés en **Figure V.42** et les données importantes de ces essais sont récapitulées dans le **Tableau V.5**





**Figure V.42 :** Suppression de la régulation d'état de charge du stockage et le même essai en supprimant également la compensation des pertes.

Les essais sont présentés en **Figure V.42** et les données importantes de ces essais sont récapitulées dans le **Tableau V.5**

	Suppression de la boucle de régulation d'état de charge	Suppression de la boucle de régulation d'état de charge et de la compensation des pertes
<b>Architecture n°1-1</b>	Temps de décharge : 21 minutes	Temps de décharge : 34 minutes
<b>Architecture n°1-2</b>	Temps de décharge : 25 minutes	Temps de décharge : 1 minute
<b>Architecture n°2</b>	Chute de tension d'environ 10Vdc en 60minutes	Chute de tension d'environ 220Vdc en 30minutes

**Tableau V.5 :** Evolution de l'état du stockage suivant la suppression des différentes boucles.

On constate d'abord que pour l'architecture n°1-1, le temps de décharge est plus long lorsque la compensation des pertes est désactivée. En effet, sans cette boucle le stockage ne compense pas toute l'amplitude des pics de la partie haute fréquence du courant de charge. Même si la valeur moyenne du courant est nulle dans les deux cas, lorsque les pics compensés sont plus importants, les pertes liées à ceux-ci le sont aussi. Dans ce cas la boucle de compensation des pertes n'agit qu'en hautes fréquences (à valeur moyenne nulle), elle permet de mieux compenser les pics de courant mais engendre plus de pertes qui mènent à une décharge plus rapide.

En ce qui concerne l'architecture n°1-2, sans la boucle de compensation des pertes la décharge est très rapide. Ici la compensation agit sur la partie basse fréquence et compense la valeur moyenne des pertes. Or le courant de consigne à fournir par la PAC qui est à basses fréquences doit traverser deux convertisseurs avant de parvenir au stockage. A puissance de 4kW en sortie du CVS-PAC, les pertes associées sont de l'ordre de 400W rien que pour ce convertisseur, le stockage se vide donc rapidement.

L'essai de l'architecture n°2 montre que l'estimation des pertes est très bonne car la boucle de compensation suffit presque à ne pas faire chuter l'état de charge (ici seules les pertes du CVS PAC entrent en jeu). Dans cette architecture, il n'est pas possible d'obtenir la décharge complète en raison du caractère survolteur du CVS-PAC. Au pire le stockage égale le niveau de la tension de PAC. De plus le profil est prélevé en courant, ce qui ne représente plus du tout la même puissance lorsque l'état de charge des SC (donc la tension de bus) diminue.

Ces essais montrent également que la compensation des pertes sous-estime légèrement celles-ci, l'état de charge du stockage évoluant vers la décharge lors de la suppression de la boucle de régulation d'état de charge. Le fait que le stockage « tienne » relativement longtemps sans la régulation d'état de charge (~20 minutes pour l'architecture 1 et plus de 60minutes pour l'architecture n°2) signifie que l'estimation des pertes est bonne, en particulier pour le CVS-PAC avec une longue autonomie pour l'architecture n°2. Une légère révision à la hausse des pertes calculées du CVS-STO pourrait être faite.

Enfin, l'intérêt de la boucle de compensation des pertes apparaît probant pour soulager la régulation d'état de charge (compte tenu de sa faible action intégrale et de l'erreur statique liée à l'action proportionnelle) dans l'architecture n°1-2 et 2. Son rôle est complètement différent dans l'architecture n°1-1 puisqu'il s'agit là de compenser plus exactement les variations de charge. Cette compensation ne serait pas à faire si l'on pouvait commander directement le courant du côté haute tension des convertisseurs.

## **5.4 Essais avec une Pile à combustible réelle**

Les principales fonctions des différentes stratégies pour les différentes architectures ayant été validées, l'expérimentation avec une PAC réelle a pu être entreprise. Toutes les phases de fonctionnement ont également été mises au point grâce à l'émulateur, mais cette mise au point expérimentale n'est pas présentée dans ce mémoire.

Les démarrages rapides n'ont cependant pas été effectués avec la PAC, seuls des régimes permanents sont présentés car faute de temps les régulations de débits du banc stack n'ont pu être asservis au courant délivré. Nous avons souhaité prendre dans un premier temps le plus de précautions possibles pour préserver son état de santé. C'est pourquoi les montées en courant ont été effectuées progressivement pour (de l'ordre de la minute) et ne sont pas présentés ici.

Cette partie présente les résultats finaux d'hybridation PAC ; une comparaison est effectuée avec ceux de l'émulateur. Un compromis a été choisi entre le nombre d'informations issues des essais, leur lisibilité et la place qu'elles occupent dans ce mémoire.

### **5.4.1 Architecture n°1-1 : le CVS-PAC régule la tension de bus**

Les résultats obtenus avec l'architecture n°1-1 sont présentés en *Figure V.43*

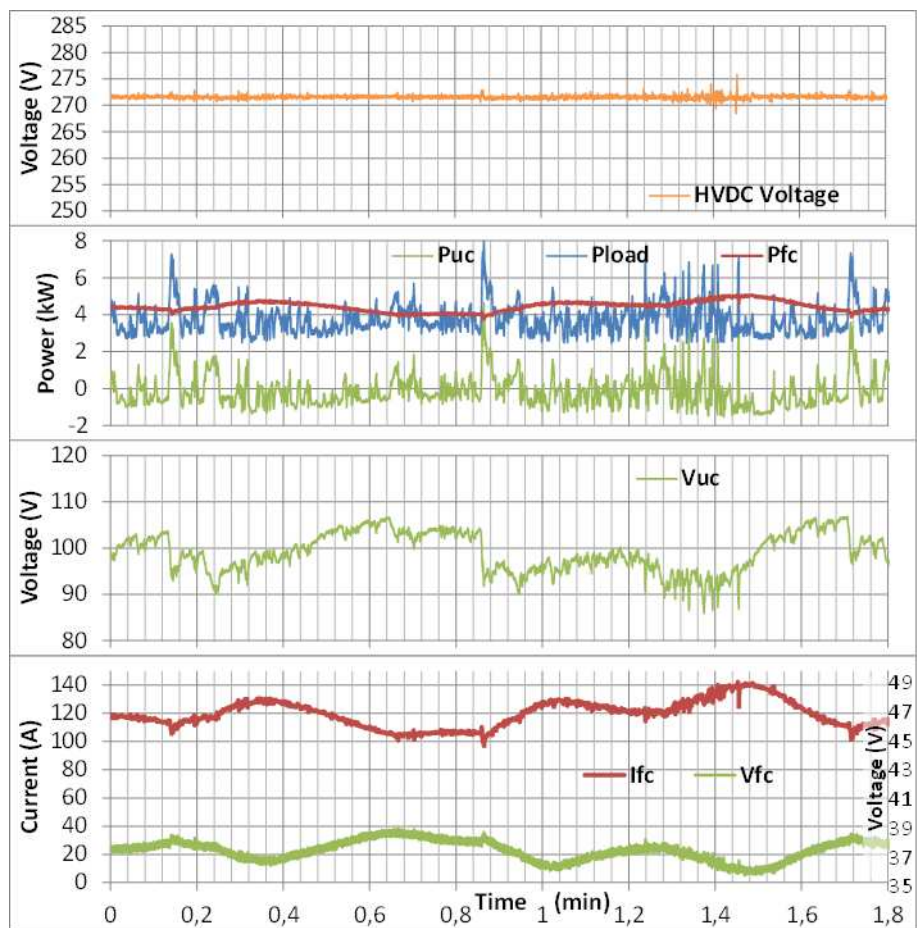


Figure V.43 : Hybridation PAC-SC pour l'Architecture n°1-1

On observe une tension de bus très stable ; en effet le CVS-PAC qui régule le bus a été spécifié pour de bonnes performances dynamiques en régulation de tension.

En revanche on peut observer de légères ondulations sur le courant fourni par la PAC. En effet le principe de compensation haute fréquence est très exigeant sur l'exactitude des compensations par le stockage. En particulier la *Figure V.44* qui représente les courants traversant la PAC et la charge lors d'une petite partie de la mission montre que les pics de courant présents dans la charge sont inversés par rapport au courant fourni par la PAC. Cela signifie qu'il ne s'agit pas d'une sous-compensation des harmoniques autres fréquences du courant de charge mais, à l'inverse, il semble y avoir une compensation trop importante ou un décalage temporel dans la compensation.

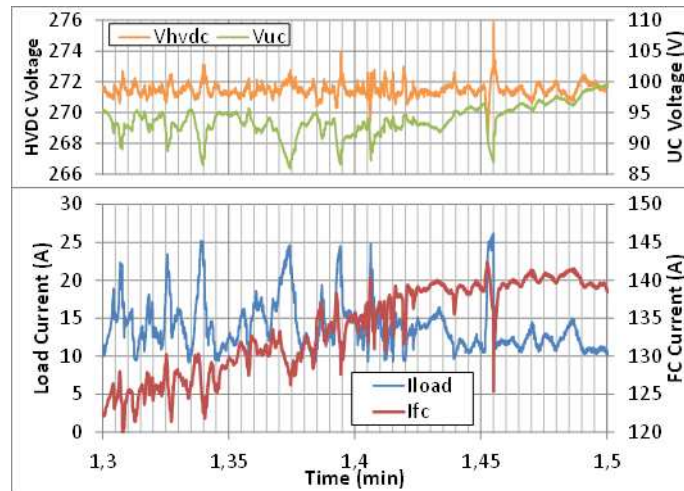


Figure V.44 : Zoom sur le courant PAC et le courant de charge (Architecture n°1-1)

Plusieurs raisons peuvent être avancées : une mauvaise estimation des pertes, un retard dans la mesure du courant de charge ou dans la consigne du convertisseur, une erreur sur une grandeur intervenant dans le calcul.

Les deux grandeurs intervenant sont la tension HVDC et la tension du stockage (*Figure V.36*). La tension HVDC varie trop peu pour pouvoir causer un tel écart, d'autant plus que sa mesure est filtrée pour les calculs (contrairement à la tension stockage). La tension de stockage possède une variation de l'ordre de 10% sur un tel pic, elle pourrait causer un tel écart. En effet le pilotage du courant côté haute tension de ce convertisseur fait appel au rapport des tensions HVDC et stockage, or lors d'un tel pic ces tensions évoluent et si les capteurs de tension servant au calcul ne sont pas suffisamment dynamiques alors le rapport n'est pas exact.

Enfin le plus grand pic dans le profil (à 1,455 minute) illustré sur ce zoom représente une variation de près de 10% du courant de PAC (le pic sur la charge représentant près de 100% du courant moyen), au final le stockage ne compense que les « moyennes » fréquences, laissant les très hautes et les très basses à la PAC. Ce pic est très intéressant puisqu'il se rapproche d'une impulsion. On constate d'abord une baisse de la tension : pendant que le stockage commence à compenser, le courant de PAC augmente pour contrer cette chute de tension. Enfin le stockage parvient à compenser le pic. Mais lorsque celui-ci s'arrête, il le compense toujours un peu, ce qui fait diminuer le courant de PAC.

Parmi les raisons avancées, c'est finalement le déphasage du filtrage qui semble être responsable du creux de courant de la PAC. Tandis que pour les autres pics, la tension évolue peu, les variations du courant de PAC sont de sens inverse à celles de la charge, on peut soupçonner le fait que le calcul des pertes surestime celles-ci. Ainsi les harmoniques de la puissance fournie sur le bus par le stockage dépassent en amplitude celles du courant de charge.

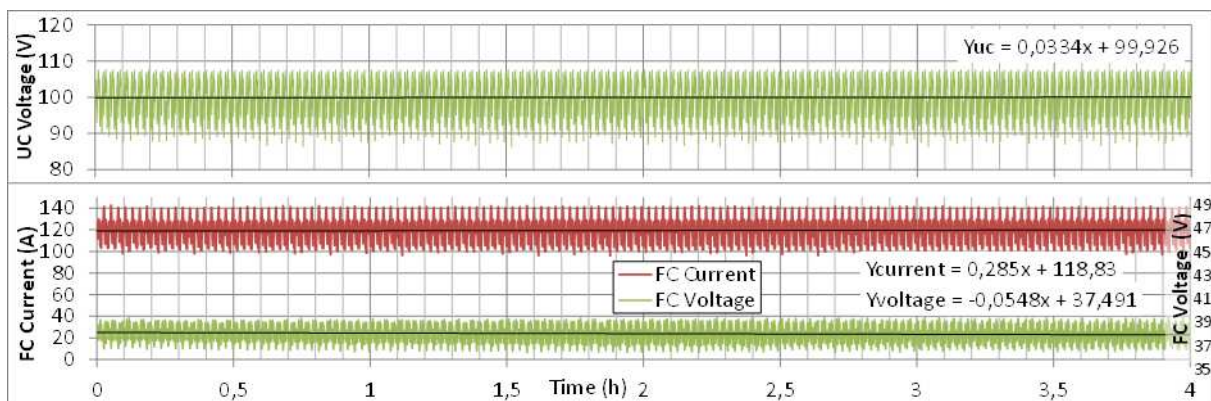
Ces essais mettent donc en évidence la difficulté de mettre en œuvre cette stratégie. Si l'estimation des pertes ou si certaines mesures sont entachées d'erreurs (déphasages, retards) il est tout à fait possible d'obtenir l'inverse des objectifs de l'hybridation ! Par exemple si une pointe de courant charge n'est pas compensé assez rapidement, c'est donc la PAC qui le subit et si la compensation s'effectue avec retard, la PAC subit un creux de courant. Dans ce cas la

PAC subit donc deux fois la pointe de courant ce qui est alors pire que si elle n'était pas hybridée. Pour pallier ce risque, on peut réduire la dynamique de la régulation de la tension de bus. Mais cette méthode n'a pas pu être appliquée (cf. section 5.2.4.4).

Un essai d'endurance de 4h avec le stack a ensuite été réalisé afin d'éprouver la boucle de recharge, la stabilité thermique des composants et celle du point de fonctionnement de la PAC. Le profil de charge n'est pas répété un nombre entier de fois : 152,54. Cet essai illustré en **Figure V.45** montre les points de fonctionnements sont stables durant les 4h d'essai :

- + 33 mV.h<sup>-1</sup> (+0,033 %·h<sup>-1</sup>) pour la tension de stockage,
- +285 mA.h<sup>-1</sup> pour le courant PAC (+0,24 %·h<sup>-1</sup>),
- -55 mV.h<sup>-1</sup> pour sa tension (-0,15 %·h<sup>-1</sup>).

Ces mesures ne respectent pas le théorème de Nyquist-Shannon : en 30000 points sur 4h, cela représente un pas d'environ 500ms tandis que les variations du courant de charge sont effectuées par pas de 10ms. C'est pourquoi les variations annoncées sont à considérer avec prudence. , On peut cependant considérer que l'effet statistique du à la forte répétition du profil a tendance à lisser l'erreur commise. Par ailleurs la tension de 3 modules SC a été observée, les tensions (non représentées ici) sont équilibrées durant toute la durée de l'essai. On a pu relever une élévation de 3°C de la température de l'extérieur des modules. Malgré les incertitudes, ces mesures indiquent le bon comportement global du système.



**Figure V.45** : État de charge SC et tension/courant PAC sur 4h pour l'Architecture n°1-1

Enfin si l'on compare les résultats obtenus en simulation, émulation et stack réel illustrés en **Figure V.46**, on peut observer une très bonne correspondance globale entre les résultats, mais la comparaison ne peut être poussée trop loin en raison des conditions de réalisation différentes. Les principales différences que l'on peut noter sont d'une part pour la simulation un rapport 10 sur la puissance moyenne de charge, ensuite le courant moyen fourni par la PAC est supérieur dans ce cas. En effet, outre le facteur d'échelle 10 et l'OVSR de 0,42 au lieu 0,5 dans les essais, l'étude [GAR-07] avait considéré une PAC H<sub>2</sub>/Air et une consommation de 20% par les auxiliaires avait été prise en compte. Le profil n'est pas rigoureusement identique non plus puisque dans ce cas. De plus la simulation d'alors ne comportait pas de compensation des pertes ou le pilotage du courant côté haute tension pour les convertisseurs.

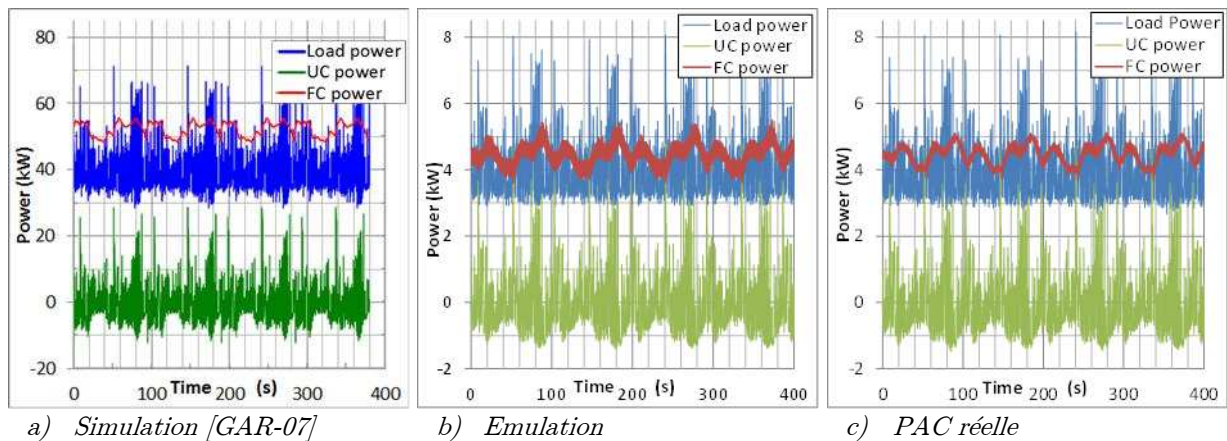


Figure V.46 : Comparaison entre les simulations de [GAR-07], les mesures avec l'émulateur de PAC et le stack réel pour l'Architecture n°1-1

### 5.4.2 Architecture n°1-2 : le CVS-STO règle la tension de bus

Les résultats obtenus avec l'architecture n°1-2 sont présentés en *Figure V.47*.

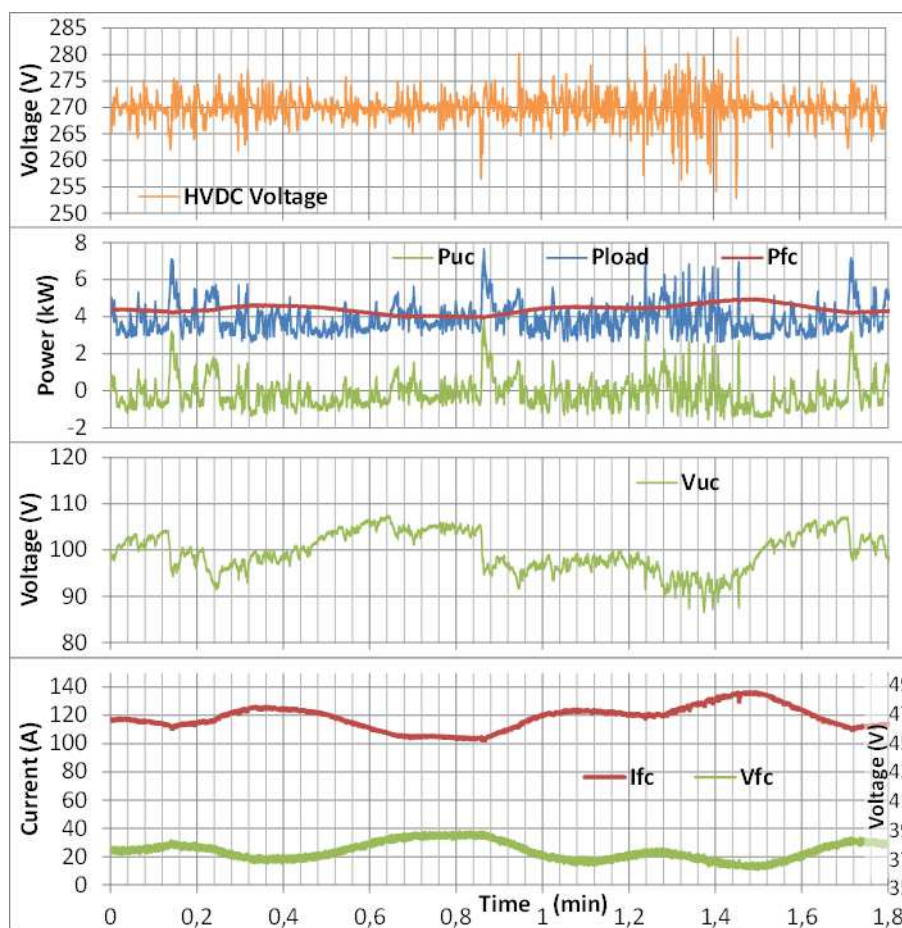
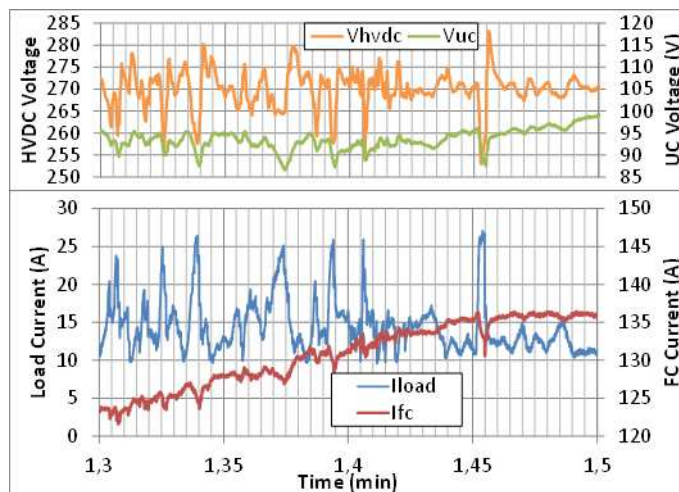


Figure V.47 : Hybridation PAC-SC pour l'Architecture n°1-2.



Les principales différences par rapport à l'autre architecture se situent au niveau de la tension de bus et du courant PAC. Ici la tension de bus est régulée par le CVS-stockage moins performant dynamiquement. En revanche, le courant fourni par la PAC est beaucoup plus lisse que pour le cas précédent, mais le zoom de la **Figure V.48** révèle quelques petites ondulations.



**Figure V.48 :** Zoom sur le courant PAC et le courant de charge (Architecture n°1-2).

On observe des ondulations du courant de PAC qui sont de signe opposé au courant de charge atteignant jusqu'à près de 4% du courant de PAC. Il est nécessaire de remonter toute la chaîne de régulations pour en trouver la cause.

Dans cette stratégie, la consigne de courant du convertisseur regroupant le calcul des pertes et le courant de charge est traitée par un filtre passe-bas de très basse fréquence : on ne peut donc mettre en cause ni la mesure du courant de charge, ni l'estimation des pertes.

A cette consigne est ajoutée celle de la régulation d'état de charge : on ne peut pas non plus mettre en cause cette régulation puisque elle reste au niveau 1 qui comporte un filtre passe-bas en entrée qui bloque ces variations rapides.

En revanche la régulation d'état de charge est transformée en courant équivalent et ramenée côté bus par la multiplication par le rapport  $V_{UC}/V_{HVDC}$  de la **Figure V.37**. Le courant d'état de charge est normalement faible puisqu'il sert essentiellement à compenser les imperfections le calcul théorique des pertes et une oscillation de celui-ci devrait avoir peu d'impact. La division par  $V_{HVDC}$  est annulée par le bloc suivant. Si ce courant est responsable des variations ça ne peut donc être que par la mesure de la tension  $V_{UC}$ .

Enfin la consigne issue de la somme du courant équivalent de recharge et du « power sharing » incluant les pertes doit être transformée en courant équivalent ramené côté PAC par des opérations avec la tension de bus HVDC et la tension de PAC. L'évolution de la tension de PAC n'est qu'une conséquence de cette variation de courant, elle ne peut pas en être la cause.

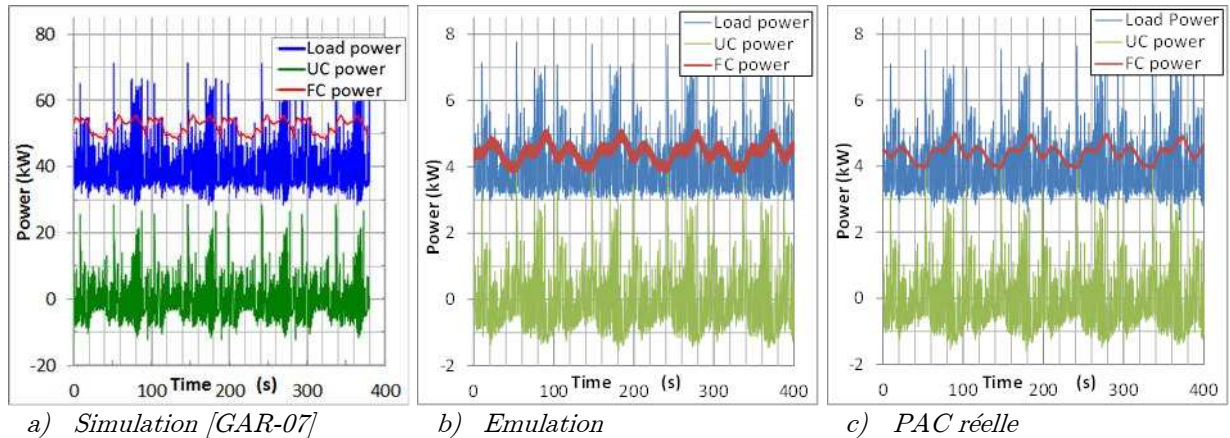
Un autre suspect est la tension de bus qui est très variable dans cette architecture. Sa mesure intervenant dans le calcul est cependant filtrée à 0,16 Hz pour ne pas laisser passer ces variations, elle ne peut pas être mise en cause.

En fin de compte, la seule grandeur possiblement responsable est donc la mesure de  $V_{UC}$  qui n'est pas filtrée pour les besoins de la régulation d'état de charge des niveaux 2 et 3. De plus le courant de PAC semble n'avoir que des variations négatives autour de sa valeur moyenne, comme la tension du stockage. La tension stockage étant en facteur multiplicatif, les variations engendrées sont dans le même sens. On constate également que les formes sont très similaires ce qui semble valider le fait que l'utilisation de la mesure non filtrée de cette tension soit en cause dans ces variations.

Dans cette architecture et avec cette stratégie, la solution pour éviter ces petites variations du courant de PAC pourrait de filtrer la mesure de la tension de stockage avant de l'appliquer en facteur multiplicatif. On ne peut pas mettre la boucle de régulation d'état de charge en amont du filtre passe bas puisqu'elle doit être capable d'être plus réactive que le filtre si besoin. Cet essai témoigne du soin à apporter à la réalisation d'une telle stratégie.

Une comparaison simulation, émulation et stack réel est donnée en **Figure V.49**. On peut tirer globalement les mêmes conclusions que pour l'architecture n°1-1. En ce qui concerne la simulation, elle est rigoureusement identique à celle de l'architecture n°1, des modèles moyens sans découpage de ceux-ci permettent une commande parfaite.

Les mesures sur le système avec la PAC émulée comportent toujours des ondulations à 300Hz alors que le système avec la PAC réelle possède très peu d'ondulations HF conformément aux résultats de la **Figure V.47**.



**Figure V.49** : Comparaison entre les simulations de [GAR-07], les meures avec l'émulateur de PAC et le stack réel pour l'Architecture n°1-2.

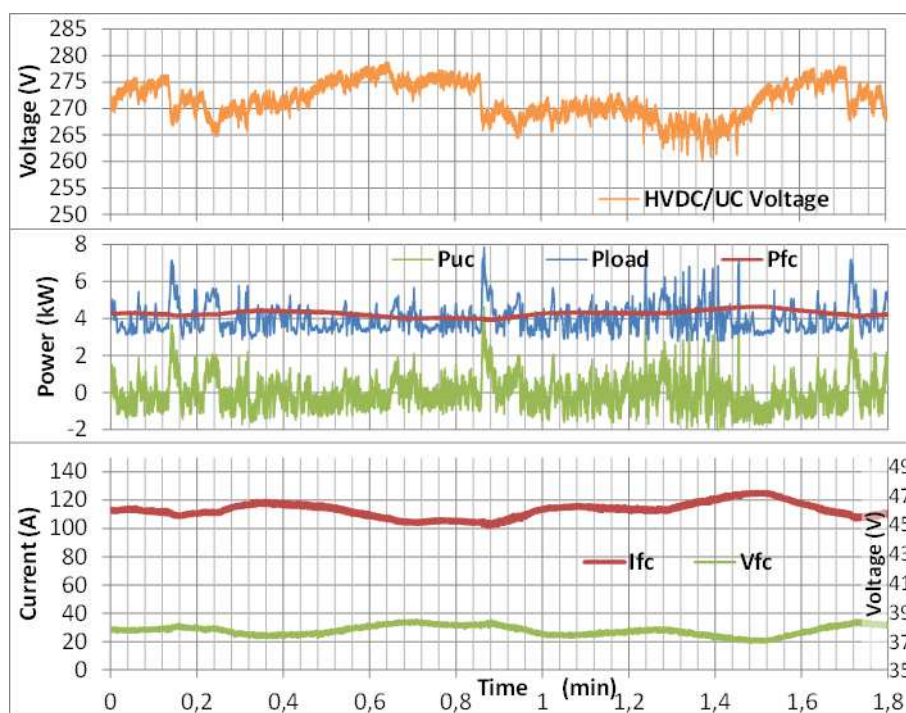
Des essais d'endurance de 4h avec le stack réel ont été également réalisés et conduisent à des conclusions similaires au cas de l'architecture n°1-1 : ils ne sont donc pas présentés. Sur l'essai de 4h, les variations sont moindres :

- + 94 mV.h<sup>-1</sup> (+0,094 %.h<sup>-1</sup>) pour la tension de stockage,
- +158 mA.h<sup>-1</sup> pour le courant PAC (+0,13 %.h<sup>-1</sup>),
- -43 mV.h<sup>-1</sup> pour sa tension (-0,12 %.h<sup>-1</sup>).

La variation de température des modules SC est identique (+3 °C).

### 5.4.3 Architecture n°2

Les résultats obtenus avec l'architecture n°2 sont présentés sur la **Figure V.50**. On peut relever que la tension de bus image de l'état de charge du stockage évolue peu comparé à l'architecture n°1-2 où la régulation de tension de bus est réalisée par un convertisseur peu dynamique. Les variations de cette tension sont faibles en amplitude mais longues dans le temps. C'est-à-dire qu'un creux ou un dépassement par rapport à la tension de référence peut durer plusieurs dizaines de secondes alors que lors de régulations par des convertisseurs ces creux sont d'amplitudes similaires mais plus courts : de l'ordre de quelques dizaines de millisecondes. Ce qui devait être le point faible de cette architecture semble au final très acceptable.



**Figure V.50 :** Hybridation PAC-SC pour l'Architecture n°2

Un zoom sur le courant fourni par la PAC ne montre plus aucune variation à hautes fréquences en dehors du découpage et/ou d'un léger bruit très haute fréquence. En effet avec cette architecture plus économe en opérations le rapport  $V_{HVDC}/V_{FC}$  de la **Figure V.38** est appliqué indépendamment sur la somme du courant de charge et des pertes et sur le courant de référence de régulation d'état de charge. Pour ce dernier c'est la mesure de  $V_{UC}$  (soit  $V_{HVDC}$ ) utilisée en régulation (et donc non filtrée) qui est utilisée, celle-ci créant probablement le bruit très haute fréquence observé.

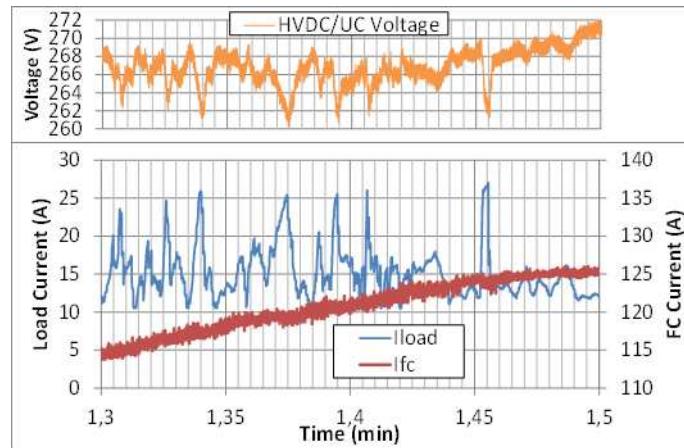


Figure V.51 : Zoom sur le courant PAC et le courant de charge (Architecture n°2)

En pratique toute les mesures dites « non filtrée » sont soumises à un filtre RC de fréquence inférieure à la moitié de la fréquence d'échantillonnage du superviseur et physiquement proche de celui-ci. Ici les filtres ont été calés autour de 3kHz (conformément au théorème de Nyquist-Shannon compte tenu de la fréquence d'échantillonnage à 7kHz). Sans ces filtres analogiques, du bruit relativement basse fréquence apparaît dans les mesures et l'on doit placer un filtre numérique très bas pour l'éliminer.

Enfin, durant l'essai de 4h, on peut observer une légère dérive du point de fonctionnement de la PAC. Cette dérive est visible à l'œil nu sur la tension et sur le courant de PAC. On relève ainsi sur la **Figure V.52** :

- $-17 \text{ mV.h}^{-1}$  ( $+0,0063 \text{ \%.h}^{-1}$ ) pour la tension de stockage,
- $+918 \text{ mA.h}^{-1}$  pour le courant PAC ( $+0,80 \text{ \%.h}^{-1}$ ),
- $-112 \text{ mV.h}^{-1}$  pour sa tension ( $-0,30 \text{ \%.h}^{-1}$ ).

L'échauffement des modules SC a été mesuré à  $+2^\circ\text{C}$  pour ces 4h d'essais

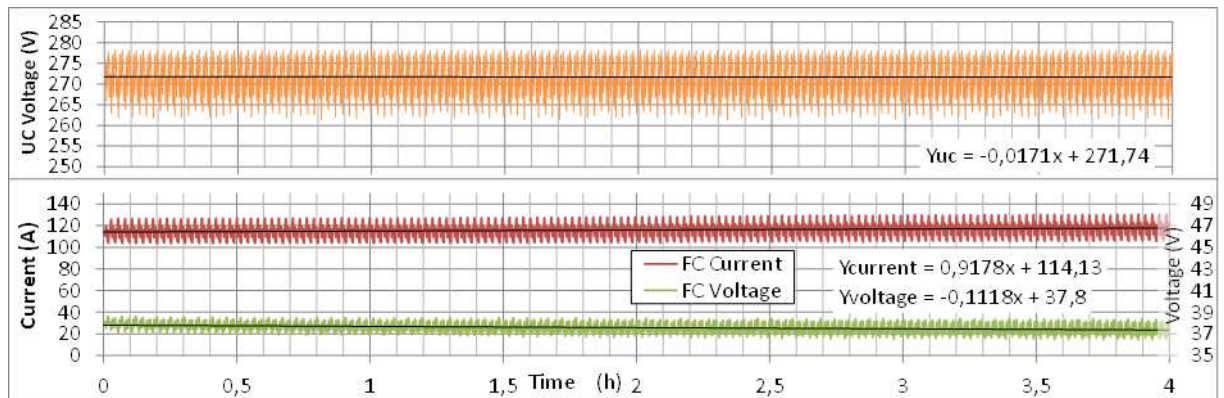


Figure V.52 : Etat de charge SC et tension/courant PAC sur 4h pour l'Architecture n°2

La puissance consommée n'évoluant pas ( $+1,8\text{W.h}^{-1}$ ) alors que la puissance fournie par la PAC augmente légèrement ( $+21\text{W.h}^{-1}$ ) on peut supposer une légère augmentation des pertes dans le convertisseur liée à l'échauffement thermique ou une légère dérive des capteurs (également thermique). En outre, ces niveaux de puissances sont dans la zone d'incertitude des capteurs. Concernant la variation du point de fonctionnement de la PAC plusieurs paramètres peuvent entrer en jeu tels qu'une augmentation de la demande en puissance, un assèchement lié

aux stœchiométries non asservies (celles-ci étant fixées au point de courant max c'est-à-dire 140A avec un facteur de sur-stœchiométrie de 1,2), une variation de sa température (dérive du capteur régulant), etc. Il est difficile de conclure.

La comparaison entre simulation, émulation et expérimentation n'est pas présentée ici étant donné que les courbes sont identiques à celle de la **Figure V.49**. L'essai sur stack réel est fidèle à l'émulation avec aucune ondulation haute fréquence sur la puissance fournie par le stack.

#### 5.4.4 Architecture n°3 : hybridation directe

Etant donné les éléments du banc et leurs caractéristiques, nous ne pouvons pas charger le profil complet à la sortie du CVS-PAC limité à 5kW tandis que pour cette architecture la totalité de la puissance de charge doit passer par le convertisseur, ce qui nécessite jusqu'à 8kW.

La possibilité de consommer 3kW directement sur la PAC côté basse tension et les 5kW fluctuants sur le bus continu met en difficulté le convertisseur compte tenu de variations rapides sur la totalité de sa gamme en puissance.

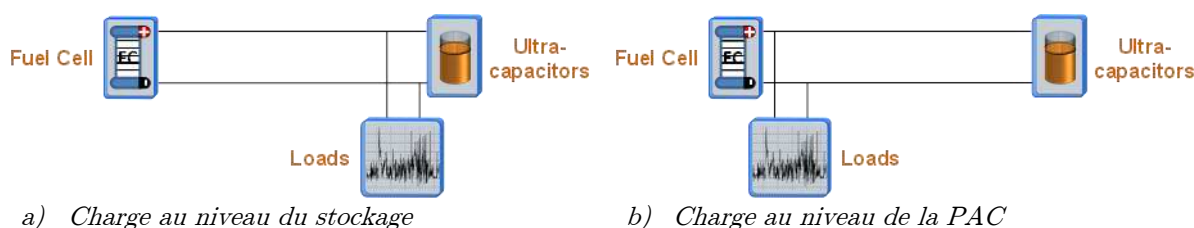
Il a donc été choisi de prélever le profil de charge directement sur le stack hybridé, sans passer par un convertisseur. Etant donné que le profil de mission usuel est un profil en courant prélevé sur un bus régulé en tension, cela correspond à un profil en puissance prélevé sur la PAC avec une tension variable. Nous avons choisi d'augmenter ce profil de 10% pour représenter les pertes qu'il aurait pu y avoir avec un convertisseur.

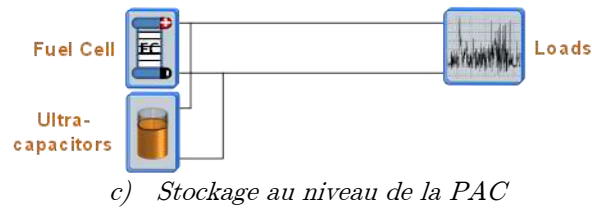
Compte tenu du couplage fort entre les impédances des deux composants, l'utilisation de l'émulateur dans cet essai semble peu pertinente.

La mise en œuvre soulève plusieurs questions : est-il plus judicieux de positionner le stockage plus proche de la charge ou de la PAC ? Est-il préférable de prélever le courant au plus près de la charge ou du stockage ?

##### 5.4.4.1 Position optimale de la charge et du stockage

Nous disposons d'une « salle électrochimie » pour la PAC et d'une « salle électrique » pour l'électronique de puissance et les charges. Les distances pourtant prévues au plus court nécessitent deux câbles de 5,20m (section 35mm<sup>2</sup>) pour relier la puissance fournie par le stack entre ces deux salles. Quelques essais ont été effectués pour savoir laquelle des trois positions géographiques proposées en **Figure V.53** est la plus adaptée à nos essais. Et plus précisément répondre à la question : dans quelle salle place-t-on le stockage ?

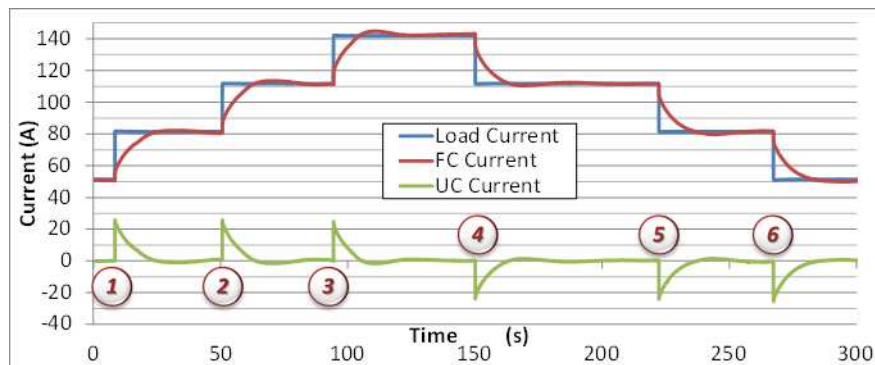




**Figure V.53 :** Positionnements de la charge et du stockage pour l'architecture n°3.

Les trois montages de la **Figure V.53** constituent trois cas possibles pour lesquels un des organes est éloigné des autres : dans le montage *a*), la PAC est éloignée du stockage et des charges ; pour le montage *b*), le stockage est éloigné de la PAC et des charges tandis que pour le montage *c*), les charges sont éloignées de la PAC et du stockage (cas d'un organe PAC hybridée incluant le stockage). Nous nous intéresseront, dans un premier temps, à quantifier brièvement le partage des puissances pour ces trois cas.

L'intuition nous oriente vers le choix de la solution de la **Figure V.53.a**), mais il serait intéressant de quantifier l'écart avec les autres solutions. Plusieurs échelons de charge ont donc été réalisés par palier de 30A, de 50A à 140A dans le sens aller et retour. Les échelons sont relativement faibles, toujours pour préserver le stack dans un premier temps compte tenu des écarts de pression possibles. La réponse est de forme similaire dans chaque cas : seule celle du montage *a*) est illustrée en **Figure V.54**.



**Figure V.54 :** Exemple de réponse en courant de l'ensemble hybridé soumis à des échelons de 30A suivants : 50A → 80A → 110A → 140A → 110A → 80A → 50A - Architecture n°3.

En observant la proportion des échelons fournis immédiatement par le stack, c'est évidemment le montage *a*) qui présente le meilleur partage, tandis qu'avec les montages *b*) et *c*) le stack fournit respectivement 44% et 19% plus que dans le montage *a*).

montage	N° échelon	$\Delta I_{\text{CHARGE}}$	$\Delta I_{\text{PAC}}$	$\frac{\Delta I_{\text{PAC}}}{\Delta I_{\text{Charge}}}$	Moyenne $\Delta I_{\text{PAC}} / \Delta I_{\text{CH}}$
Montage A	1	30,05	4,34	0,14	0,182
	2	29,9	5,33	0,18	
	3	30	6,1	0,20	
	4	-30,1	-6,1	0,20	
	5	-29,86	-5,6	0,19	
	6	-30,05	-5,33	0,18	
Montage B	1	29,53	6,32	0,21	0,262
	2	29,53	7,44	0,25	
	3	29,69	8,1	0,27	
	4	-29,49	-9,2	0,31	
	5	-29,58	-8,2	0,28	
	6	-29,65	-7,25	0,24	
Montage C	1	29,69	4,98	0,17	0,216
	2	29,53	6,02	0,20	
	3	29,38	6,9	0,23	
	4	-29,65	-7,4	0,25	
	5	-29,65	-6,9	0,23	
	6	-29,5	-6,1	0,21	

**Tableau V.6** : Récapitulatif des variations de courant subies par la PAC pour l'ensemble hybridé soumis aux échelons.

Cet essai montre que du point de vue du partage des puissances, il est favorable de placer le stockage au plus proche du point de consommation, c'est-à-dire des charges ou du convertisseur : c'est donc le montage *a*) qui sera utilisé.

En revanche, d'autres critères auraient pu être pris en compte tels que la minimisation des pertes électriques. Par exemple, si la contrainte sur l'espace ne permet de rapprocher qu'un seul des deux éléments du consommateur (SC, montage *a*) ou PAC, montage *b*)), comme cela pourrait être le cas dans une voiture : vaut-il mieux mettre la PAC ou le Stockage au plus proche du convertisseur et l'autre au niveau du coffre ? La question du montage reste ouverte, puisque dans le cas du montage *b*) le courant continu (généralement important pour les PAC) traverse moins de longueurs de câble (et les pertes associées). Ces longueurs en moins pourraient conduire à une consommation en hydrogène plus faible à consommation électrique égale au détriment d'une hybridation moins performante.

Enfin, le montage *c*) semble offrir les inconvénients de pertes importantes (liées au transport de courants forts sur des grandes longueurs) et ceux d'un partage des puissances moins performant. En revanche, ce dernier montage permet une gestion énergétique de l'hybridation directe telle que celle illustrée dans les chapitres précédents plus aisée (symétrie électrique, suppression de systèmes d'équilibrage actifs par des fils d'interconnexion, suppression des systèmes de précharge des SC), offerte grâce au rapprochement des deux composants PAC et SC.

#### 5.4.4.2 Résultats d'hybridation sur le profil

Les résultats d'hybridation pour l'architecture n°3 sont donnés en **Figure V.55**. Il n'y a pas eu de convertisseur de bus, on ne peut donc pas observer la tension de bus. Concernant le

partage des puissances on relève plus d'ondulations du courant de PAC que dans les cas précédents avec des variations instantanées maximale avoisinant les 40A.

On remarque aussi que le courant max traversant la PAC dépasse celui observé dans les autres architectures puisqu'ici on atteint jusqu'à 150A à plusieurs reprises alors que pour les autres architectures, le convertisseur est limité à 140A. Cependant pour simuler la présence d'un convertisseur le profil de charge a été augmenté de 10%.

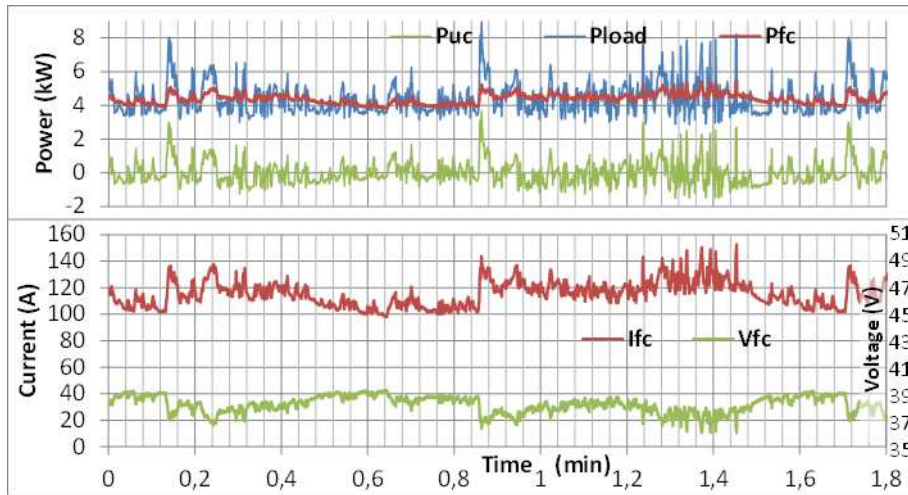


Figure V.55 : Hybridation PAC-SC pour l'Architecture n°3.

Un zoom sur le même pic de courant que celui observé dans les autres cas (*Figure V.56*), montre une variation sur le pic le plus important d'environ 30A, ce qui n'est pas très éloigné d'un cas où le filtrage n'est pas synchrone (ex. cas de l'architecture n°1-1 où la variation sur ce pic atteint -15A). Ce pic est très contraignant pour les autres architectures puisqu'il représente presque une impulsion.

Contrairement aux autres architectures, il semblerait qu'ici quel que soit la cinétique de la variation, le stack prene en charge une part relativement similaire du courant. En effet on peut voir sur les autres pics d'amplitude similaire mais de variation plus lente une prise en charge par la PAC de l'ordre de 30A également tandis que les autres architectures sont plutôt robustes sur ce type de variation.

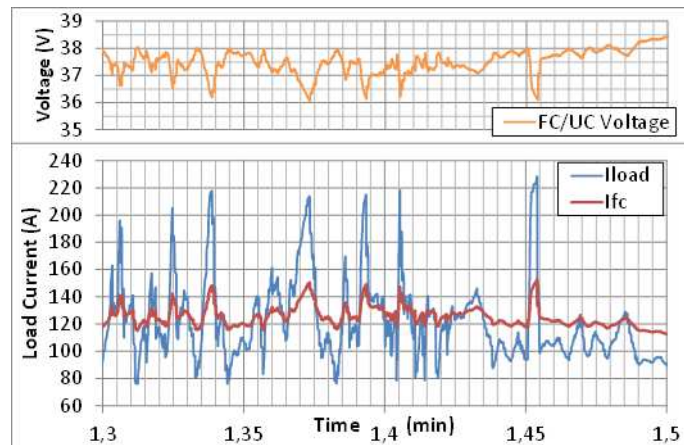
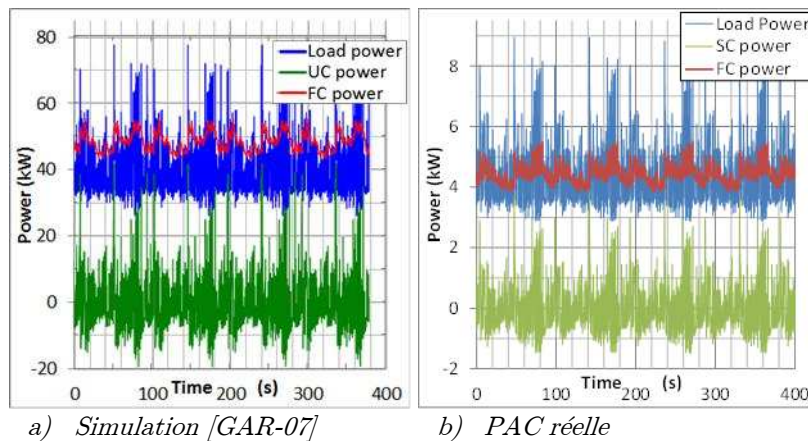


Figure V.56 : Zoom sur le courant PAC et le courant de charge (Architecture n°3).



On peut aussi comparer les simulations à l'expérimentation avec le stack réel (**Figure V.57**).

La simulation a utilisé un modèle de supercondensateur sans résistance série. La séparation des courants est pour ainsi dire parfaite : elle s'effectue suivant les variations de tension observées aux bornes du stockage et suivant la courbe de polarisation de la PAC. Le résultat obtenu est le « meilleur » que l'on pourra atteindre pour une valeur de capacité donnée. Avec le stack, la séparation s'opère plutôt correctement, une certaine part de haute fréquence est prise en charge par la PAC. On observe que la puissance moyenne fournie par la PAC semble proche de la puissance moyenne consommée par les charges. Notons, qu'il n'y a pas de convertisseur donc pas de pertes associées, ainsi pour émuler cet aspect, le profil de charge a été augmenté de 10%. Si l'on avait souhaité comparer avec une version possédant un convertisseur, il aurait fallu déduire ces 10% de la mesure du profil de charge. De cette manière la PAC aurait fourni une puissance moyenne supérieure à la puissance de charge affichée, ce qui n'est pas le cas ici.



**Figure V.57** : Comparaison entre les simulations de [GAR-07] et les mesures avec le stack réel pour l'Architecture n°3.

Enfin, les essais d'endurance de 4h n'ont pas été effectués avec cette architecture d'abord pour des raisons de calendrier et de règlement puis par manque de temps.

#### 5.4.5 Comparatif entre les architectures

Chaque architecture possède des points forts et des points faibles et il est difficile d'établir hiérarchie en raison des nombreux critères.

Quelques données récapitulatives extraites des mesures sont présentées dans le **Tableau V.7** : les valeurs maximales, minimales, moyennes, les écarts sur les tensions stockage et HVDC et sur le courant de PAC.

On constate que les résultats sont très proches entre émulation et simulation sauf pour l'architecture n°3 (réalisée à plus petite échelle sur l'émulation). Ceci valide le fait que pour des architectures indirectes la réalisation d'essais avec un émulateur permet de donner une très bonne image des grandeurs que l'on a dans le cas d'une PAC réelle. Par l'émulation, les coûts

de mise en place d'essais peuvent être considérablement réduits par rapports à des essais réels. On peut ajouter que dans ce cas, le système est simplifié puisqu'il n'y a pas de gestion fluide pour des résultats équivalents.

	Max	Min	Ave.	$\Delta$	$\Delta$ (%)			Max	Min	Ave.	$\Delta$	$\Delta$ (%)		
<b>HVDC Voltage (V)</b>	271,8	264,9	268,9	6,9	<b>2,6</b>	Architecture 1.1 : FC controls bus Voltage	<b>HVDC Voltage (V)</b>	275,8	268,6	271,6	7,3	<b>2,7</b>	Architecture 1.1 : FC controls bus Voltage	
<b>Storage Voltage (V)</b>	107,7	86,7	99,8	21,0	<b>21,1</b>		<b>Storage Voltage (V)</b>	106,9	85,9	99,4	21,0	<b>21,1</b>		
<b>FC Current (A)</b>	139,4	96,5	<b>117,4</b>	<b>43,0</b>	<b>36,6</b>		<b>FC Current (A)</b>	142,4	97,6	<b>120,2</b>	<b>44,7</b>	<b>37,2</b>		
<b>HVDC Voltage (V)</b>	282,6	252,4	269,3	30,2	<b>11,2</b>	Architecture 1.2 : UC controls bus Voltage	<b>HVDC Voltage (V)</b>	283,3	252,9	269,9	30,3	<b>11,2</b>	Architecture 1.2 : UC controls bus Voltage	
<b>Storage Voltage (V)</b>	108,3	86,7	100,2	21,6	<b>21,6</b>		<b>Storage Voltage (V)</b>	107,4	86,5	99,6	20,9	<b>21,0</b>		
<b>FC Current (A)</b>	135,6	100,9	<b>117,8</b>	<b>34,7</b>	<b>29,5</b>		<b>FC Current (A)</b>	136,4	102,4	<b>118,4</b>	<b>34,1</b>	<b>28,8</b>		
<b>HVDC Voltage (V)</b>	278,0	260,6	271,0	17,4	<b>6,4</b>	Architecture 2 : HVDC Storage	<b>HVDC Voltage (V)</b>	278,8	260,2	271,6	18,5	<b>6,8</b>	Architecture 2 : HVDC Storage	
<b>Storage Voltage (V)</b>	278,0	260,6	271,0	17,4	<b>6,4</b>		<b>Storage Voltage (V)</b>	278,8	260,2	271,6	18,5	<b>6,8</b>		
<b>FC Current (A)</b>	124,3	99,5	<b>111,3</b>	<b>24,8</b>	<b>22,3</b>		<b>FC Current (A)</b>	126,0	101,8	<b>113,7</b>	<b>24,2</b>	<b>21,3</b>		
							<b>Storage Voltage (V)</b>	39,3	36,1	38,2	3,2	<b>8,4</b>	Architecture 3 : Direct Hybridization	
							<b>FC Current (A)</b>	152,7	98,5	<b>116,0</b>	<b>54,2</b>	<b>46,7</b>		

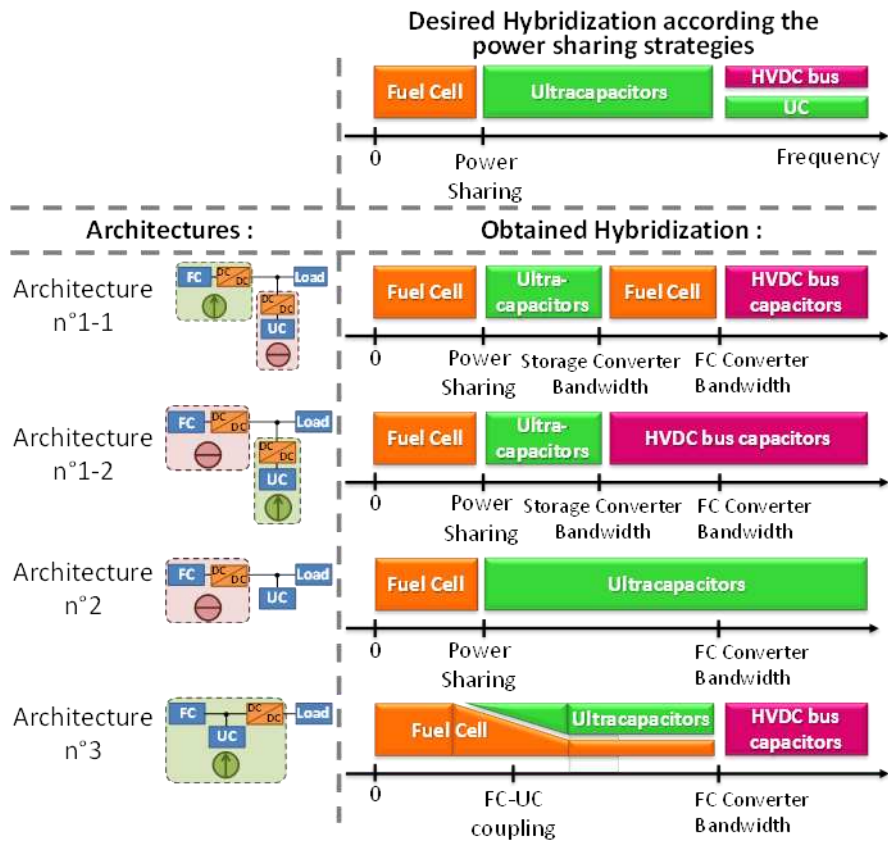
a) Récapitulatif des essais sur émulateur

b) Récapitulatif des essais avec le stack

**Tableau V.7 :** Récapitulatif des mesures concernant le PAC, le stockage et le bus HVDC.

Ce qui se dégage de ce tableau est que l'architecture n°2 présente un courant plus faible de 5,4% par rapport à l'architecture n°1. En faisant l'économie d'un convertisseur on supprime également ses pertes. On ne peut pas conclure sur l'architecture 3 car elle n'a pas de convertisseur dans ces essais (les pertes liées ont été estimées à 10%). L'écart sur les valeurs moyennes des courants PAC observés pour les deux stratégies de l'architecture n°1 est dû à l'écart sur la tension de bus. En effet dans un cas le bus est contrôlé par le CVS-PAC et dans l'autre par le CVS-STO, or les capteurs internes aux convertisseurs possèdent de légers offsets. La charge prélève du courant donc une puissance légèrement différente si la tension est différente. La tension de bus de l'architecture n°2 est homogène à celle de l'architecture n°1-1 puisque c'est le même capteur qui est employé (celui du CVS-PAC).

Enfin on peut expliquer la différence entre les écarts sur la tension de bus et sur le courant de PAC par la **Figure V.58** qui est propre à notre montage. En effet la majorité des conclusions sur les partages des courants dépend en grande partie des convertisseurs utilisés, entre autres de leur mode de pilotage et de leurs bandes passantes.



**Figure V.58 :** Schématisation de la prise en charge des fréquences suivant les architectures.

Lorsque la tension de bus est régulée (pour toutes les architectures sauf la n°2), toute la gamme de fréquence qui ne peut pas être prise en charge par le convertisseur qui régule ce bus sera prise en charge par les capacités de bus. Lorsqu'une capacité fournit du courant, sa tension chute, or les dynamique des convertisseurs régulant le bus ne sont pas similaires c'est pourquoi les écarts sur la tension de bus ne sont pas identiques. Il en est de même lorsque les supercondensateurs sont connectés au bus, sauf qu'étant donné leur capacité très élevée, à courant identique la tension chute beaucoup moins, on peut donc se permettre de leur laisser une plus grande part des fréquences à prendre en charge.

Le fait que le CVS-PAC est plus performant dynamiquement que le convertisseur de stockage CVS-STO joue un grand rôle dans l'importance des variations du courant de PAC de l'architecture n°1-1. La partie non prise en charge par le stockage est due au décalage temporel de la consigne par rapport au courant mesuré, à la différence d'amplitude entre le courant de charge et celui compensé et la restriction sur la vitesse de ces compensations par la bande passante. Cette partie sera prise en charge par la PAC si la bande passante du convertisseur PAC et sa boucle de régulation de tension le permettent.

On constate que, dans ces essais, seule l'architecture n°2 nous donne l'hybridation requise par le pilotage (l'architecture n°3 ne possédant pas de pilotage spécifique).

La différence sur la variation du courant de PAC entre l'architecture n°1-2 et l'architecture n°2 est due à un pilotage difficile du courant de sortie de ce convertisseur : des améliorations dans ce pilotage devraient permettre de supprimer cet écart.

Enfin, l'architecture n°3 ne permettra jamais une hybridation idéale, c'est à dire sans aucune composante haute fréquence à travers la PAC.

En définitive, cette analyse devrait permettre d'aider à la spécification du cahier des charges de convertisseurs pour celui qui souhaite mettre en place une hybridation avec des architectures et des stratégies similaires.

## **5.5 Conclusion**

L'objectif principal de ce projet, qui était la réalisation d'essais significatifs sur les architectures présentées dans l'étude [GAR-07], a été atteint. Les conclusions qui ont été tirées sont, pour certaines, propres au matériel utilisé et pourraient être différentes avec d'autres matériels. On peut tout de même relever l'importance du mode de pilotage des convertisseurs, notamment la difficulté à piloter le courant côté haute tension. La bande passante des différents convertisseurs peut avoir une influence sur les partages des courants.

Plusieurs intérêts se dégagent de l'architecture n°2 : outre le gain en masse et en consommation par rapport aux autres architectures (gain réalisé principalement par l'économie d'un convertisseur et d'une partie de la puissance à faire transiter par l'électronique de puissance), elle bénéficie d'un pilotage relativement plus simple que celui des architectures n°1 (l'architecture possédant le pilotage le plus simple étant la n°3). Les principaux défauts sont l'utilisation de stockage à tension élevée (nécessité d'un grand nombre d'éléments en série) et la variation indispensable de la tension de bus image de l'état de charge du stockage.

La réalisation d'essais avec un émulateur possède un intérêt certain sur le développement en termes de coût (de combustible et de matériel) et offre la possibilité d'essais plus variés puisque l'état de santé de l'émulateur n'est pas mis en jeu. La pertinence de l'utilisation d'un émulateur a été démontrée par la similitude avec les essais sur stack réel, excepté dans le cas d'une hybridation directe dont le comportement dépend tout particulièrement des caractéristiques naturelles des organes hybridés.

Le passage de la simulation à l'expérimentation permet d'abord de confirmer des résultats théoriques mais aussi de déceler d'éventuels phénomènes qui n'ont pas pu être mis en évidence lors des simulations (interférences entre les convertisseurs, montée en tension des éléments, connexion entre eux, immunité au bruit, résonances, etc.). Par la suite ces résultats vont permettre d'enrichir la modélisation des éléments (convertisseurs, câblage, alimentation, PAC, SC, cœur électrique, etc.) afin de mieux prédire le comportement observé. Et espérer tendre vers une similitude entre la simulation et le cas réel.

Les essais effectués dans le cadre du projet ISS et leur mise en place ont représentés un peu moins de la moitié du temps investi dans ces travaux (environ 15 mois). Ces travaux sont antérieurs à ceux présentés dans les chapitres précédents, ainsi les mesures effectuées sont également différentes (pas d'acquisition plus longs, etc.) et n'ont pas permis de réaliser de véritables ponts entre les résultats expérimentaux avec les autres chapitres. De plus, la solution d'hybridation directe proposée dans le Chapitre III (symétrie électrique, suppression de systèmes d'équilibrage actifs par des fils d'interconnexion, suppression des systèmes de

précharge des SC) n'a pas pu être appliquée dans le temps imparti. Une grande partie de ce temps a été consacrée à la construction du banc d'essai. Au début de ces travaux, le cœur électrique et le superviseur existaient déjà, mais le convertisseur de stockage a été réceptionné, la spécification du cahier des charges du CVS-PAC a commencé. La mise en route d'un convertisseur s'accompagne d'essais de caractérisation pour effectuer la recette, d'une intégration physique dans le banc mais aussi logicielle pour permettre la communication avec le superviseur (et le câblage qui accompagne cette communication).

Notons que, suite à l'aménagement de nouveaux locaux au laboratoire, le banc a déménagé deux fois impliquant d'importants travaux de connectique. Le résultat final présenté dans ce chapitre ne représente en définitive qu'une petite partie du temps investi dans ce projet, la majeure partie étant consacrée aux développements pratiques. Une grande rigueur est exigée pour mettre en place ce type d'essai : le moindre bruit de mesure ou décalage sur un capteur peut avoir une influence importante sur les résultats, ainsi que nous l'avons illustré. Il y a des améliorations possibles, notamment pour traiter la haute fréquence parfois présente sur le courant fourni par la PAC. Des améliorations sont également possibles sur le banc PAC sur la gestion fluïdique.

Un tel banc offre de nombreuses possibilités d'essais sur les architectures, les stratégies, les sources, les types de stockage, les profils de charge, les séquences (démarrage, fonctionnement, arrêt). Par exemple, les résultats montrent des formes de courants relativement similaires entre les architectures dont les ondulations sont relatives au profil de mission et à la boucle de recharge du stockage. Il serait intéressant de « casser » ces fréquences d'ondulations par exemple en segmentant le profil en un certain nombre de parties, le superviseur venant choisir aléatoirement des sections de ce profil. La valeur moyenne du profil serait conservée si toutes les sections sont choisies dans la durée du profil et les fréquences seraient « cassées » si leur ordre d'apparition était aléatoire. Cette modification n'a pas pu être effectuée dans le temps imparti et fait partie des objectifs proches à mettre en œuvre sur le banc d'essai.

Plusieurs domaines comme l'automobile ou même le stationnaire peuvent être concernés par ce type d'essais. Compte tenu de la part importante que possède le domaine aéronautique sur la région Toulousaine, ces essais ont été présentés dans ce contexte mais l'analyse et les conclusions peuvent être exportées aux autres domaines.

## **Conclusion générale**

Cette thèse s'est inscrite dans la lignée des travaux sur les systèmes hybrides à piles à combustible menés au laboratoire depuis une dizaine d'années. Les plus récents ont été menés dans le cadre du projet européen CELINA qui visait à évaluer les potentialités des piles à combustible pour les applications aéronautiques. Une des applications particulièrement investiguées dans ce projet a été le groupe de secours qui intervient en cas de défaillances des moteurs principaux ou de la génération électrique. Plus exactement, il s'agissait d'évaluer le remplacement de l'actuelle éolienne de secours par une pile à combustible hybridée par des supercondensateurs. Les supercondensateurs avaient pour rôle d'éviter le surdimensionnement de la pile à combustible tout en la protégeant contre les variations rapides de charge occasionnées par les gouvernes électriques de l'avion. A l'issue de ces travaux [GAR-07], trois architectures électriques avaient été mises en avant, mais ces travaux restaient théoriques. Une part de la présente thèse a ainsi consisté à investiguer expérimentalement ces architectures.

Parmi les solutions retenues figurait une architecture électrique particulièrement originale : l'hybridation directe (sans aucun convertisseur statique) de la pile à combustible avec des supercondensateurs. Il s'agissait ici d'interconnecter directement un stack pile à combustible avec un pack de supercondensateurs, chacun étant autonome dans son fonctionnement bien qu'électriquement fortement liés. Si cette solution méritait d'être évaluée expérimentalement, l'idée était d'aller plus loin dans le concept d'hybridation directe. Pour cela, il fallait accepter de « briser » l'intégrité du pack de supercondensateurs constitué classiquement par un assemblage série de supercondensateurs élémentaires (parfois déjà regroupés en modules). Rappelons que cette mise en série de supercondensateurs nécessite un système d'équilibrage de par la disparité entre les différents éléments.

Ainsi, l'idée de départ a été de partir de la brique de base la plus élémentaire possible : le couplage direct d'un supercondensateur élémentaire avec une cellule pile à combustible. A priori, cela permet d'éliminer le dispositif d'équilibrage des supercondensateurs puisque la cellule pile à combustible est une source de tension qui imposera, en régime statique, la tension au supercondensateur. A l'opposé, en régime dynamique, c'est le supercondensateur qui imposera la dynamique à l'ensemble hybridé sous réserve bien sûr que sa capacité soit adaptée.

Ensuite, il s'agit d'exploiter la modularité de cette brique de base pour construire des empilements série permettant la montée en tension. Afin d'exploiter au mieux énergétiquement la capacité énergétique d'un supercondensateur, une variante est d'associer un supercondensateur élémentaire avec deux cellules piles à combustible. Dans cette variante, le régime statique du supercondensateur sera imposé par la somme des tensions des cellules pile à combustible en série.

Pour appliquer ce principe d'hybridation « au plus près », une première idée, simple au premier abord, aurait pu être de partir d'un stack pile à combustible et de connecter un supercondensateur en parallèle de chaque cellule du stack, puis d'étudier les propriétés d'un tel assemblage. Cela ne nous a pas semblé la meilleure approche au regard de notre très faible connaissance initiale du fonctionnement d'une telle association. Un stack pile à combustible est un objet très complexe et trop d'étapes aurait été sautées.

A l'opposé, nous avons préféré partir des deux variantes de la brique élémentaire (1PAC-1SC ; 2PAC-1SC) pour tendre progressivement vers l'émulation d'un stack en associant plusieurs briques élémentaires en série électriquement (en parallèle fluidiquement pour les

cellules pile à combustible). Comme le lecteur aura pu s'en rendre compte, cela a bien complexifié les expérimentations.

Au regard de la complexité pressentie (cela s'est largement confirmé par la suite !) de cette hybridation directe cellule par cellule, nous avons décidé d'en investiguer les propriétés par l'expérimentation. Rechercher à simuler une telle association, dès le début, nous semblait prématuré à l'analyse de l'état de l'art (y compris interne) des modèles existants : par exemple comment simuler une mise en gaz d'une pile à combustible qui, plus est, hybridée ? Cette thèse a donc été essentiellement portée par l'expérimentation, même si une approche par simulation a été menée au cours de la dernière année en supposant les cellules piles à combustible sous gaz actifs. Pour autant, cela n'a pas signifié que des explications théoriques n'ont pas été recherchées systématiquement face aux observations expérimentales : bien au contraire !

Comme rappelé au début de cette conclusion, la présente thèse hérite des résultats de précédents travaux menés dans un contexte d'applications aéronautiques. Une partie de cette thèse s'est d'ailleurs poursuivie dans ce contexte. C'est pour cette raison que nous avons proposé, dans le Chapitre I, un état de l'art sur les systèmes hybrides à base de piles à combustible dans un contexte aéronautique. Nous avons pu constater que les développements ont vraiment pris leur envol au cours de la dernière décennie, notamment chez les deux constructeurs aéronautiques AIRBUS et BOEING. Leur intégration passera très certainement par une valorisation de tous les produits générés par une pile à combustible : l'électricité, la chaleur, l'eau, voire l'air appauvri en oxygène. Les densités de puissance massique et volumique ont certes encore à progresser, mais cela est en très bonne voie : elles sont déjà là concernant le cœur même, mais il reste des efforts à mener pour l'intégration des auxiliaires et surtout du stockage de l'hydrogène (voire de l'oxygène dans l'application de secours). Les potentialités existent donc et sont fortes justifiant l'intensification de ces développements.

Pour autant, il nous semble que beaucoup de chemin reste à parcourir avant que les piles à combustible participent quotidiennement à des vols commerciaux. Si la nécessité de déployer des infrastructures pour l'approvisionnement en hydrogène sur les aéroports peut constituer un frein important, les problématiques de fiabilité et de durabilité des piles à combustible demeurent.

En ce sens, la présente thèse a exploré une solution originale, l'hybridation directe cellule par cellule, qui vise à simplifier les systèmes pile à combustible tout en les rendant plus robustes. Cette solution a déjà fait l'objet d'investigations poussées dans le domaine automobile comme le prouvent essentiellement les brevets déposés par la société Nissan en 2005. Pour être honnêtes, nous ne les avons pas détectés jusqu'au moment où nous avons essayé de breveter certains concepts de cette thèse. Avec le recul, nous restons assez stupéfaits de la maturité de ces brevets déposés par Nissan dont nous sommes seulement capables de mesurer toute la finesse et toute la pertinence à l'issue de la présente thèse.

Si cette thèse s'est inscrite dans un contexte d'applications aéronautiques, les études effectuées n'en demeurent pas moins génériques à notre sens.



Dès le début de nos travaux, nous avons eu le souci de réaliser cette hybridation directe cellule par cellule le plus simplement possible et avons orienté toutes nos investigations dans ce sens. Si nous ne doutions pas du fonctionnement de cette hybridation directe une fois « lancée » comme l'avaient prouvé certains essais à petite échelle menés dans [GAR-07], se posaient les questions de son démarrage et de son arrêt. Comment précharger le supercondensateur sans rajouter de dispositif de précharge ? De la même manière, comment décharger ce supercondensateur sans dispositif additionnel ? Des questionnements portaient également sur une situation intermédiaire : comment se comportait une telle association que l'on arrête sous gaz ? Y-avait-il un phénomène d'autodécharge qui se produisait, sachant qu'un supercondensateur peut rester chargé pendant de nombreux jours ? Beaucoup de questionnements auxquels nous avons essayé d'apporter des éléments de réponse par des travaux de « débroussaillage » que nous avons relatés dans le chapitre II.

Au moment de nous lancer dans ces premiers travaux, nous avons pris conscience que finalement la littérature n'était pas très dense sur des questionnements similaires pour une pile à combustible seule : comment mettre en gaz une pile à combustible qui, plus est, alimentée en gaz purs ? Comment se comporte une pile à combustible remplie de gaz actifs à l'arrêt ? Subit-elle une autodécharge ?... A chaque fois que possible, nous avons donc mené des expérimentations pile à combustible seule pour au moins disposer d'éléments de comparaison face à son comportement au sein d'une hybridation avec un supercondensateur.

Nous avons d'abord fait un état des lieux des phénomènes parasites, habituellement négligés en fonctionnement normal d'une pile à combustible, qui nous semblaient susceptibles de jouer un rôle (qui restait à définir) dans une hybridation directe cellule par cellule. Nous avons retenu au final le crossover des gaz et des électrons à travers la membrane, la réaction d'oxydation du platine et celle du carbone, sans oublier la réaction d'oxydation de l'eau. Nous n'excluons pas d'être passés à côté d'autres phénomènes parasites...

Des essais très originaux d'autodécharge d'une pile à combustible seule ou hybridée ont été menés. Ils ont été réalisés sur deux technologies de pile à combustible : une pile à respiration  $H_2$ /air et une pile  $H_2/O_2$ . Ils nous ont permis d'apprendre beaucoup et ont clairement mis en évidence le rôle fondamental joué par les phénomènes de crossover des gaz à travers la membrane. Nous avons tenté de proposer des mécanismes explicitant les autodécharges observées expérimentalement. Cet exercice s'est avéré très délicat, mais très formateur. Des capteurs complémentaires de  $CO_2$  (produit résiduel de l'oxydation du carbone des électrodes) auraient pu nous aider à confirmer certains mécanismes. Nous recommandons fortement de les rajouter pour les futurs travaux.

Pour répondre à la problématique de la précharge du supercondensateur, l'idée initialement posée au début de nos travaux était d'utiliser une mise en gaz progressive de la pile à combustible afin d'installer progressivement sa tension et donc de limiter le courant d'appel d'un supercondensateur déchargé (assimilable en première approche à un court-circuit franc). D'abord testée de manière prometteuse sur une cellule pile à respiration de faible puissance, cette idée initiale s'est avérée pertinente, même si plus complexe à mettre en œuvre qu'imaginée. Dans le cas d'une cellule pile à combustible  $H_2/O_2$ , il a été montré qu'il était possible de précharger le supercondensateur, a priori indifféremment, par la limitation du débit d'hydrogène ou par celle du débit d'oxygène.

Concernant l'arrêt forcé d'une hybridation directe élémentaire (c'est-à-dire sans laisser l'autodécharge opérer seule), nous avons constaté, dans le cas d'une cellule pile à combustible  $H_2/O_2$ , qu'un inertage de l'anode avec de l'azote conduisait à la décharge du supercondensateur la plus rapide, mais les durées de décharges restent très grandes (plusieurs centaines de minutes). Ceci permet d'ailleurs de confirmer que ce sont bien les phénomènes parasites qui sont responsables de l'autodécharge (sans inertage) d'une telle association.

Par précaution, au regard de notre méconnaissance actuelle de l'impact réel sur la durée de vie de la pile à combustible des différentes voies pour arrêter une hybridation directe, nous conseillerions de d'abord inerte par de l'azote les deux compartiments anodique et cathodique, puis de décharger le supercondensateur dans une résistance de décharge. Bien sûr cela ne va pas dans le sens de ne pas rajouter de dispositif additionnel ; cela resterait, malgré tout, simple et pourrait limiter a priori fortement la dégradation du carbone des électrodes pendant les phases d'arrêt.

Les études préliminaires, exposées au chapitre II, ont essentiellement porté sur l'étude d'une hybridation directe cellule par cellule hors fonctionnement normal, c'est-à-dire non connectée à une charge. D'une part, il s'agissait d'aller vers le fonctionnement en charge d'une telle association, d'autre part, il s'agissait d'aller progressivement vers l'émulation d'un stack en associant plusieurs briques élémentaires en série. Ce fut l'objet du chapitre III. Les étapes suivies ont été 1PAC-1SC, 2PAC-2SC, 4PAC-(2SC ou 4SC).

Afin de caractériser ces différentes associations, nous leur avons imposé des excitations fort signal, à savoir des créneaux de courant et des balayages en courant sinusoïdaux de larges amplitudes (de 0 à la densité de courant maximale  $2 \text{ A.cm}^{-2}$ ) à différentes fréquences (de qq mHz à qq kHz). Les créneaux de courant à basse fréquence (typiquement 10mHz) présentent l'intérêt de solliciter toutes les constantes de temps : des phénomènes rapides (succession d'échelons de courant montants et descendants) aux phénomènes lents (installation du régime quasi-statique de la pile à combustible notamment). A contrario, leur interprétation n'est pas simple. Les balayages sinusoïdaux à fréquence donnée vont dans le bon sens de ce point de vue. Malgré tout, toutes ces sollicitations restent fort signal et existent donc toutes les non-linéarités du système.

Des réponses aux créneaux de courant à basse fréquence, nous avons tiré que l'hybridation directe ne se comportait pas exactement comme attendu pour un échelon de courant.

Il était en effet initialement attendu un fonctionnement en deux séquences :

1. A l'instant même de l'échelon, partage des courants entre la cellule pile à combustible et le supercondensateur selon le rapport des résistances électriques des composants
2. Partant de ces conditions initiales de courant, charge (ou décharge) du supercondensateur de type premier ordre  $\mathcal{R}.C_{UC}$  sauf que la résistance est fortement non linéaire étant régie principalement par la courbe statique de la pile à combustible (en supposant que la valeur de la capacité  $C_{UC}$  est élevée).

Dans nos expérimentations, deux différences sont apparues :

- A l'instant de l'échelon, le partage initial du courant n'est pas effectué selon le rapport des résistances électriques des composants. Cela est en fait plus complexe que cela, les inductances série jouant un rôle. L'analyse théorique (menée au Chapitre IV) tendrait à dire que la répartition des courants ne serait uniquement fonction que du rapport des inductances série. Si ces inductances sont identiques (câblage parfaitement symétrique), alors il y a équi-partage du courant au moment de l'échelon. Nos expérimentations ont eu tendance à valider cette approche théorique, mais pas fermement. Cela pourrait s'expliquer par le fait que les échelons réalisés n'étaient pas francs au regard de la bande passante limitée de la charge active utilisée. La réponse exacte pourrait être le rapport des impédances à la pseudo-fréquence correspondante à la durée effective de l'échelon qui est, en réalité, une rampe de courant de très forte pente.
- Juste après l'échelon de courant, un phénomène avec une constante de temps très petite (qq ms dans notre cas) se produit : le condensateur équivalent de double couche de pile à combustible se décharge pour un échelon montant (se charge pour un échelon descendant) jusqu'au point de fonctionnement fixé par le saut de tension imposé à la pile à combustible par la présence de la résistance série de la branche du supercondensateur. C'est ce que nous avons appelé le « saut de point de fonctionnement » tout au long du chapitre III. Pendant cette phase, la capacité  $C_{UCint}$  du supercondensateur  $C_{UC}$  étant très grande devant celle du condensateur de double couche  $C_{dl}$ ,  $C_{UCint}$  peut être vue comme une source de tension constante. Le point de fonctionnement vers lequel converge la pile à combustible constitue alors les conditions initiales de la deuxième séquence attendue à savoir le comportement dominant de l'hybridation directe de type  $\mathcal{R}.C_{UC}$ .

La subtilité du mécanisme du « saut de point de fonctionnement » a été assez longue à formuler et constitue un apport théorique de ces travaux. La courbe d'évolution de ce « saut de point de fonctionnement » en fonction de l'échelon de courant réalisé, préalablement établie théoriquement, a été complètement validée expérimentalement.

Les propriétés fréquentielles d'une hybridation directe cellule par cellule ont été mises en évidence grâce aux balayages sinusoïdaux de fortes amplitudes à différentes fréquences qui peuvent être vus comme des raies d'une décomposition harmonique d'un profil de mission donné (sauf qu'ici toutes les amplitudes sont identiques). Il est logiquement apparu que si les fréquences sont trop basses (<40 mHz dans notre cas) au regard de la capacité du supercondensateur, l'hybridation n'a pas de sens. Pour des basses fréquences (entre 40 mHz et 200 mHz dans notre cas), il a été mis en évidence que l'utilisation de la capacité énergétique était optimale puisque sa tension peut « respirer ». A moyenne fréquence (entre 200 mHz et 500 Hz dans notre cas), l'ensemble hybridé se comporte comme une source de tension avec une résistance série tendant vers celle du supercondensateur. Enfin, en allant vers les très hautes fréquences (>500 Hz dans notre cas), l'impédance interne de cette source de tension évolue de par l'influence des inductances de câblage qui se font sentir.

Dès que l'on associe en série au moins deux briques élémentaires, apparaissent des connections communes à deux briques adjacentes que nous avons appelées « points milieux », mais que l'on aurait pu également nommer « liaisons d'équilibrage ». Effectivement, si tous les éléments du circuit, y compris le câblage électrique, étaient parfaitement identiques pour chaque famille d'éléments, alors ces liaisons pourraient être supprimées (on se retrouverait alors avec un stack pile à combustible et un pack de supercondensateurs connectés uniquement à leurs bornes terminales). La réalité étant tout autre, ces liaisons seront nécessaires pour compenser tous les déséquilibres existants au sein d'une telle association. Pour autant, nous pensons que ces liaisons peuvent être de dimensionnement en courant assez réduit si les disparités entre les composants de même famille sont faibles et si la symétrie du câblage électrique est soignée. Nos montages électriques et fluidiques n'ont cessé d'être améliorés au fur et à mesure des expérimentations pour aller dans ce sens.

En régime statique, à courant de charge constant, les courants des points milieux seront nuls. En régime transitoire, ces courants seront en revanche non nuls. Les valeurs maximales de ces courants seront fonction des caractéristiques de tous les composants du montage : elles seront d'autant plus élevées que les inhomogénéités seront importantes. Dans notre cas, les disparités étant assez faibles, les pics de courant étaient de valeurs relativement faibles.

Dans le cas d'un courant de charge périodique (créneaux de courant, sinusoïdes de courant), la valeur moyenne de ces courants de points milieux doit être nulle à condition que les cellules piles à combustible aient un comportement quasi-statique reproductible à l'échelle de la période du courant de charge. C'est ce que nous avons constaté lors de nos essais.

Au chapitre II, nous avons validé que le courant d'appel lors de la précharge du supercondensateur pouvait être limité par limitation du débit d'un des gaz actifs partant d'une pile à combustible inertée à l'électrode concernée. Dans ce chapitre III, nous avons confirmé à plusieurs reprises que cette solution était efficace, notamment dans le cas de 4PAC-(2SC ou 4SC) par une limitation des flux cathodiques d'oxygène.

L'arrêt ou le démarrage d'une association de plusieurs briques élémentaires en série ont été complexes à appréhender quant aux comportements observés expérimentalement. Au cours de tous nos essais de précharge des supercondensateurs (en limitant les flux d'oxygène) et des quelques essais de décharge (en inertant une des deux électrodes ou bien les deux), nous avons pu mettre en évidence un certain nombre de risques qui pouvaient exister pour les piles à combustible dans une telle association série de plusieurs briques élémentaires. La cause identifiée est que les cellules pile à combustible en série électriquement ne peuvent être alimentées en oxygène (partant des cathodes inertées) ou inertées (partant des cathodes sous oxygène) toutes simultanément malgré une alimentation fluide en parallèle particulièrement soignée. L'ensemble des risques identifiés sont résumés dans le tableau suivant qui ne prétend pas être exhaustif et qui méritera sans doute d'être repris et complété lors de travaux futurs :

	Risques avec la brique 1 PAC par SC	Risques avec la brique 2 PAC par SC
<b>DEMARRAGE</b>  Précharge des SC via une montée en gaz lente des PAC	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Circulation de courants potentiellement importants dans les points milieux.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Circulation de courants potentiellement importants dans les points milieux.</li> <li>• Dans un couple de PAC, les cellules s'imposent les tensions l'une à l'autre via le SC (effets chaotiques).</li> <li>• Apparition de tensions négatives sur les PAC.</li> <li>• Des courants circulent dans des PAC inertées.</li> </ul>
<b>ARRET (phase 1)</b>  Inertage complet* des PAC (*recommandé à ce jour)		<ul style="list-style-type: none"> <li>• Dans un couple de PAC, les cellules s'imposent les tensions l'une à l'autre via le SC (effets chaotiques).</li> <li>• Apparition de tensions positives élevées (supérieures à la tension à vide initiale) sur une PAC.</li> </ul>
<b>ARRET (phase 2)</b>  Cas N°1 : Décharge forcée des SC dans une résistance commune	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Convergence pour certaines cellules vers des tensions négatives sur les PAC (inertées) en cas de déséquilibre initial des tensions à vide.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Convergence pour certaines cellules vers des tensions négatives sur les PAC (inertées) en cas de déséquilibre initial des tensions à vide.</li> </ul>
<b>ARRET (phase 2)</b>  Cas N°2 : Décharge forcée des SC avec une résistance par SC		

Les chapitres II et III ont porté sur une analyse par l'expérimentation de l'hybridation directe d'une ou plusieurs cellules PAC, avec un ou plusieurs SC. Des explications théoriques ont été apportées dès que cela était possible. Malgré tout, il nous est apparu nécessaire de mettre en place une simulation de l'hybridation directe afin de confirmer certains des éléments de théorie et de pouvoir pénétrer artificiellement au sein des différentes couches de la PAC. Ce fut l'objet du chapitre IV.

Il s'agissait de saisir cette occasion pour mettre à l'épreuve le modèle dynamique fort signal, et la paramétrisation associée, développés au laboratoire depuis plusieurs années. Si des pistes d'amélioration ont été mises en évidence pour la méthode de paramétrisation, celle-ci s'est avérée une nouvelle fois très performante au regard du comportement très satisfaisant du modèle, comme dans le cas d'autres travaux récemment menés au laboratoire.

Concernant les supercondensateurs, l'expérience du laboratoire étant beaucoup plus limitée, nous nous sommes appuyés sur les modèles de la littérature. Nous avons retenu un modèle à 3 branches dont seul un élément est variable avec la tension. Bien que nous ne sommes pas très satisfaits des procédés de caractérisation et de paramétrisation déployés, le modèle s'est plutôt bien comporté. Malgré tout, les procédés utilisés mériteraient d'être repris en profondeur.

Quant à elle, la modélisation des câbles par de simples circuits R-L série est apparue satisfaisante.

Les simulations réalisées se sont en fait concentrées sur le cas d'une hybridation directe de 2PAC-2SC soumise à des excitations fort signal de type créneaux de courant. Toutes les simulations ont été réalisées avec le logiciel PSIM. Globalement, les résultats de simulations se

sont avérés plutôt très satisfaisants, en particulier concernant le partage prédit des courants très proche de la mesure. La fiabilité démontrée de la simulation a permis de confirmer toute l'analyse proposée (par une autre voie), et exposée au chapitre III, pour le comportement face à un échelon de courant d'une hybridation directe. Cette fiabilité ouvre également de nombreuses perspectives d'études par simulation sur lesquelles nous reviendrons plus loin.

Les travaux présentés dans le chapitre V de cette thèse ont constitué une partie indépendante de la précédente, même si l'ensemble de ces travaux visait à nourrir la thématique générale de l'hybridation d'une pile à combustible avec des supercondensateurs. Ils nous ont beaucoup occupés ! Contrairement aux précédents chapitres, ces travaux se sont replacés au niveau d'un stack pile à combustible et d'un pack de supercondensateurs avec son système d'équilibrage.

Ces études ont consisté, dans le cadre du projet aéronautique français ISS (Innovative Solutions for Systems), à expérimenter trois architectures retenues lors du projet européen CELINA :

1. une architecture où chaque source a son convertisseur statique DC/DC,
2. une architecture où seule la pile à combustible dispose d'un convertisseur statique DC/DC, les supercondensateurs étant directement connectés sur le bus DC haute tension,
3. une architecture où les deux sources sont hybridées directement via un contacteur.

Pour les deux premières architectures, la gestion d'énergie déployée a été la technique du partage fréquentiel qui vise à attribuer les basses fréquences du profil de mission à la pile à combustible, les autres fréquences étant prises en charge par les supercondensateurs. La troisième architecture a l'avantage de ne pas nécessiter de gestion d'énergie (mais fonctionne avec le même principe au premier ordre) puisqu'elle s'autogère, la difficulté étant reportée sur son dimensionnement.

La validation expérimentale de ces architectures électriques à un niveau de puissance significatif (entre 5 et 10kW) a été très bénéfique et a permis de mettre en évidence des phénomènes qui étaient passés inaperçus ou avaient sous-estimés en simulation dans [GAR-07] : pilotage du courant côté haute tension d'un convertisseur statique de type boost, compensations des différentes pertes, régulation de l'état de charge du stockage, démarrage du filtrage fréquentiel, impact de la bande passante des convertisseurs statiques, bruit de mesures... Nous nous sommes finalement souvent retrouvés aux frontières du monde de l'automatique ; ainsi, les solutions que nous avons proposées mériteraient certainement d'être optimisées par des spécialistes.

Suite aux difficultés rencontrées lors de la mise en œuvre de ces expérimentations, de nombreux conseils ont été formulés tout au long de ce chapitre, pour faire bénéficier le lecteur de notre retour d'expérience et surtout au profit de personnes souhaitant réaliser des essais similaires.

Malgré ces difficultés, soulignons que le passage de la simulation à l'expérimentation a permis de confirmer, au premier ordre, l'ensemble des résultats théoriques précédemment obtenus [GAR-07]. Tout le retour d'expérience accumulé va permettre d'enrichir la

modélisation des éléments (convertisseurs, câblage, nœud électrique, etc.) afin de d'accroître la finesse et la précision de la simulation.

En revanche, l'expérimentation par l'émulation d'une pile à combustible s'est avérée très représentative du cas réel pour les architectures avec convertisseurs statiques, sans pour autant masquer des aspects comme ceux précédemment énoncés. Ceci s'explique par la stratégie de gestion énergétique retenue qui, au final, n'impose que des dynamiques lentes à l'émulateur : un modèle statique de la pile à combustible est donc suffisant. Cette émulation s'est avérée très utile puisqu'elle nous a permis d'une part, de développer la partie logicielle aisément, et d'autre part, de tester les limites du système hybride réalisé : ce qui aurait été risqué avec la pile à combustible réelle.

L'objectif d'expérimentation des trois architectures avec des composants réels a finalement été atteint. La pile à combustible ( $H_2/O_2$ ), mise en œuvre lors de ces essais, est la plus puissante jamais testée à ce jour dans les locaux du laboratoire. Elle s'est remarquablement comportée lors de ces essais. Des essais « d'endurance » sur une durée de 4 heures consécutives ont permis la validation de la stabilité de la gestion d'énergie employée.

Concernant l'hybridation directe, nous avons opté pour une précharge des supercondensateurs via une résistance et un jeu de contacteurs afin de limiter les dégradations de la pile à combustible. Aucune tentative de précharge des supercondensateurs via une mise en gaz lente de la pile à combustible n'a été tentée à ce jour. En revanche, l'importance du câblage a une nouvelle fois été mise en évidence. Une fois « lancée », l'hybridation directe s'est remarquablement bien comportée et ne semble pas avoir dégradé la pile à combustible.

Un des objectifs initiaux de cette thèse était de montrer, ou à l'inverse d'invalider, le fait qu'une cellule pile à combustible hybridée par un supercondensateur possédait une durée de vie plus longue qu'une cellule seule soumise à un profil intermittent. En effet, le fait de diminuer les dynamiques de charge occasionnées sur la cellule grâce à l'hybridation devrait permettre de réduire les contraintes qui lui sont imposées et donc favoriser sa durée de vie : moins de stress mécanique des électrodes, moins de temps passé aux basses densités de courant et donc moins de corrosion du carbone, etc.

Cela n'a finalement pas été possible dans le temps imparti de cette thèse. Cela reste très certainement la perspective majeure à mettre en œuvre pour parachever les travaux menés dans cette thèse afin de déclencher ou non des études complémentaires. Des campagnes de vieillissement sont déjà prochainement programmées.

Une problématique supplémentaire a été formulée au cours de cette thèse concernant les supercondensateurs qui vont se retrouver, dans le cadre de l'hybridation directe cellule par cellule au plus proche, à la même température que la pile à combustible : typiquement 60-70°C. A ce niveau de température, les constructeurs de supercondensateurs annoncent des durées de vie limitées. Le très grand écart de durée de vie actuel entre une pile à combustible et un supercondensateur sera-t-il suffisant pour maintenir l'intérêt d'une telle association ? Ce type de questionnement pourrait amener à investiguer en détails le comportement électrique d'un supercondensateur en fonction de sa température, notamment en termes de modélisation.

Si les essais de durée de vie s'avèrent positifs, beaucoup de perspectives se dessinent :

- Maîtriser le dimensionnement optimal d'une hybridation directe (l'utilisation du plan de Ragone pour obtenir les évolutions temporelles des signaux sans recourir à la simulation, comme cela a été suggéré au chapitre III, pourrait constituer un bon outil qui reste à améliorer).
- En termes de modélisation, beaucoup resterait à faire : prise en compte de l'alimentation des gaz, simulation d'un stack entier hybridé cellule par cellule (pas si simple que de mettre  $n$  monocellules en série), modélisation des mises en gaz/arrêts de la pile à combustible (bien que cet objectif paraisse très complexe et optimiste)...
- Etudes des modes défailants : que se passe-t-il si une cellule pile à combustible se noie ou s'assèche ? L'hybridation directe est-elle bénéfique ou pas dans ces cas-là ?...
- Etude des interactions entre différentes technologies de cellules pile à combustible associées à différentes technologies de supercondensateurs. La technologie de supercondensateurs à électrolyte aqueux pourrait bénéficier d'un taux d'utilisation énergétique du stockage voisin de 75% dans un montage à 1 PAC / SC en vertu d'une tension de service très voisine avec celle de la technologie PAC de type PEM.
- Extension du concept à l'électrolyseur, aux batteries d'accumulateurs...
- Une autre voie pour protéger la pile à combustible contre les variations rapides de courant consiste à augmenter les phénomènes de double couche internes. C'est une autre voie très ambitieuse qui nécessite une collaboration très étroite avec les spécialistes des matériaux.
- ...





# **ANNEXE 1**

## **Modèles d'une PAC**

Cette Annexe présente dans une première partie le modèle dynamique dit « fort signal », ensuite le modèle quasi-statique relatif à la courbe de polarisation. Enfin, les expressions permettant d'exprimer l'impédance du modèle « petit signal » dans le plan de Nyquist (en dissociant partie réelle et partie imaginaire) en fonction des paramètres du modèle seront détaillées.

### A.1 - 1 *Modèle dynamique Fort signal*

Tout d'abord pour appréhender le sujet, il est nécessaire de statuer sur le modèle de PAC que nous utiliserons. En effet, il existe une multitude de modèles décrivant les PAC. Il en existe avec des représentations énergétiques, mathématiques, électriques ou éventuellement sous d'autres formes. Historiquement le laboratoire Laplace travaille avec des modèles équivalents électriques, initiés par [MER-02], ensuite repris et élargis respectivement par [SAI-04], [FON-05], [TUR-08], [RAB-08], [PHL-09], [ZEI-11] et [RAL1-11]. Les modèles se sont affinés au fil des années et n'ont, à ce jour, pas montré suffisamment de limitations conduisant à les abandonner pour d'autres. C'est pourquoi, dans le présent manuscrit, nous utiliserons largement ces modèles qui seront brièvement détaillés dans cette partie. Pour une description plus approfondie, le lecteur est invité à consulter les références citées. Le modèle générique fort signal proposé à la **Figure A1.1** est porté en partie par les **Equation (A1.1)** à **Equation (A1.10)**. Il peut ensuite donner lieu à un modèle électrique dit petit signal, où les chutes de tension ( $\eta_{act}$ ,  $\eta_{diff\ fast}$ ,  $\eta_{diff\ slow}$  et  $\eta_{diff\ H^+}$ ) sont représentées par leurs impédances au point de fonctionnement donné.

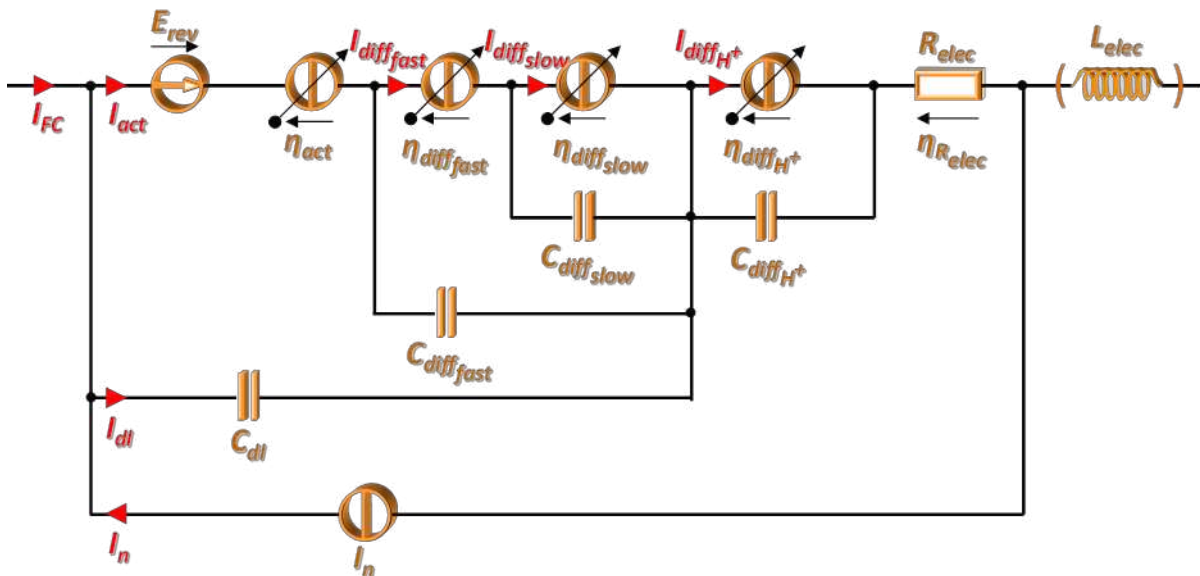


Figure A1.1 : Modèle dynamique fort signal d'une pile à combustible

- La tension théorique à vide de la PAC s'exprime par l'**Equation (A1.1)** issue de la loi de Nernst

$$E_{\text{rev}} = E^0 + \frac{R.T}{2.F} \cdot \ln \left( \frac{\left( \frac{P_{O_2}}{P^0} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \frac{P_{H_2}}{P^0}}{a_{H_2O}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.1)}$$

- Avec, concernant les phénomènes quasi-statiques d'activation :

$$I_{\text{act}} = I_0 \left( e^{\frac{2.\alpha_{\text{FC}}.\eta_{\text{act}}}{R.T}} - e^{-\frac{2.\alpha_{\text{ELYZ}}.\eta_{\text{act}}}{R.T}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.2)}$$

Qui donnera lieu à l'**Equation (A1.3)** en régime permanent et quand l'hypothèse de Tafel ( $I_{\text{act}} \gg I_0$ ) sera vérifiée

$$\eta_{\text{act}} = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \cdot \ln \left( \frac{I + I_n}{I_0} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.3)}$$

- Pour les phénomènes quasi-statiques de diffusion rapide :

$$I_{\text{diff\_fast}} = I_{\text{lim, diff\_fast}} \left( 1 - e^{-\frac{2.\beta_{\text{diff\_fast}}.F.\eta_{\text{diff\_fast}}}{R.T}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.4)}$$

L'**Equation (A1.4)** donnera lieu à l'**Equation (A1.5)** en régime permanent :

$$\eta_{\text{diff\_fast}} = \frac{-R.T}{2.\beta_{\text{diff\_fast}}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I + I_n}{I_{\text{lim, diff\_fast}}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.5)}$$

- Pour les phénomènes quasi-statiques de diffusion lente :

$$I_{\text{diff\_slow}} = I_{\text{lim, diff\_slow}} \left( 1 - e^{-\frac{2.\beta_{\text{diff\_slow}}.F.\eta_{\text{diff\_slow}}}{R.T}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.6)}$$

L'**Equation (A1.6)** donnera lieu à l'**Equation (A1.7)** en régime permanent :

$$\eta_{\text{diff\_slow}} = \frac{-R.T}{2.\beta_{\text{diff\_slow}}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I + I_n}{I_{\text{lim, diff\_slow}}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.7)}$$

- Pour les phénomènes quasi-statiques de diffusion des protons :

$$I_{\text{diff\_H}^+} = I_{\text{lim, diff\_H}^+} \left( 1 - e^{-\frac{2.\beta_{\text{diff\_H}^+}.F.\eta_{\text{diff\_H}^+}}{R.T}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.8)}$$

L'**Equation (A1.8)** donnera lieu à l'**Equation (A1.9)** en régime permanent :

$$\eta_{\text{diff\_H}^+} = \frac{-R.T}{2.\beta_{\text{diff\_H}^+}.F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I + I_n}{I_{\text{lim, diff\_H}^+}} \right) \quad : \quad \text{Equation (A1.9)}$$

- Pour la chute de tension dans la résistance électrique équivalente :

$$\eta_{\text{R\_elec}} = R_{\text{elec}} \cdot (I + I_n) \quad : \quad \text{Equation (A1.10)}$$

La définition des différents éléments constituant ce modèle est proposée au **Tableau (A1.1)**.

<i>Désignation</i>	<i>Définition</i>	<i>Unité</i>
$U_{PAC}$	Tension de la PAC	[V]
$E_{rev}$	Tension théorique à vide de la PAC	[V]
$E^0$	Tension standard du couple redox $O_2/H_2$	[V]
$R$	Constante des gaz parfaits ( $R=8,314 \text{ J.mol}^{-1}.K^{-1}$ )	[J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]
$T$	Température de la PAC	[K]
$F$	Constante de Faraday ( $F=96\ 485 \text{ C.mol}^{-1}$ )	[C.mol <sup>-1</sup> ]
$P_{O_2}$	Pression partielle d'Oxygène	[Bara]
$P_{H_2}$	Pression partielle d'Hydrogène	[Bara]
$P^0$	Pression standard (par convention est égale à 1 bar absolu)	[Bara]
$a_{H_2O}$	Activité de l'eau	Ø
$\eta_{act}$	Chute de tension liée aux phénomènes d'activation	[V]
$\alpha_{FC}$	Coefficient de transfert d'activation en mode PAC	Ø
$\alpha_{ELYZ}$	Coefficient de transfert d'activation en mode électrolyseur	Ø
$I$	Courant débité par la PAC	[A]
$I_n$	Courant parasite interne	[A]
$I_0$	Courant d'activation	[A]
$I_{diff \text{ fast}}$	Pseudo courant instantané des phénomènes de diffusion rapide des gaz	[A]
$\eta_{diff \text{ fast}}$	Chute de tension liée aux phénomènes de diffusion rapide des gaz	[V]
$\beta_{diff \text{ fast}}$	Coefficient de diffusion rapide des gaz	Ø
$I_{lim, diff \text{ fast}}$	Courant équivalent limite de diffusion rapide des gaz	[A]
$C_{diff \text{ fast}}$	Condensateur équivalent de diffusion rapide des gaz	[F]
$I_{diff \text{ slow}}$	Pseudo courant instantané des phénomènes de diffusion lente des gaz	[A]
$\eta_{diff \text{ slow}}$	Chute de tension liée aux phénomènes de diffusion lente des gaz	[V]
$\beta_{diff \text{ slow}}$	Coefficient de diffusion lente des gaz	Ø
$I_{lim, diff \text{ slow}}$	Courant équivalent limite de diffusion lente des gaz	[A]
$C_{diff \text{ slow}}$	Condensateur équivalent de diffusion lente des gaz	[F]
$I_{diff H^+}$	Pseudo courant instantané des phénomènes de diffusion des protons	[A]
$\eta_{diff H^+}$	Chute de tension liée aux phénomènes de diffusion des protons	[V]
$\beta_{diff H^+}$	Coefficient de diffusion des protons	Ø
$I_{lim, diff H^+}$	Courant équivalent limite de diffusion des protons	[A]
$C_{diff H^+}$	Condensateur équivalent de diffusion des protons	[F]
$R_{elec}$	Résistance électrique équivalente (membrane, contacts électriques, etc.)	[Ω]
$\eta_{Relec}$	Chute de tension liée aux pertes ohmiques	[V]
$L_{elec}$	Inductance de la PAC	[H]
$C_{dl}$	Condensateur de double couche	[F]

**Tableau (A1.1)** : Définition des éléments du modèle proposé

## A.1 - 2 Modèle quasi statique $V(I)$

Par définition, en statique on peut négliger tous les phénomènes dynamiques, c'est-à-dire les phénomènes modélisés par des condensateurs ou des inductances.

La courbe de polarisation qui découle du modèle fort signal présenté correspond à l'équation suivante :

$$U_{PAC} = E_{rev} - \eta_{act} - \eta_{diff_{fast}} - \eta_{diff_{slow}} - \eta_{diff_{H^+}} - \eta_{elec} \quad : \quad \text{Equation (A1.11)}$$

A partir de la courbe de polarisation définie par **Equation (A1.11)**, on peut revenir aisément à un modèle quasi-statique plus simple (à une seule couche de diffusion équivalente) donné par l'**Equation (A1.12)**.

$$U_{PAC} = E_{rev} - \eta_{act} - \eta_{diff_{global}} - \eta_{elec} \quad : \quad \text{Equation (A1.12)}$$

Pour cela, il suffit de conserver les paramètres  $\alpha$ ,  $R_{elec}$ ,  $I_n$  et  $I_0$  déterminés précédemment, ce qui permet de définir les chutes de tension  $\eta_{act}$  et  $\eta_{elec}$ . La chute de tension  $\eta_{diff_{global}}$  est donnée par l'**Equation (A1.13)** :

$$\eta_{diff_{global}} = \left| \frac{R.T}{2 \cdot \beta_{diff_{global}} \cdot F} \cdot \ln \left( 1 - \frac{I + I_n}{I_{lim, diff_{global}}} \right) \right| \quad : \quad \text{Equation (A1.13)}$$

Pour assurer la cohérence entre ce modèle statique simplifié et le modèle statique complet décrit au chapitre II, nous imposons l'**Equation (A1.14)** obtenue en linéarisant toutes les pertes par diffusion (hypothèse a priori justifiée dans notre cas) :

$$\frac{1}{I_{lim, diff_{global}} \beta_{diff_{global}}} = \frac{1}{I_{lim, diff_{H^+}} \beta_{diff_{H^+}}} + \frac{1}{I_{lim, diff_{slow}} \beta_{diff_{slow}}} + \frac{1}{I_{lim, diff_{fast}} \beta_{diff_{fast}}} \quad : \quad \text{Equation (A1.14)}$$

Avec  $I_{lim, diff_{global}}$  un courant limite constant et  $\beta_{diff_{global}}$  un coefficient constant de diffusion généralisé.

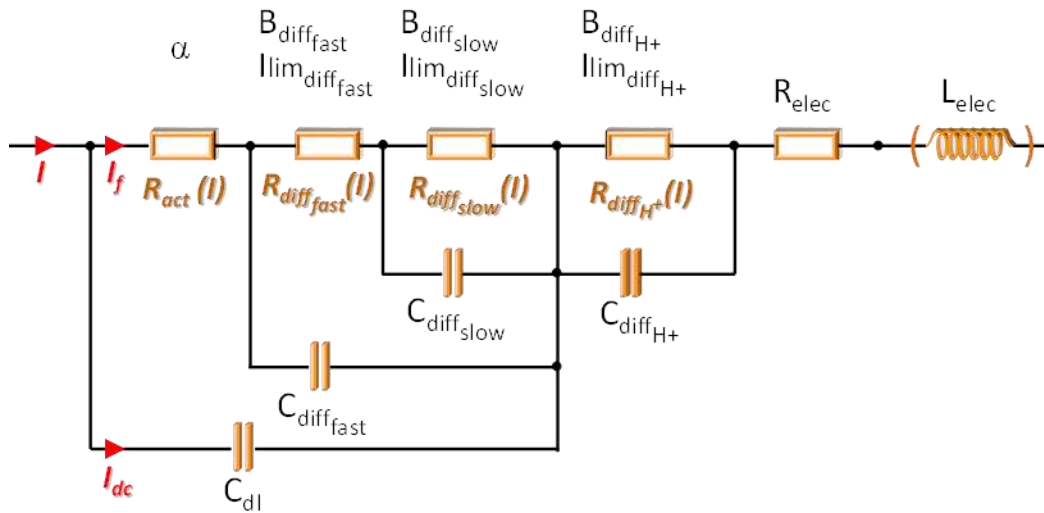
L'avantage de ce modèle quasi-statique par rapport à celui qui est utilisé dans le chapitre V est qu'il permet de dissocier les pertes par diffusion des pertes résistives. En effet, les pertes par diffusion et les pertes résistives ayant un impact similaire si l'on n'atteint pas le coude de diffusion, il est très difficile de les dissocier clairement à partir d'un fitting unique sur la courbe de polarisation. L'inconvénient est qu'il nécessite une caractérisation plus poussée de la cellule.

Dans les équations qui ont été présentées, tous les courants sont exprimés en A, à savoir : pour le courant de PAC, le courant d'activation, le courant parasite interne, et les courants limites de diffusion (respectivement  $I$ ,  $I_0$ ,  $I_n$  et  $I_{lim, diff_{XXX}}$ ), la notation "XXX" doit être remplacée par "fast", "slow" ou "H<sup>+</sup>" suivant la diffusion concernée.

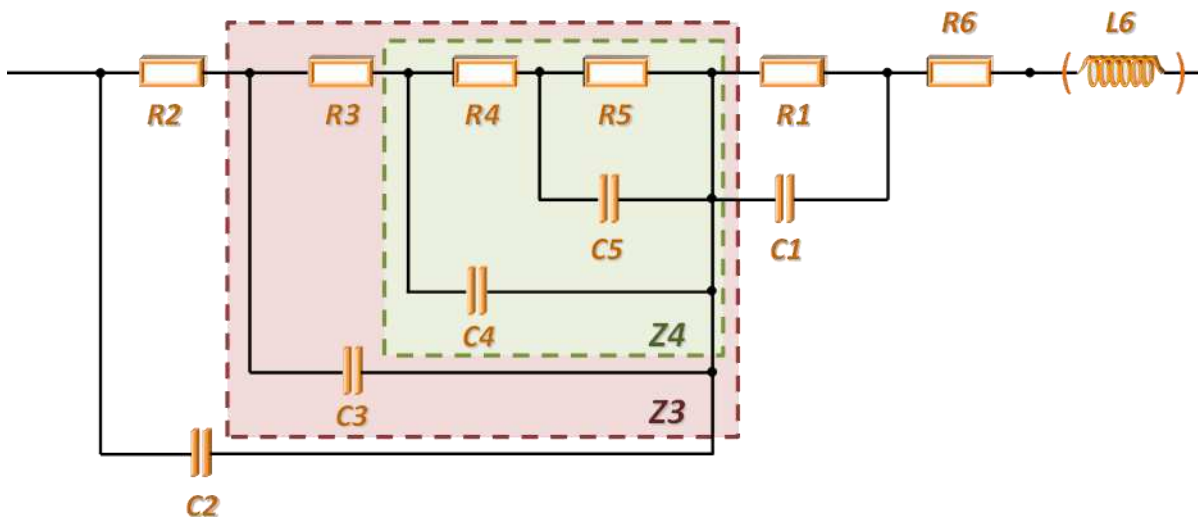
Remarquons qu'il est également possible de les exprimer en densité de courant (A.cm<sup>-2</sup>), comme cela est fait dans le chapitre IV. Cela n'a pas d'influence sur l'expression des différentes chutes de tension, excepté pour les chutes dans la résistance électrique équivalente qui doit, le cas échéant, être exprimée en résistance électrique surfacique notée  $r_{elec}$  et exprimée en  $\Omega.cm^2$  (le produit  $r_{elec} \cdot J$  est bien homogène à des V)

### A.1 - 3 Modèle d'impédance

Pour des raisons de simplicité d'écriture, les notations ont été abrégées (cf. **Figure A1.3**). Ainsi les résistances et les condensateurs faisant partie du modèle petit signal portent des numéros dans cette démonstration. La démonstration de la linéarisation des impédances est démontrée dans [RAL1-11]. Notons que les sources de modèle fort signal disparaissent par dérivation.



**Figure A1.2** : Modèle d'impédance de la PAC utilisé avec la liste des paramètres influant chaque phénomène ainsi linéarisé (notés en noir).



**Figure A1.3** : Schéma du modèle générique avec des notations abrégées.

Ce schéma est représenté en considérant que toutes les puissances non-entières sont égales à 1. Il n'est en effet pas aisé de représenter l'impact des puissances non entières sous forme de circuits électriques.

- La notation R1 correspond à la résistance linéarisée autour d'un point de fonctionnement associée aux pertes par diffusion des protons notée  $R_{\text{diff H}^+}$ , avec :

$$R_{\text{diff H}^+} = \frac{\partial \eta_{\text{diff H}^+}}{\partial I} = \frac{R.T}{2.\beta_{\text{diff H}^+}.F} \cdot \frac{1}{I_{\text{lim, diff H}^+} - I} = R1 \quad : \quad \text{Equation (A1.15)}$$

La notation C1 correspond au pseudo condensateur équivalent de diffusion des protons noté  $C_{\text{diff H}^+}$  dans le manuscrit.

- La notation R2 correspond à la résistance linéarisée autour d'un point de fonctionnement associée aux pertes par activation notée  $R_{\text{act}}$ , avec :

$$R_{\text{act}} = \frac{\partial \eta_{\text{act}}}{\partial I} = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \cdot \frac{1}{I} = R2 \quad : \quad \text{Equation (A1.16)}$$

La notation C2 correspond au condensateur double couche noté  $C_{\text{DL}}$  dans le manuscrit.

- La notation R3 correspond à la résistance linéarisée autour d'un point de fonctionnement associée aux pertes par diffusion rapide notée  $R_{\text{diff fast}}$ , avec

$$R_{\text{diff fast}} = \frac{\partial \eta_{\text{diff fast}}}{\partial I} = \frac{R.T}{2.\beta_{\text{diff fast}}.F} \cdot \frac{1}{I_{\text{lim, diff fast}} - I} = R3 \quad : \quad \text{Equation (A1.17)}$$

La notation C3 correspond au pseudo condensateur équivalent de diffusion rapide noté  $C_{\text{diff, fast}}$  dans le manuscrit.

- La notation R4 correspond à la résistance linéarisée autour d'un point de fonctionnement associée aux pertes par activation notée  $R_{\text{diff slow}}$ , avec

$$R_{\text{diff slow}} = \frac{\partial \eta_{\text{diff slow}}}{\partial I} = \frac{R.T}{2.\beta_{\text{diff slow}}.F} \cdot \frac{1}{I_{\text{lim, diff slow}} - I} = R4 \quad : \quad \text{Equation (A1.18)}$$

La notation C3 correspond au pseudo condensateur équivalent de diffusion lente noté  $C_{\text{diff, slow}}$  dans le manuscrit.

- La branche R5//C5 n'est pas considérée dans le présent manuscrit. Nous avons souhaité l'intégrer dans les calculs dès aujourd'hui pour pouvoir, dans l'avenir, ajouter facilement d'autres phénomènes si besoin. Nous pensons par exemple à des phénomènes très lents ou à permettre la distribution d'un couple R//C en deux. On pourrait par exemple distribuer le couple  $R_{\text{act}}//C_{\text{DL}}$ , si l'on décale la numérotation des autres résistances et intégrer la prise en compte de cette distribution dans l'optimiseur.

Dans le présent manuscrit, nous considérerons donc  $R5=0$  et  $C5=0$

- La notation R6 correspond à la résistance électrique  $R_{\text{elec}}$  de la membrane. Elle est fonction de la densité de courant la traversant ; on peut trouver dans la littérature des formes empiriques de cette dépendance. Notre approche est de systématiquement la caractériser par spectroscopie d'impédance.

- La notation L6 correspond à la (pseudo) inductance de la cellule.



**A.1 - 3.1 Formules utilisées pour la démonstration qui va suivre**

1) Formule de Moivre :

$$e^{i\theta n} = (\cos \theta + i \sin \theta)^n = \cos n\theta + i \sin n\theta$$

$$(Me^{i\theta})^n = M^n(\cos n\theta + j \sin n\theta)$$

2) Inverse :

$$\frac{1}{Z} = \frac{1}{a + bj} = \frac{a - bj}{a^2 + b^2}$$

$$\frac{1}{Z} = \frac{1}{r(\cos \theta + j \sin \theta)} = \frac{r(\cos \theta - j \sin \theta)}{r^2} = \frac{(\cos \theta - j \sin \theta)}{r}$$

3)  $\cos(a - b) = \cos a \cos b + \sin a \sin b$

4)  $\cos(a + b) = \cos a \cos b - \sin a \sin b$

5)  $\sin(a - b) = \sin a \cos b - \cos a \sin b$

6)  $\sin(a + b) = \sin a \cos b + \cos a \sin b$

Base de la démonstration : (R//C) affecté d'une puissance non entière

$$Z = \frac{R}{(1 + jRC\omega)^n} = \frac{R}{r^n(\cos n\theta + i \sin n\theta)^n} = \frac{R}{r^n}(\cos n\theta - i \sin n\theta)$$

Avec :

$$r = \sqrt{1 + R^2 C^2 \omega^2}$$

$$\theta = \text{Artan}(RC\omega)$$

**A.1 - 3.2 Expression des impédances dans le plan de Nyquist****A.1 - 3.2.1  $Z_{Total}$  :**

$$Z_{Total} = \frac{R_2 + Z_3}{[1 + j(R_2 + Z_3)C_2\omega]^{n_2}} + Z_1 + R_6 + jL_6\omega$$

$$Z_2 = \frac{R_2 + Z_3}{[1 + j(R_2 + Z_3)C_2\omega]^{n_2}}$$

$$Z_3 = \frac{R_3 + Z_4}{[1 + j(R_3 + Z_4)C_3\omega]^{n_3}}$$

$$Z_4 = \frac{R_4 + Z_5}{[1 + j(R_4 + Z_5)C_4\omega]^{n_4}}$$

$$Z_5 = \frac{R_5}{[1 + jR_5C_5\omega]^{n_5}}$$

$$Z_1 = \frac{R_1}{[1 + jR_1C_1\omega]^{n_1}}$$

Dans les démonstrations suivantes, M sera utilisé pour le Module et  $\theta$  pour l'argument.

**A.1 - 3.2.2  $Z_1$  :**

$$Z_1 = \frac{R_1}{[1 + jR_1C_1\omega]^{n_1}}$$

$$\text{Re}(Z_1) = \frac{R_1}{M_1^{n_1}} (\cos n_1\theta_1)$$

$$\text{Im}(Z_1) = -\frac{R_1}{M_1^{n_1}} (\sin n_1\theta_1)$$

Avec :

$$M_1 = \sqrt{1 + (R_1C_1\omega)^2}$$

$$\theta_1 = \tan^{-1}(R_1C_1\omega)$$

**A.1 - 3.2.3  $Z_6$  :**

$$Z_6 = R_6 + jL_6\omega$$

**A.1 - 3.2.4  $Z_5$  :**

$$Z_5 = \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5\theta_5 - j \sin n_5\theta_5)$$

Avec :

$$M_5 = \sqrt{1 + (R_5 C_5 \omega)^2}$$

$$\theta_5 = \tan^{-1}(R_5 C_5 \omega)$$

**A.1 - 3.2.5**  $Z_4$  :

$$Z_4 = \frac{R_4 + Z_5}{[1 + j(R_4 + Z_5)C_4\omega]^{n_4}}$$

$$Z_4 = \frac{R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5 \theta_5 - j \sin n_5 \theta_5)}{\left[1 + j \left(R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5 \theta_5 - j \sin n_5 \theta_5)\right) C_4 \omega\right]^{n_4}}$$

$$Z_4 = \frac{R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5 \theta_5 - j \sin n_5 \theta_5)}{\left[1 + jR_4 C_4 \omega + jC_4 \omega \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \cos n_5 \theta_5 + C_4 \omega \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \sin n_5 \theta_5\right]^{n_4}}$$

On peut écrire le dénominateur sous la forme suivante B :

$$M_B = \sqrt{\left[1 + C_4 \omega \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \sin n_5 \theta_5\right]^2 + (C_4 \omega)^2 \left[R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \cos n_5 \theta_5\right]^2}$$

$$\theta_B = \tan^{-1} \left[ \frac{C_4 \omega \left(R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \cos n_5 \theta_5\right)}{1 + C_4 \omega \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \sin n_5 \theta_5} \right]$$

$$B = (M_B e^{i\theta_B})^{n_4} = M_B^{n_4} (\cos n_4 \theta_B + j \sin n_4 \theta_B)$$

Soit :

$$Z_4 = \frac{R_4 + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5 \theta_5 - j \sin n_5 \theta_5)}{M_B^{n_4} (\cos n_4 \theta_B + j \sin n_4 \theta_B)}$$

$$Z_4 = M_B^{-n_4} \left[ (R_4 \cos n_4 \theta_B - j R_4 \sin n_4 \theta_B) + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos n_5 \theta_5 - j \sin n_5 \theta_5) (\cos n_4 \theta_B - j \sin n_4 \theta_B) \right]$$

$$Z_4 = M_B^{-n_4} \left[ (R_4 \cos n_4 \theta_B - j R_4 \sin n_4 \theta_B) + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \cos n_5 \theta_5 \cos n_4 \theta_B - j \sin n_4 \theta_B \cos n_5 \theta_5 \right. \\ \left. - j \sin n_5 \theta_5 \cos n_4 \theta_B - \sin n_5 \theta_5 \sin n_4 \theta_B \right]$$

$$Z_4 = M_B^{-n_4} \left[ (R_4 \cos n_4 \theta_B - j R_4 \sin n_4 \theta_B) + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} (\cos(n_5 \theta_5 + n_4 \theta_B) - j \sin(n_5 \theta_5 + n_4 \theta_B)) \right]$$

$$Z_4 = M_B^{-n_4} \left[ R_4 \cos n_4 \theta_B + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \cos(n_5 \theta_5 + n_4 \theta_B) \right. \\ \left. - j M_B^{-n_4} \left[ R_4 \sin n_4 \theta_B + \frac{R_5}{M_5^{n_5}} \sin(n_5 \theta_5 + n_4 \theta_B) \right] \right]$$

On peut en tirer  $M_4$  et  $\theta_4$ , de ce fait :

**A.1 - 3.2.6**  $Z_3$  :

$$Z_3 = \frac{R_3 + Z_4}{[1 + j(R_3 + Z_4)C_3\omega]^{n_3}}$$

$$Z_3 = \frac{R_3 + M_4(\cos \theta_4 + j \sin \theta_4)}{[1 + j(R_3 + M_4(\cos \theta_4 + j \sin \theta_4))C_3\omega]^{n_3}}$$

On peut écrire le dénominateur sous la forme suivante C :

$$C = [1 + jR_3C_3\omega + jM_4C_3\omega \cos \theta_4 - M_4C_3\omega \sin \theta_4]^{n_3}$$

$$M_C = \sqrt{[1 - M_4C_3\omega \sin \theta_4]^2 + (C_3\omega)^2[R_3 + M_4 \cos \theta_4]^2}$$

$$\theta_C = \tan^{-1} \left[ \frac{C_3\omega(R_3 + M_4 \cos \theta_4)}{1 - M_4C_3\omega \sin \theta_4} \right]$$

D'où :

$$Z_3 = \frac{R_3 + M_4(\cos \theta_4 + j \sin \theta_4)}{M_C^{n_3}(\cos n_3\theta_C + j \sin n_3\theta_C)}$$

$$Z_3 = M_C^{-n_3}(R_3 + M_4(\cos \theta_4 + j \sin \theta_4))(\cos n_3\theta_C - j \sin n_3\theta_C)$$

$$Z_3 = M_C^{-n_3}[R_3 \cos n_3\theta_C - j R_3 \sin n_3\theta_C + M_4(\cos \theta_4 + j \sin \theta_4)(\cos n_3\theta_C - j \sin n_3\theta_C)]$$

On va simplifier la partie en rouge (ci-dessus) que l'on nommera O :

Soit :

$$O = (\cos \theta_4 + j \sin \theta_4)(\cos n_3\theta_C - j \sin n_3\theta_C)$$

$$O = \cos \theta_4 \cos n_3\theta_C + j \sin \theta_4 \cos n_3\theta_C - j \cos \theta_4 \sin n_3\theta_C + \sin \theta_4 \sin n_3\theta_C$$

$$O = \cos(\theta_4 - n_3\theta_C) + j \sin(\theta_4 - n_3\theta_C)$$

Ainsi :

$$Z_3 = M_C^{-n_3}[(R_3 \cos n_3\theta_C - j R_3 \sin n_3\theta_C) + M_4(\cos(\theta_4 - n_3\theta_C) + j \sin(\theta_4 - n_3\theta_C))]$$

$$Z_3 = M_C^{-n_3}[R_3 \cos n_3\theta_C + M_4 \cos(\theta_4 - n_3\theta_C)] + j M_C^{-n_3}[M_4 \sin(\theta_4 - n_3\theta_C) - R_3 \sin n_3\theta_C]$$

On peut en tirer  $M_3$  et  $\theta_3$ , de ce fait :

**A.1 - 3.2.7**  $Z_2$  :

$$Z_2 = \frac{R_2 + Z_3}{[1 + j(R_2 + Z_3)C_2\omega]^{n_2}}$$

$$Z_2 = \frac{R_2 + M_3(\cos \theta_3 + j \sin \theta_3)}{[1 + j(R_2 + M_3(\cos \theta_3 + j \sin \theta_3))C_2\omega]^{n_2}}$$

On peut écrire le dénominateur sous la forme suivante E :

$$E = [1 + jR_2C_2\omega + jM_3C_2\omega \cos \theta_3 - M_3C_2\omega \sin \theta_3]^{n_2}$$

$$M_E = \sqrt{[1 - M_3C_2\omega \sin \theta_3]^2 + (C_2\omega)^2[R_2 + M_3 \cos \theta_3]^2}$$

$$\theta_E = \tan^{-1} \left[ \frac{C_2\omega(R_2 + M_3 \cos \theta_3)}{1 - M_3C_2\omega \sin \theta_3} \right]$$

D'où :

$$Z_2 = \frac{R_2 + M_3(\cos \theta_3 + j \sin \theta_3)}{M_E^{n_2}(\cos n_2\theta_E + j \sin n_2\theta_E)}$$

$$Z_2 = M_E^{-n_2}(R_2 + M_3(\cos \theta_3 + j \sin \theta_3))(\cos n_2\theta_E - j \sin n_2\theta_E)$$

$$Z_2 = M_E^{-n_2}[R_2 \cos n_2\theta_E - j R_2 \sin n_2\theta_E + M_3(\cos \theta_3 + j \sin \theta_3)(\cos n_2\theta_E - j \sin n_2\theta_E)]$$

On va simplifier la partie en vert (ci-dessus) que l'on nommera F :

Soit :

$$F = (\cos \theta_3 + j \sin \theta_3)(\cos n_2\theta_E - j \sin n_2\theta_E)$$

$$F = \cos \theta_3 \cos n_2\theta_E + j \sin \theta_3 \cos n_2\theta_E - j \cos \theta_3 \sin n_2\theta_E + \sin \theta_3 \sin n_2\theta_E$$

$$F = \cos(\theta_3 - n_2\theta_E) + j \sin(\theta_3 - n_2\theta_E)$$

Ainsi :

$$Z_2 = M_E^{-n_2}[R_2 \cos n_2\theta_E + M_3 \cos(\theta_3 - n_2\theta_E)] + jM_E^{-n_2}[M_3 \sin(\theta_3 - n_2\theta_E) - R_2 \sin n_2\theta_E]$$

Au final :

$$Z_{\text{Total}} = Z_2 + Z_1 + R_6 + jL_6\omega$$

## **ANNEXE 2**

**Protocole expérimental permettant  
la paramétrisation du modèle  
dynamique fort signal d'une PAC**

La méthode de paramétrisation du modèle dynamique fort signal d'une PAC proposé dans [RAL1-11], reprise et utilisée avec succès dans [ZEI-11], a été également appliquée dans les travaux de la présente thèse. Elle est basée sur une approche « multispectre d'impédance » et sur la courbe de polarisation qui permettent d'obtenir l'ensemble des paramètres recherchés en deux étapes (cf. Chapitre IV). Une troisième étape consiste à valider le modèle ainsi paramétré à l'aide d'excitations en courant fort signal, à savoir, dans notre cas, des balayages en courant sinusoïdaux de larges amplitudes.

Dans cette annexe, nous allons décrire en détails tout le protocole expérimental que nous avons utilisé pour permettre cette paramétrisation. Nous terminerons par des pistes d'amélioration.

Durant ces travaux, nous avons réalisé un nombre important de caractérisations, et nous le verrons, les perspectives en réservent d'autant plus. Il n'est pas rare d'avoir des protocoles de caractérisation de l'ordre de la vingtaine d'heures. Afin de pouvoir en réaliser un nombre important dans un temps imparti, il s'agit de trouver un compromis entre la durée de la caractérisation et la précision souhaitée. Nous avons donc choisi de borner le protocole d'essais par un temps maximum. Dans notre cas, il était important que ce protocole ait une durée inférieure ou égale à 4 heures. De cette manière, nous pouvions effectuer deux fois ce protocole d'essais dans la même journée d'expérimentation. Le choix de cette durée peut être discutable, cependant il nous semblait être un bon compromis entre la qualité de description de la cellule et la durée de mesure. Cette restriction sera en quelque sorte le « fil rouge » qui guidera une part importante des choix décrits dans la suite. Le raisonnement qui nous a amenés à définir le protocole proposé suit l'ordre dans lequel les choix sont présentés.

### ***A.2 - 1 Choix de la gamme de fréquences des spectroscopies d'impédance et du nombre de cycles associés***

Pour obtenir une bonne précision de la modélisation, nous avons choisi de réaliser un grand nombre de mesures de spectres d'impédance. Le temps nécessaire pour réaliser une spectroscopie d'impédance est en partie fonction de la largeur de la zone fréquentielle explorée. De plus, pour avoir une bonne précision sur le point de mesure, il est nécessaire de laisser plusieurs périodes d'installation pour laisser s'éteindre le régime transitoire et plusieurs périodes pour le calcul de manière à moyenner les imprécisions. Cependant si l'on descend bas en fréquence de mesure, ces temps peuvent devenir très longs. Si l'on ne prend pas soin de réduire certains temps, la mesure peut atteindre facilement la dizaine d'heures (pour un seul spectre !).

Compte tenu de ces remarques, il a été choisi d'effectuer :

- 20 périodes d'installation et 500 périodes pour le calcul pour les fréquences supérieures à 400Hz
- 10 périodes d'installation et 50 périodes pour le calcul pour les fréquences comprises entre 400Hz et 2,5Hz
- 2 périodes d'installation et 5 périodes pour le calcul pour les fréquences inférieures à 2,5Hz

Ce choix résulte du compromis entre temps de mesure et précision souhaitée ; il peut être cependant discutable.

En ce qui concerne la plus haute fréquence de mesure, celle-ci dépend en grande partie de l'inductance série équivalente. Plus cette inductance est faible, plus il est nécessaire de monter haut en fréquence pour obtenir une coupure de l'axe réel sur les spectres. De manière générale, cette fréquence est d'autant plus haute que les bornes de mesures sont proches sur la cellule PAC. Cette fréquence dépend également des dynamiques acceptables par la charge active utilisée. Dans notre cas, il a été choisi 50 kHz.

Nous avons choisi dans un premier temps d'effectuer des caractérisations similaires sur chaque point de mesure. C'est-à-dire que le choix des durées avant de déclencher la spectroscopie d'impédance suite à un changement de point de fonctionnement, les temps de calcul, d'installation et des fréquences mesurées est indépendant de la valeur du courant. Or, plus l'on souhaite descendre bas en fréquence, plus la procédure sera allongée en durée. Ainsi le compromis a été choisi de considérer une fréquence minimale de 100mHz.

On peut noter que, compte tenu des 2 périodes d'installation et des 5 périodes pour le calcul, ce point de mesure représente 70 secondes à lui seul. Cette fréquence influe de manière très importante sur le temps des mesures, cependant, ce choix sera discuté par la suite.

## ***A.2 - 2 Choix du nombre de fréquences de mesure des spectroscopies d'impédance***

Plus le nombre de fréquences de mesure sera grand, plus la description du spectre sera précise. Il faudra encore une fois faire un compromis entre le nombre de fréquences mesurées pour chaque courant et le temps de la procédure.

Il est difficile d'observer le fait que le point de fonctionnement autour duquel est effectuée la spectroscopie d'impédance reste stable au cours de tout le tracé. En effet, le sens de variation unique dans le déroulement des fréquences implique une continuité dans le tracé du spectre qui ne permet pas de mettre en évidence de potentielles instabilités du point de fonctionnement au cours de la mesure. Une méthode permettant la mise en évidence de la stabilité du point de fonctionnement a été proposée dans [PHL-09], c'est la méthode dite par spectroscopies d'impédance entrelacées. Elle sera appliquée ici.

Cette méthode consiste à séparer la spectroscopie d'impédance en sous-spectroscopies, chacune effectuant des mesures à des fréquences différentes pour une même valeur de courant. Chaque sous-spectroscopie est une spectroscopie traditionnelle (balayages à fréquence décroissante selon une répartition logarithmique par exemple) pour laquelle les fréquences de départ et d'arrêt sont décalées par rapport à la sous-spectroscopie suivante. Ainsi une alternance basse fréquence haute fréquence est réalisée au passage d'une sous-spectroscopie à l'autre.

Lors du regroupement des sous-spectroscopies, les points de fréquences successives n'ayant pas été mesurés successivement dans le temps, la continuité ou la discontinuité du spectre traduit respectivement une stabilité ou une instabilité du point de mesure.



Une répartition possédant le même écart logarithmique entre deux fréquences successives (une fois le spectre remis dans l'ordre) peut être définie à partir :

- Du nombre de sous-spectres désiré (N),
- Du nombre de fréquences mesurées par spectre (n),
- De la fréquence maximale de la mesure ( $F_{\max}$ ),
- De la fréquence minimale de la mesure ( $F_{\min}$ ).

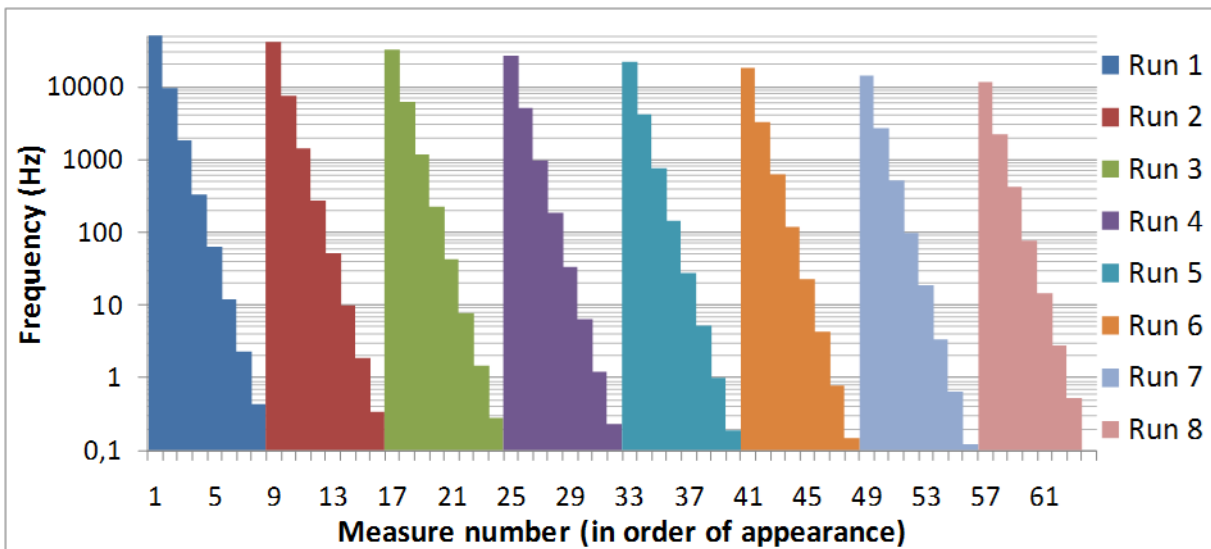
Notons "N" le nombre de sous-spectroscopies à réaliser et "i" le numéro de la sous-spectroscopie (avec  $i \in [1..N]$ ). Notons également "n" le nombre de points de fréquence par sous-spectroscopie et "j" la position du point (avec  $j \in [1..n]$ ).

Alors la fréquence à imposer en fonction de sa position parmi les sous-spectroscopies ("i") et de sa position parmi le nombre de fréquences à traiter dans chaque sous-spectroscopie ("j") peut s'exprimer par l'*Equation (A2.1)* :

$$f(i, j) = (F_{\max})^{\frac{N(n-j+1)-i}{N \cdot n-1}} \cdot (F_{\min})^{\frac{N(j-1)+i-1}{N \cdot n-1}} \quad : \quad \text{Equation (A2.1)}$$

Notons que la spectroscopie usuelle (pas d'entrelacement) correspond au cas  $N=1$ .

Un nombre minimum de points par sous-spectre est nécessaire si l'on souhaite avoir une bonne information pour chacun d'eux. Ce minimum a été choisi ici à 8 ( $n=8$ ). Le nombre de sous-spectres à réaliser va ensuite définir le nombre de points pour le spectre total. Il a été arbitrairement choisi 8 ( $N=8$ ). En général, un nombre minimum aux alentours de 50 points est recommandé pour avoir une bonne définition du spectre total. Au final la procédure fournit 8 spectres de 8 points soit 64 points de mesure allant de 50kHz à 0,1Hz. L'ensemble de ces points sont répartis dans le temps selon l'illustration de la *Figure (A2.1)*.



**Figure (A2.1)** : Répartition des fréquences dans l'ordre d'apparition.

Compte tenu des cycles d'intégration et de stabilisation pour chaque point, la durée totale pour obtenir un spectre complet est théoriquement de 478,75 secondes (soit près de 8 minutes).

Ainsi, on ne pourra pas réaliser plus de 30 spectroscopies d'impédance entières en 4 heures. Une courbe de polarisation peut être parcourue selon les courants croissants ou décroissants. Il ne semble pas judicieux de réaliser les mesures de spectroscopies d'impédance dans les deux sens compte tenu des remarques suivantes :

- un nombre important de spectres est souhaité pour la caractérisation,
- un temps d'attente est nécessaire avant chaque mesure,
- un temps initial d'attente est nécessaire pour humidifier la cellule correctement par sa propre production d'eau.

Il a été choisi de considérer uniquement les courants décroissants, parce que c'est le protocole qui est le plus souvent utilisé dans la littérature et par le constructeur. En effet, la caractérisation dans le sens retour est très généralement le protocole qui permet de montrer de meilleures performances électriques de la cellule. De plus, l'application de courants forts au départ permet, dans notre cas, une bonne humidification de la membrane.

En toute rigueur, la différence entre le sens aller et sens retour devrait être prise en compte. Elle relève de très basses fréquences (qq  $10\mu\text{Hz}$  à  $100\mu\text{Hz}$ ). Cependant le modèle utilisé ne permet pas à ce jour décrire le comportement à ces fréquences.

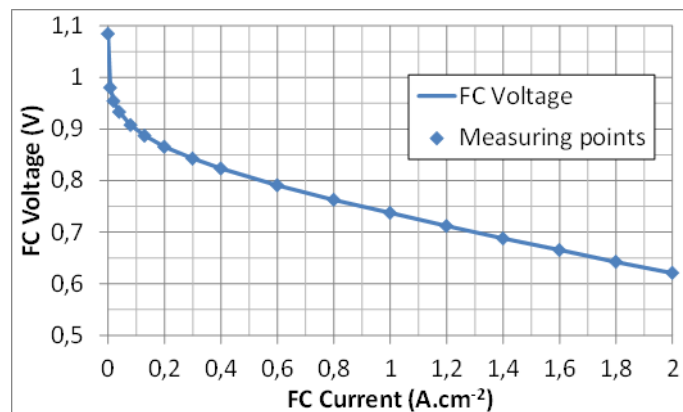
### A.2 - 3 Courbe de polarisation et spectroscopies d'impédance

Notre approche consiste à coupler tracé de la courbe de polarisation et tracés des spectres d'impédance. Pour cela, nous procédons à un tracé par marches d'escaliers de la courbe de polarisation. Sur chaque palier, est réalisée une spectroscopie d'impédance.

Une description précise d'une courbe de polarisation nécessite la mesure de nombreux points dans le coude d'activation, c'est-à-dire aux faibles densités de courant. D'autant plus que la courbe de polarisation est utile pour obtenir deux paramètres du modèle qui ne sont pas accessibles via les spectres d'impédance (nous reviendront ultérieurement sur ce sujet).

Ainsi nous avons choisi la répartition suivante des paliers :

$I \in [0 ; 0.008 ; 0.02 ; 0.04 ; 0.08 ; 0.13 ; 0.2 ; 0.3 ; 0.4 ; 0.6 ; 0.8 ; 1 ; 1.2 ; 1.4 ; 1.6 ; 1.8 ; 2]$  en  $\text{A.cm}^{-2}$ , illustrée en *Figure (A2.2)*.



**Figure (A2.2)** : Projection des points de mesure retenus sur la courbe de polarisation

Cette répartition représente 17 courants à caractériser.

Notons qu'il n'est pas possible d'effectuer des spectroscopies d'impédance en zéro avec une charge active classique. En effet la spectroscopie d'impédance consiste à ajouter une composante AC de faible amplitude sur une composante DC. Or à 0A de valeur moyenne, une composante AC va requérir des courants instantanés négatifs. Notre charge n'étant pas réversible, nous ne pouvons pas réaliser cette mesure.

Il a été choisi de laisser un temps d'attente de 20 secondes après chaque spectroscopie avant d'effectuer la mesure quasi statique de la tension et du courant. Ainsi la mesure du point de la courbe de polarisation s'effectue à l'issue d'un long temps d'attente, à savoir le temps avant la spectroscopie, le temps de la spectroscopie et ces 20 secondes. Pour s'affranchir d'une partie du bruit, le point considéré pour la courbe de polarisation est une moyenne de plusieurs points de mesure. La mesure que l'on a choisi de considérer est alors la moyenne de la dernière seconde enregistrée avec un échantillonnage à 10 kHz. Ces temps ont été fixés suite à l'expérience du laboratoire, et résultent d'un compromis.

En toute rigueur il faudrait moyenner les points sur au moins un cycle thermique (car la régulation thermique est de type tout ou rien avec hystérésis). Cependant cette constante de temps varie en fonction du courant, mais dépasse toujours la minute. La variation de température entre le point haut et le point bas étant de l'ordre du degré, l'impact a été jugé faible. Un temps de moyennage important pour la mesure de ce point aurait augmenté considérablement le temps de la procédure.

Au final, cela représente 16 mesures par spectroscopie d'impédance et 17 points pour la courbe de polarisation. Pour le point à zéro, le même temps précédant la mesure que pour les autres cas sera considéré, même si la spectroscopie d'impédance n'est pas effectuée.

## ***A.2 - 4 Choix de l'amplitude AC des signaux sinusoïdaux pour les spectroscopies d'impédance***

L'amplitude des courants sinusoïdaux utilisés pour effectuer les spectroscopies d'impédance doit être faible. En effet, plus cette amplitude est faible, plus on s'assure d'être proche d'un point de fonctionnement stabilisé, et surtout un comportement linéaire du composant. Cette amplitude dépend en grande partie du bruit de mesure, de la précision du courant accessible et de la précision des capteurs (tension et courant).

Pour notre cas, une amplitude AC de 1A (crête à crête) permet un signal propre et suffisant (un travail d'immunité au bruit a été effectué sur la chaîne de puissance et d'acquisition). Cette amplitude est donc choisie pour la majorité des points. En revanche pour les faibles courants (de 0.2 à 0.08 A.cm<sup>-2</sup>), celle-ci est limitée à 20% de la valeur du courant moyen et jusqu'à 50% pour les très faibles courants (de 0.04 à 0.008 A.cm<sup>-2</sup>), nous faisant sortir probablement du domaine de linéarité. En pratique, la mesure n'est plus possible dans notre montage au-dessous de 0,2A<sub>AC</sub> crête à crête car le rapport signal/bruit devient trop faible.

## A.2 - 5 *Choix des temps de stabilisation des points de fonctionnement*

Deux durées restent à fixer : le temps initial d'attente à  $I_{max}$  avant d'entamer la décroissance des courants et le temps d'attente avant chaque point de mesure.

Le temps initial d'attente permet de bien humidifier la membrane car rappelons-le, elle ne peut s'humidifier que par sa propre production d'eau. A l'instant  $t=0$ , la cellule est déjà à pression et température nominales et depuis peu à courant max. On attend alors quelques minutes après avoir observé les premières productions d'eau conséquentes sortir de la cellule. L'expérience nous a montré qu'un temps de 20 minutes semble être un bon compromis pour notre cellule.

Compte tenu de ce temps d'attente, des durées de mesure des 17 points (spectroscopie et courbe de polarisation), on atteint 162 minutes. Il est préférable de prendre un peu de marge par rapport aux 4h retenues pour chaque campagne afin de permettre à l'opérateur d'effectuer un démarrage en douceur de la cellule (montée en pression, température, courant). Dans ce contexte, il nous a semblé qu'un temps d'attente de 2 minutes (x17 points) avant d'effectuer une spectroscopie d'impédance pour chaque point de courant était un bon compromis.

## A.2 - 6 *Problématique de l'exploitation des données*

Notre protocole d'essais peut être résumé sur la *Figure (A2.3)* représentant la densité de courant moyenne appliqué à la cellule en fonction du temps.

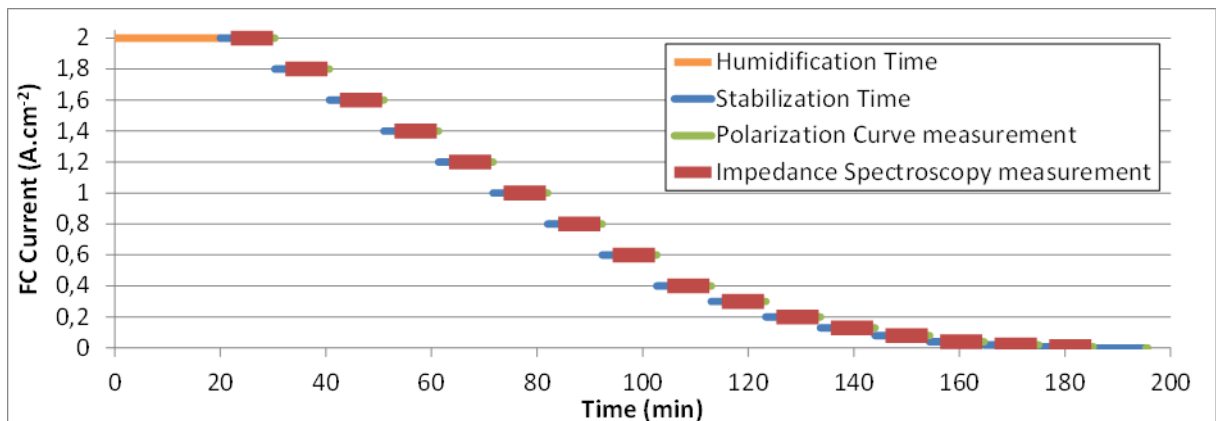


Figure (A2.3) : Tracé temporel du protocole de caractérisation.

Ainsi la caractérisation comporte 8 spectres de 8 points sur 16 points de mesure. Cela représente 128 spectres qu'il faut traiter (remettre en ordre, tracer, etc.). Cette opération est à réaliser pour chaque campagne de caractérisation et pour chaque cellule (car lorsque plusieurs cellules sont en série électrique, elles sont caractérisées simultanément). Sachant que la procédure de caractérisation est amenée à être répétée régulièrement, il nous a été nécessaire d'automatiser le traitement des données pour permettre de telles campagnes d'essais.

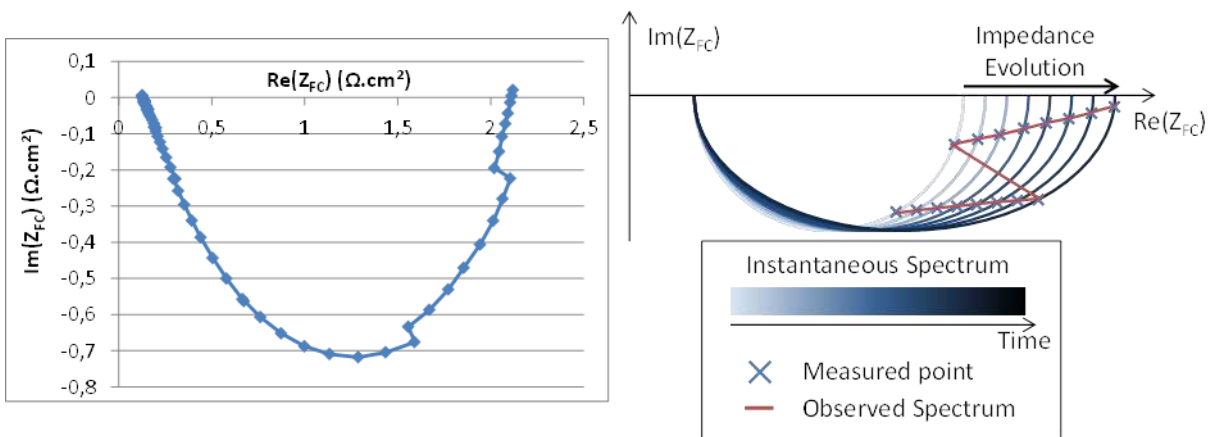
## A.2 - 7 Pistes d'amélioration du protocole

Malgré la rigueur et les précautions prises lors de l'élaboration de ce protocole de caractérisation, il y a toujours des améliorations possibles que l'on peut mettre en évidence suite au retour d'expérience des campagnes d'essais liées au chapitres III et IV. C'est l'objet de cette section.

### A.2 - 7.1 Humidifier pour les faibles courants

A bas courant, on observe souvent des « sauts » dans le spectre comme illustré sur la **Figure (A2.4).a**). Ceci est causé par une mauvaise stabilisation du point de fonctionnement autour duquel s'effectue la spectroscopie d'impédance. Une interprétation est proposée en **Figure (A2.4).b**) : une variation de l'impédance dans le temps entraîne des sauts lorsque deux points de mesure consécutifs sont très éloignés dans le temps. Typiquement, on observe ce phénomène lors du passage d'un point de la dernière sous-spectroscopie réalisée à un point de la première. Bien qu'ils soient très éloignés dans le temps, ces points possèdent des fréquences successives.

Dans cette courbe, l'effet a été exagéré pour en voir plus facilement l'influence. L'interprétation illustre uniquement une variation de la partie réelle du spectre pour les basses fréquences, mais cette variation peut également avoir lieu sur la partie imaginaire ou sur les fréquences élevées. On peut noter qu'une augmentation de l'impédance sur les basses fréquences (comme celle illustrée) peut se produire suite à une augmentation des phénomènes de diffusion.



a) Exemple de sauts durant la spectroscopie d'impédance observée à courant faible

b) Illustration de l'interprétation des sauts d'impédance observés

**Figure (A2.4)** : Variation d'impédance à courant faibles observée.

L'utilisation de la méthode de « spectroscopies entrelacées » permet ici de mettre en évidence le fait que le point ne soit pas complètement stabilisé. Ce qui aurait été plus compliqué à déceler lors d'une spectroscopie d'impédance classique. En réalité il n'est pas possible d'avoir le spectre complet à un instant  $t$  compte tenu des temps de mesure et en particulier pour les fréquences basses.

Tout d'abord les cellules étant ici dans un montage à débits de fuites fixes (et donc stœchiométrie variable), le fait de rester longtemps sur des courants faibles à tendance à assécher la cellule. En effet, la seule source d'humidification est l'eau produite (proportionnelle au courant traversant la cellule) puisque les gaz ne sont pas humidifiés. A très bas courant, ce cas est rude pour la cellule puisqu'elle produit peu d'eau et que le débit la traversant est important.

Pour limiter cet effet sans modifier le protocole, une solution est proposée : elle consiste à humidifier les gaz entrant dans la cellule. Il ne semble a priori pas pertinent pour ces cellules de les humidifier à forts courant. En effet leur production d'eau suffit à procurer une humidification correcte à la cellule. Le fait d'humidifier les gaz entrainerait plus de mouvement d'eau et rendrait d'autant plus difficile son évacuation. Pour une stabilisation plus rapide et une cellule plus performante électriquement à courant faible, on peut alors envisager une humidification qui se mettrait en place uniquement aux bas courants ou lorsque la stœchiométrie dépasse un certain seuil. Ce système d'humidification pourrait être court-circuité fluidiquement au-delà d'un certain seuil de courant par exemple.

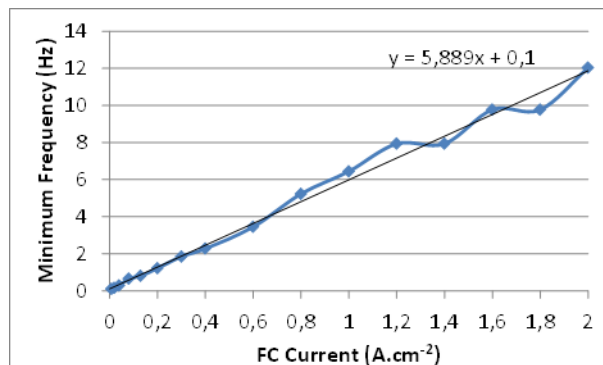
Une autre alternative serait que la stœchiométrie de la PAC soit adaptée en fonction du courant mais le banc d'essai utilisé ne le permet pas pour l'instant. En revanche, il faut alors envisager un temps de stabilisation plus long, sachant que cela doit probablement dépendre des séquences précédentes : du courant et du temps des séquences qui ont précédées celle concernée. Cela semble difficile d'allonger tous les temps de stabilisation sans dégrader le nombre de points de mesure ou leur qualité compte tenu de la contrainte sur la durée globale de la caractérisation. Cependant on peut envisager un temps de stabilisation fonction de la valeur du courant. En effet, la stabilisation est plus longue à faible courant qu'à fort courant.

## A.2 - 7.2 Dépendance de la fréquence limite basse avec le courant

La fréquence basse possède un impact très important sur le temps de la caractérisation. En effet, comme vu précédemment, le point à 0,1Hz représente 70 secondes sur les 8 minutes de spectroscopies à lui seul. Descendre très bas en fréquence est important pour les faibles courants dans notre cas.

Concernant les forts courants nous n'atteignons pas le coude de diffusion. Dans notre cas, typiquement les points de 1Hz à 0,1Hz possèdent la même position sur le plan de Nyquist pour des courants allant de 2 à 0,2 A.cm<sup>-2</sup>. Le traitement automatisé des données mis en place et exprimée à la section 0 ne tient alors pas compte de ces points en surnombre et les supprime automatiquement. Ainsi en limitant une spectroscopie à 1Hz, le temps serait réduit de 8 minutes à 2,3 minutes dans les mêmes conditions (à temps d'installation et temps de calculs identiques). Ou alors le temps serait réduit à un peu moins de 3 minutes en supprimant seulement le dernier point de chaque sous-spectroscopie (fréquence minimale de 0,529Hz).

La fréquence minimale qui a été retenue pour une caractérisation de cellule en fonction du courant est illustrée sur la **Figure (A2.5)**. On pourrait dans ce cas envisager une loi précisant la fréquence minimale à appliquer aux spectroscopies en fonction du courant traversant la cellule.



**Figure (A2.5)** : Fréquences minimales retenues pour les spectroscopies d'une caractérisation de cellule en fonction du courant moyen.

Bien que l'économie de points de mesure ne semblerait pas avoir d'impact sur la caractérisation de nos cellules H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>, il n'est pas évident de dire que cela pourrait également fonctionner pour des cellules H<sub>2</sub>/Air qui possèdent une zone de limite de diffusion plus prononcée.

L'inconvénient de ce qui est proposé est que les temps d'attente avant la mesure pour la courbe de polarisation seraient différents suivants les courants. Egalement, la cellule passerait beaucoup plus de temps à faible courant qu'à fort courant lors de sa caractérisation, ce qui est préjudiciable pour l'humidification de celle-ci avec notre montage. Cette proposition est donc à reboucler avec la précédente de la section 0. Autrement, cette possibilité pourrait être exploitée pour augmenter le nombre de points de mesure à forts courants tout en conservant une durée équivalente de caractérisation.

## A.2 - 8 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté un protocole d'essai générique permettant de réaliser des mesures en vue notamment d'une caractérisation par approche multispectre. Ce protocole utilise l'expérience du laboratoire en termes de caractérisation, comme par exemple l'entrelacement des spectres.

Pour rendre ce protocole plus générique, des pistes sont proposées pour le choix, l'adaptation et l'amélioration de ce protocole. Les études précédentes au laboratoire ([ZEI-11] et [RAL1-11]) ont montré qu'il est possible de trouver un jeu de paramètres permettant de faire « coller » le modèle d'impédance aux spectroscopies d'impédance ainsi obtenues, et ensuite de bien représenter le comportement quasi statique comparé à la courbe de polarisation issue de ces mesures.

Enfin, par extrapolation, cette méthode peut permettre de donner certains renseignements témoins de l'état de santé de la cellule (tels que la dissociation des pertes). Nous pensons que la définition d'un protocole unique est une étape nécessaire pour pouvoir comparer l'état de santé d'une cellule entre deux instants. En effet il est préférable que la caractérisation suive rigoureusement le même protocole pour s'affranchir d'éventuelles variations de paramètres qui n'ont pas été pris en compte. D'où la nécessité de conserver le même protocole du début à la fin de la vie d'une cellule et donc de choisir dès le départ un protocole adéquat.

## **ANNEXE 3**

**Retour d'expérience  
sur le stockage dédié au  
projet ISS**



Nous avons vu dans le manuscrit qu'en cas de surtension, le module qui risque d'être concerné en premier est celui dont la valeur de capacité est la plus faible. Nous ne pouvons pas surveiller tous les modules, alors s'il y a un module prioritaire à surveiller c'est le plus faible. Pour déterminer le module le plus faible, il faut évaluer la capacité de chaque module, cela a été effectué par une charge à  $I_{nom}/2$  (10A) et par la formule de l'**Equation (A3.1)** où  $\Delta V_2$  représente la variation de tension durant toute la charge (effet résistif  $\Delta V_1$  exclu),  $\Delta t$  représente l'intervalle de temps de la charge et  $\langle I_{SC} \rangle$ , la moyenne du courant appliqué. Nous avons profité de ces mesures pour obtenir une valeur approchée de la résistance interne par l'**Equation (A3.2)**, où  $\Delta V_1$  représente la variation de tension immédiate causée par l'échelon et  $\Delta I_{SC}$  la valeur de l'échelon.

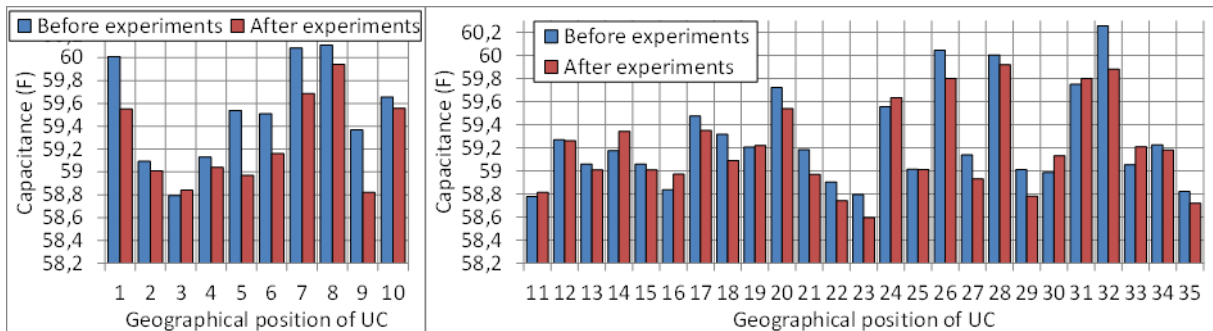
$$C = \frac{\Delta t \cdot \langle I_{SC} \rangle}{\Delta V_2} \quad : \quad \text{Equation (A3.1)}$$

$$R_{sc} = \frac{\Delta V_1}{\Delta I_{SC}} \quad : \quad \text{Equation (A3.2)}$$

Bien que ces mesures ayant été réalisées avec le plus grand soin : moyennage des valeurs sur un grand nombre de points, soustraction des zéros des sondes, ... Compte tenu des incertitudes cumulées des appareils (sondes, enregistreur, pas d'acquisition) et celles liées au calcul, la précision final est de l'ordre de +/- 2,2% pour C et +/- 1,7% pour  $R_{sc}$ .

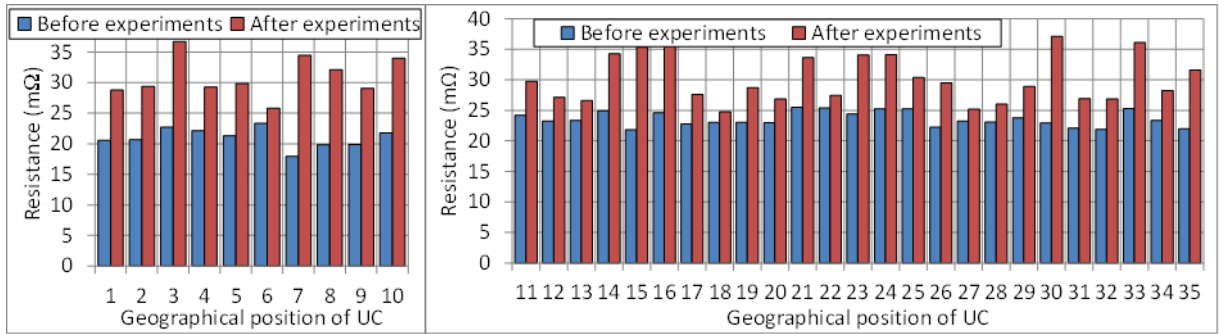
Cependant la caractérisation des SC n'étant pas l'objet principal de l'étude, nous avons souhaité appliquer une méthode simple et facilement reproductible permettant d'avoir une idée des valeurs sur un grand nombre de modules, les résultats sont donnés en **Figure A3.1**.

A l'issue de ces essais, les modules dont la capacité équivalente était la plus faible ont pu être identifiés et par la suite suivis. Nous disposons de 3 mesures pour la surveillance, pour chaque architecture nous avons choisi les deux modules dont la capacité est la plus faible à comparer au module dont la capacité est la plus forte. Très peu d'écarts entre les tensions ont été relevés durant les essais. Nous avons choisi un positionnement géographique dans l'ordre croissant des numéros de série de manière à ne pas effectuer de regroupements liés aux valeurs mesurés. Pour chaque architecture, le numéro le plus bas correspond au pôle moins, le numéro le plus haut au pôle plus.



a) Capacité Architecture n°1

b) Capacité Architecture n°2



c) Résistance Architecture n°1      d) Résistance Architecture n°2

**Figure A3.1** : Evaluation des valeurs des capacités des SC classées suivant leur position géographique (du pôle - vers le pôle +) avant et après les essais.

Nous avons profité de ces mesures pour les refaire tout en suivant rigoureusement le même protocole après la fin des essais. Il s'est écoulé 20 mois entre les deux mesures, mais il est difficile d'estimer le temps d'utilisation des modules (de l'ordre de quelques 100<sup>aines</sup> d'heures). Cependant on peut affirmer que l'architecture n°1 a tourné beaucoup plus longtemps que l'architecture n°2 non seulement par le fait qu'elle se divise en deux stratégies (donc deux fois plus d'essais finaux) mais aussi par sa complexité plus importante qui a nécessité plus de temps et d'essais de développement. De plus les courants traversant les modules lors de l'architecture n°1 sont bien plus importants que ceux mis en jeu lors de l'architecture n°2 (rapport d'environ 2,7 lié au rapport des tensions de référence). Quant à l'architecture n°3, compte tenu de son développement immédiat (pas de gestion énergétique), elle n'a tourné que très peu de temps (probablement < 10 heures) c'est pourquoi ces capacités (incluses dans celle de l'architecture n°2) n'ont pas été mentionnées étant donné l'impact de ces essais jugé très faible sur les modules concernés. Enfin les données de la **Figure A3.1** sont moyennées pour chaque architecture et récapitulées dans le **Tableau A3.1**.

	Evaluation avant essais	Evaluation après essais	Ecart
C Archi 1	59,53 F	59,26 F	-0,46%
R <sub>sc</sub> Archi 1	21,01 mΩ	30,94 mΩ	+47,3%
C Archi 2	59,27 F	59,20 F	-0,12%
R <sub>sc</sub> Archi 2	23,59 mΩ	30,17 mΩ	+27,9%

**Tableau A3.1** : Comparatif des moyennes des valeurs de R<sub>sc</sub> et de C estimées par module pour chaque architecture.

En ce qui concerne les valeurs des capacités, d'après la **Figure A3.1** il est difficile de tirer des conclusions car certaines sont supérieures et d'autres inférieures pour les deux architectures. On remarque également que la situation géographique des modules ne montre pas d'effet notable. On peut tout de même observer d'après le tableau une diminution légèrement supérieure de la moyenne des capacités pour l'architecture n°1. Cependant les écarts mesurés sont compris dans la zone d'incertitude des mesures ce qui rend difficile quelque affirmation.

En revanche, concernant les résistances électriques, on constate clairement une augmentation des valeurs : observable dans la **Figure A3.1** et dans le tableau. On peut dans ce cas aussi observer que les modules ayant été utilisés dans l'architecture n°1 ont subi plus de dégradations que ceux de l'architecture n°2 mais on ne peut pas dissocier si l'usure est liée à l'architecture (autrement dit au courant moyen) ou à la durée de fonctionnement de celle-ci (car elle est inconnue).

Les critères de fin de durée de vie donnés par le constructeur sont une augmentation de la valeur de  $R_{SC}$  de 100% ou une diminution de la valeur de C de 20%. Cependant ils précisent que chacun peut disposer de ses propres critères, ainsi certains auteurs proposent d'attribuer la fin de vie du composant lorsque le rendement de stockage/restitution passe sous la barre des 80%. Le rendement étant fonction de la tension et du courant, si l'on considère ce critère comme établi dès qu'un point de fonctionnement atteint cette barre en utilisation nominale. Cela représente un rendement de 89,4% à la charge et 89,4% à la décharge pour la tension nominale (16Vdc) et le courant nominal (20A), soit environ  $85m\Omega$  pour des pertes de 33,8W à +/-20A sous 16Vdc, ce qui représente 425% de la valeur initiale de  $R_{SC}$  donnée par le constructeur.

Dans notre cas, si l'on considère le critère donné par le constructeur et que l'on imagine un vieillissement linéaire en fonction de l'utilisation, on peut représenter la part d'usure des modules par l'écart sur les valeurs de  $R_{SC}$  inscrit dans le **Tableau A3.1**.



# Références Bibliographiques

- [ACA-10] Advisory Council for Aeronautics Research in Europe, “Aeronautics and Air Transport: Beyond vision 2020 Towards 2050”, [Online]. Available: [http://ec.europa.eu/research/transport/pdf/acare\\_background\\_2010\\_en.pdf](http://ec.europa.eu/research/transport/pdf/acare_background_2010_en.pdf), Jun 2010
- [ALL-11] T. Alleau, P. Buffet, “Les Applications Spatiales et Aéronautiques de l’Hydrogène”, AFH2 — Association Française pour l’Hydrogène, Mémento de l’Hydrogène.Fiche 9.4.3, Oct 2011
- [ANI-10] Anirban G., Vinod J. “Anti-windup Schemes for Proportional Integral andProportional Resonant Controller”, National Power Electronic Conference, 2010
- [ANT-06] L. Antoni, “Les Piles à Combustible”, Ecole Energies et Recherches, Mar 2006
- [ATC-06] Atcitty, S. “Electrochemical Capacitor Characterization for Electric Utility Applications”. Thèse de l’Institut Polytechnique de Virginie, 2006
- [AYA-04] M-Y Ayad, “Mise en oeuvre des supercondensateurs dans les sources hybrides continues.” Thèse de l’Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), 2004
- [AZI-10] T. Azib, “Contribution à l’Etude d’Electro-générateurs à Pile à Combustible : Conceptions d’Architectures et de Leurs Commandes”, thèse de l’Université Paris-Sud XI, Dec 2010
- [BAL-03] Ballard Power systems Inc. “Fuel Cell System”, International Application Published Under the Patent Cooperation Treaty (PCT), Int. Pub. No. : WO 03/052860 A2, Jun 2003
- [BAU-09] C. Baumann, “Architecture & Gestion d’un réseau maillé haute tension continue pour l’aéronautique”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Mar 2009
- [BEC-06] M. Becherif, M. Y. Ayad, A. Miraoui, “Modeling and Passivity-Based Control of Hybrid Sources: Fuel Cell and Supercapacitors”, IEEE IAC - Industry Applications Conference, 2006
- [BEL-01] Belhachemi, F. “Modelisation Et Caractérisation Des Supercondensateurs A Couche Double Electrique Utilisés En Electronique De Puissance”. Thèse de l’Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), 2001
- [BER-09] J. Bernard, S. Delprat, F. N. Büchi, T. M. Guerra, “Cell Hybrid Powertrain: Toward Minimization of Hydrogen Consumption ”, IEEE trans. on Vehicular Technology, Sep 2009
- [BER-11] J. Bernard, M. Hofer, U. Hannesen, A. Toth, A. Tsukada, F.N. Büchi, P. Dietrich, “Fuel cell/battery passive hybrid power source for electric powertrains”, JPS - Journal of Power sources, Mar 2011
- [BOL-09] P. Bolognesi, F. Papini, L. Taponecco, “Hybrid-Excitation DC Machines as Highly Reliable Generators for Ram Air Turbines”, IEEE IECON, 2009
- [BON-97] R. Bonert, L. Zubieta. “Measurement Techniques for the Evaluation of Double-Layer Power Capacitors”, IEEE-IAS, 1997

- [BOR-10] R. Borup, R. Mukundan, “Degradation Mechanisms and Accelerated Testing in PEM Fuel Cells”, FCS&E - Fuel Cell Seminar & Exposition, Oct 2010
- [BOS-04] D. Van Den Bossche “More electric control surface actuation — A standard for the next generation of transport aircraft”, Control 2004, University of Bath, UK, Sep 2004
- [BOT-00] Stephen L. Botten, Chris R. Whitley, and Andrew D. King , “Flight Control Actuation Technology for Next-Generation All-Electric Aircraft”, TRJ - Technology Review Journal, 2000
- [BRO-11] J. Brombach, T. Schroöter, A. Lücken, D. Schulz, “Optimized cabin power supply with a +/- 270 V DC grid on a modern aircraft”, Compatibility and Power Electronics (CPE), 7th International Conference-Workshop, Jun 2011
- [BÜC-06] F.N. Büchi, A. Delfino, P. Dietrich, S.A. Freunberger, R. Kötz, et al. “Electrical Drivetrain Concept with Fuel Cell System and Supercapacitor Results of the “HY-LIGHT®”-vehicle”. VDI Tagung Innovative Fahrzeugantriebe, Nov 2006
- [BUL-02] S. Buller, E. Karden, D. Kok and R.W. De Doncker. “Modeling the dynamic behavior of supercapacitors using impedance spectroscopy.”, IEEE-IAS, 2002
- [BUR-04] M. Burns, W. M. Cavage, R. Hill, R. Morrison “Flight-Testing of the FAA Onboard Inert Gas Generation System on an Airbus A320”, Report from the Office of Aviation Research - U.S. Department of Transportation - Federal Aviation Administration, Jun 2004
- [CAC-04] M. Cacciato, F. Caricchi, F. Giulii Capponi, E. Santini, “A Critical Evaluation and Design of Bi-directional DC/DC Converters for Super-Capacitors Interfacing in Fuel Cell Applications”, IEEE IAC - Industry Applications Conference, 2004
- [CAP-08] Capenergies, “Apache.doc”, [Online]  
www.capenergies.fr/fichiers/projets/LABELLISES\_2008/H2-STOCKAGE/APACHE.doc, 2008
- [CHA-98] P. Chapoulie, S. Astier, “Modelling of an Electric Vehicle Including Ultracapacitors with SABER”, conference EVS’98, Bruxelles, Belgium, September 1998.
- [CHR-00] T. Christen, M. W. Carlen, “ Theory of Ragone plots”, JPS - Journal of Power Sources, Mar 2000
- [CHE-07] X. Cheng, J. Zhang, Y. Tang, C. Song, J. Shen, D. Song, J. Zhang, “Hydrogen crossover in high-temperature PEM fuel cells”, JPS - Journal of Power Sources, Feb 2007
- [CON-99] B.E. Conway, “Electrochemical supercapacitors — Scientific fundamentals an technological applications”, Kluwer Academic/Plenum Publishers, 1999
- [CUR-10] S. Curtin, “Fuel Cells Flying High!”, International Airport Review. Issue Number: 4, pp 36-39, Aug 2010
- [CUT-02] S. J. Cuts, “A Collaborative Approach to the More Electric Aircraft”, IEE Colloquium - Power Electronics, Machines and Drives, Apr 2002
- [DAH-10] St. Von Dahlen, G. G. Scherer, A. Wokaun, I. A. Schneider, “Start-Stop Phenomena in Channel and Land Areas of a Polymer Electrolyte Fuel Cell (PEFC)”, Trans on ECS - The Electrochemical Society, 2010
- [DAN-06] V. Dang Bang “Conception d’une interface d’électronique de puissance pour la Pile à combustible”, Thèse de doctorat de l’Université Joseph Fourier - UJF, Dec 2006

- [DEL-99] S. Delpart, G. Paganelli, T. M. Guerra, J. J. Santin, M. Delhorn, and E. Combes, "Algorithm optimization tool for the evaluation of HEV control strategies," in Proc. Elect. Veh. Symp. 16, Beijing, China, 1999.
- [DEL-04] S. Delpar, J. Lauber, T. M. Guerra, and J. Rimaux, "Control of a parallel hybrid powertrain: Optimal control," IEEE Trans. Veh. Technol., May 2004.
- [DIA-08] Y. Diab, P. Venet, H. Gualous, G. Rojat. "Self-Discharge Characterization and Modeling of Electrochemical Capacitor Used for Power Electronics Applications", IEEE-PES, 2008
- [DOD-04] DOD — United States Department Of Defense "Department of Defense Interface Standard - Aircraft Electric Power Characteristics", MIL-STD-704F, 2004
- [DOE-11] DOE — United States Department Of Energy, "2010 Fuel Cell Technologies Market Report", Energy Efficiency & Renewable Energy, Jun 2011
- [DOU-03] R.A. Dougal, L. Gao, S. Liu. "Ultracapacitor model with automatic order selection and capacity scaling for dynamic system simulation", Journal of Power Sources, 2003
- [ECO-10] Eco Technologt for Vehicles - éTV, "i-MiEV, Véhicule électrique innovant de Mitsubishi", Plan d'Essais Préparé par éTV, Aug 2010
- [EID-10] A. Eid, H. El-Kishky, M. Abdel-Salam, T. El-Mohandes, "Modeling and Characterization of an Aircraft Electric Power System with a Fuel Cell-Equipped APU Connected at HVDC Bus" IEEE IPMHVC, 2010
- [EPC-02] EPCOS, « UltraCap™ double layer capacitors - A new energy storage device for peak power applications », Product Profile, 2002.
- [FAA-05] A. Duquette "FAA Proposes Rule to Reduce Fuel Tank Explosion Risk", Release note from Federal Aviation Administration, Nov 2005
- [FAR-07] R. Faranda, M. Gallina and D.T Son. "A new simplified model of Double-Layer Capacitors", IEEE, 2007
- [FER-09] D. Feroldi, M. Serra, J. Riera, "Energy Management Strategies based on efficiency map for Fuel Cell Hybrid Vehicles", JPS - Journal of Power Sources, May 2009
- [FLY-04] P. Flynn, "Meeting the Energy Needs of Future Warriors", Committee on Soldier Power/Energy Systems, Board on Army Science and Technology, National Research Council of the Nation Academies, Ed. The National Academies Press, 2004
- [FON-05] G. Fontès, "Modélisation et caractérisation de la pile PEM pour l'étude des interactions avec les convertisseurs statiques", Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Sep 2005
- [FON-07] G. Fontes, C. Turpin, S. Astier, T.A. Meynard "Interactions Between Fuel Cells and Power Converters: Influence of Current Harmonics on a Fuel Cell Stack", Power Electronics, IEEE, 2007
- [FOR-06] D.G. Forchetti, J.A. Solsona , G.O. Garcia, M.I. Valla "A control strategy for stand-alone wound rotor induction machine", EPSR - Electric Power Systems Research, Feb 2006
- [FRI-09] K. A. Friedrich, J. Kallo, J. Schirmer, G. Schmitthals, "Fuel Cell Systems for Aircraft Application", Transaction on ECS - The Electrochemical Society, 2009
- [FUG-02] W.A. Fuglevand "Fuel Cell Power Sustum Having DC to DC Conversion, Method of Distributing DC Power, and Method of Operating a Fuel Cell Power System", United States Patent Application Publication, Pub. No. : US 2002/0177021 A1, Nov 2002

- [GAR1-07] M. Garcia-Arregui, C. Turpin, S. Astier, “Direct connection between a fuel cell and ultracapacitors”, IEEE ICCEP — International Conference on Clean Electrical Power, May 2007
- [GAR-07] M. Garcia-Arregui, “Theoretical study of a power generation unit based on the hybridization of a fuel cell stack and ultracapacitors”, PhD thesis manuscript (in english), Institut National Polytechnique, Toulouse, Dec 2007 - <http://ethesis.inp-toulouse.fr/archive/00000521/>
- [GHA-11] M. Ghanes, M. Hilairet, J-P. Barbot, O. Bethoux “Singular Perturbation Control for Coordination of Converters in a Fuel Cell System”, IEEE Electrimacs conference, 2011
- [GIE-04] M. J. Gielniak and Z. J. Shen, “Power management strategy based on game theory for fuel cell hybrid electric vehicles,” in Proc. 60th IEEE Veh. Technol. Conf., Sep 2004
- [GIR-10] S. Girinon, “Étude de la Stabilité et de la Qualité des Réseaux Distribués de Puissance”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Mar 2010
- [GRO-04] F. W. Grover, “Impedance Calculations”, Dover Publication, 2004
- [GU-07] W. Gu, R. N. Carter, P. T. Yu, H. A. Gasteiger, “Start/Stop and Local H<sub>2</sub> Starvation Mechanisms of Carbon Corrosion: Model vs. Experiment”, Trans on ECS - The Electrochemical Society, 2007
- [GUA-12] H. Gualous, R. Gallay, M. Al Sakka, A. Oukaour, B. Tala-Ighil, B. Boudart, “Calendar and cycling ageing of activated carbon supercapacitor for automotive application”, Elsevier, Microelectronics Reliability, Jul 2012
- [GUR-09] Y. Gurkaynak, A. Khaligh, A. Emadi “State of the Art Power Management Algorithms for Hybrid Electric Vehicles”, IEEE VPPC - Vehicle Power and Propulsion Conference, 2009
- [HAE-11] Haejoon An, Heesang Ko, Hongwoo Kim, Hyungoo Kim, Seokwoo Kim, Gilsoo Jang, Byongjun Lee, “Modeling and voltage-control of variable-speed SCAG-based wind farm”, Renewable Energy International Journal, Oct 2011
- [HEI-07] H.J. Heinrich, “Fuel Cell Systems For Aeronautic Applications: A Clean Way from Kerosene to Energy”, DGLR conference - German: Deutsche Gesellschaft für Luft- und Raumfahrt, May 2007
- [HEI-10] F. Heider, “Economical Comparison between Standardized Cable Architecture and cable Architecture Especially Designed for Low-Cost-Carrier Based on Modern Short- and Midrange Aircraft” bachelor thesis (in German). Helmut-Schmidt University, Hamburg, Germany, 2010.
- [HER-06] D. Hernández-Torres, “Commande Robuste de Générateurs Electrochimiques Hybrides”, Thèse de l’Université de Grenoble, Aug 2006
- [HIE-06] V. Hiebel, “Fuel Cell Systems For Aeronautic Applications”, ICAS — International Council of the Aeronautical Sciences, Sept 2006
- [HIN-12] M. Hinaje, S. Raël, J.-P. Caron, B. Davat, “An innovating application of PEM fuel cell: Current source controlled by hydrogen supply”, International Journal of Hydrogen Energy, Jul 2012
- [HON-08] J. Hong, S. Jung, P.D. Thang, K. Nam, “Hybridization Fuel Cell with Supercapacitor for FCEV”, IEEE APEC Applied Power Electronics Conference and Exposition, Feb 2008
- [HOR-07] Horizon Fuel Cell Technologies , “HyFish : World’s first zero emission, hydrogen fuel cell jet”, <http://www.horizonfuelcell.com/file/hyfish.pdf>, Apr 2007



- [HOR-12] T. Hordé, “Étude de systèmes pile à combustible hybridés embarqués pour l’aéronautique”, GDR PACS — Groupement De Recherche Piles A Combustible et Systèmes, Jun 2012
- [IBA-06] A. F. Ibarreta, C.-J. Sung, “Optimization of Jet-A fuel reforming for aerospace applications”, *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 31, no. 8, pp. 1066-1078, Feb 2006
- [INA-06] M. Inaba, T. Kinumoto, M. Kiriake, R. Umebayashi, A. Tasaka, Z. Ogumi, “Gas crossover and membrane degradation in polymer electrolyte fuel cells”, *Electrochimica Acta*, Aug 2006
- [JAA-09] A. Jaafar, C. Akli, B. Sareni, X. Roboam, and A. Jeunesse, “Sizing and energy management of a hybrid locomotive based on flywheel and accumulators,” *IEEE Trans. Veh. Technol.*, vol. 58, no. 8, pp. 3947—3958, Oct. 2009.
- [JAA-11] A. Jaafar, “Traitement de la mission et des variables environnementales et intégration au processus de conception systémique”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Sep 2011
- [JEO-05] S. Jeon, J. Lee, S. Jeong, T. Lim “Hyundai Supercapacitor Fuel Cell Hybrid Electric Vehicle”, *Proceeding of the 21st Annual Electric Vehicle Symposium*, Apr 2005
- [JIA-06] Z. Jiang, R.A. Dougal, “A Hybrid Fuel Cell Power Supply with Rapid Dynamic Response and High Peak-Power Capacity”, *IEEE APEC - Applied Power Electronics Conference and Exposition*, Mar 2006
- [KAL-08] Dr. J. Kallo, P. Schumann, C. Graf, Prof. K.A. Friedrich, “Development, Testing and Optimization of Fuel Cell Systems for Aircraft Application”, *Fuel Cell Seminar & Exposition* , Oct 2008
- [KAL-10] J. Kallo, G. Renouard-Vallet, M. Saballus, G. Schmithals, J. Schirmer, K.A. Friedrich, “Fuel Cell System Development and Testing for Aircraft Applications”, *18th World Hydrogen Energy Conference — WHEC*, 2010
- [KAL-11] J. Kallo, J. Ungethüm, K. A. Friedrich “Fuel Cell systems for mobile applications: a comparison of automotive and aeronautic system design”, public DLR presentation, Sep 2011
- [KAL-12] J. Kallo, “Fuel cell and batteries for the aircraft application”, *WHEC - World Hydrogen Energy Conference*, Apr 2012
- [KOC-06] S. S. Kocha, J. D. Yang, J. S. Yi, “Characterization of Gas Crossover and Its Implications in PEM Fuel Cells ”, *AIChE Journal - American Institute of Chemical Engineers*, Feb 2006
- [KOD-09] J. Kodjo, “Contribution à la conception d’un réseau maillé HVDC, hybridation d’une source électrique”, *Mémoire du Conservatoire National des Arts et Métiers — CNAM*, Dec 2009
- [LAE-12] D. Van Laethem, “Modélisation et Simulation d’une Hybridation Directe Pile à Combustible - Supercondensateur”, *Rapport de stage Master Recherche de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT)*, Oct 2012
- [LAC-04] J. Lachaize, “Etude des stratégies et des structures de commande pour le pilotage des systèmes énergétiques à Pile à Combustible (PAC) destinés à la traction.”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Sep 2004
- [LAJ1-04] W. Lajnef, J-M Vinassa, O. Briat, S. Azzopardi, C. Zardini “Study of Ultracapacitors Dynamic Behaviour Using Impedance Frequency Analysis on a Specific Test Bench”, *IEEE*, 2004

- [LAJ-04] W. Lajnef, J-M Vinassa, S. Azzopardi, O. Briat, E. Woïrgard, C. Zardini, J.L. Aucouturier “Ultracapacitors Modeling Improvement Using an Experimental Characterization Based on Step and Frequency Responses”, IEEE-PESC, 2004
- [LAN-06] O. Langlois, “Conception d’un réseau de secours électrique pour l’aéronautique”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Jun 2006
- [LAP-08] N. Lapeña, J.Mosquera, E. Bataller, F. Ortí and C. Barberán, “The Fuel Cell Demonstrator Airplane”, Jornada de Nuevas Tecnologías Energéticas en el Sector Aeronáutico INTA - Oct 2008
- [LAV-11] J. F. Laval “Airbus Alternative Fuels : Targeting carbon-neutral aircraft operations”, Airbus Media Presentation, Sep 2011
- [LEN-05] B. Lenz, T. Aicher, “Catalytic autothermal reforming of Jet fuel”, JPS - Journal of Power Sources, vol. 149, pp. 44-52, Feb 2005
- [LIN-03] C.-C. Lin, H. Peng, J. W. Grizzle, and J.-M. Kang, “Power management strategy for a parallel hybrid electric truck,” IEEE Trans. Control Syst. Technol., vol. 11, no. 6, pp. 839—848, Nov. 2003.
- [LIN-04] C.-C. Lin, H. Peng, and J. W. Grizzle, “A stochastic control strategy for hybrid electric vehicles,” in Proc. Amer. Control Conf., Boston, MA, Jun. 30—Jul. 2, 2004
- [LIU-09] H. Liu, J. Zhang, “Electrocatalysis of Direct Methanol Fuel Cells”, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Oct 2009
- [MAA-07] S. Maass, F. Finsterwalder, G. Frank, R. Hartmann, C. Merten, “Carbon support oxidation in PEM fuel cell cathodes”, JPS — Journal of Power Sources, Aug 2007
- [MAK-04] R. Makharia, P. Yu, J. Pisco, S. Kocha, H. Gasteiger “Characterization of Carbon Oxidation: Increased Stability of PEM Fuel Cell Electrodes by Graphitization of Carbon Supports”, International Symposium on Proton Conducting Membrane Fuel Cells , Oct 2004
- [MAR-10] G. Maranzana, O. Lottin, C. Moyne, J. Dillet, A. Lamibrac, J. Mainka, S. Didierjean, “Internal Currents in PEMFC during Start-up or Shut-down”, WHEC - World Hydrogen Energy Conference, May 2010
- [MAX-12] Maxwell, “Datasheet 16V Small Cell Module”, Document number: 1015371.5, maxwell.com, Aug 2012
- [MEH-89] I.S. Mehdi, E.J. Woods, “Electrical Power Systems for High Mach Vehicles”, IEEE Energy Conversion Engineering Conference, 1989
- [MER-02] J. van de Merwe “Proton Exchange Membrane (PEM) Fuel Cell : Installation, Testing and Modelling”, Mémoire de Diplôme de Recherche Universitaire (DRU) de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Jun 2002
- [MES-07] V. Mester, “Conception Optimale Systémique des Composants des Chaînes de Traction Electrique”, Thèse de doctorat de l’université Centrale de Lille, May 2007
- [MIL-94] J. R. Miller, A. F. Burke. “Electric Vehicle Capacitor Test Procedures Manual”. Rapport de l’Idaho National Engineering Laboratory, 1994
- [MOU-10] S. J. Moura, J. B. Siegel, D. J. Siegel, H. K. Fathy, A. G. Stefanopoulou, “Education on Vehicle Electrification: Battery Systems, Fuel Cells, and Hydrogen”, IEEE VPPC - Vehicle Power and Propulsion Conference, 2010
- [MUL-08] R. Muller, “Project Final Report Publishable Summary”, ACARE the Advisory Council for Aeronautics Research in Europe, Jul 2008

- [NIS-05] Nissan Motors Co. “Fuel Cell System”, International Application Published Under the Patent Cooperation Treaty (PCT), Int. Pub. No. : WO 2005/107360 A2, Nov 2005
- [NOI-13] P. Noiying, “Modélisation locale d’une cellule de pile à combustible pour l’étude de systèmes électriques”, Thèse de l’Université de Lorraine, Jan 2013
- [PAY-06] A. Payman, S. Pierfederici, D. Arab-Khaburi, F. Meibody-Tabar, “Flatness Based Control of a Hybrid System Using a Supercapacitor as an Energy-Storage Device and a Fuel Cell as the Main Power Source”, IEEE IECON - Industrial Electronics Conference, 2006
- [PAY-08] A. Payman, S. Pierfederici, F. Meibody-Tabar, “Energy control of supercapacitor/fuel cell hybrid power source”, Energy Conversion and Management, 2008
- [PIC-01] A. Piccolo, L. Ippolito, V. Galdi, and A. Vaccaro, “Optimization of energy flow management in hybrid electric vehicles via genetic algorithms,” in Proc. IEEE/ASME Int. Conf. Adv. Intell. Mechatron., Corno, Italy, Jul. 8—12, 2001
- [PHL-09] V. Phlippoteau, “Outils et Méthodes pour le diagnostic d’un état de santé d’une pile à combustible”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Jul 2009
- [PIP-09] “Etude de la chaîne de valeur dans l’industrie aéronautique — Chapitre 3” , Pôle interministériel de prospective et d’anticipation des mutations économiques (PIPAME ), sept 2009
- [PRA-11] J. W. Pratt, L. E. Klebanoff, K. Munoz-Ramos, A. A. Akhil, D. B. Curgus, B. L. Schenkman , “Proton Exchange Membrane Fuel Cells for Electrical Power Generation On-Board Commercial Airplanes”, Sandia National Laboratories Report, May 2011
- [RAB-08] S. Rabih “Contribution à la modélisation de systèmes réversibles de types électrolyseur et pile à hydrogène en vue de leur couplage aux générateurs photovoltaïques”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Oct 2008
- [RAË-05] S. Raël, “Composant nouveaux pour le stockage et la génération d’énergie électrique : modélisation électrique, caractérisation, et mise en oeuvre”, HDR INP Lorraine, 2005
- [RAF-06] F. Rafik, H. Gualous, R. Gallay, A. Crausaz and A. Berthon. “Frequency, thermal and voltage supercapacitor characterization and modeling”, Journal of Power Sources, 2006
- [RAF-10] K. Rafal, B. Morin, X. Roboam, E. Bru, C. Turpin, H. Piquet, “Hybridization of an aircraft emergency electrical network: Experimentation and benefits validation”, IEEE VPPC - Vehicle Power and Propulsion Conference, Sep 2010
- [RAJ-07] F. Rajaei, “Control Strategies for Hybrid Electric Vehicles: Evolution, Classification, Comparison, and Future Trends”, IEEE Transactions on Vehicular Technology, 2007
- [RAJ-08] K. Rajashekara, J. Grieve, and D. Daggett, “Hybrid fuel cell power in aircraft”, IEEE Industry Applications Magazine, 2008.
- [RAL1-11] O. Rallières, “Modélisation et Caractérisation de Piles A Combustible et Electrolyseurs PEM”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Dec 2011
- [RAL-11] O. Rallières, J. Mulot, D. Hissel , C. Turpin, F. Harel, M.C. Pera, G. Fontès, S. Astier, “Impact des ondulations de courant générées par un convertisseur DC-DC boost sur une pile à combustible PEM ”, EF- Conférence Electronique du Futur, Dec 2011
- [RAM-04] V. Ramani, H.R. Kunz, J.M. Fenton, “Investigation of Nafion®/HPA composite membranes for high temperature/low relative humidity PEMFC operation”, Journal of Membrane Science, 2004

- [RAN-10] C.M. Rangel, R.A. Silva, M.A. Travassos, T.I. Paiva, V.R. Fernandes, “Fuel Starvation: Irreversible Degradation Mechanisms in PEM Fuel Cells”, WHEC - World Hydrogen Energy Conference, May 2010
- [RAV-09] P. Ravel, “Electrical distribution of high power : impacts, technologies”, Proc. More Electric Aircraft Forum, Barcelona, Spain, Sep 2009
- [REN1-10] G. Renouard-Vallet, J. Kallo, M. Saballus, G. Schmithals, J. Schirmer, “Fuel Cells for Aircraft Applications”, Fuel Cell Seminar, Oct 2010
- [REN-10] G. Renouard-Vallet, “The future of fuel cells in civil aircraft?”, European Commission DG ENV - News Alert Issue 221, Dec 2010
- [ROB-11] X. Roboam, O. Langlois, H. Piquet, B. Morin, C. Turpin, “Hybrid power generation system for aircraft electrical emergency network” Electrical Systems in Transportation, IET 2011
- [ROE-04] L. M. Roen, C. H. Paik and T. D. Jarvi, “Electrocatalytic Corrosion of Carbon Support in PEMFC Cathodes”, Electrochemical and Solid state Letters, ECS - The Electrochemical Society, 2004
- [ROS-07] J.A. Rosero, J.A. Ortega, E. Aldabas, L. Romeral, “Moving Toward a More Electric Aircraft”, 8 IEEE A&E systems Magazine, Oct 2007
- [ROS-12] R. Rose, “Fuel Cells and Hydrogen, A Cost-Competitive, Low-Carbon Reality Alternative”, AAAE Airports Energy Efficiency Forum, Feb 2012
- [SAI1-04] R. Saïssset, C. Turpin, S. Astier, J.M. Blaquiere, “Electricity Generation Starting From A Fuel Cell Hybridized With A Storage Device”, IEEE VPP04, Paris, Oct 2004
- [SAI-04] R. Saisset, “Contribution à l’étude systémique de dispositifs énergétiques à composants électrochimiques.”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Apr 2004
- [SCH1-05] L. Schindele, M. Braun, H. Spath “The influence of Power Electronic Dynamics on PEM Fuel Cell-System”, Power Electronics and Applications European Conference, 2005
- [SCH-05] G. Schiller, “SOFC Development for Aircraft Application”, 1st International Workshop on SOFCs: How to Bridge the Gap from R & D to Market ?, may 2005
- [SCH-11] I. A. Schneider and S. von Dahlen, “Start-Stop Phenomena in Channel and Land Areas of a Polymer Electrolyte Fuel Cell”, Electrochemical and Solid state Letters, ECS - The Electrochemical Society, 2011
- [SIN-07] M. Sinnett, “787 No-Bleed Systems: Saving Fuel and Enhancing Operational Efficiencies”, Aero Quarterly, Apr 2007
- [SOL1-11] J. S. Martínez, R. I. John, D. Hissel, M. C. Péra, “A survey-based type-2 fuzzy logic system for energy management in hybrid electrical vehicles”, Information Sciences Journal, Dec 2011
- [SOL-11] J. S. Martínez, D. Hissel, M. C. Péra, M. Amiet, “Practical Control Structure and Energy Management of a Test bed Hybrid Electric Vehicle”, IEEE trans. on Vehicular Technology, Nov 2011
- [TAN-05] H.Tang, Z. Qi, M. Ramani, J. F. Elter “PEM fuel cell cathode carbon corrosion due to the formation of air/fuel boundary at the anode”, JPS — Journal of Power Sources, Nov 2005

- [TAT-98] E. D. Tate, S. P. Boyd, “Finding ultimate limits of performance for hybrid electric vehicles”, 1998. SAE Paper 00FTT-50.
- [THO1-09] P. Thounthong, S. Raël, B. Davat, “Energy management of fuel cell/battery/supercapacitor hybrid power source for vehicle applications”, JPS — Journal of power Sources, Jan 2009
- [THO-07] P. Thounthong, P. Sethakul, “Analysis of a Fuel Starvation Phenomenon of a PEM Fuel Cell”, PCC’07 - Power Conversion Conference, 2007
- [THO-09] P. Thounthong, V. Chunkag, P. Sethakul, B. Davat, M. Hinaje, “Comparative Study of Fuel-Cell Vehicle Hybridization with Battery or Supercapacitor Storage Device”, IEEE trans. on Vehicular Technology, Oct 2009
- [THO-10] P. Thounthong, S. Pierfederici, J. P. Martin, M. Hinaje, B. Davat, “Modeling and Control of Fuel Cell/Supercapacitor Hybrid Source Based on Differential Flatness Control”, IEEE trans. on Vehicular Technology, Jul 2010
- [TIE-10] F. Tiefensee, M. Hilairat, D. Normand-Cyrot, O. Bethoux, “Sampled-data energetic management of a fuel cell/supercapacitor system”, IEEE VPPC - Vehicle Power and Propulsion Conference, Sep 2010
- [TOY-12] Toyota, “TMC Announces Status of Its Environmental Technology Development, Future Plans”, TMC official announcement available online at <http://www2.toyota.co.jp/en/news/12/09/0924.pdf>, Sept 2012
- [TUR-08] C. Turpin, “Piles à combustible et composants électrochimiques de stockage : caractérisation, modélisation et mise en œuvre dans des systèmes énergétiques”, HDR de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT) -2008
- [TUR-09] C. Turpin, S. Boblet, “Vers une introduction des piles à combustible dans l’aéronautique ?”, Congrès « Aéronefs plus électriques », Jan 2009
- [TUR-12] C. Turpin, S. Astier, X. Roboam, B. Sareni, H. Piquet, “Gestion de l’énergie dans les systèmes électriques hybrides avec stockage”, pp. 259–325 (66 pages). Sous la direction de Xavier Roboam, Conception systémique pour la conversion d’énergie 1 – Gestion, analyse et synthèse, Lavoisier, Paris, Hermes, ISBN 978–2–7462–3192–4, 2012
- [TUR1-12] Turpin, S. Astier, X. Roboam, B. Sareni, H. Piquet, “Energy Management in Hybrid Electrical Systems”, pp. 223–283 (60 pages). Sous la direction de Xavier Roboam, Systemic Design Methodologies for Electrical Energy Systems – Analysis, Synthesis and Management, ISTE, London, WILEY, ISBN 978–1–84821–388–3, 2012
- [VOI-09] R. Voit-Nitschmann, L. Schumann, S. Geinitz “Hydrogenius : Flying with a Fuel Cell” EWAVE - European Workshop on Aircraft Design Education, May 2009
- [WAN-08] Y. Wang “Modeling of Ultracapacitor Short-term and Long-term Dynamic Behavior”, Thesis of The University of Akron, Aug 2008
- [WAS-10] S. Wasterlain, “Approches Expérimentales et Analyse Probabiliste pour le Diagnostic de Piles A Combustible de Type PEM”, Thèse de l’Université de Technologie Belfort-Montbéliard (UTBM), Feb 2010
- [WEI-93] J.A. Weimer, “Electrical Power Technology for the More Electric Aircraft”, AIAAIEEE 12th Digital Avionics Systems Conference, Mar 1993
- [WET-09] B. Wetton, R. Bradean, K. Eggen, “A Model of PEM Fuel Cell Start-up Including Capacitance and Electrical Coupling Effects”, ISTP - International Symposium on Transport Phenomena, Jul 2009

- [WÖR-09] A. Wörner, “Fuel Cells and Hydrogen for Airborne Applications”, NWV — 7th National Hydrogen & Fuel Cell Conference, Dec 2009
- [WUT-10] Warsaw University of Technology — Electrical Engineering — Institute of Control and Industrial Electronics, “Integral Anti-Windup for PI Controllers”, <http://www.isep.pw.edu.pl/ZakladNapedu/lab-ane/anti-windup.pdf>, 2010
- [ZAN-10] M. Zandi, “Contribution au pilotage des sources hybrides d’énergie électrique”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nov 2010
- [ZEI-11] M. Zeidan, “Etude expérimentale et modélisation d’une micropile à combustible à respiration”, Thèse de l’Institut National Polytechnique de Toulouse (INPT), Jan 2011
- [ZHA1-08] Y. Zhan, Y. Guo, J.-G. Zhu, H. Wang, “Power Converters and Controllers for UPS Applications with Backup PEM Fuel Cell”, IEEE Industry Applications Society Annual Meeting - IAS , pp. 1-8, 2008
- [ZHA-06] 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”, JPS - Journal of Power Sources, Oct 2006
- [ZHA-08] J. Zhang, “PEM Fuel Cell Electrocatalysts and Catalyst Layers: Fundamentals and Applications”, Springer, Oct 2008
- [ZHA-10] H. Zhao, A. Burke, “Fuel Cell Powered Vehicles Using Supercapacitors: Device Characteristics, Control Strategies, and Simulation Results”, Research report of the Institute of Transportation Studies - University of California, Davis - UCD-ITS-RR-10-01, Jan 2010
- [ZHO-09] T. Zhou, “Commande et Supervision Energétique d’un Générateur Hybride Actif Eolien incluant du Stockage sous forme d’Hydrogène et des Super-Condensateurs pour l’Intégration dans le Système Electrique d’un Micro Réseau”, Thèse de l’Ecole Centrale de Lille (EC-Lille), Jun 2009
- [ZHU-04] Y. Zhu, Y. Chen, G. Tian, H. Wu, and Q. Chen, “A four-step method to design an energy management strategy for hybrid vehicles,” in Proc. Amer. Control Conf., Jun./Jul. 2004
- [ZUB-00] L. Zubieta, R. Bonert. “Characterization of Double-Layer Capacitors for Power Electronics Applications”. IEEE-IAS, 2000