

Représentation Energétique Macroscopique d'une pile à combustible SOFC pour de la cogénération

Charly GAY^{1*}, Daniel HISSEL¹, François LANZETTA², Michel FEIDT³, Marie-Cécile PERA¹

¹ Institut FEMTOT-ST, UMR CNRS 7174, Département ENISYS, Bâtiment FCLAB, Rue Thierry Mieg – 90 000 BELFORT

² Institut FEMTOT-ST, UMR CNRS 7174, Département ENISYS, Parc Technologique, 2 avenue Jean Moulin – 90 000 BELFORT

³ LEMTA, ENSEM, UMR 7863 CNRS-INPL-UHP, 2 Avenue de la forêt de Haye, B.P. 160 – 54 504 VANDOEUVRE Cedex

* Auteur correspondant : charly.gay@femto-st.fr

Résumé – Cet article présente un modèle de pile à combustible à oxyde solide (SOFC : *Solid Oxide Fuel Cell*) en vue d'une étude théorique concernant la modélisation d'un système de cogénération associant une pile SOFC et un moteur Stirling. Cependant, la complexité des interactions produites au sein des composants et de leur couplage d'autre part nécessite le choix d'un formalisme permettant la modélisation puis le contrôle commande d'un tel système. Ce besoin est assuré à l'aide de la Représentation Energétique Macroscopique (REM).

Nomenclature

C	Capacité de double couche, F	S	Section de tuyau, m^2
C_p	Capacité calorifique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	T	Température, K
ΔG	Enthalpie libre de Gibbs, $J.mol^{-1}$		
ΔH	Enthalpie de réaction, $J.mol^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
ΔS	Entropie de réaction, $J.mol^{-1}.K^{-1}$	α	Coefficient de transfert de charge
ΔS_q	Flux d'entropie, $W.K^{-1}$	ρ	Masse volumique, $kg.m^{-3}$
E	Potentiel électrique, V		
F	Constante de Faraday	<i>Indices et exposants</i>	
I	Courant électrique, A	O	Conditions standard de réaction
M	Masse molaire, $kg.mol^{-1}$	C	Consommé
n^{el}	Nombre électrons	E	Entrée
\dot{n}	Débit molaire, $mol.s^{-1}$	i	Gaz utilisé
N	Nombre de cellules composant le Stack	L	Limite
p	Pression partielle, Pa	N	Nernst
q	Débit volumique, $m^3.s^{-1}$	PAC	Pile à Combustible
\dot{Q}	Flux de chaleur, W	S	Sortie
R	Constante des gaz parfaits, $J.mol^{-1}.K^{-1}$	x	Anode ou cathode
R_i	Résistance électrique, Ω		
R_d	Résistance Fluidique, $Pa.m^{-3}$		

1. Introduction

La nécessité de limiter les émissions de gaz à effet de serre place l'optimisation de l'efficacité énergétique au cœur de la problématique de l'énergie. Dans ce cadre, l'hybridation de sources d'énergie est une voie permettant l'amélioration de l'efficacité globale des systèmes. L'association d'une pile SOFC et d'un moteur Stirling est une solution potentiellement intéressante pour le développement d'un système de cogénération électricité/chaleur. La pile SOFC est un générateur d'électricité mais également de chaleur à haute température (750°C) que le moteur Stirling permet de

valoriser. De tels composants multi physiques sont complexes à appréhender et les interactions au sein du système couplé viennent amplifier la difficulté à représenter de manière correcte leur association. Il est donc nécessaire de choisir un formalisme adapté permettant dans un premier temps de modéliser le système et dans un deuxième temps de générer une loi de contrôle commande. La REM répond à ce besoin. En particulier, la prise en compte des phénomènes thermodynamiques irréversibles nécessite une étude approfondie. Suite à un premier modèle de PEMFC (*Proton Exchange Membrane Fuel Cell*) établi sous REM [1][2], l'objet de cette étude est l'extrapolation de ce modèle à la technologie SOFC, ainsi qu'une adaptation en vue de l'évaluation du potentiel thermique produit par la pile afin de la rendre disponible aux applications de cogénération (SOFC cogen). Une première partie présentera le formalisme REM. La seconde partie décrira les principes de fonctionnement d'une pile SOFC ainsi que sa modélisation au formalisme REM.

2. Présentation de la Représentation Energétique Macroscopique

Puissance	Variable effort	Variable flux
Electrique	Tension [V]	Courant [A]
Mécanique (translation)	Force [N]	Vitesse [$m.s^{-1}$]
Mécanique (rotation)	Couple [N.m]	Vitesse angulaire [$rad.s^{-1}$]
Hydraulique	Pression [$N.m^{-2}$]	Débit [$m^3.s^{-1}$]
Thermique	Température [T]	Flux d'entropie [$W.K^{-1}$]
Chimique	Energie libre [$J.mol^{-1}$]	Débit molaire [$mol.s^{-1}$]

Tableau 1 : Expression des variables d'effort et de flux pour différents types de puissance

Parmi les méthodes d'approche appliquées à la modélisation des phénomènes multi physiques de la pile SOFC, nous pouvons citer la méthode nodale [3], ainsi que l'approche par bond graph [4]. Cette dernière est particulièrement intéressante dans le sens où elle permet une amélioration notable des performances dynamiques de la commande de la pile. La Représentation Energétique Macroscopique (REM), initialement développée pour le contrôle des systèmes électriques, est appliquée aux systèmes multi physiques. Le formalisme REM repose sur trois règles régies par les lois de la physique qui restent valables quelle que soit l'échelle étudiée au sein du système (système, sous-système, ou élément). La plus importante du formalisme REM est la notion de causalité intégrale des grandeurs d'échange entre le système et son environnement. Cette notion permet une déduction rapide de la Structure Maximale de Commande (SMC) par inversion des blocs. De même, le principe d'action / réaction doit être respecté. Enfin, les puissances (flux d'énergie) échangées par les différents sous systèmes sont, comme en bond graph, écrits comme le produit d'une variable effort par une variable flux (cf. Tableau 1) [2].

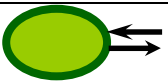
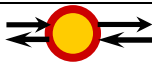




	Source		Transformation multi physique		Accumulation
	Transformation mono physique		Couplage multi physique		Couplage mono physique

Tableau 2 : Récapitulatif des pictogrammes du formalisme REM

Le formalisme REM distingue plusieurs types d'éléments : source, transformation mono / multi physique et accumulation. L'élément source permet la représentation de l'interaction du système avec son environnement. Il peut être aussi bien une source ou un puits de puissance. Les éléments de conversion mono ou multi physique contiennent les relations de conversion de puissance instantanée. A l'inverse des éléments de conversion, qui représentent une liaison énergétique instantanée entre l'entrée et la sortie, l'élément d'accumulation permet de représenter les phénomènes physiques qui engendrent un déphasage temporel. La représentation graphique des différents pictogrammes du formalisme REM est donnée dans le tableau 2.

La SMC du système est systématiquement déduite du modèle REM à l'aide du principe d'inversion. Les grandeurs échangées par les différents blocs du modèle sont explicitées à travers les variables effort et flux. Ainsi, le positionnement des capteurs en est directement déduit. L'inversion des différents blocs de la REM est également donnée dans le tableau 2.

3. REM de la pile SOFC en cogénération : description du modèle

La REM de ce modèle de pile à combustible est une adaptation d'un modèle PEMFC [1][2]. La modification des paramètres différenciant les deux technologies a donc été effectuée. De plus, un bilan thermique de la pile a été ajouté afin d'estimer et de localiser le potentiel de chaleur dégagé par la pile. Ainsi, ce modèle pourra être couplé avec d'autres modèles de machines thermiques, tel qu'un moteur Stirling, afin d'en évaluer le potentiel de cogénération. La description de ce modèle est d'ordre macroscopique, elle détaille donc les différents phénomènes produits dans la pile pour chaque domaine de la physique (Electrochimie, électricité, fluide, thermique, thermodynamique). Dans notre étude, l'alimentation de la pile est prévue avec de l'hydrogène pur à l'anode et de l'air ambiant à la cathode.

3.1. Electrochimie de la pile

La pile à combustible convertit directement l'énergie chimique en énergie électrique [5]. Le but de cette partie est d'identifier la pile réversible afin d'en soustraire les imperfections (pertes d'activation, ohmiques, et de concentration).

3.1.1. Pile réversible

Décrite à partir des premier et deuxième principes de la thermodynamique, la notion de potentiel thermodynamique réversible, d'un point de vue électrique, est définie à l'aide du potentiel de Nernst [5][7]. On définit le flux d'entropie généré à pression atmosphérique lors de la formation du débit molaire d'eau \dot{n}_{H_2O} [1][2], valable pour un rendement en courant de la pile (I_{PAC}) égal à un, par le produit de la variation d'entropie lors de la formation d'une mole d'eau et le débit molaire d'eau (1):

$$\Delta S q_0 = \Delta S_0(T_{PAC}) \cdot \dot{n}_{H_2O} \quad \text{avec} \quad \dot{n}_{H_2O} = \frac{I_{PAC}}{n^{el} \cdot F} \quad (1)$$

La relation de Nernst génère une production de chaleur [1] :

$$\Delta S q_n = \frac{\Delta E \cdot I_{PAC}}{T_{PAC}} \quad (2)$$

La consommation des gaz sur les sites catalytiques entraîne une évolution des débits. La relation (3), calculée à partir des lois de Faraday et de la loi des gaz parfaits, donne les débits volumiques consommés par la pile à l'anode et à la cathode [2][5].

$$q_{C^*} = \frac{I_{PAC}}{n^{el2}} \cdot \frac{R \cdot T_{PAC}}{p_{C^*}} \quad (3)$$

Ainsi, en formalisme REM, les relations permettant d'établir la pile réversible sont représentées par les éléments de conversion thermodynamique / électrique. Une fois le potentiel réversible de la pile défini, nous sommes amenés à nous intéresser aux différentes imperfections de la pile. Ces sources d'irréversibilité vont alors engendrer une chute du potentiel de la pile en fonction du courant débité par cette dernière.

3.1.2. Imperfections de la pile

A l'échelle macroscopique, trois sources d'irréversibilités (également appelées surtensions) sont identifiées : les surtensions d'activation, ohmiques et de concentration. Les expressions de ces surtensions ainsi que celle du flux de chaleur engendré par celles-ci sont exprimées en fonction des paramètres physiques et des conditions d'utilisation de la pile.

- Surtensions d'activation :

$$\Delta V_{act} = \frac{R \cdot T_{PAC}}{\alpha \cdot n^{el} \cdot F} \cdot \ln\left(\frac{I_{PAC}}{I_0}\right) \quad (4)$$

Où α est le coefficient de transfert de charge, généralement donné à 0.5 dans la littérature [3]. I_0 représente le courant d'échange à l'interface électrolyte/électrode. Ces deux coefficients sont considérés comme constants, et peuvent être déterminés de manière empirique.

- Surtensions ohmiques :

$$\Delta V_{ohm} = (R_e + R_a + R_c) \cdot I_{PAC} \quad (5)$$

Où R_e représente la résistance au flux d'ions O^{2-} dans l'électrolyte, R_a et R_c les résistances opposées au flux d'électron à l'anode et à la cathode [4][5].

- Surtension de concentration :

$$\Delta V_{con} = -\frac{R \cdot T_{PAC}}{n^{el} \cdot F} \cdot \ln\left(1 - \frac{I_{PAC}}{I_L}\right) \quad (6)$$

Où I_L représente le courant limite, courant pour lequel on observe la chute de tension de la pile. Comme I_0 , I_L peut être déterminé empiriquement. A noter toutefois que la demande d'un tel courant lors d'essais expérimentaux engendre une forte baisse des performances de la pile (voire sa destruction). Le potentiel de la pile résultant de ces surtensions (V_M) est donné par l'équation (7). Cette chute de tension engendre alors le flux d'entropie ΔS_q exprimé par l'équation (8).

$$V_M = E_N - \sum_i \Delta V_i \quad ; \quad \Delta S_q = \frac{I_{PAC} \cdot \sum_i \Delta V_i}{T_{PAC}} \quad (7),(8)$$

La figure 1 représente graphiquement les équations des irréversibilités présentes dans la pile au formalisme REM.

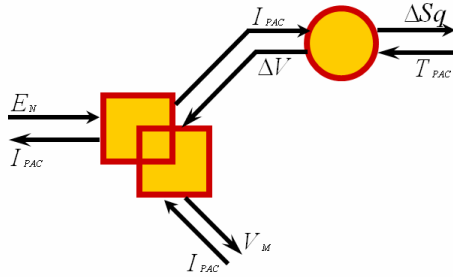


Figure 1 : Schéma REM des irréversibilités de la pile SOFC

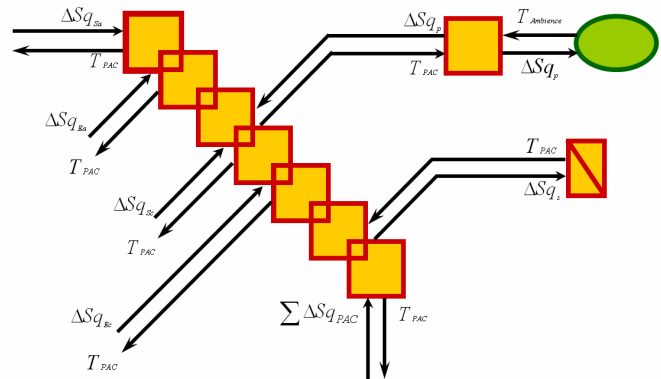


Figure 2 : Schéma REM bilan thermique de la pile SOFC

3.2. Fluidique de la pile

Cette partie du modèle est la même que celle utilisée dans les travaux sur la PEMFC [1][2]. Les seules modifications apportées concernent les valeurs numériques des paramètres propres au système. Ainsi la rédaction de cette partie ne contient que les équations à implanter dans les sous-systèmes des parties fluidiques du modèle.

$$p_{Ex} = p_{Cx} + R_{dx1} \cdot q_{Ex} \quad ; \quad \frac{dp_{Cx}}{dt} = \frac{1}{C_{dx}} \cdot (q_{Ex} - q_{Cx} - q_{Sx}) \quad ; \quad q_{Sx} = \frac{p_{Sx} - p_{Cx}}{R_{dx2}} \quad (9),(10),(11)$$

3.3. Thermique de la pile

Le système étudié est analysé à l'échelle macroscopique. L'approche considérée est ici celle d'un échangeur à la fois de matière et de chaleur. Les réactions chimiques engendrées aux électrodes par les

flux de matière échangés impliquent des termes de production et d'échange de chaleur au sein de la pile. Les variables échangées sont représentées avec la normalisation du formalisme REM. Le bilan thermique du système est défini par la relation (14) et sa représentation sous le formalisme REM est donnée en Figure 2.

$$\dot{Q}_{Ea} + \dot{Q}_{Ec} - \dot{Q}_{Sa} - \dot{Q}_{Sc} - \dot{Q}_{ech} + \dot{Q}_{produit} = m_{PAC} \cdot Cp_{PAC} \cdot \frac{dT}{dt} \quad (14)$$

$$\dot{Q}_{produit} = N \cdot \sum \Delta S q_{PAC} \cdot T_{PAC} = N \cdot (\Delta S q_n + \Delta S q_0 + \Delta S q) \cdot T_{PAC} \quad (15)$$

3.4. Expansion de la REM à la thermodynamique

Dans l'utilisation du formalisme REM, les différents domaines de la physique sont étudiés séparément. La distinction est faite entre les domaines électriques, thermiques, fluidiques, mécaniques et chimiques afin de travailler avec les variables d'effort et de flux adaptées au formalisme. Cependant, en thermodynamique, les propriétés thermiques, fluidiques et chimiques ne sont pas dissociables à cause de la loi des gaz parfaits. D'où la nécessité de développer un bloc adaptable à notre système, nous permettant de conserver la totalité des informations concernant le gaz. Ainsi, dans le cadre de l'application à la pile à combustible, l'entrée et la sortie diffèrent dans la partie fluidique uniquement par les sens des variables d'action/réaction (débit et pression) échangées avec l'environnement. En entrée de la pile, le débit des gaz est imposé à la pile afin de contrôler la combustion, et donc la pression est imposée par la pile. Ainsi, en sortie, c'est la pile qui impose le débit de gaz à l'environnement, et donc la pression est imposée par l'environnement à la pile. Le calcul du flux d'entropie transporté par le gaz en entrée et sortie de la pile est réalisé par l'application du second principe de la thermodynamique en système ouvert pour écoulement stationnaire (conditions valables pour l'utilisation faite de la pile). Le flux de chaleur ne prend en compte que la chaleur sensible des gaz contenus dans la pile (16) étant donné les gammes de température de fonctionnement de la pile SOFC (750-800°C).

$$\Delta S q_x = \dot{n}_x \cdot M_x \cdot Cp \cdot \ln\left(\frac{T_{PAC}}{T_x}\right) \quad (16)$$

Le schéma REM global de la pile à combustible SOFC pour des utilisations de cogénération est représenté figure 3.

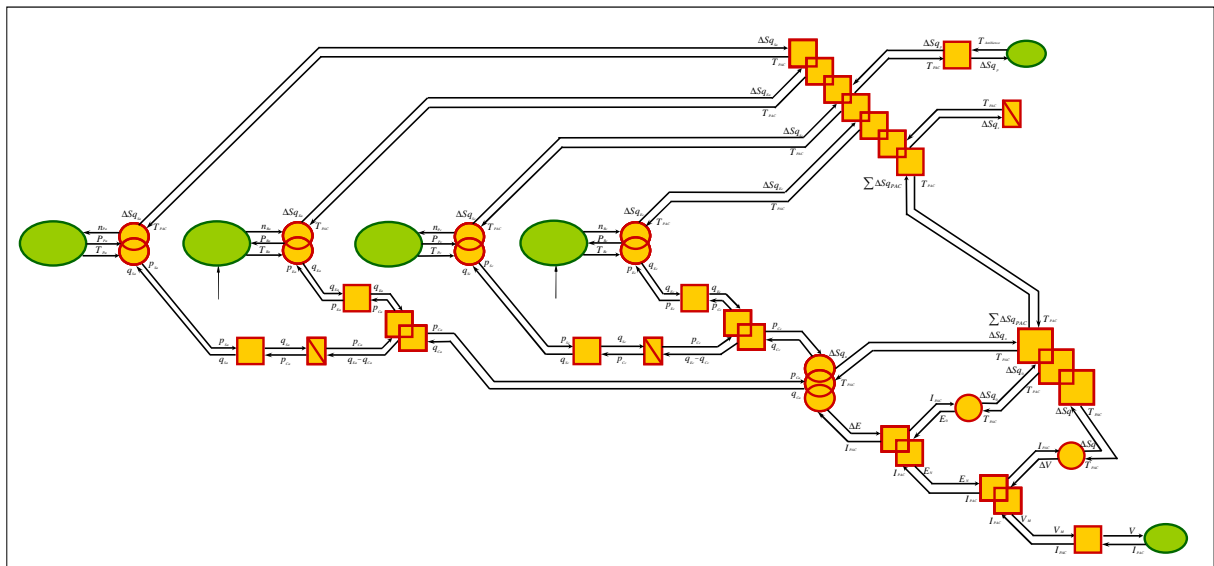
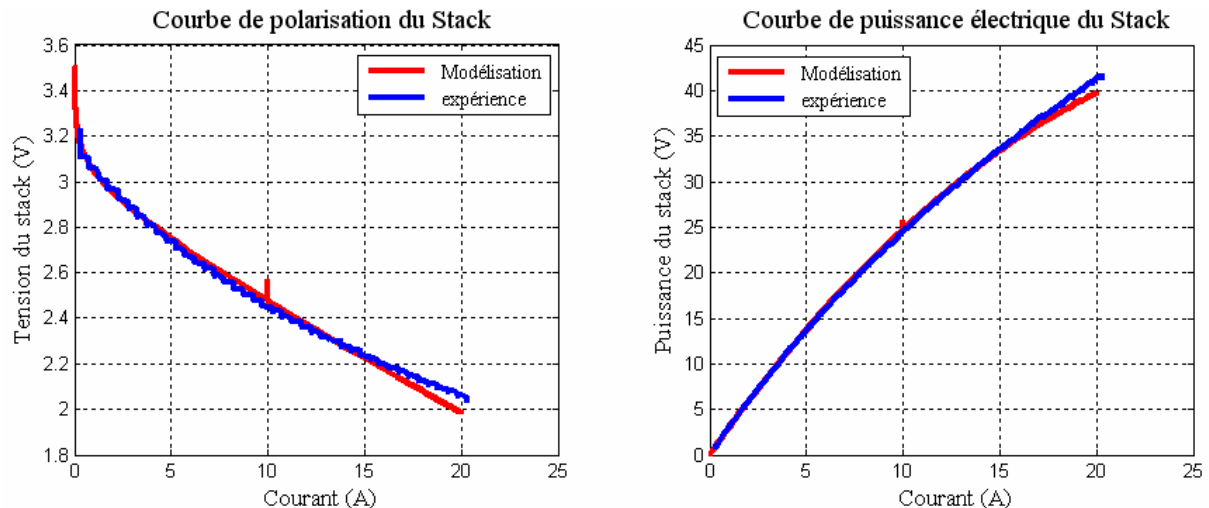


Figure 3 : Schéma REM de la pile à combustible SOFC pour de la cogénération

4. Résultats de simulation

Une fois le formalisme REM développé, ce dernier est alors directement implanté dans Matlab Simulink par une transposition des blocs REM en sous-systèmes Simulink. Les figures 4 et 5) confrontent les résultats de simulation aux résultats expérimentaux (courbe de polarisation et de puissance) d'une pile SOFC HT Ceramix S-design 3 cellules ayant été testée au laboratoire [3]. La validation de la partie thermique de la pile est en cours, le bilan thermique de l'environnement sera à intégrer dans une prochaine étude. Les performances de cette pile étant garanties à plus ou moins 10% près par le constructeur, nous pouvons considérer que notre modèle représente bien la réalité.



Figures 4 et 5 : Courbes de polarisation et de puissance électrique du stack SOFC S-Design 3 Cellules HT Ceramix

5. Conclusion et Perspectives

La modélisation à l'aide du formalisme REM de la pile SOFC cogen a montré des résultats intéressants. Ainsi, l'application de la REM à des systèmes multi physiques complexes offre un potentiel de modélisation réel. L'identification des relations de causalité entre grandeurs d'entrée et de sortie du système, de même que l'appréhension des mécanismes d'interaction et des influences des différents paramètres du système est aisément identifiée. La suite de ces travaux consistera en l'établissement de la SMC de ce modèle. De plus, la même méthode sera appliquée au moteur Stirling en vue d'effectuer le couplage des deux systèmes.

Références

- [1] L. Boulon et al, D. Hissel, A. Bouscayrol, M-C. Péra, From Modelling to Control of a PEM Fuel Cell using Energetic Macroscopic Representation, *IEEE*, Post FDFC'08 paper, 2008.
- [2] L. Boulon, Modélisation multi physique des éléments de stockage et de conversion d'énergie pour les véhicules électriques hybrides. Approche systémique pour la gestion d'énergie, *Université de Franche-Comté*, Thèse (2009).
- [3] M. Chnani, Modélisation Macroscopique de pile PEFC et SOFC pour l'étude de leur couplage, *Université de Franche-Comté*, Thèse (2008).
- [4] P. Vijay et al, A bond graph model-based evaluation of a control scheme to improve the dynamic performance of a solid oxide fuel cell, *Mechatronics* (2009).
- [5] S.C. Singhal et al, High Temperature Solid Oxide Fuel Cells, Fundamentals, Design and application, *Elsevier* (2003).
- [6] <http://webbook.nist.gov/chemistry/>
- [7] J.T. Pukrushpan et al, Control of fuel Cell Power Systems, Principles, Modelling, analysis, and feedback design, *Springer* (2006).