Étude de la Résistance Haute Fréquence d'une PEMFC à l'arrêt et en fonctionnement

Mattéo GANTZER[1], Raphaël RIASSE[2], Stefan GIURGEA[1], Daniel HISSEL[1,3], Nadia YOUSFI-STEINER[1]

[1] Université Marie et Louis Pasteur, UTBM, CNRS, Institut FEMTO-ST, F-90000 Belfort, France
[2] Univ. Grenoble Alpes, CEA, LITEN, 38000, Grenoble, France
[3] Institut Universitaire de France (IUF), F-75000 Paris, France
matteo.gantzer@umlp.fr

RÉSUMÉ - Le démarrage à froid des piles à combustibles à membrane échangeuse de protons représente un des derniers challenges majeurs à leur utilisation pour des applications de transport. Celui-ci repose beaucoup sur le contrôle du contenu en eau de la membrane lors de l'arrêt et la gestion de l'eau produite, qui peuvent être observés par la mesure de la résistance haute fréquence de la pile. Dans cet article, nous présentons une campagne de mesure en deux parties, à l'arrêt puis en fonctionnement. Dans un premier temps, nous avons cartographié la résistance haute fréquence de la pile à l'arrêt pour différents états d'hydratation. Dans un second temps, la mesure de la résistance haute fréquence en fonctionnement nous informe sur la gestion de l'eau pour différentes conditions opératoires, afin d'identifier les plus pertinentes. Le fonctionnement à basses températures positives révèle notamment des dynamiques différentes par rapport aux hautes températures et qui sont précieuses pour le développement de lois de commande facilitant le démarrage en températures négatives.

ABSTRACT - Cold start of Proton Exchange Membrane Fuel Cells remains one of the major challenges to their practical use for mobility applications. Shutdown and cold startup strategies rely heavily on the drying of the fuel cell as well as water management, which can be observed through the high frequency resistance. This article features an experimental campaign unfolding in two parts. First the high frequency resistance of a fuel cell in an idle state was mapped according to temperature and relative humidity. Then, The high frequency resistance was studied for a working fuel cell to unravel water management dynamics and to identify the best operating conditions. Particularly, low-temperature operation appeared to be very different from high-temperature, which is extremely relevant for the development of cold start strategies.

MOTS-CLES - PEMFC, SIE, Résistance Haute-Fréquence, Basse température, Démarrage à froid

1. Introduction

Afin de réduire les émissions de gaz à effet de serre liées au secteur des transports, la motorisation électrique à hydrogène est le sujet d'un intérêt croissant depuis plusieurs années afin de remplacer la motorisation thermique traditionnelle. La technologie de Pile à Combustible à Membrane Échangeuse de Protons (PEMFC) hybridée à un système de stockage d'énergie électrique (batterie et/ou supercondensateur) est perçue comme la plus adaptée aux applications de mobilité [1]. Le projet DURASYS-PAC, dans lequel s'inscrit ce travail, est un projet de recherche du PEPR Hydrogène Décarboné mis en place dans le cadre du plan d'investissement France 2030 et qui vise à améliorer la durabilité des systèmes de propulsions PEMFC dédiés aux applications de transports lourds.

Le démarrage en-dessous de 0°C est l'un des principaux obstacles à ces systèmes. La phase de démarrage à froid, pendant laquelle l'eau de réaction gèle dans le cœur de pile et étouffe la réaction électrochimique en bloquant l'apport des gaz réactifs, peut être dépassée si la pile parvient à augmenter sa température interne au-dessus de 0°C. Pour cela, il est nécessaire que celle-ci ait été préalablement vidée de son eau au moment de l'arrêt et soit opérée lors du démarrage selon des lois de commandes dédiées [2]. L'établissement de telles stratégies repose sur une compréhension approfondie des mécanismes en jeu lors du démarrage ainsi qu'une information sur l'état du système en temps réel afin d'adapter la commande.

La Résistance Haute Fréquence (RHF) d'une pile est un indicateur particulièrement pertinent durant la phase d'assèchement précédant son arrêt et son refroidissement puisqu'elle permet de connaître l'état d'hydratation de la membrane qui préjuge directement de sa capacité à démarrer. En effet, l'eau produite au début du démarrage peut être absorbée par la membrane si celle-ci a été asséchée auparavant, ce qui se traduit par une diminution de la RHF. A l'inverse, la phase d'étouffement se caractérise par une augmentation rapide de la RHF du fait de la formation de glace aux interfaces des couches de l'AME [3].

En conditions de fonctionnement nominales, la RHF est également un indicateur de l'état d'hydratation de la membrane et dépend effectivement des paramètres de fonctionnement tels que l'humidification des gaz réactifs [4]. Plus largement, la spectrométrie d'impédance électrochimique est également utilisée pour étudier l'impact des conditions opératoires et de la gestion de l'eau sur la performance des piles à combustible [5]–[7].

2. Dispositifs et protocoles expérimentaux

La pile considérée dans ce travail est une monocellule PEMFC d'une surface géométrique de 98 cm^2, la cellule complète étant composée de plaques monopolaires en acier inox embouties et d'un Assemblage Membrane-Électrolyte (AME) de 5 couches avec une membrane échangeuse de protons renforcée et très fine de 12 microns (fournisseur GORE). Un banc d'essai développé par le CEA LITEN est utilisé pour opérer la pile à combustible dans les conditions souhaitées. Sa température interne est régulée via le circuit de refroidissement au moyen d'un groupe froid et peut être alimentée en hydrogène et/ou azote à l'anode et en oxygène ou air et/ou azote à la cathode. L'alimentation peut se faire en gaz secs ou humidifiés en passant par des bulleurs propres à chaque circuit d'alimentation.

2.1 Mesures à l'arrêt

Une première campagne de mesure a été réalisée hors fonctionnement avec pour objectif de cartographier la RHF de la cellule en fonction de la température et de l'hygrométrie interne. La pile est alimentée en azote humide à l'anode et à la cathode, le point de rosée des circuits anode et cathode est fixé par la température de leur bulleur respectif et l'Humidité Relative (HR) est réglée par la température interne de la pile.

Les bulleurs n'étant pas refroidis, le point de rosée minimum est fixé à une température de bulleurs de 30°C, ce qui est légèrement supérieur à la température ambiante et en garantit la stabilité. La température des bulleurs n'excède pas 70°C en raison de la difficulté à maintenir un point de rosée stable en entrée de pile à cette température. La température de la pile est supérieure ou égale à la température des bulleurs afin d'éviter toute condensation dans les canaux de distribution des gaz et dans le cœur de pile, ce qui serait susceptible de bloquer partiellement la circulation des gaz et créerait des conditions d'humidité hétérogènes à la surface et dans le volume de la cellule. De plus, elle n'excède pas 85°C afin de rester dans la plage de température interne prévue pour la pile. La circulation des gaz se fait selon un schéma *counter-flow* pour garantir une hygrométrie uniforme sur toute la surface et les débits anode et cathode sont respectivement de 100 NL/h et 460 NL/h, permettant d'avoir la même pression partielle de vapeur en entrée de chaque canal. On peut ainsi faire l'hypothèse que l'humidité relative est la même à l'anode et à la cathode.

Lors de la cartographie, la température de la pile est d'abord égale à la température des bulleurs, puis est successivement réchauffée afin de balayer la plage d'humidités relatives accessibles. Un palier de 2 heures est observé à chaque température durant lequel la membrane s'équilibre avec son environnement et la mesure de RHF se stabilise. Le Tableau I présente l'ensemble des températures de bulleurs et de pile sélectionnées pour cet essai ainsi que l'HR résultante dans la pile.

Tableau I: Matrice de l'humidité relative interne pour l'essai hors fonctionnement

		Température pile						
		30°C	**40°C**	**50°C**	**60°C**	**70°C**	**80°C**	**85°C**
Température bulleurs	**30°C**	100%	58%	34%	21%	14%	9%	7%
	40°C		100%	60%	37%	24%	16%	13%
	50°C			100%	62%	40%	26%	21%
	60°C				100%	64%	42%	34%
	70°C					100%	66%	54%

Des Spectrométries d'Impédance Électrochimique (SIE) en régulation potentiostatique sont réalisées via un potentiostat en injectant un signal de tension sous la forme d'un sinus d'amplitude crête à crête 10 mV. Ce dernier est injecté à différentes fréquences, variant de 10 kHz à 10 Hz (10 fréquences par décade). La tension en circuit ouvert est mesurée pendant 30 secondes préalablement à la SIE et définit la tension DC imposée. Le signal de tension est envoyé par les plaques terminales et la réponse en courant est mesurée au niveau des plaques monopolaires. La charge électronique est physiquement déconnectée de la pile pendant toute la durée de la campagne de cartographie pour éviter tout problème de causalité (Figure 1a), l'impédance des câbles n'a quant à elle pas été mesurée. Une SIE dure environ trois minutes et la RHF est extraite en prenant la partie réelle de l'impédance complexe lorsque sa partie imaginaire est nulle $\boldsymbol{Re}(\underline{Z})|_{-Im(\underline{Z})=0}$. La transition vers la nouvelle hygrométrie suite au changement de palier de température prend environ 20 minutes, au terme desquelles on peut considérer que les conditions dans lesquelles sont réalisées les SIE sont stables. La RHF se décompose en une partie d'ordre protonique et une partie d'ordre électronique. La

première est directement liée à l'état d'hydratation de la membrane et est étudiée en Sous-section 3.1 tandis que la seconde est généralement considérée comme constante. En effet, la résistance électronique est la somme des résistances des matériaux ainsi que les résistances de contact, soit au niveau des connexions électriques, soit aux interfaces des couches poreuses qui constituent l'AME. Dans le cas de notre pile, la résistance électronique est estimée à 0.18 mΩ, et la résistance protonique constitue donc la principale contribution à la RHF. Ainsi, bien que la RHF se soit pas directement égale à la résistance de la membrane, elle en est représentative et peut s'en approcher d'autant plus en retranchant les contributions électroniques.

2.2 Mesures en fonctionnement

Contrairement à une pile à l'arrêt, l'état hydrique de la membrane d'une pile en fonctionnement n'est pas connu. La température du cœur de pile est sensiblement plus élevée que la température mesurée en sortie de refroidissement pile en raison de la chaleur de réaction. L'état d'hydratation de la membrane résulte d'une balance complexe entre la production d'eau liée à la réaction, son évacuation et les phénomènes de transport de l'eau interne à la membrane. La mesure comparée de la RHF en fonctionnement et à l'arrêt peut ainsi nous renseigner sur l'état d'hydratation de la membrane et de la gestion de l'eau sans pour autant donner une image directe et précise du contenu en eau, si ce n'est très macroscopiquement. Afin d'étudier l'influence des conditions opératoires sur le comportement résistif du cœur de pile, plusieurs jeux de paramètres sont sélectionnés parmi 3 niveaux de pressions, 3 couples de stœchiométries, 2 couples d'humidités relatives et 4 températures (Tableau II). Ces niveaux et combinaisons ont été choisis afin de varier la température et les pressions partielles de vapeur d'eau et de réactifs dans un objectif plus large de modélisation du comportement électrochimique de la pile. Certaines combinaisons, marquées en rouge dans le Tableau II, proposent des niveaux de performances et des conditions de gestion de l'eau variées et pertinentes pour l'étude du comportement résistif et de la performance globale de la cellule et seront étudiées en Sous-section 3.2.

Tableau II: Conditions opératoires des courbes de polarisation pour la mesure en fonctionnement

	80°C			70°C			30°C		10°C	
CdP n°	**P**	**$St_{A/C}$**	**$\%HR_{A/C}$**	**P**	**$St_{A/C}$**	**$\%HR_{A/C}$**	**P**	**$St_{A/C}$**	**P**	**$St_{A/C}$**
1	1.5	2/2.5	30/15	1.5	2/2.5	30/15	1.5	1.3/1.6	1.5	1.3/1.6
2	2	1.5/2	30/15	2.5	1.3/1.6	30/15	1.5	2/2.5	1.5	2/2.5
3	2.5	1.3/1.6	30/15	2.5	2/2.5	30/15	2	1.5/2	2	2/2.5
4	2.5	2/2.5	30/15	1.5	1.3/1.6	50/50	2.5	1.3/1.6	2.5	3/4
5	1.5	1.3/1.6	50/50	1.5	2/2.5	50/50	2.5	1.5/2		
6	1.5	2/2.5	50/50	2	1.5/2	50/50	2.5	2/2.5		
7	2.5	1.3/1.6	50/50	2.5	1.3/1.6	50/50				

Pour chaque condition, la Courbe de Polarisation (CdP) est enregistrée et une SIE en régulation galvanostatique est réalisée à chaque palier de courant en injectant un signal sinusoïdal à différentes fréquences, variant de 10 kHz à 1 kHz (10 fréquences par décade). L'amplitude crête-à-crête du signal correspond à 10% de la valeur DC du courant, sauf à courant nul où elle est fixée à 0.25 A. Une SIE dure environ deux minutes, ce qui ne permet pas de réaliser du contrôle en temps réel du système pile à combustible sur la base de cette mesure. Dans le cas d'un système pile à combustible réel, il est possible d'injecter des signaux dans le bus DC via le convertisseur de puissance et de réaliser des SIE dans des conditions dynamiques au moyen d'un algorithme de traitement du signal corrigeant la dérive [8]. La fréquence de mesure de la RHF dépend alors du nombre de périodes de signal prises et peut être augmentée à plusieurs dizaines de Hz afin d'être intégrée à une boucle de régulation.

Lors de la CdP, les courants peuvent aller au-delà de 200 A et le booster de 20 A équipant le potentiostat n'est alors plus capable de dissiper la charge et ne peut donc plus être utilisé pour fournir les signaux nécessaires à toutes les SIE de la CdP. Par conséquent, il a été décidé d'injecter le signal directement dans la commande de la charge électronique : le potentiostat remplace la supervision pour la commande du courant débité tout en superposant l'excitation sinusoïdale et utilise les signaux de courant imposés par la charge pour la mesure d'impédance (Figure 1b).

3. Résultats

3.1 Cartographie RHF vs (%HR,T)

Les études sur le comportement hydrique et résistif des membranes se font généralement dans une configuration ex-situ, c'est-à-dire que la membrane est étudiée seule, hors d'un AME. Nous choisissons de conserver ici une approche "système" en accord avec le sujet du démarrage à froid en proposant d'établir une relation entre la résistance du cœur de pile et les conditions d'humidité et de température sur la base de mesures de RHF réalisées sur une pile monocellule. La Figure 2a présente la forme des SIE obtenues sous atmosphère N_2/N_2 pour une température interne

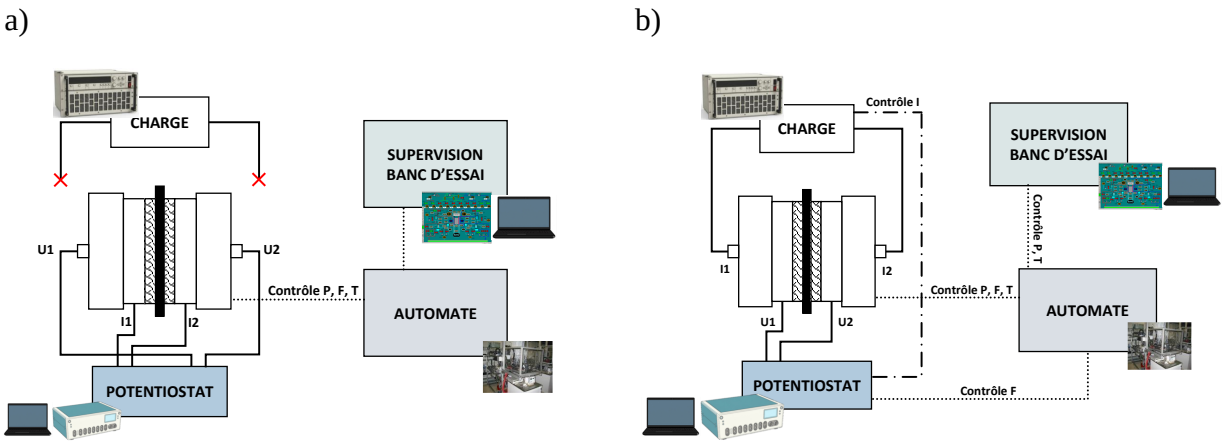


Figure 1: Montage expérimental et raccordement pile-charge-potentiostat pour a) les mesures à l'arrêt et b) les mesures en fonctionnement

de 85°C et différents points de rosée. On retrouve la forme typique des SIE sous cette atmosphère, notamment la pente à 45° attendue lorsque la partie imaginaire de l'impédance est proche de zéro [9]. Ainsi, bien que la RHF de la cellule contienne d'autres informations que la seule résistance de la membrane, ses variations en fonction de l'humidité et de la température, à l'arrêt et en condition d'équilibre thermodynamique, sont représentatives des évolutions de la résistance de la membrane et la RHF peut donc être utilisée comme un observateur macroscopique du contenu en eau de cette dernière.

Dans leur étude de la même membrane GORE que celle utilisée pour cette étude, Lou et al. ont mesuré la résistance d'une membrane seule et en ont tiré une loi de conductivité en fonction du contenu en eau de la membrane et de la température [10]. Ce type d'équation décrivant uniquement la conductivité de la membrane n'étant pas appropriée à notre approche pile-système, il est nécessaire d'établir une nouvelle relation directe entre l'humidité relative, la température de la pile, et la RHF de la cellule. La RHF mesurée pour une température interne fixe de 85°C est représentée face à l'humidité relative en Figure 2b. Pour cette température interne, une série de mesures supplémentaires a été réalisée en gardant la température interne constante et en variant la température des bulleurs. La relation linéaire pour une représentation log-log met clairement en évidence une loi puissance entre la RHF et l'HR. L'influence de la température est quant à elle décrite par une loi d'Arrhenius. On obtient ainsi la loi de comportement de la cellule considérée

$$\mathrm{RHF} = \boldsymbol{A}.\mathrm{HR}^{\boldsymbol{B}} \exp\left(\frac{\boldsymbol{Ea}}{\mathrm{T}}\right) \tag{1}$$

Les paramètres *A*, *B* et *Ea* peuvent être obtenus en linéarisant le problème en prenant le logarithme népérien de chaque côté de l'équation. On obtient ainsi *A*=0.01969 , *B*=-1.236 , *Ea*=833.6. Le résultat ainsi obtenu est comparé aux mesures expérimentales à 85°C en Figure 2b. Lou et al. ont également mesuré la RHF d'une cellule comprenant la membrane GORE et ont trouvé une tendance en accord avec leur loi de conductivité et similaires à nos résultats [10].

L'équation (1) peut finalement être inversée afin de déterminer l'humidité interne d'après la mesure de RHF. Le contenu en eau de la membrane peut être lié à l'humidité relative en utilisant l'équation de Springer [11]

$$\boldsymbol{\lambda} = \begin{cases} \mathbf{0.043 + 17.81}\left(\frac{\mathrm{HR}}{\mathbf{100}}\right) - \mathbf{39.85}\left(\frac{\mathrm{HR}}{\mathbf{100}}\right)^{\mathbf{2}} + \mathbf{36.0}\left(\frac{\mathrm{HR}}{\mathbf{100}}\right)^{\mathbf{3}}, & \mathbf{0} < \mathrm{HR} \leq \mathbf{100} \\ \mathbf{14 + 8}\left(\left(\frac{\mathrm{HR}}{\mathbf{100}}\right) - \mathbf{1}\right), & \mathrm{HR} > \mathbf{100} \end{cases} \tag{2}$$

La fonction de $\boldsymbol{\lambda}$ est une fonction par morceaux : on distingue l'Equilibre Vapeur (VE) lorsque HR$\leq$100% pour lequel $\boldsymbol{\lambda \rightarrow 14}$ et l'Equilibre Liquide (LE) lorsque HR$>$100% caractérisé par la présence d'eau liquide à l'interface de la membrane et pour lequel $\boldsymbol{\lambda \rightarrow 22}$. Il est ainsi possible d'estimer le contenu en eau de la membrane à partir de la RHF mesurée au niveau de la cellule en combinant les équations (1) et (2). La Figure 2c présente le $\boldsymbol{\lambda}$ d'après la RHF mesurée pour différentes températures.

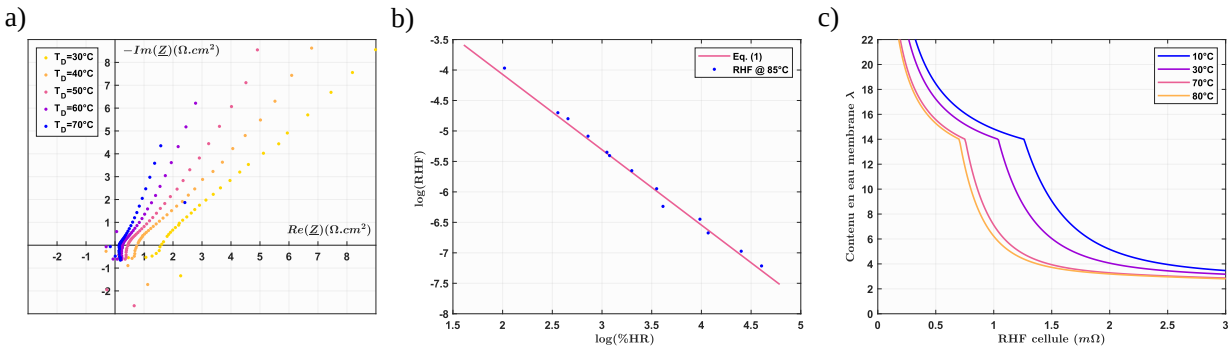


Figure 2: a) SIE obtenues pour différents points de rosée et une température interne de 85°C, b) Figure log-log mettant en évidence une loi puissance entre l'humidité relative et la RFH pour une température interne de 85°C, c) Contenu en eau de la membrane en fonction de la résistance pour différentes températures

3.2 Comportement résistif du cœur de pile en charge en fonction des conditions opératoires

3.2.1 Hautes températures positives

Des courbes de polarisation ont été réalisées à 70°C et 80°C dans un objectif plus large de modélisation de la réaction électrochimique. Dans cette section, une partie de ces CdP (signalées en rouge dans le Tableau II) est présentée afin de constater l'influence de chaque paramètre individuel sur la performance et la résistance de la pile (Figure 3). À noter que la RHF n'est représentée que pour les courants supérieurs à 9.8A. En effet, la charge électronique non-réversible n'a pas permis de réaliser de SIE à 0A et les spectres obtenus à 2.45A et 4.9A se sont avérés être tous aberrants. Ceci est potentiellement attribuable à la forte amplitude de signal (10%.I_{DC}), non-adaptée aux faibles courants, et plus probablement à un problème de résolution de la charge électronique qui ne serait tout simplement pas en mesure de créer des sinusoïdes d'une amplitude aussi faible.

On constate que la RHF en fonctionnement est nettement inférieure à la RHF à l'arrêt et correspond à un λ entre 14.5 et 15.5 sur la plage de courant 50-300 A. La production d'eau étant directement proportionnelle au courant via la constante de Faraday, l'hydratation diminue à bas courant et la RHF tend à remonter vers une valeur d'équilibre avec les gaz, soit 1.8 mΩ dans le cas (50% HR, 70°C). Une humidification plus faible (30% anode, 15% cathode) conduit à une remontée plus forte à bas courant et une RHF sensiblement plus élevée sur le reste de la plage, ainsi que de moins bonnes performances au global. L'augmentation de la pression des gaz est le principal facteur de performance pour la PEMFC, dont la puissance maximale à 70°C passe de 95 W à 1.5 bar à 125 W à 2.5 bar. Cela a aussi pour effet de ralentir le flux de gaz dans les canaux, ce qui réduit la capacité d'évaporation et d'évacuation de l'eau hors de la pile. Ainsi, bien qu'elle n'ait pas d'influence sur la RHF à fort courant, on note une remontée de la RHF à bas courant légèrement plus faible à forte pression. À l'inverse, la stœchiométrie augmente la vitesse des gaz et favorise donc l'évaporation, permettant des performances supérieures à moyen et fort courant. La RHF, sensiblement plus élevée à stœchiométrie 2/2.5 qu'à 1.3/1.6, témoigne d'un assèchement plus prononcé à l'anode. Ainsi, bien que la RHF de la cellule ne préjuge pas seule de sa performance, son analyse couplée à la réponse électrique et aux conditions de fonctionnement nous informe sur son état d'hydratation et la gestion de l'eau du cœur de pile.

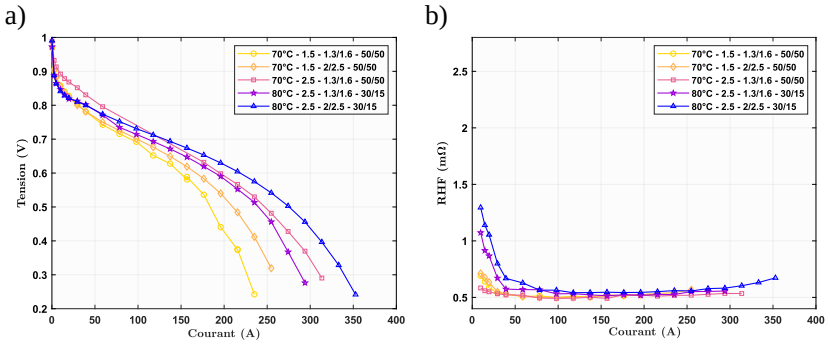


Figure 3: a) Courbes de polarisation sélectionnées à 70°C et 80°C, b) Résistance Haute Fréquence mesurée à chaque palier des courbes de polarisation

3.2.2 Basses températures positives

Le fonctionnement à basses températures impose d'alimenter la pile en gaz secs, étant donné que la température minimale des bulleurs serait supérieure ou égale à la température de la pile. Travailler à basses températures est une première étape dans la compréhension des problématiques de fonctionnement liées à la gestion de l'eau que la pile est susceptible de rencontrer à températures négatives. La capacité de l'air à transporter l'eau en phase vapeur est fortement réduite à basse température : un flux d'air à pression atmosphérique entrant parfaitement sec à 30°C et à 10°C peut évacuer 5.5 et 20 fois moins de vapeur qu'un air entrant à 50%HR à 80°C. Il est donc attendu que la pile rencontre des problématiques majeures de gestion de l'eau à la cathode que nous cherchons à étudier à travers la RHF et montre des dynamiques de fonctionnement différentes des températures nominales. Nous cherchons donc également à définir les conditions opératoires les plus adaptées à cette plage de température.

Sans surprise, les performances affichées en Figure 4a sont très faibles. Contrairement aux hautes températures, augmenter la pression fait chuter les performances, vraisemblablement parce que le ralentissement du flux d'air altère d'autant plus les capacités déjà faibles d'évaporation. Cela implique que la pile fait face à des conditions de noyage qui empêchent le bon acheminement de l'oxygène jusqu'aux sites de réaction. Il est néanmoins possible de mitiger ces effets en augmentant la stœchiométrie cathode, dont on voit qu'elle relève un peu les performances. À noter qu'à 10°C, il a été nécessaire d'élever les stœchiométries de 1.5/2 à 2/2.5 et de 2/2.5 à 3/4 pour les CdP à 2 bar et 2.5 bar respectivement. On observe en Figure 4b que les valeurs de RHF sont nettement plus élevées qu'à hautes températures. D'après l'équation (1), on s'attend à ce que la RHF soit respectivement 1.48 et 1.79 fois plus grande à 30°C et 10°C qu'à 80°C. Le λ pour les CdP à (30°C , 1.5 bar) se situe entre 14 et 15, en revanche il tombe à 9 , 6 et 3.8 pour les CdP à (30°C , 2.5 bar), (10°C , 1.5 bar) et (10°C , 2 bar) respectivement. Ce constat est étonnant dans la mesure où on s'attend à ce que les problèmes de noyage à la cathode soient favorables à l'hydratation de la membrane. Une explication possible est que l'assèchement anodique causé par le mouvement de l'eau de l'anode vers la cathode, suivant le mouvement des protons (électro-osmose), est aggravé par la faible mobilité de l'eau dans la membrane à basses températures [16]. L'électro-osmose, qui ne dépend pas de la température et est directement proportionnelle au courant, n'est plus compensée par la rétrodiffusion. Lorsque le courant diminue l'électro-osmose aussi, l'anode se réhydrate et la RHF diminue, comme on l'observe en Figure 4b.

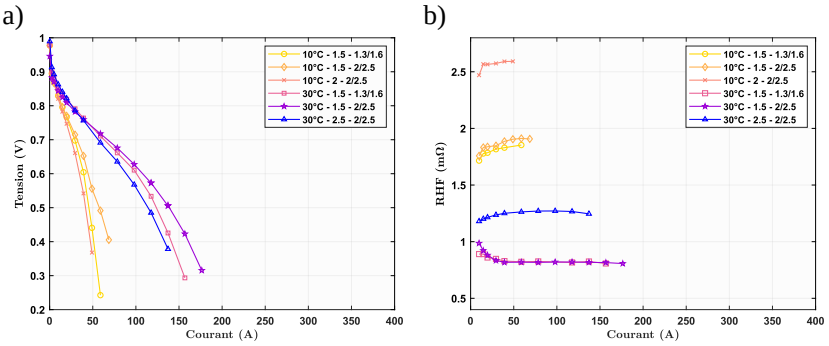


Figure 4: a) Courbes de polarisation sélectionnées à 10°C et 30°C, b) Résistance Haute Fréquence mesurée à chaque palier des courbes de polarisation

4. Conclusion

Cet article présente une campagne expérimentale basée sur la mesure de la résistance haute fréquence (RHF) d'une PEMFC. Des premières mesures à l'arrêt ont permis de cartographier la résistance dans des conditions d'équilibre en fonction de la température et de l'hygrométrie. De nouvelles mesures ont été réalisées en fonctionnement à hautes et basses températures afin d'étudier le comportement hydrique du cœur de pile, au regard des performances électriques et de la cartographie établie précédemment. Ces dernières ont mis en évidence la gestion de l'eau particulièrement dégradée et l'influence négative de la pression à basses températures, résultant en des performances très faibles et une résistance de cellule élevée. Ces observations sont la première étape dans la construction de lois de commande des paramètres de fonctionnement du système pile à combustible PEM lors du démarrage à froid et du fonctionnement à basses températures subséquent, et pour lesquels la RHF est une information essentielle. Ce travail doit alors être complété par une étude semblable à températures négatives et la mesure de la RHF doit être implémentée en temps réel afin de suivre au plus près l'état hydrique de la cellule.

Remerciements

Les auteurs remercient chaleureusement le CEA LITEN pour son accueil et la mise à disposition de ses moyens expérimentaux au service de cette étude.

The authors acknowledge support from the French National Research Agency (ANR) under France 2030 program and reference ANR-22-PEHY-0002 (project DURASYS-PAC) and EIPHI Graduate School & Région Bourgogne Franche-Comté under contract ANR-17-EURE-0002. This work was supported by a grant from the French State, managed by the National Research Agency under the Future program, reference ANR-21-ESRE-0033.

References

[1] U.-S. D. O. Energy, "DOE technical targets for fuel cell systems and stacks for transportation applications." [Online]. Available: https://www.energy.gov/eere/fuelcells/doe-technical-targets-fuel-cell-systems-and-stacks-transportation-applications

[2] A. A. Amamou, S. Kelouwani, L. Boulon, and K. Agbossou, "A comprehensive review of solutions and strategies for cold start of automotive proton exchange membrane fuel cells," vol. 4, pp. 4989–5002. [Online]. Available: http://ieeexplore.ieee.org/document/7529180/

[3] E. Pinton, Y. Fourneron, S. Rosini, and L. Antoni, "Experimental and theoretical investigations on a proton exchange membrane fuel cell starting up at subzero temperatures," vol. 186, no. 1, pp. 80–88. [Online]. Available: https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S037877530801803X

[4] T. J. Freire and E. R. Gonzalez, "Effect of membrane characteristics and humidification conditions on the impedance response of polymer electrolyte fuel cells," vol. 503, no. 1, pp. 57–68. [Online]. Available: https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0022072801003643

[5] P. Moçotéguy, B. Ludwig, D. Beretta, and T. Pedersen, "Study of the impact of water management on the performance of PEMFC commercial stacks by impedance spectroscopy," vol. 45, no. 33, pp. 16 724–16 737. [Online]. Available: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0360319920315421

[6] W. Mérida, D. A. Harrington, J. M. Le Canut, and G. McLean, "Characterisation of proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) failures via electrochemical impedance spectroscopy," vol. 161, no. 1, pp. 264–274. [Online]. Available: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378775306005982

[7] Y. Ao, Z. Li, S. Laghrouche, D. Depernet, D. Candusso, and K. Zhao, "Stack-level diagnosis of proton exchange membrane fuel cell by the distribution of relaxation times analysis of electrochemical impedance spectroscopy," vol. 603, p. 234420. [Online]. Available: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378775324003719

[8] J. Millet, D. Depernet, A. Sari, F. Gustin, and H. Helbling, "Passive impedance spectroscopy of EV lithium-ion batteries in transient operation," vol. 29, p. 109746. [Online]. Available: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2590123026007851

[9] F. Jaouen and G. Lindbergh, "Transient techniques for investigating mass-transport limitations in gas diffusion electrodes," vol. 150, no. 12, p. A1699. [Online]. Available: https://iopscience.iop.org/article/10.1149/1.1624294

[10] J. Lou, Y. Lu, D. Yang, X. Pan, B. Li, and P. Ming, "Experimental and model refinement of water content and membrane conductivity in reinforced composite proton exchange membranes," vol. 94, pp. 756–764. [Online]. Available: https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0360319924047104

[11] T. E. Springer, T. A. Zawodzinski, and S. Gottesfeld, "Polymer electrolyte fuel cell model," vol. 138, no. 8, pp. 2334–2342. [Online]. Available: https://iopscience.iop.org/article/10.1149/1.2085971