

# Optimisation des conditions de fonctionnement en vue d'augmenter la durée de vie de la PEMFC

Rania Mezzi<sup>1,2,3</sup>, Nadia Yousfi Steiner<sup>1,2,3</sup>, Marie-Cécile Péra<sup>1,2</sup>, Daniel Hissel<sup>1,2</sup>,  
Laurent Larger<sup>1</sup>

1 FEMTO-ST, CNRS, Univ. Bourgogne Franche-Comte, Belfort, France

2 FCLAB, CNRS, Univ. Bourgogne Franche-Comte, Belfort, France

3 Labex ACTION, CNRS, Belfort, France

## THEMATIQUE

- Energie - Environnement

Section CNU : 61,63

## RESUME

La pile à combustible (PàC) à membrane échangeuse de protons PEMFC est une alternative prometteuse aux modes de production d'énergie classiques. Elle a attiré beaucoup d'attention ces dernières décennies en raison de ses multiples avantages [1]. Néanmoins, certaines limites concernant sa durée de vie, sa fiabilité et son coût empêchent son déploiement à grande échelle. Il est donc important d'aborder ces freins et de proposer des solutions pour optimiser sa durée de vie, sachant que le vieillissement de ses composants est un processus inévitable et qu'il dépend en grande partie des conditions opératoires. La tension des PàCs dépend aussi fortement des conditions opératoires: notamment la température  $T$ , la pression des gaz à l'entrée, la sur-stœchiométrie de l'oxygène CSF, l'humidité relative des gaz entrants et le courant  $I$ . Ainsi, un choix judicieux de ces paramètres peut empêcher certaines dégradations et limiter le vieillissement des composants. L'objectif de ce travail est de déterminer les valeurs optimales de ( $T$ , CSF,  $I$ ) pour fournir la puissance requise par la charge, tout en prolongeant la durée de vie de la PàC et en maximisant son rendement. La technique proposée permet d'éviter les dégradations et de ralentir le taux de vieillissement des composants en maintenant la valeur de la tension à une valeur optimale.

**Mots-clés :** PEMFC, optimisation, conditions opératoires, durée de vie.

## 1. INTRODUCTION

La durabilité, le coût et la fiabilité demeurent les obstacles techniques majeurs qui retardent la commercialisation des PEMFCs [1].

Les performances de la PàC peuvent être affectées par de nombreux facteurs tels que le vieillissement des composants, et les défauts des auxiliaires, et un choix judicieux des conditions de fonctionnement peut prévenir certains défauts et décélérer les mécanismes de vieillissement. Dans la littérature scientifique, de nombreuses recherches mettent en

évidence l'effet des conditions opératoires sur la performance des PàC. Becherif et al. [2] propose de calculer la stœchiométrie de référence qui correspond à la puissance maximale de la pile à combustible, tandis que Abdi et al. [3] a étudié l'effet de la température et de la teneur en eau de la membrane sur la puissance de sortie de la pile à combustible et une commande en mode glissant a été calculée. Beaucoup de travaux [4-7] ont proposé l'optimisation des conditions de fonctionnement afin de maximiser la puissance et le rendement du système. Cependant, à notre connaissance, l'optimisation des conditions opératoires pour améliorer la durabilité de la PEMFC n'est pas traitée dans la littérature. La dépendance de la durée de vie de la PEMFC des conditions opératoires est évoquée dans [8]. Un état de l'art de la durabilité du catalyseur pour la pile à combustible PEM est également proposé par [9], cette étude a confirmé que les conditions opératoires: la température, l'humidité et la tension des cellules ont un impact important sur la durabilité du catalyseur et donc sur la durée de vie de la pile à combustible. Dans [10], les auteurs mettent également en évidence l'effet de la tension de la cellule et des conditions opératoires sur la réduction de la durabilité des piles à combustible. Une optimisation des conditions de fonctionnement pourrait être une solution efficace pour éviter les conditions les plus nuisibles et donc prolonger la durée de vie de la pile à combustible.

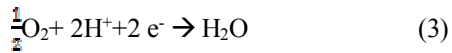
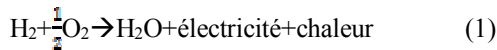
Cet article propose de calculer le triplet de température, de stœchiométrie de l'air et du courant pour alimenter la charge d'une manière qui minimise le taux de dégradation. Il est organisé comme suit: une brève description du système Pile à combustible est donnée dans la section 2. L'algorithme proposé est présenté dans la section 3. Enfin, les résultats de simulations sont discutés dans la section 4, suivis de la conclusion.

## 2. SYSTEME PILE A COMBUSTIBLE

### 2.1. Principe de fonctionnement d'une pile à membrane échangeuse de proton (PEMFC)

Une PàC est un convertisseur électrochimique qui permet d'obtenir de l'électricité, de la chaleur et de l'eau à partir

d'une réaction d'oxydo-réduction entre le dioxygène et le dihydrogène selon la réaction chimique suivante :



Un stack est composé de plusieurs cellules et cette réaction se produit au niveau de chacune d'elles. Une cellule est composée de: deux électrodes (anode et cathode, sièges des deux réactions d'oxydo-réductions Eq. 2, et Eq 3)) séparées par un électrolyte: la membrane, deux joints d'étanchéité, deux connecteurs bipolaires et de couches de diffusion comme indiqué dans la figure 1(a).

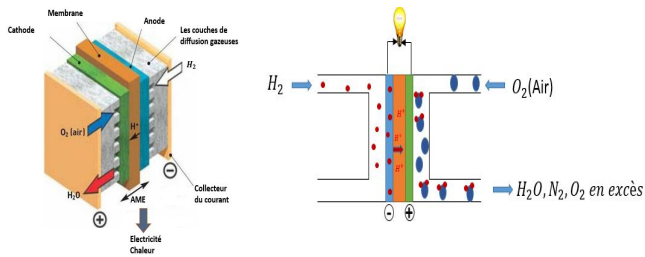


Fig.1 (a): Composition d'une cellule [11], (b) Fonctionnement d'une PEMFC

L'alimentation de la pile à combustible en réactifs (l'hydrogène et l'oxygène) est assurée par les auxiliaires qui garantissent également le contrôle des conditions opératoires (le système de gestion thermique, d'humidification et de refroidissement) ainsi que la mise en forme de l'énergie électrique produite (convertisseur électrique). Le stack et ses auxiliaires forment le système pile à combustible, qui présente une grande complexité.

### 2.2. Auxiliaires

**Circuit de refroidissement:** a pour but premier de maintenir la température nominale de la pile et ainsi de dissiper la chaleur créée par la réaction électrochimique.

**Circuit d'humidification:** permet de faciliter le transport des protons  $H^+$  de l'anode vers la cathode, Ce dernier permet d'humidifier en permanence les réactifs (Air et/ ou Hydrogène) et de contrôler la teneur en eau de la membrane.

**Circuit d'alimentation d'hydrogène:** Ce circuit n'a pas seulement pour fonction d'alimenter le compartiment anodique de la pile en hydrogène mais aussi de le purger afin d'éviter l'accumulation de l'azote et de l'eau et ainsi réduire les risques du noyage.

**Circuit d'alimentation en air:** permet d'alimenter en oxygène le compartiment cathodique. Souvent, les PàC sont soit alimentées directement par l'air ambiant sous pression atmosphérique en utilisant un ventilateur ou au moyen d'un compresseur (fonctionnement sous pression). L'utilisation d'un compresseur apporte une flexibilité et une autonomie au système [12], il permet de fournir des pressions et des débits

d'air variables à la pile en fonction de sa température et son humidité relative afin d'éviter les phénomènes d'assèchement et de noyage. En effet, on est contraint d'envoyer plus de gaz que nécessaire pour éviter l'engorgement des canaux et évacuer l'eau condensée, on parle de sur-stœchiométrie dans ce cas (rapport entre les débits de gaz envoyés et les débits de gaz nécessaire à la réaction électrochimique supérieur à 1).

## 3. OPTIMISATION DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT DE LA PILE

### 3.1. Modèle de la PEMFC

Dans ce qui suit, on va s'intéresser à l'influence de la variation de la température  $T$ , le courant  $I$  ainsi que la sur-stœchiométrie cathodique  $CSF$  et étudier son effet sur la puissance. Le modèle utilisé pour les simulations est un modèle quasi-statique de [13] qui dépend des conditions opératoires qui lui sont appliquées (4). Le modèle considéré est le suivant :

$$U_{cell} = E_{rev}(T, P, HR_{air}) - \frac{RT}{\alpha n F} \ln \left( \frac{I + I_0(T, P)}{I_0(T, P)} \right) - \frac{RT}{\alpha n F} \ln \left( 1 - \frac{I}{I_{lim}(T, P, HR_{air}, CSF)} \right) - R_{ohm}(T, P, HR_{air}, CSF, I) \quad (4)$$

Avec  $E_{rev}$  : Le potentiel de Nernst

$T$ : Température

$I_0$ : Le courant d'échange

$I$ : Courant limite

$I_1$ : Le courant de cross-over de l'hydrogène

$I_{lim}$ : Le courant limite de diffusion

$\alpha$  : Coefficient de transfert de charge

$\beta$ : Le coefficient de diffusion

$F$ : Constante de Faraday

$n$ : Nombre d'électrons échangés

dans la réaction globale

$R$ : Constante des gaz parfaits

$R_{ohm}$  : Résistance ohmique.

### 3.2. Effet de la stœchiométrie, de la température et du courant sur la puissance de la PEMFC

Les travaux menés dans ce cadre consistent à varier la température ainsi que la sur-stœchiométrie en respectant les bornes définies par [14] et observer l'effet de ces variations sur la puissance. La pression et l'humidité relative sont fixées selon les valeurs su tableau 1.

Tableau 1. Plages de variation des paramètres

	T(°C)	CSF	P (bara)	HR <sub>air</sub> (%)
MIN	60	1,5	4	90
MAX	75	2,25	4	90

Une rampe croissante de courant de 0 à 55 A a été appliquée à la PEMFC. Dans un premier temps, la stœchiométrie cathodique a été variée de 1,5 à 2,25, la température, l'humidité relative et la pression respectivement ont été fixées aux valeurs suivantes : 75 °C, 90%, 4 bara, la puissance de sortie de la PEMFC en fonction du courant et pour différentes valeurs de stœchiométries est présentée dans la figure 5. Dans la figure 6, la température a été incrémentée de 60 à 75 °C avec un pas de 5°C et la stœchiométrie a été fixée à 1,87.

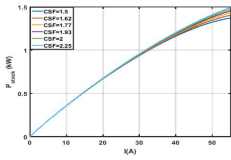


Fig.2 Effet de la variation de la stœchiométrie de l'air sur la puissance du stack

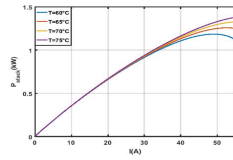


Fig.3 Effet de la variation de la température sur la puissance du stack

L'effet de la température ainsi que la stœchiométrie sur la puissance du stack est négligeable pour des courants inférieurs à 30 A. En effet, les courbes de puissance sont confondues pour  $I < 30$  A. Pour des courants supérieurs à 30 A, plus le courant augmente plus l'effet de T et CSF est notable.

Ces simulations montrent que (T, CSF, I) sont des paramètres pertinents qui ont un effet sur la pile et par la suite ce triplet pourrait être utilisé pour la correction et des défauts. La manière dont la puissance évolue en fonction de la température et de la stœchiométrie nous permettra de prendre les décisions adéquates dans le cas d'une dégradation.

### 3.3. Modèle d'optimisation de la pile :

Les simulations faites précédemment ont prouvé que pour  $I > 30$  A, (CSF, T) ont une influence notable sur la valeur de la puissance de la PEMFC. Ainsi il est possible d'augmenter la puissance de la pile en agissant sur (CSF, T).

Un choix judicieux du point de fonctionnement est primordial pour décélérer le taux de dégradation de la PEMFC. En effet, la valeur de la tension de la pile a un effet notable sur sa dégradation [10]. Ainsi un des critères d'optimisation pris en compte dans notre algorithme est la tension de référence pour laquelle la vitesse de dégradation des composants est décélérée.

Le choix de la fonction objective (Eq. 5) devrait satisfaire deux critères qui sont :

- alimenter la charge avec la puissance  $P_{ch}$  demandée,
- respecter la tension de référence  $U_{ref}$ .

Ainsi notre problème d'optimisation consiste donc à calculer le triplet (T, CSF, I) permettant de minimiser la fonction objective suivante :

$$f = |P_{ch} - P_{FC}| + |U_{ref} - U_{FC}| \quad (5)$$

En respectant les contraintes données dans le tableau 1.

Avec  $P_{ch}$ : Puissance de la charge (W),  $P_{FC}$ : Puissance du stack (W),  $U_{ref}$ : Tension de référence (V),  $U_{FC}$ : Tension du stack (V)

Un algorithme d'optimisation sera développé et appliqué à la pile et les valeurs de (T, CSF, I) sont calculées pour minimiser f.

## 4. RESULTATS DE SIMULATION

Les résultats de simulation sont donnés dans la figure ci-dessous :

Puissance

Courant

Tension de la cellule

Fonction d'évaluation

Stœchiométrie de l'air

Température

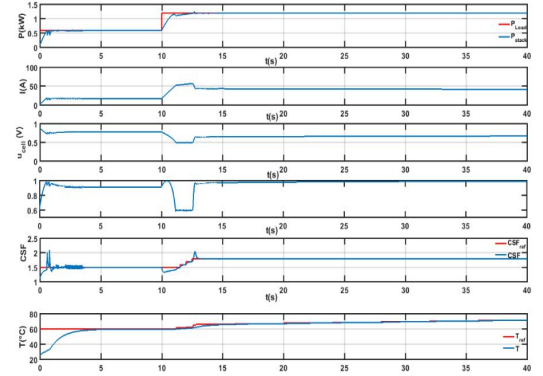


Fig.4 Evolution de la tension, le courant, la puissance et des conditions opératoires du stack, ainsi que de la fonction d'évaluation.

L'algorithme développé a permis de calculer les valeurs de (T, CSF, I) permettant d'atteindre la puissance de la charge d'une part et de respecter la valeur de la tension de référence d'une autre part.

Une fonction d'évaluation a été introduite afin de comparer la tension du stack à la tension de référence. Cette fonction est égale à 1 quand  $U_{FC} = U_{ref}$ .

Ainsi l'objectif de l'algorithme est atteint et les valeurs de (T, CSF, I) calculées présentent un compromis entre l'alimentation de la charge avec la puissance demandée et la prise en compte des conditions dégradantes de la pile. En effet, les conditions de fonctionnement sont calculées de façon à ce que la tension de la pile soit égale à la tension de référence (la vitesse de dégradation des composants pour cette tension est décélérée).

## 5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Un premier modèle quasi-statique de la pile a été implanté sur Matlab Simulink. Les résultats de simulation de ce modèle pour différentes températures et stœchiométries montrent que les conditions opératoires ont un effet notable sur le fonctionnement de la pile et que pour des valeurs bien déterminées du triplet (T, CSF, I) on est capable d'optimiser le fonctionnement de la pile en utilisant l'algorithme proposé.

Le modèle quasi statique utilisé actuellement pour étudier l'influence de (T, CSF, I) devrait évoluer pour intégrer le vieillissement de la pile.

Ces tâches doivent être réalisées afin de disposer d'un modèle adapté au FTC (Fault Tolerant Control).

Pour valider notre modèle qui sera un modèle qui tient compte des dégradations qui pourront se produire dans la pile, on souhaite générer dans un premier temps une base de données expérimentale avec des conditions opératoires variables. Ensuite, un pronostic de la pile en utilisant le Réservoir Computing est prévu, la sortie du pronostic sera utilisée pour reconfigurer en temps réel le contrôle dans un objectif de continuité de fonctionnement du système pile,

d'amélioration de ses performances et/ou d'augmentation de sa durée de vie.

## 6. REMERCIEMENTS

Ce travail est financé par le Labex ACTION (contract ANR-11-LABX-0001-01).

## 7. REFERENCES

- [1] U.S. Department of Energy, <https://energy.gov/eere/fuelcells/fuel-cells>
- [2] M. Becherif, et D. Hissel. « MPPT of a PEMFC based on air supply control of the motocompressor group ». *International Journal of Hydrogen Energy*, Bio-Ethanol and Other Renewable Sources and Reforming Process for Sustainable Hydrogen Production, 35, n° 22 (novembre 2010): 12521-30.
- [3] Sh.Abdi,K. Afshar, N. Bigdeli et S. Ahmadi. « A Novel Approach for Robust Maximum Power Point Tracking of PEM Fuel Cell Generator Using Sliding Mode Control Approach (PDF Download Available) », *International Journal of ELECTROCHEMICAL SCIENCE*, 7 (Mai 2012):4192-209.
- [4] Z. Hengbing, et Andrew F. Burke. « Optimization of fuel cell system operating conditions for fuel cell vehicles ». *Journal of Power Sources* 186, n° 2 (15 janvier 2009): 408-16. doi:10.1016/j.jpowsour.2008.10.032.
- [5] J. A. Salva, A. Iranzo, F. Rosa, E. Tapia, E. Lopez et F. Isorna, « Optimization of a PEM fuel cell operating conditions: Obtaining the maximum performance polarization curve », *International Journal of Hydrogen Energy*, The 5th Iberian Symposium on Hydrogen, Fuel Cells and Advanced Batteries (HYCELTEC 2015), 5-8 July 2015, Tenerife, Spain, 41, no 43 (16 novembre 2016): 19713-23, doi:10.1016/j.ijhydene.2016.03.136.
- [6] J. Wu, Q. Liu, et H. Fang. « Toward the optimization of operating conditions for hydrogen polymer electrolyte fuel cells ». *Journal of Power Sources* 156, n° 2 (1 juin 2006): 388-99. doi:10.1016/j.jpowsour.2005.05.091.
- [7] R. Roshandel, T. Parhizgar, «New approach to optimize the operating conditions of a polymer electrolyte membrane fuel cell based on degradation mechanisms». *Energy Systems*, 4, (2013): 219-237
- [8] J. Wu, X. Zi Yuan, J.J. Martin, H. Wang, J. Zhang. « A review of PEM fuel cell durability: Degradation mechanisms and mitigation strategies », *Journal of Power Sources* 184, no 1 (15 septembre 2008): 104-19, doi:10.1016/j.jpowsour.2008.06.006.
- [9] Y. Shao, G. Yin, et Y. Gao, « Understanding and approaches for the durability issues of Pt-based catalysts for PEM fuel cell », *Journal of Power Sources* 171, no 2 (27 septembre 2007): 558-66, doi:10.1016/j.jpowsour.2007.07.004.
- [10] F.A. de Bruijn, V.A.T. Dam, G.J.M. Janssen, « *Review: Durability and Degradation Issues of PEM Fuel Cell Components* », *Fuel Cells* 08 (2008) 3. 1.
- [11] <http://www.voiture-electrique-populaire.fr/enjeux/vehicules-ecologiques/voiture-hydrogene-pile-combustible>
- [12] C. Kunusch, P. Puleston, M. Mayosky, «Sliding-Mode Control of PEM Fuel Cells, *Advances in Industrial Control*», DOI 10.1007/978-1-4471-2431-3\_2, Springer-Verlag London Limited 2012
- [13] Labach, Isabelle. PhD Thesis: Composants et Systèmes de Gestion de l'Energie. Toulouse: Université Fédérale Toulouse Midi-Pyrénées, 2016.