

MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEURE ET DE LA RECHERCHE

SCIENTIFIQUE

UNIVERSITÉ MOHAMED KHIDER - BISKRA

FACULTÉ DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE

DÉPARTEMENT DE GÉNIE ÉLECTRIQUE

FILIÈRE : ÉLECTROTECHNIQUE

OPTION : ÉNERGIES RENOUVELABLES



## *Mémoire de fin d'Étude*

*En vue de l'obtention du diplôme de Master*

# **Modélisation et caractérisation expérimentale d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC)**

Réalisé par : **SELLALI Mehdi**

Dr. BOUALAGA Rabhi

MCA : Président

Dr. SAADI Aicha

MCB : Encadreur

Mr. MOHAMMEDI Massaoud

MAB : Examineur

*Année Universitaire : 2015-2016*

# Dédicaces

À

*mes parents,*

*à ma soeur Afrah et mon frère Haithem,*

*mes enseignants,*

*et mes amis,*

*je dédie ce modeste travail.*

# Remerciements

Je voudrais exprimer ma sincère gratitude à mon encadreur de thèse Docteur Saadi Aicha pour, sa patience, son soutien et ses encouragements tout au long de ce travail. Je tiens également à la remercier pour la confiance qu'elle m'a accordée, en mettant à ma disposition sa propre maquette.

Je voudrais spécialement remercier Monsieur Merabti Youcef pour son aide et son accord de m'accueillir au sein du Laboratoire des Energie Renouvelables à l'université de Biskra.

Je voudrais remercier vivement Dr. BOUALAGA Rabhi, pour avoir accepté d'en présider le jury et Mr. MOHAMMEDI Massaoud pour son évaluation de mon travail de thèse.

Je remercie également, ma famille et mes amis, pour leur aide dans la réalisation de ce travail, leur immense soutien moral et affectif pendant toutes ces années.

# المُلخَص

الهدف الرئيسي من هذه الأطروحة هو النمذجة و تحديد خصائص الخلية الوقودية تجريبيا من نوع (غشاء البليمر الكهربي)، هذه الدراسة سمحت بتقييس النظام (محلل كهربائي - خلية وقودية) مع دارة التغذية بالأكسجين و الهيدروجين، تحديد خصائص الخلية الكهروضوئية المستعملة لإنتاج الهيدروجين، شرح مبدأ اشتغال هذه الأنظمة، تحقيق نموذج ستاتيكي و ديناميكي تجريبيا مع تحديد المعاملات و مع الأخذ بعين الاعتبار ايضا مختلف الظواهر المرتبطة بخاصية الخلية الوقودية. عمل تجريبي واضح اجري على لوحة التجارب لتحديد معاملات النموذج مع العمل التجريبي و المحاكاة، كل هذا سمح لنا بالتحقق من النموذجين المقترحين، علاوة على ذلك تعتبر الخلايا الوقودية مخصصة لإنتاج الطاقة، النماذج المطورة في هذه الأطروحة تعتبر أداة تقييس الأنظمة الطاقوية، الهدف هو اجتناب أي خلل عند استعمال الخلايا الوقودية كمصادر للطاقة في عدة تطبيقات.

## كلمات المفتاح :

خلايا وقودية ; النمذجة (نموذج ستاتيكي و ديناميكي) ; تحديد خصائص تجريبيا ; النظام (محلل كهربائي - خلية وقودية) ; إنتاج الهيدروجين.

# Résumé

L'OBJECTIF principal de ce travail de thèse est la modélisation et la caractérisation expérimentale d'une pile à combustible de type PEMFC ( Polymère Electrolyte Membrane Fuel Cell), cette étude a permis de faire un dimensionnement d'un système (electrolyseur -pile à combustible) et ces circuits d'alimentations en hydrogène et oxygène, de caractériser un panneau solaire utilisé pour la production de l'hydrogène, d'expliquer le principe de fonctionnement de ces dispositifs et surtout de valider un modèle statique et un modèle dynamique expérimentalement en identifiant ces paramètres et en tenant compte des différents phénomènes liés aux caractéristiques de la pile à combustible. Une procédure expérimentale bien déterminée a été établie sur la maquette pour l'identification des paramètres du modèle et un travail expérimental et de simulation conséquent a permis de valider les modèles proposés. En outre, les piles à combustibles étant principalement dédiées à la production de l'énergie, les modèles développés sont proposés comme des outils de dimensionnements énergétiques. L'intérêt serait d'éviter un "mauvais" dimensionnement de ses sources d'énergies propres (pile à combustibles PEM) que des utilisateurs auront à réaliser dans le cadre de leurs travaux et applications.

## Mots clés :

Pile à combustible PEM ; Modélisation( modèles statiques et dynamiques) ; Caractérisation expérimentale ; Système (électrolyseur -pile à combustible) ; Production d'hydrogène.

# Abstract

**T**HE main objective of this work is the modelling and the experimental characterization of a fuel cell of the type PEMFC (Polymère Électrolyte membrane fuel Cell), This study allowed to make a sizing of a system (electrolyser - fuel cell) and his circuits of hydrogen and oxygen, to characterize a solar panel used for the production of hydrogen, to explain the principle of these devices, and especially to validate a static model and a dynamic model experimentally with identifying the parameters and taking into account the various phenomena related to characteristics of the fuel cell. A definite experimental procedure was established on the pedagogical maquette for the identification of the model parameters, and experimental work and simulation result has validated the models, In addition fuel cells are mainly dedicated to the production of energy, The developed models are available as energy tools of sizing. The interest would be to avoid a "bad" sizing of this energy sources (PEM fuel cell) that users will have to perform under their work and applications.

**keywords :**

PEM Fuel Cell ; Modeling (static and dynamic models) ; Experimental characterization ; System (electrolyser - fuel cell) ; Production of hydrogen.

Modélisation et caractérisation expérimentale  
d'une pile à combustible à membrane échangeuse  
de protons (PEMFC)

SELLALI Mehdi

6 juin 2016

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>I</b>
<b>Liste des figures</b>	<b>IV</b>
<b>Liste des tables</b>	<b>VII</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Généralités sur la pile PEMFC</b>	<b>4</b>
1.1 Introduction . . . . .	4
1.2 Historique des piles (PEMFC) . . . . .	4
1.3 Principe de fonctionnement . . . . .	6
1.4 Structure interne de PEMFC . . . . .	8
1.4.1 Les couches de diffusion des gaz GDL . . . . .	8
1.4.2 Les couches actives AL . . . . .	8
1.4.3 La membrane . . . . .	9
1.5 Applications . . . . .	9
1.6 Marché de transport . . . . .	12
1.7 Conclusion . . . . .	13
<b>2 Circuit d'alimentation de PEMFC</b>	<b>15</b>
2.1 Introduction . . . . .	15
2.2 Description de la maquette . . . . .	16
2.2.1 L'électrolyseur PEM . . . . .	16
2.2.2 La pile à combustible PEM . . . . .	18
2.2.3 Le panneau solaire . . . . .	18

2.3	Dimensionnement du système . . . . .	20
2.3.1	Production d'hydrogène (l'électrolyse de l'eau) . . . . .	20
2.3.2	Production d'électricité à partir d'hydrogène . . . . .	21
2.3.3	Rendement du système (électrolyseur - pile) . . . . .	22
2.3.4	Circuit d'air . . . . .	23
2.3.5	Circuit d'hydrogène . . . . .	23
2.4	Caractéristique de la pile . . . . .	24
2.5	Conclusion . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Modélisation du Système pile à combustible</b>	<b>27</b>
3.1	Introduction . . . . .	27
3.2	Modèle statique . . . . .	28
3.3	Modèle de la spectroscopie d'impédance . . . . .	30
3.3.1	Définition . . . . .	30
3.3.2	Méthode : . . . . .	30
3.3.3	Représentation . . . . .	31
3.3.4	Les impédances des éléments électriques et leurs représenta- tions dans le plan de nyquist . . . . .	31
3.3.4.1	Elément résistif R . . . . .	31
3.3.4.2	Elément capacitif C . . . . .	31
3.3.4.3	Elément inductif L . . . . .	32
3.3.4.4	Circuit RC série . . . . .	32
3.3.4.5	Circuit RC parallèle . . . . .	32
3.3.5	Modèle simple . . . . .	33
3.4	Conclusion . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Simulation et validation expérimentale</b>	<b>35</b>
4.1	Introduction . . . . .	35
4.2	Identification des paramètres de l'expression analytique . . . . .	36
4.2.1	L'erreur absolue . . . . .	36
4.2.2	La méthode des moindres carrées . . . . .	36
4.3	Modèle statique . . . . .	37
4.4	Modèle de la spectroscopie d'impédance . . . . .	38

4.5 Conclusion . . . . .	41
<b>Conclusion</b>	<b>43</b>
4.6 Bilan et contributions . . . . .	43
<b>Bibliographie</b>	<b>48</b>

# Liste des figures

1.1	Première Pile à Combustible réalisée par W.Grove. . . . .	5
1.2	Les piles à combustibles utilisés dans la mission spatiale Gemini. (Image de la NASA.) . . . . .	6
1.3	Les piles à combustible produites par Ballard Power Systems. (a) Mark1020 ACS , (b) Mark1030 V3, (c) Heavy-Duty carburant module de cellule (HD6). (Images de Ballard Power Systems). . . . .	6
1.4	Principe de fonctionnement d'une pile à combustible . . . . .	7
1.5	Vue éclatée d'une cellule élémentaire de pile à combustible . . . . .	7
1.6	cellule d'une pile . . . . .	8
1.7	Diffusion et réaction de l'oxygène à la cathode. Figure extraite de [Lits04]. . . . .	9
1.8	Structure chimique de la membrane Nafion : chaque fibre est composé d'une chaîne de polymères organisées de manière que les groupements sulfonates soient disposés à l'extérieur de cœur de la fibre. Figure extraite de [Qing03]. . . . .	9
1.9	Différentes applications par des piles à combustibles.(a)Prototype de scooter à pile à combustible,(b)Vélo à hydrogène,(c)vélo cargo à trois roues,(d)sous marin alimenté par une pile à combustible (e)voiturette de golf à piles à combustibles (f)Le démonstrateur Boeing au salon de Farnborough en 2008 . . . . .	12
1.10	Quelques applications de transport.(a)Autobus à pile à combustible,(b)La Hyundai ix35 FECV est le premier véhicule à pile à combustible pro- duit en série,(c)Le Coradia un train régional conçu par Alstom, sera équipé d'une motorisation par pile à combustible . . . . .	13

2.1	Maquette pédagogique Horizon. . . . .	16
2.2	L'électrolyseur de type PEM. . . . .	16
2.3	Diagramme simplifié d'un électrolyseur de type PEM. . . . .	17
2.4	Pile à combustible de type PEM. . . . .	18
2.5	Panneau solaire. . . . .	18
2.6	Circuit électrique simple d'une cellule photovoltaïque avec une résistance série. . . . .	19
2.7	L'allure de la caractéristique pratique (i - v) du panneau avec son interpolation. . . . .	20
2.8	L'allure de la caractéristique pratique (v - p) du panneau avec son interpolation. . . . .	20
2.9	L'électrolyse de l'eau à partir de l'énergie solaire. . . . .	20
2.10	La pile à combustible avec une charge fixe. . . . .	22
2.11	Courbe de polarisation d'une pile à combustible. . . . .	24
3.1	Influence de la résistance de la membrane sur la chute ohmique et sur la tension totale PàC (valeur de la résistance :2R <sub>m</sub> , R <sub>m</sub> et 0.5R <sub>m</sub> ). . . . .	28
3.2	Influence du paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :2A, A et 0.5A). . . . .	29
3.3	Influence du courant d'échange $i_o$ sur les pertes d'activation et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :2 <i>i<sub>o</sub></i> , <i>i<sub>o</sub></i> et 0.5 <i>i<sub>o</sub></i> ). . . . .	29
3.4	Influence du paramètre B sur les pertes de transport de matière et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :2B, B et 0.5B). . . . .	29
3.5	Influence du courant limite sur les pertes de transport de matière et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :5/6 <i>i<sub>lim</sub></i> , <i>i<sub>lim</sub></i> et 7/6 <i>i<sub>lim</sub></i> ). . . . .	29
3.6	Principe de linéarisation autour d'un point de fonctionnement [SADL06]. . . . .	30
3.7	Exemple expérimental d'impédance de la pile à combustible PEM du GREEN. En haut dans le plan de Nyquist, en bas dans le plan de Bode(gamme de fréquence considérée 0,05 Hz à 2 kHz) [SADL06]. . . . .	31
3.8	Représentation d'un élément résistif . . . . .	31
3.9	Représentation d'un élément capacitif . . . . .	31
3.10	Représentation d'un élément capacitif . . . . .	32

3.11	Représentation d'un circuit RC série . . . . .	32
3.12	Représentation d'un circuit RC parallèle . . . . .	33
3.13	Circuit électrique du modèle simple . . . . .	33
3.14	Impédance du modèle simple dans le plan de Nyquist . . . . .	33
4.1	L'allure de la caractéristique (i - v)de la pile. . . . .	38
4.2	L'allure de la caractéristique (i - p)de la pile. . . . .	38
4.3	L'erreur absolue. . . . .	38
4.4	Modèle simple sous Simulink. . . . .	39
4.5	Schéma électrique dynamique équivalent de la pile . . . . .	39
4.6	Représentation du modèle dans le diagramme de Bode(gamme de fréquence considérée 0 Hz à 2 kHz). . . . .	39
4.7	Représentation du modèle dans le diagramme de Nyquist(gamme de fréquence considérée 0 Hz à 2 kHz). . . . .	40
4.8	Résultat expérimental d'une réponse transitoire de courant. . . . .	40
4.9	Résultat expérimental d'une réponse transitoire de la tension. . . . .	40
4.10	Véhicule électrique. . . . .	45
4.11	Moniteur de puissance. . . . .	46

# Liste des tables

1.1	Les applications de la pile à combustible pour des différents niveaux de puissance [Jiuj08] . . . . .	11
2.1	Spécifications de l'électrolyseur . . . . .	17
2.2	Spécifications de la pile . . . . .	18
2.3	Les caractéristiques du panneau solaire identifiés . . . . .	20
2.4	Dimensionnement de l'électrolyseur . . . . .	21
2.5	Dimensionnement de la pile à combustible . . . . .	22
4.1	Paramètres identifiés par rapport aux paramètres plausibles . . . . .	37
4.2	Paramètres identifiés . . . . .	41
..		

# Introduction générale

L'hydrogène, identifié pour la première fois par Henry Cavendish en 1766, est l'élément le plus abondant de notre planète. Cependant, il n'existe pratiquement pas dans la nature à l'état pur (sous sa forme moléculaire). On le trouve plutôt lié à d'autres atomes (C, O), par exemple sous forme d'eau (qui couvre environ 70 % du globe terrestre) ou d'hydrocarbures. A condition de savoir le produire en quantité suffisante, l'hydrogène pourrait être converti en énergie de façon quasi-inépuisable. De plus, une production d'hydrogène basée sur l'électrolyse de l'eau et alimentée par une source d'énergie renouvelable (hydraulique, éolienne, solaire, etc.) aurait, sans doute, peu d'impact sur l'environnement. L'hydrogène pourrait ainsi s'imposer comme un second vecteur énergétique, complémentaire à l'électricité. Dans une telle économie de l'hydrogène, les piles à combustible pourraient alors assurer le rôle de convertisseur direct de l'énergie chimique de l'hydrogène en énergie électrique[ROMA07].

Les piles à combustible constitueront l'un des éléments essentiels de la future économie de l'hydrogène. Elles ont la capacité de subvenir à tous nos besoins en énergie tout en offrant un haut rendement et une technologie à très faible degré de pollution. Il existe six catégories principales de piles à combustible. Le modèle le plus utilisé pour les véhicules, les applications portables est la pile à membrane polymère électrolytique (PEM à Polymer Electrolyte Membrane). La pile à combustible PEM utilise essentiellement de l'hydrogène comme réactant mais d'autres produits peuvent être utilisés, comme l'éthanol, ou des produits dérivés de la biomasse. La température de fonctionnement des piles PEM varie entre 20 et 80 C. Dans ces conditions elles présentent des facultés de démarrage comparables à celles des moteurs à combustion

interne. Les piles à combustible PEM présentent des densités de puissance nettes de plus de 1 KW/litre, ce qui les rend tout à fait compétitives avec les moteurs à combustion interne pour une utilisation dans les véhicules[Pars00].

Le travail présenté dans cet thèse se décompose en quatre chapitres qui sont regroupés d'une manière complémentaire.

Le premier chapitre traite de l'histoire des piles à combustible, de leur principe de fonctionnement et les différents éléments qui les constituent, les applications avec leurs niveau de puissance, la dernière partie de ce chapitre est consacré pour le marché des transport qui est l'un des applications les plus prometteuses et surtout pour la pile PEM.

Le deuxième chapitre de ce travail porte sur la description détaillée d'une méthode de production d'hydrogène qui est l'électrolyse de l'eau. Il commence par une description du maquette sur laquelle ce travail a été élaboré, Il vise à dimensionner le système (électrolyseur - pile) est les deux circuit d'alimentation en hydrogène et en oxygène, une caractérisation d'un panneau solaire (qui sert à alimenter l'électrolyseur ) est faite ainsi que celle de la pile à combustible.

Le troisième chapitre aborde la partie de modélisation, un modèle statique est étudié, simulé sur Matlab-Simulink et présenté en montrant l'influence de chaque paramètre sur la caractéristique (courant - tension )de la pile à combustible et en ce qui concerne le modèle dynamique, un modèle simple de la spectroscopie d'impédance qui présente la pile par une impédance équivalente.

Le dernier chapitre est consacré pour la validation expérimentale des deux modèles étudiés, des essais statiques ont été pris et sur ceux ci le modèles statique est validé en identifiant ces paramètres séparément ainsi que le modèle de la spectroscopie d'impédance est validé sur des différents échelons de courant réalisé sur la pile avec l'identification des paramètres du circuit équivalent de la pile.

Enfin, dans une dernière partie, le travail s'est achevé par une conclusion générale, un annexe qui décrit le moniteur réalisé à la base d'un Arduino Uno pour le prélèvement et l'acquisition des mesures (courant - tension), ainsi que les perspectives envisageables pour la poursuite de ce travail.

# Chapitre 1

## Généralités sur la pile PEMFC

### 1.1 Introduction

Les piles à combustible transforment l'énergie chimique en électricité et en chaleur avec une très grande efficacité. Ces dispositifs peuvent être utilisés partout, n'importe quand, aussi longtemps que nécessaire et tant qu'ils seront alimentés en hydrogène, ils produiront de l'électricité. Les piles à combustible sont l'un des rares dispositifs capables d'utiliser de l'énergie renouvelable pour alimenter des installations de puissance. Elles peuvent fournir l'énergie à des appareils électriques portables, des automobiles, des habitations, des immeubles, des vaisseaux spatiaux[Dick00]. Ce chapitre traite de l'histoire des piles à combustible, de leur principe de fonctionnement, de leurs éléments qui les constituent, et des différentes types d'applications existantes.

### 1.2 Historique des piles (PEMFC)

En **1806**, Sir Humphry Davy réalisait l'électrolyse de l'eau (distillée) obtenant l'hydrogène et l'oxygène. Mais ce fut Christian Friedrich Schönbein qui en 1838, le premier observa le principe des piles. Dans son expérience, il utilisait un tube en U avec deux électrodes en platine. Grâce à un courant électrique, il parvint à obtenir de l'hydrogène et de l'oxygène : c'est ce que l'on appelle l'électrolyse. Mais en coupant ce courant, il constata que ces gaz donnaient lieu à un courant électrique

de sens inverse au premier.

**Sir William Robert Grove** n'aurait sans doute pas découvert les piles à combustible s'il n'avait pas rencontré Schönbein lors d'un meeting à Birmingham en **1839**. Ensuite Grove réalisa sa célèbre expérience avec une pile à combustible 1.1 : il s'agissait d'une cellule hydrogène-oxygène avec des électrodes de platine poreux et de l'acide sulfurique comme électrolyte. Ce fut donc Grove, et non Schönbein, qui revendiqua la découverte en **1845**. Il est aussi le concepteur d'une batterie de 50 cellules pouvant produire de l'oxygène et de l'hydrogène à partir de courant et d'eau[Grov39].

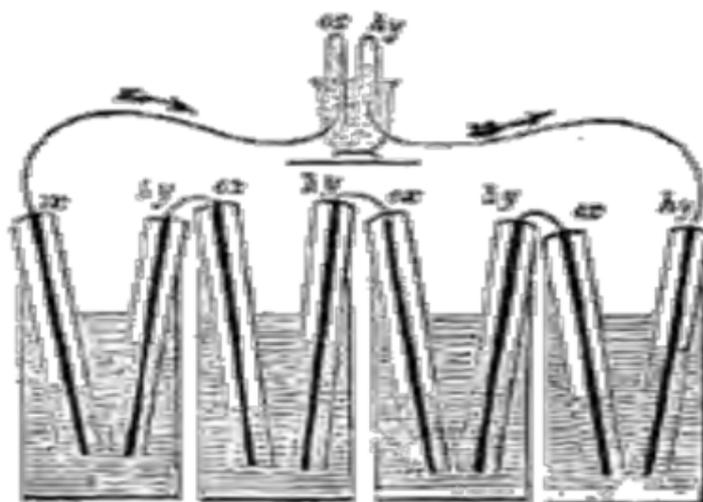


FIGURE 1.1 – Première Pile à Combustible réalisée par W.Grove.

Cependant, cette technique resta ensuite plus ou moins dans l'oubli tandis que se développaient les machines thermiques, les accumulateurs et les piles électriques, pourtant des chercheurs continuèrent de s'intéresser à cette technologie [Corb00].

En **1889**, L. Mond et C. Langer introduit les catalyseurs (platine) et perfectionnent l'électrolyte. En **1921**, E. Baur découvre l'importance de la cinétique et construit une cellule fonctionnant à haute température  $1000^{\circ}\text{C}$ [Jiuj08].

Au début du siècle, l'électrolyte est amélioré : introduction de nouveaux matériaux, carbonates fondus, oxydes solides, acide phosphorique qui seront la base des différents types de piles d'aujourd'hui.

Mais c'est vraiment Francis T. Bacon qui réalisa des progrès essentiels : en **1953**, il construit une pile hydrogène-oxygène ayant un électrolyte alcalin et des électrodes poreuses de nickel et d'oxydes de nickel. Elle fonctionnait entre 80 et 200C. Ce prototype mènera aux piles utilisées dans les programmes spatiaux par la suite.

La pile à combustible PEM est inventé à General Electric (GE) dans les débuts des années**1960** par Thomas Grubb et Leonard Niedrach, Ils ont utilisé (polystyrène sulfoné) comme membrane puis ils l'ont remplacé par le Nafion à 1966. Le Nafion est un tétrafluoroéthylène base de fluoropolymère copolymère sulfoné, c'est une membrane solide avec beaucoup plus de performances et plus forte de point de vue durabilité, aujourd'hui c'est la membrane la plus utilisé [Bran01].

Le programme d'espace de **Gemini 1950-1970** :Les piles à combustibles PEM ont été une grande partie du programme du NASA par Gemini figure 1.2, l'objectif principale était de tester les équipements et les procédures d'Apollo. Les PEMFC de la société General Electric ont été utilisées, mais ils ont trouvés des difficultés concernant la contamination de l'oxygène à travers la membrane ensuite Gemini a développé un nouveau modèle P3, la première mission dont ils ont utilisé PEMFC était Gemini V, Cependant, ils ont été remplacés par des piles à combustible alcalines dans le programme Apollo et de la navette spatiale. Cela a retardé le développement des piles à combustible PEM à une décennie [Jiuj08].

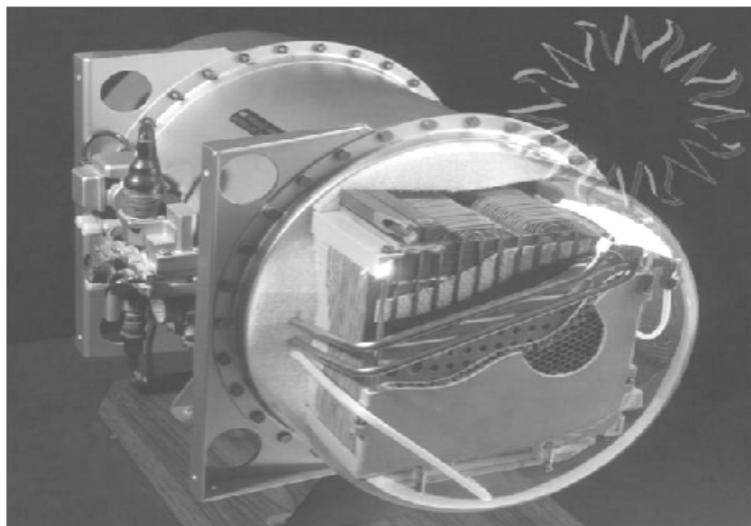


FIGURE 1.2 – Les piles à combustibles utilisés dans la mission spatiale Gemini. (Image de la NASA.)

**1973** : suite au premier choc pétrolier, il apparaît indispensable d'être énergétiquement indépendant. Les recherches sur les piles à combustible reprennent de manière plus importante aux Etats-Unis, au Japon et en Europe grâce à cette prise de conscience .

### **Ballard Breakthrough-1980-2000**

A cause de leurs cout très élevé, Les piles ont été limités pour les missions spatiaux et autres applications spécifique (militaires), jusqu'au années **1980-1990** une recherche de Ballard Power Systems résulte un intérêt des PEMFCc et devient une réel alternative pour beaucoup d'application[Kord96].

A **1983**, Ballard commence a développé les piles à combustibles (PEM fuel cells)(Figure 1.3).

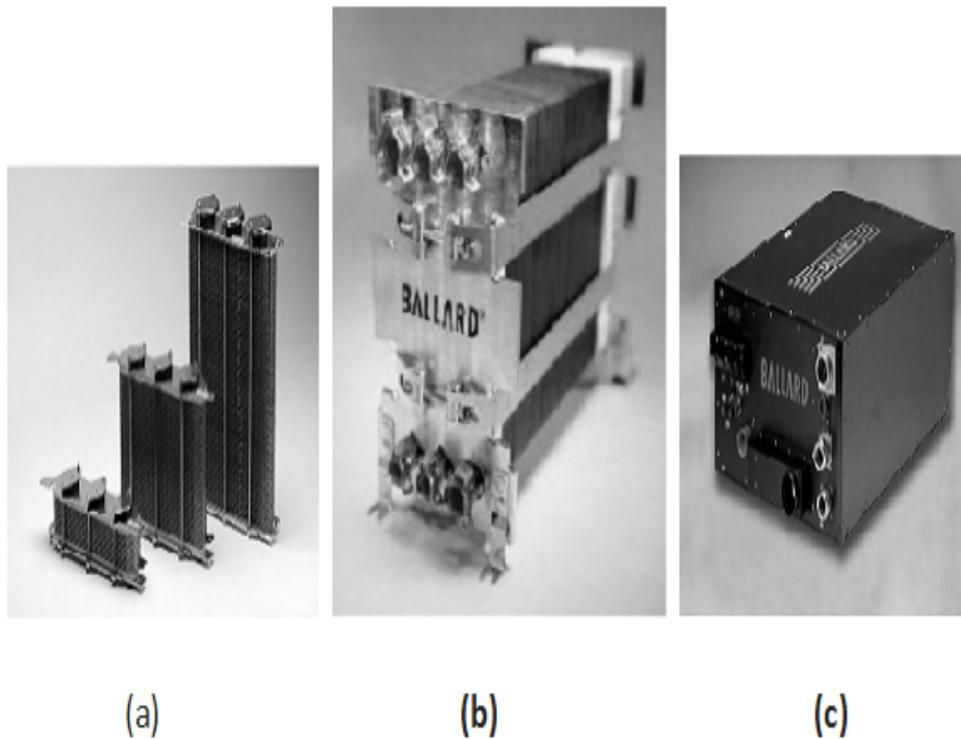


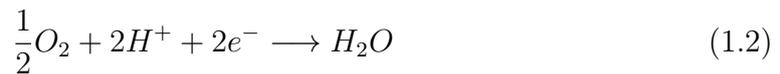
FIGURE 1.3 – Les piles à combustible produites par Ballard Power Systems. (a) Mark1020 ACS , (b) Mark1030 V3, (c) Heavy-Duty carburant module de cellule (HD6). (Images de Ballard Power Systems).

### 1.3 Principe de fonctionnement

Une pile à combustible à membrane polymère PEM est un dispositif électrochimique qui permet de convertir l'énergie chimique des gaz hydrogène et oxygène en énergie électrique. La cellule de la pile est constituée de deux électrodes séparées par une membrane polymère. L'hydrogène est oxydé à l'anode pour donner des protons et des électrons selon la réaction d'oxydation suivante :



Les électrons sont acheminés par le circuit électrique externe de la pile alors que les protons traversent la membrane, imperméable aux gaz et aux électrons, où ils se combinent à l'oxygène et aux électrons pour produire de l'eau, selon la réaction de réduction suivante :



La réaction globale quant à elle s'écrit :

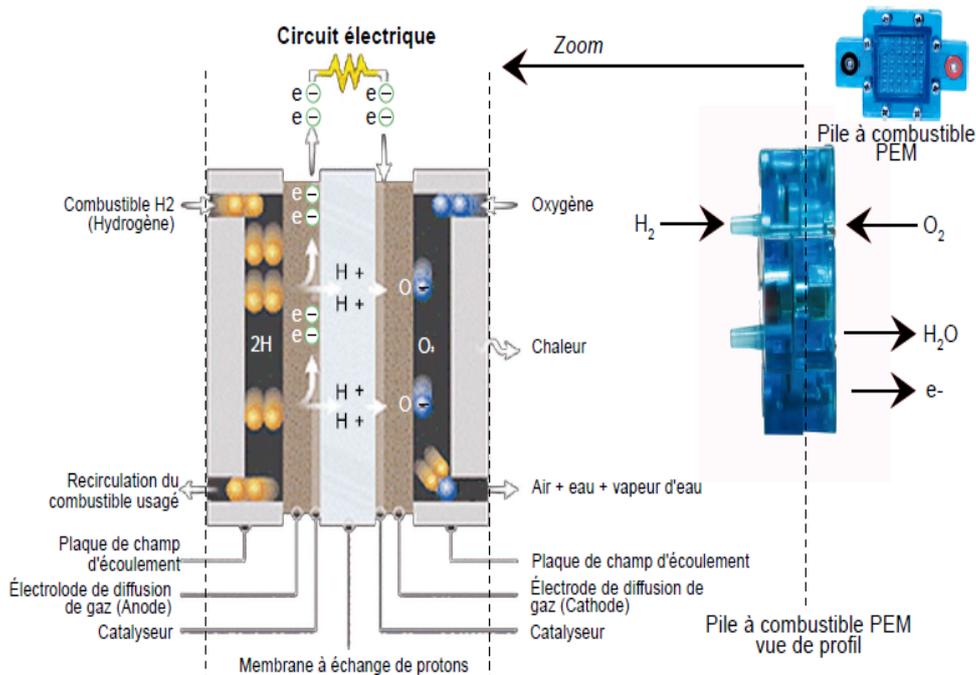
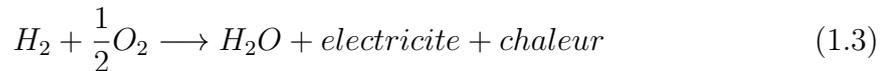


FIGURE 1.4 – Principe de fonctionnement d'une pile à combustible

Cette réaction crée une différence de potentiel entre les électrodes de l'ordre d'un volt, différence de potentiel qui est propre au couple redox que forment  $H_2$  et  $O_2$ .

Du fait de ce caractère naturel très basse tension, les constructeurs assemblent plusieurs cellules en série afin d'obtenir une tension suffisamment élevée avec un rendement satisfaisant.

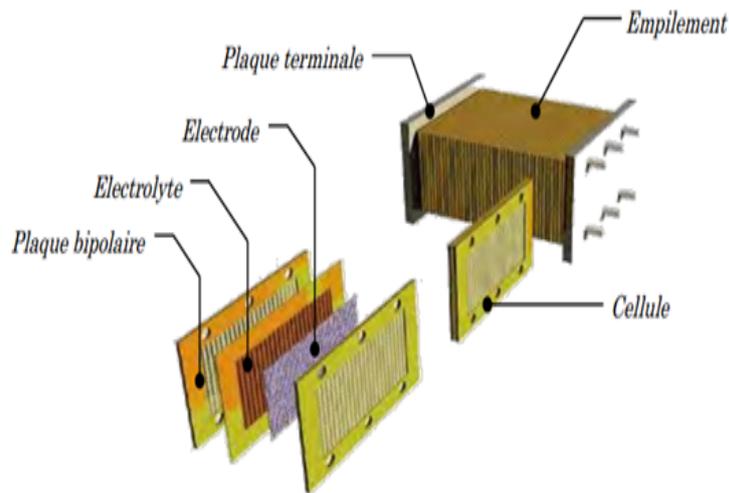


FIGURE 1.5 – Vue éclatée d'une cellule élémentaire de pile à combustible

Une pile à combustible est alors faite d'un empilement de générateurs électrochimiques élémentaires appelés cellules entre deux plaques terminales servant à l'alimentation et constituent les bornes électrique de la pile comme le montre la figure 1.5.

Les piles sont dites propres puisqu'elles fonctionnent sur le principe inverse de l'électrolyse de l'eau et ne rejettent alors que de l'eau et les gaz réactifs non consommés [TEKI04].

## 1.4 Structure interne de PEMFC

Chaque cellule de la pile est constituée de deux plaques bipolaires et d'un Assemblage Membrane Électrodes (MEA). Les deux plaques bipolaires assurent la distribution des gaz réactifs jusqu'aux les électrodes et collectent le courant électrique produit. L'assemblage électrode membrane est le cœur de la cellule, il est constitué d'une membrane polymère conductrice de protons et imperméable aux gaz et

aux électrons, de deux couches actives AL où est dispersé le catalyseur, et de deux couches de diffusion de gaz GDL, comme représenté sur la Figure 1.6.

Les gaz réactifs circulant dans les plaques bipolaires se diffusent dans les GDL avant d'atteindre les couches actives où ont lieu les réactions chimiques. D'un côté, l'oxydation de l'hydrogène à l'anode produit des protons et des électrons qui génèrent le courant électrique, de l'autre côté, la réduction de l'oxygène à la cathode produit de l'eau qui hydrate la membrane. La production d'eau liquide se fait donc uniquement du côté cathodique. En pratique néanmoins, de l'eau est susceptible d'être présente à l'anode à cause de la diffusion à travers la membrane [SAFA12].

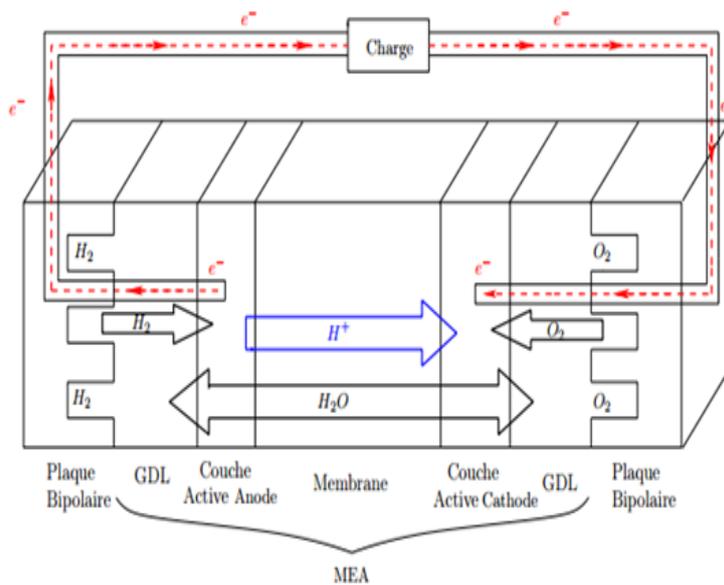


FIGURE 1.6 – cellule d'une pile

### 1.4.1 Les couches de diffusion des gaz GDL

Elles sont constituées d'un matériau poreux, hydrophobe et conducteur électrique et thermique. Elles assurent la diffusion des réactifs jusqu'à la couche active, comme son nom l'indique, et le transport des électrons entre la couche active et les plaques bipolaires. Elles sont généralement constituées de papier ou de tissu de carbone. Grâce à leur caractère hydrophobe, elles assurent une bonne évacuation de l'eau, car si l'eau s'accumule dans les GDL, une large proportion du catalyseur n'est plus accessible au gaz réactif.

## 1.4.2 Les couches actives AL

Les couches actives constituent le lieu des réactions chimiques, elles sont disposées directement sur la membrane et elles contiennent le catalyseur (nanoparticules de platine supportées par des particules de Carbone assurant la conduction électronique), du polymère Nafion qui assure la conduction protonique et une phase poreuse qui permet l'accès des gaz aux sites catalytiques et l'évacuation de l'eau [GLAN04].

La couche active constitue l'endroit où le polymère Nafion, le catalyseur et le gaz se rencontrent dans des volumes très faibles (le point triple de la réaction), comme le montre la Figure 1.7.

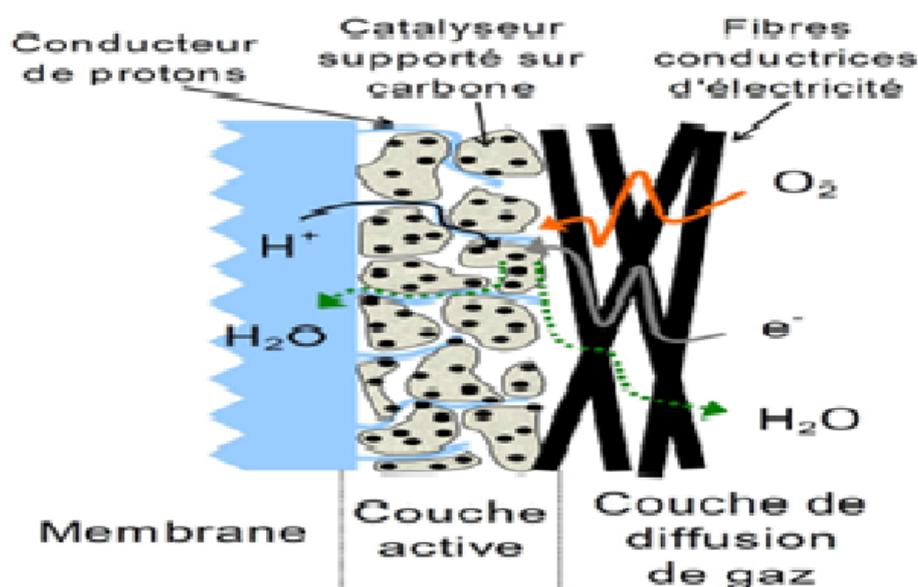


FIGURE 1.7 – Diffusion et réaction de l'oxygène à la cathode. Figure extraite de [Lits04].

## 1.4.3 La membrane

Elle constitue l'électrolyte de la pile et assure la conduction protonique de l'anode vers la cathode sous l'influence d'un champ électrique. Elle doit être imperméable aux gaz pour séparer les réactifs entre les deux électrodes et un bon isolant électronique. Les matériaux le plus couramment employés pour fabriquer les membranes sont les polymères perfluorosulfonés de type Nafion (société Du pont de Nemours). Ce dernier a une bonne stabilité chimique et possède une bonne conductivité ionique

lorsqu'il est bien hydraté. Le polymère est formé d'un squelette Fluoro-carboné et de groupements acides sulfoniques comme représenté sur la Figure 1.8 , il présente un fort caractère hydrophile dû aux groupements sulfoniques terminaux des chaînes pendantes, ce qui permet le déplacement des protons hydratés. La conductivité protonique dépend donc fortement de la quantité d'eau adsorbée [GLAN04].

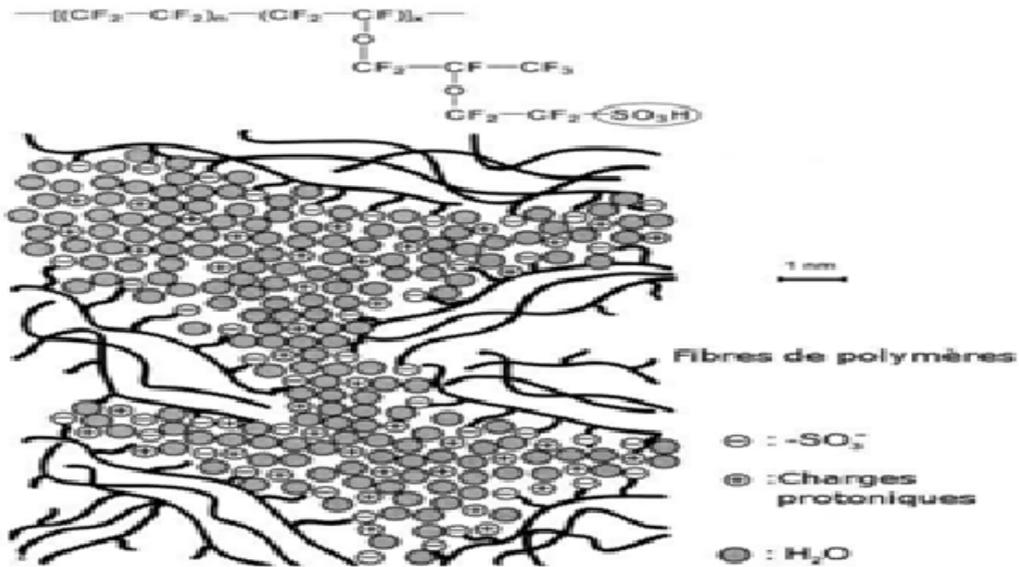


FIGURE 1.8 – Structure chimique de la membrane Nafion : chaque fibre est composée d'une chaîne de polymères organisées de manière que les groupements sulfonates soient disposés à l'extérieur de cœur de la fibre. Figure extraite de [Qing03].

## 1.5 Applications

Étant donné que les piles à combustible PEM peuvent produire de l'énergie à partir de petites puissances à des centaines de kilowatts, ils peuvent être utilisés pratiquement dans toutes les applications, les applications stationnaires, le transport, le portable. Les domaines des piles à combustible PEM ont une variété de niveaux de puissance d'application et ils sont énumérés dans le tableau 1.1.

TABLE 1.1 – Les applications de la pile à combustible pour des différents niveaux de puissance [Jruj08]

Niveau de puissance	Application
$> 1$ MW	Centrale de distribution de puissance
100 kW - 1 MW	Les grands navires de guerre, sous-marins, et bus .
10 kW - 100 kW	Les véhicules de transport tels que les voitures et les bus de taille moyenne, petite centrale
1 kW - 10 kW	Les véhicules de transport tels que les motocyclettes, les véhicules utilitaires, les voitures, yachts ; divers appareils électriques portatifs utilisés pour le champ de travail, une alimentation de secours, alimentation sans coupure, système d'alimentation résidentiel
100 W - 1 kW	Dispositifs d'équitation simples tels que des bicyclettes, des scooters et fauteuils roulants, des ordinateurs
10 W - 100 W	Alimentation portatifs des urgences et matériel militaire, remplacements des batteries, éclairage
$< 10$ W	Petit dispositif d'alimentation portable, téléphone cellulaire

Les Piles à combustibles PEM sont idéales pour toutes ces applications en raison de la disponibilité des différents niveaux de puissance. Les applications pour le transport, tels que les automobiles, les autobus, les véhicules utilitaires, des scooters, des vélos et ont déjà été largement démontrée. Les applications stationnaire peuvent être au niveau de l'une maison individuelle, d'un bâtiment, ou d'une communauté, offrant énorme flexibilité dans l'alimentation, les piles à combustible sont attrayants en tant que générateurs d'alimentation de secours par rapport aux générateurs du moteur à combustion (à cause du bruit, le carburant, la fiabilité, et les considérations de maintenance) ou des batteries (en raison du poids, durée de vie, et les considérations de maintenance). Et enfin des petites piles à combustible comme les générateurs électriques portatifs offrent plusieurs avantages par rapport aux batteries classiques [Barb13].



FIGURE 1.9 – Différentes applications par des piles à combustibles.(a)Prototype de scooter à pile à combustible,(b)Vélo à hydrogène,(c)vélo cargo à trois roues,(d)sous marin alimenté par une pile à combustible (e)voiturette de golf à piles à combustibles (f)Le démonstrateur Boeing au salon de Farnborough en 2008

## 1.6 Marché de transport

Le développement de la technologie des piles à combustible PEM et la démonstration de son application aux véhicules de transport ont connu une croissance rapide dans les 15 dernières années. Dans 1993, Ballard a démontré le premier bus à pile PEM. Puis, après l'annonce de la première pile à combustible avec une densité de puissance de 1 kW / l, la deuxième phase est un bus de Ballard alimenté par une unité de 200 kW. Plus tard, des démonstrations et des essais d'autobus et des voitures alimentés par des piles à combustible PEM. Les fabricants automobiles ont joué un rôle important dans ces démonstrations, comme la régulation de la qualité de l'air se développent progressivement, des constructeurs d'automobiles comme Ford et Volkswagen dépensent des milliards chaque année sur le développement de la pile à combustible PEM pour les voitures hybrides et électriques, Mis à part les bus et les voitures, il existe de nombreux autres types de transport les véhicules étant démontrée. Certaines applications de transport sont représentées sur la figure 1.10.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 1.10 – Quelques applications de transport.(a)Autobus à pile à combustible,(b)La Hyundai ix35 FECV est le premier véhicule à pile à combustible produit en série,(c)Le Coradia un train régional conçu par Alstom, sera équipé d'une motorisation par pile à combustible

Une voiture à PEM peut être alimentée directement en utilisant de l'hydrogène pur en tant que combustible. L'hydrogène gazeux est généralement stocké dans des réservoirs à haute pression afin qu'il offre suffisamment de débit pour propulser le véhicule avec une gamme de conduite appropriée. Certains véhicules sont alimentés par un seul moteur électrique, d'autres utilisent un moteur électrique séparé pour chaque roue, qui produisent ensemble assez de puissance pour propulser à des vitesses importantes. D'autres véhicules utilisent une batterie pour stocker l'électricité produite par la pile à combustible, l'électricité stockée peut être utilisée pour aider à alimenter le moteur électrique ou autre périphérique. Ces véhicules sont conçus pour utiliser un combustible liquide comme l'essence ou le méthanol, qui est stocké dans un réservoir classique non-pressurisé, Ce type de véhicule ont besoin d'un reformeur-un processeur de combustible qui décompose le carburant en hydrogène pour la pile, le dioxyde de carbone et l'eau. Bien que ce processus génère du dioxyde de carbone, il produit beaucoup moins que le montant généré par les véhicules à essence.

## 1.7 Conclusion

Ce chapitre a décrit comment les piles à combustible deviendront un élément essentiel de l'économie basée sur les énergies renouvelables. Les piles à combustible permettent de satisfaire aux besoins en énergie pour les applications stationnaires, pour les véhicules et pour les appareils portables.

Les piles à combustible sont constituées de cinq couches principales :deux couches de diffusion des gaz, deux couches de catalyseur, et une couche électrolytique. Les deux couches de diffusion des gaz sont faites de fibre carbone conductrices qui sont poreuses. La couche catalyseur est un mélange de platine poreux et de carbone. L'électrolyte de la pile à combustible détermine plusieurs autres facteurs tels que : la chimie de la réaction, la température de fonctionnement, les matériaux de construction, et la conception de la pile. Les différences induisent d'importants changements dans les caractéristiques de la pile à combustible qui représentent des avantages ou des inconvénients.

# Chapitre 2

## Circuit d'alimentation de PEMFC

### 2.1 Introduction

L'électrolyseur PEM (Polymer Electrolyte Membrane) est le plus populaire et la plupart des électrolyseurs modernes sont construits selon ce concept. L'électrolyseur PEM utilise le même polymère que la pile à combustible PEM. Les électrolyseurs utilisent l'énergie électrique pour décomposer l'eau en hydrogène et en oxygène. L'électrolyse de l'eau est une réaction chimique, il s'agit d'un processus simple qui ne requiert aucune pièce en mouvement. Il est très fiable et peut produire de l'hydrogène pur d'une manière non polluante lorsque l'électricité utilisée provient de source renouvelable. Le but de ce chapitre est de dimensionner le système (électrolyseur-pile à combustible), nous commençons par la description du maquette sur laquelle ce travail a été élaboré et la caractérisation du panneau solaire qui alimente l'électrolyseur de type PEM, ensuite une description détaillée de cette méthode de production d'hydrogène afin de bien comprendre son fonctionnement, et puis un dimensionnement du système d'alimentation (électrolyseur-pile à combustible) est présenté avec les circuits d'alimentation (circuit d'hydrogène et d'oxygène), enfin une caractérisation de la pile à combustible avec le mentionnement des différentes pertes liées à cette caractéristique.

## 2.2 Description de la maquette

Les essais expérimentaux effectués dans le cadre de ce travail ont été réalisés sur une maquette pédagogique de la marque Horizon, elle est constituée de trois vecteurs énergétiques qui sont l'énergie solaire photovoltaïque, l'énergie éolienne et l'hydrogène. La figure 2.1 montre toutes les éléments qui constituent la maquette, pour les charges électriques il y'a trois types : une résistance variable de 100 ohm, un moteur à courant continu avec des petites hélices et une led (charge fixe), la maquette contient aussi des fils et un connecteur pour pouvoir branché les appareils de mesure librement et enfin il y'a deux tubes gradués qui contient deux cloche pour stoker l'hydrogène et l'oxygène en lisant leurs volumes. Dans notre travail on s'intéresse plus particulièrement à la pile à combustible, et pour cela le travail est composée de 3 parties :

- la production d'hydrogène à partir de l'électrolyseur.
- le stockage d'hydrogène.
- la production d'énergie à partir de la pile à combustible en utilisant l'hydrogène stockée.



FIGURE 2.1 – Maquette pédagogique Horizon.

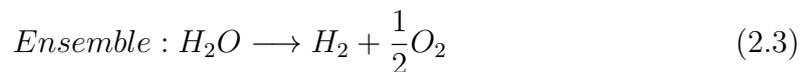
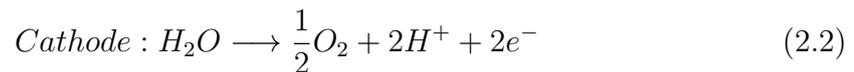
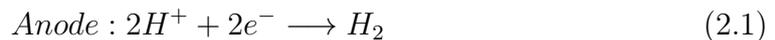
## 2.2.1 L'électrolyseur PEM

L'électrolyseur est aussi de type Pem (polymère électrolyte membrane), il est constitué d'une cellule élémentaire, son alimentation est assuré par un panneau solaire. Son avantage se présente dans sa double fonctionnalité donc il est réversible, il peut fonctionner comme une pile à combustible comme il peut fonctionner comme un électrolyseur lors de l'application d'un courant électrique le dispositif agit comme un électrolyseur qui produit de l'hydrogène et de l'oxygène à partir d'eau distillée. Lors de l'application d'une charge, le dispositif se comporte comme une pile à combustible et génère de l'électricité à partir d'hydrogène. Il est représenté sur la figure 2.3.



FIGURE 2.2 – L'électrolyseur de type PEM.

Ces électrolyseurs utilisent le concept bipolaire. Ils peuvent être conçus pour résister à de fortes différences de pression de chaque côté de la membrane. Les réactions au sein de ces électrolyseurs sont :



L'équation 2.3 montre pourquoi la proportion d'hydrogène est double de celle d'oxygène durant l'électrolyse de l'eau. La structure de base d'un électrolyseur de type PEM est représentée dans la figure 2.3.

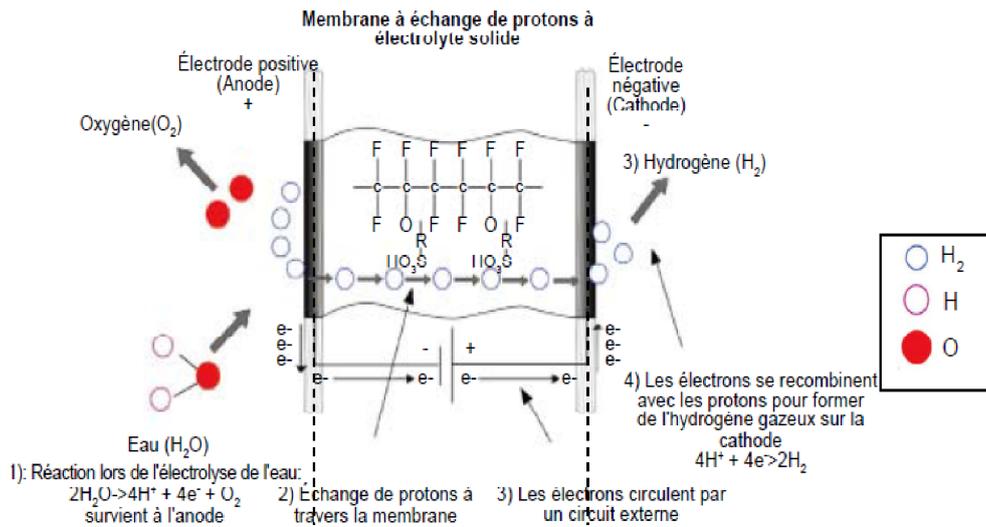


FIGURE 2.3 – Diagramme simplifié d'un électrolyseur de type PEM.

Dans l'électrolyseur de type PEM la membrane polymère permet aux ions  $\text{H}^+$  de passer du côté anode de la membrane au côté cathode, elle sépare également les gaz hydrogène et oxygène. L'hydrogène est produit à l'anode et l'oxygène est produit à la cathode. Le polymère le plus souvent utilisé comme matériau constitutif de la membrane est le Nafion<sup>TM</sup> de DuPont. Un catalyseur de platine est appliqué de chaque côté de la membrane afin de faciliter la dissociation des molécules d'eau en hydrogène et oxygène, ses différentes caractéristiques sont détaillées dans le tableau 2.1.

TABLE 2.1 – Spécifications de l'électrolyseur

Dimensions	54x54x17 mm
Le poids total	69.7 g
Tension d'entrée	1.8 V 3V (DC)
Courant d'entrée	1A
Le taux de production d'hydrogène	16 ml/min (1A)
Le taux de production d'oxygène	8ml/min (1A)

## 2.2.2 La pile à combustible PEM

Cette pile est constituée d'une seule cellule élémentaire, elle génère l'électricité tant qu'elle est alimentée par l'hydrogène à l'anode et l'oxygène à la cathode comme elle peut fonctionner aussi par l'air ambiant. Le tableau suivant décrit ses caractéristiques et elle est présentée sur la figure 2.2.

TABLE 2.2 – Spécifications de la pile

Dimensions	32x32x32 mm
Le poids total	27.3 g
Tension de sortie	0.6V (DC)
Courant de sortie	0.45 A
La puissance	270 mW
La couleur	Bleu



FIGURE 2.4 – Pile à combustible de type PEM.

### 2.2.3 Le panneau solaire

La puissance électrique appliquée sur l'électrolyseur pour produire de l'hydrogène est assurée par des cellules photovoltaïques (figure 2.5) qui convertissent le rayonnement lumineux en énergie électrique.

Dans ce qui suit une caractéristique pratique de ce panneau ( courant - tension ) est présenté dans la figure 2.2.



FIGURE 2.5 – Panneau solaire.

#### Modèle simple

Un circuit équivalent d'une cellule photovoltaïque se compose d'une diode parallèle à une source de tension idéale avec une résistance en série (figure 2.6). La source de courant délivre un courant proportionnel au flux du rayonnement solaire auquel est exposée.

Certaines de ces résistances peuvent être le résultat des connexions entre les cellules, et certaines peuvent être dues aux résistances des semi-conducteurs eux-mêmes.

Pour analyser la figure 2.6, le circuit équivalent sera simplifié :

$$I = I_{cc} - I_d \quad (2.4)$$

$$I = I_{cc} - I_0 \left( \exp^{q \left( \frac{V + I R_s}{nKT} \right)} - 1 \right) \quad (2.5)$$

Où  $I$  :le courant d'une cellule.

$I_{cc}$  :le courant de court circuit.

$I_0$  :le courant de la saturation de la diode.

$q$  : La charge d'un électron ( $1,6.10^{-19}$  C).

$V$  :le tension aux bornes d'une cellule.

$R_s$  :la résistance en série.

$n$  :facteur d'idéalité de la diode.

$K$  :la constante de Boltzmann ( $1.38.10^{-23}$  Joules/Kelvin).

$T$  :la température de la cellule en Kelvin.

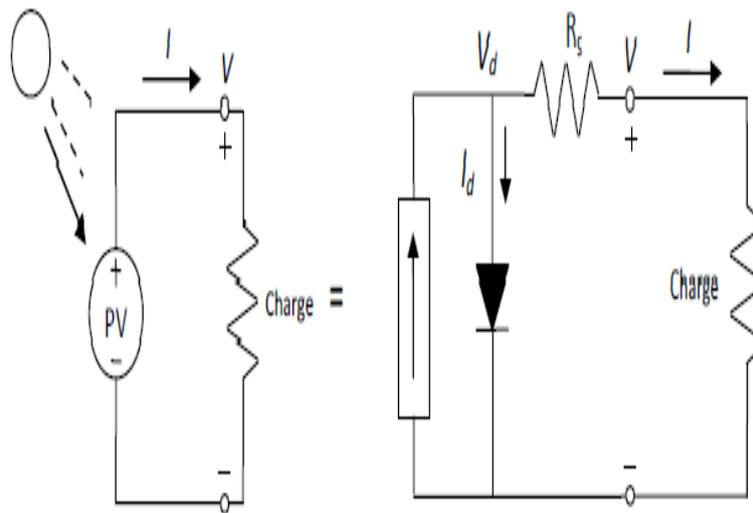


FIGURE 2.6 – Circuit électrique simple d'une cellule photovoltaïque avec une résistance série.

Les paramètres identifiés expérimentalement sont la résistance en série et le coefficient d'idéalité, ils sont donnés dans le tableau 2.3 avec les autres caractéristiques du panneau. La tension de circuit ouvert est (2.2 V) et le courant de court circuit est (0.6 A), ces deux paramètres sont bien adaptés avec la tension et le courant d'entrées de l'électrolyseur ce qui vérifie ce couplage (panneau- électrolyseur). L'interpolation polynomiale est faite par l'option courbe - fitting sur Matlab et les coefficients du polynôme de sixième degré sont :  $[-1.8457e+03 \ 2.5923e+03 \ -1.3490e+03 \ 318.9496 \ -34.3747 \ 0.7524 \ 2.1470]$ .

TABLE 2.3 – Les caractéristiques du panneau solaire identifiés

Les caractéristiques	
La puissance maximale	0.8watt
La tension du circuit ouvert	2.2V
Le courant de court-circuit	0.6A
La tension optimale	1.6V
Le courant optimal	0.5A
La résistance en série	0.01 ohm
Le coefficient d'idéalité	1.3

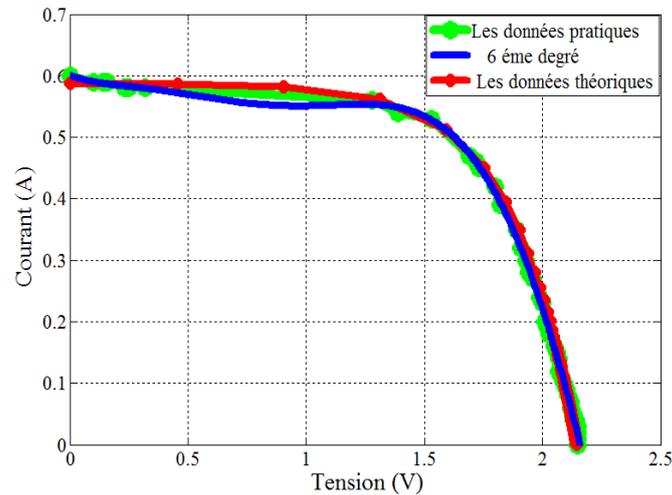


FIGURE 2.7 – L'allure de la caractéristique pratique (i - v) du panneau avec son interpolation.

Pour un éclairement qui est égale à  $980Watt/m^2$  et une température de  $25C$ , le panneau utilisé génère une puissance électrique de l'ordre de  $\approx 0.81Watt$  comme montre la figure 2.3. les coefficients d'interpolation de la courbe (v - p) sont : coeff :  $[0.1492 -1.0610 2.4243 -2.2652 0.8016 0.4854 0.0022]$ . Les figures 2.7 et 2.8 présentent les résultats théoriques,pratiques et celle de l'interpolation polynômiale des caractéristique du panneau.

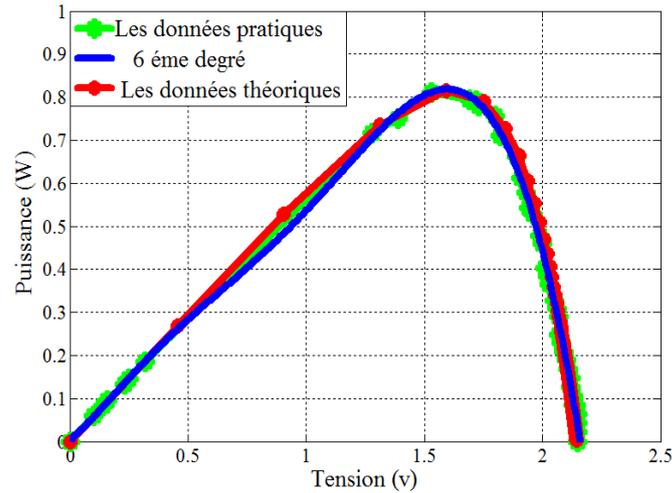


FIGURE 2.8 – L’allure de la caractéristique pratique (v - p) du panneau avec son interpolation.

## 2.3 Dimensionnement du système

### 2.3.1 Production d’hydrogène (l’électrolyse de l’eau)

La puissance électrique générée par le panneau solaire attaque un électrolyseur opérant sur des molécules d’eau distillé et stockant l’hydrogène et l’oxygène ainsi fabriqués dans deux tubes comme la figure 2.4 indique. Ces deux gaz servent enfin a alimenter une pile à combustible qui débite sur une charge.

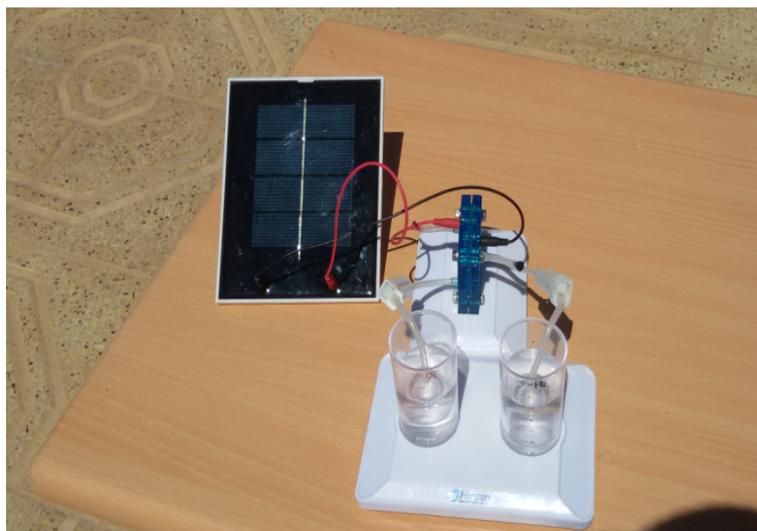


FIGURE 2.9 – L’électrolyse de l’eau à partir de l’énergie solaire.

Nous allons dans un premier temps mesurer le courant, la tension électriques et le volume d'hydrogène et d'oxygène produits, ensuite on calculera la charge et la quantité d'électrons échangée :

TABLE 2.4 – Dimensionnement de l'électrolyseur

Paramètres	Valeurs
Durée	5 min 30 secondes
Courant	0.47 A
Tension	1.63 V
Puissance	0.7661 Watt
Energie	0.07 Watt heure
Volume de $H_2$ produit	16 ml
Volume de $O_2$ produit	8ml

D'après l'équation globale, on constate que la quantité de dihydrogène produite est deux fois plus importante de celle de dioxygène ce qui est vérifié par les volumes d'hydrogène et d'oxygène produits :



Le nombre d'électrons échangé dans cette équation est :  $2e^-$ .

La charge électrique corespondante est :

$$Q = I.t$$

$$Q = 0.47(A).330(s) = 155.1Coloumb \quad (2.7)$$

### 2.3.2 Production d'électricité à partir d'hydrogène

Le dihydrogène et le dioxygène produits en première partie sont envoyés vers la membrane d'une pile à combustible. La pile alimente une résistance de 100 ohms comme montre la figure 2.5. L'intensité du courant fourni, la tension aux bornes de la pile, la durée de fonctionnement sont mesurés, ensuite une comparaison entre les

résultats avec celles de fonctionnement de l'électrolyseur et un calcul du rendement de la pile est établie.

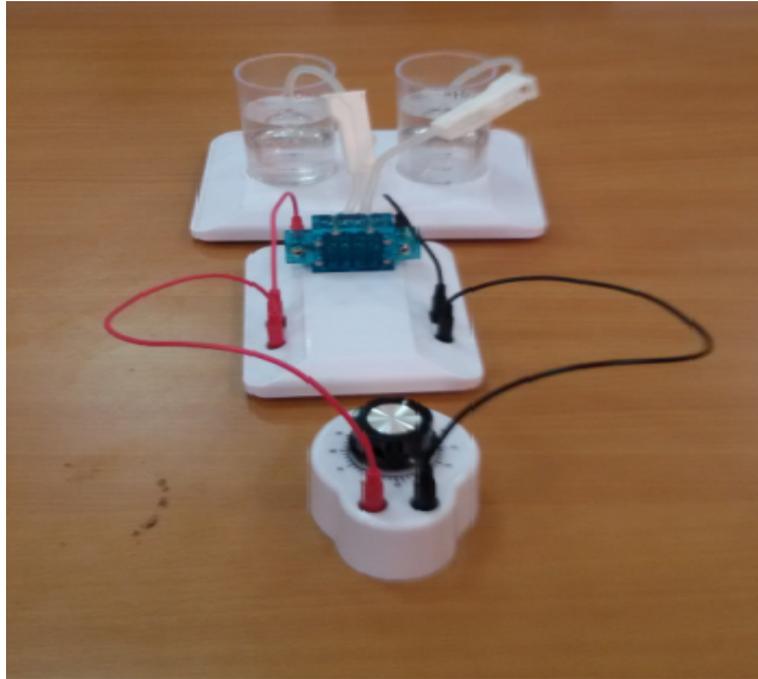


FIGURE 2.10 – La pile à combustible avec une charge fixe.

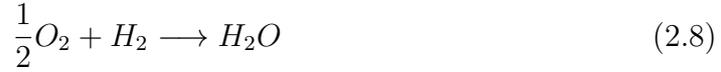
TABLE 2.5 – Dimensionnement de la pile à combustible

Paramètres	Valeurs
Durée	225 min
Courant	6 mA
Tension	0.63 V
Puissance	3.8 mWatt
Energie	0.01425 Watt heure
Volume de $H_2$ consommé	16 ml
Volume de $O_2$ consommé	8ml

Avec  $v=16\text{mL}$  de dihydrogène, La pile débite un courant de l'ordre de 6 mA pour une résistance de 100 ohm pendant  $t= 225$  min. Au départ, il fallut quelques secondes pour que le courant soit à 6mA. A la fin on néglige ses régimes transitoires

dans les calculs.

L'équation globale de la pile :



Le nombre d'électrons échangé dans cette équation est :  $2e^-$ .

La charge électrique correspondante est :

$$Q = I.t$$

$$Q = 0.006(A).13500(s) = 81Coloumb \quad (2.9)$$

### 2.3.3 Rendement du système (électrolyseur - pile)

Premièrement, il convient de noter que le niveau d'oxygène correspond à la 8ml, ce qui représente la moitié du volume d'hydrogène qui a atteint la graduation 16ml. Ceci confirme que l'eau est constitué de deux parties d'hydrogène et d'une partie d'oxygène comme sa formule chimique l'indique  $H_2O$ .

La tension du panneau est 1.63 volts, elle est largement suffisante pour effectuer l'électrolyse .La décomposition de l'eau requiert en effet environ 1.5 volts au minimum pour se produire. A partir des données contenues dans les deux tableaux précédents, L'énergie se calcule en multipliant la puissance par le temps .

Exemple :

$$E = Puissance * Temps$$

$$E = 0.7661 * 330 = 252.81wattsecondes \quad (2.10)$$

Il est possible de convertir les watts -secondes en watt-heures en les divisants par 3600.

Pour calculer le rendement de ce système, il faut diviser l'énergie fournie pour produire de l'hydrogène qui est l'energie de l'electrolyseur sur l'énergie produite par la pile :

$$\eta(\%) = \frac{E_{pile}}{E_{lectrolyseur}}.100 \quad (2.11)$$

$$\eta(\%) = \frac{0.01425}{0.07}.100 \quad (2.12)$$

$$\eta(\%) = 20.60\% \quad (2.13)$$

### 2.3.4 Circuit d'air

Ce circuit permet d'alimenter en comburant le compartiment cathodique de la pile, le comburant (l'oxygène) peut être stocké dans un tube sous une pression, ou bien l'alimentation se fait à partir de l'air ambiant, sous une pression atmosphérique.

### 2.3.5 Circuit d'hydrogène

Ce circuit a pour fonction d'alimenter le compartiment anodique de la PAC en combustible, ce dernier peut être produit à partir de l'électrolyse de l'eau et stocké directement dans le tube coté hydrogène sous une pression.

## 2.4 Caractéristique de la pile

Cette partie étudie les trois états fondamentaux d'une pile à combustible qui produit une tension, un courant donc de la puissance vers une charge. Ces états sont appelés activation, ohmique, transfert des masses.

Ce sont les états de polarisation et ils sont montrés ci-dessus sur la figure 2.6 qui présente la tension en fonction du courant pour une température constante (25 C°) et des débits fixes d'oxygène et d'hydrogène.

Le voltage réel d'une pile à combustible est plus faible que le voltage théorique (potentiel thermodynamique) à la suite de la réaction, des pertes dues au transfert de charge et de masse. La performance d'une pile à combustible peut être illustré par une courbe de polarisation qui se compose de trois segments comme on a déjà mentionné :

- Les pertes d'activation.
- Les pertes ohmiques.
- Les pertes de transfert de charges.

Ainsi, la tension nominale d'une cellule peut se représenter comme l'écart entre la tension théorique et les pertes :

$$V = E_r + V_{act} + V_{ohmic} + V_{conc} \quad (2.14)$$

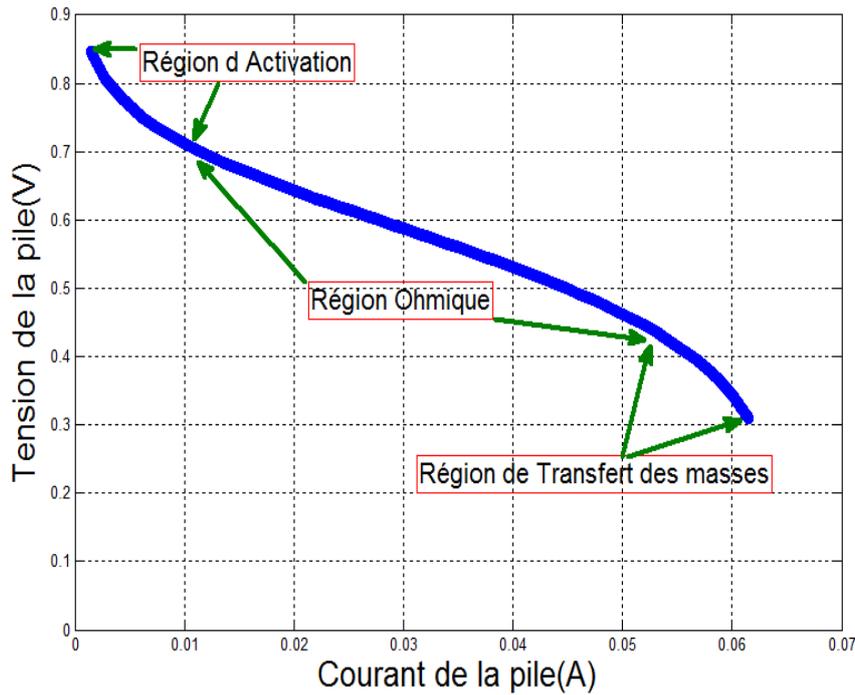


FIGURE 2.11 – Courbe de polarisation d’une pile à combustible.

Où  $V$  représente le potentiel de la cellule.

$E$  représente le potentiel thermodynamique ou tension de Nernst.

$V_{act}$  représente la perte de tension due à la polarisation d’activation.

$V_{ohmic}$  est la perte de tension due à la polarisation ohmique, et  $V_{conc}$  est la perte de tension due à la polarisation de concentration.

L’explication des termes de l’équation 2.11 et de la figure 2.10 proviennent de l’étude détaillée de différentes disciplines scientifiques. Le voltage de Nernst (voltage thermodynamique théorique) provient de l’étude de la thermodynamique, les pertes d’activation sont décrites par l’électrochimie, le transport des charges définit les pertes ohmiques, et les pertes de concentration sont expliquées par le transfert de masse. Les pertes d’activation et de concentration se produisent aussi bien sur l’anode que sur la cathode, alors que les pertes ohmiques représentent les pertes résistives qui surviennent dans l’ensemble de la pile à combustible.

Les pertes d’activation surviennent principalement quand les réactions électrochimiques sont lentes à produire du courant. Lorsque la pile à combustible PEM produit davantage de courant, les pertes d’activation augmentent à un rythme plus

lent que les pertes ohmiques, c'est à dire les pertes sont dues au temps mis par la réaction pour produire du courant.

Les pertes ohmiques sont liées au mouvement des charges de l'électrode où elles sont produites vers la charge électrique où elles sont consommées. Les deux types principaux de particules chargées sont les électrons et les ions et toutes les deux sont sujettes aux pertes ohmiques dans une pile à combustible. Les pertes subies par les électrons surviennent entre les plaques bipolaires de refroidissement et de contact selon la qualité de contact qui existe entre les deux sortes de plaques. Les pertes subies par les ions surviennent dans la membrane alors que les ions  $H^+$  traversent l'électrolyte.

Les pertes de concentration sont dues aux réactants incapables d'atteindre les points électro-catalytiques, ce qui peut affecter le rendement de manière significative. Ces pertes de transfert de charges peuvent être minimisées en s'assurant que la quantité d'hydrogène exacte, que l'air et l'eau circulent à travers les plaques, les couches de diffusion des gaz et les couches catalytiques .

## 2.5 Conclusion

Ce chapitre a décrit comment un électrolyseur peut produire l'hydrogène et l'oxygène en utilisant l'électricité d'origine renouvelable(énergie solaire). Parmi Les avantages des électrolyseurs sont les suivants :

- L'hydrogène produit est très extrêmement pur et le procédé se déroule de manière non polluante.
- Il peut être produit directement sur le site et au moment où il sera utilisé, il n'est donc pas nécessaire de le stocker.
- Le coût de cet hydrogène est bien inférieur à celui de l'hydrogène livré en cylindres haute pression.

Le dimensionnement du système (électrolyseur - pile à combustible ) est un clé essentiel dans le domaine de la production d'électricité à partir de l'hydrogène et à la fin de ce chapitre une explication détaillé est établie concernant la caractéristique de la pile et ces réversibilité liées.

# Chapitre 3

## Modélisation du Système pile à combustible

### 3.1 Introduction

**P**AR définition, Un modèle doit prédire le comportement d'un système quelconque, et pour une pile à combustible, plusieurs modèles peuvent être développés selon l'objectif recherché. L'intégration d'une pile à combustible dans un environnement électrique nécessite la connaissance de son modèle électrique. Le modèle doit être simple, précis et doit permettre de prédire le comportement électrique tant en régime statique qu'en régime dynamique.

Pour cela, nous sommes focalisées sur la modélisation statique et dynamique de la pile PEM. Le modèle statique étudié est le modèle de Larminie et Dick, Il est étudié, simulé sur Matlab-Simulink et puis validé expérimentalement en identifiant ses paramètres. La deuxième partie de ce chapitre est consacré pour l'étude du modèle de la spectroscopie d'impédance (EIS).

## 3.2 Modèle statique

Parmi les modèles statiques qui existent, le modèle de Larminie et Dick qui est un modèle empirique, c'est -à- dire sa relation mathématique est en fonction de courant, il modélise le fonctionnement de la pile au régime permanent. Ce modèle représente l'allure de la caractéristique courant - tension de la pile et ses paramètres seront identifiés expérimentalement :

$$V = E_{th} - A \log\left(\frac{i}{i_o}\right) - R_m i + B \log\left(1 - \frac{i}{i_{lim}}\right) \quad (3.1)$$

Avec :  $E_{th}$  :Le potentiel thermodynamique ou bien la tension de circuit ouvert.

A :La pente de Tafel.

$i_o$  :Le courant d'échange.

$R_m$  :La résistance de la membrane et les différentes résistances de contacts.

B :Le coefficient du terme de transport de masse.

$i_{lim}$  :Le courant limite de la pile.

Pour voir l'influence de chaque paramètre sur la caractéristique, il faut varier ce paramètre et fixer les autres. Le paramètre à étudier doit être multiplier et diviser par 2 [SAAD14], sauf le courant limite, on ajoute et puis on soustrait un sixième de sa valeur.

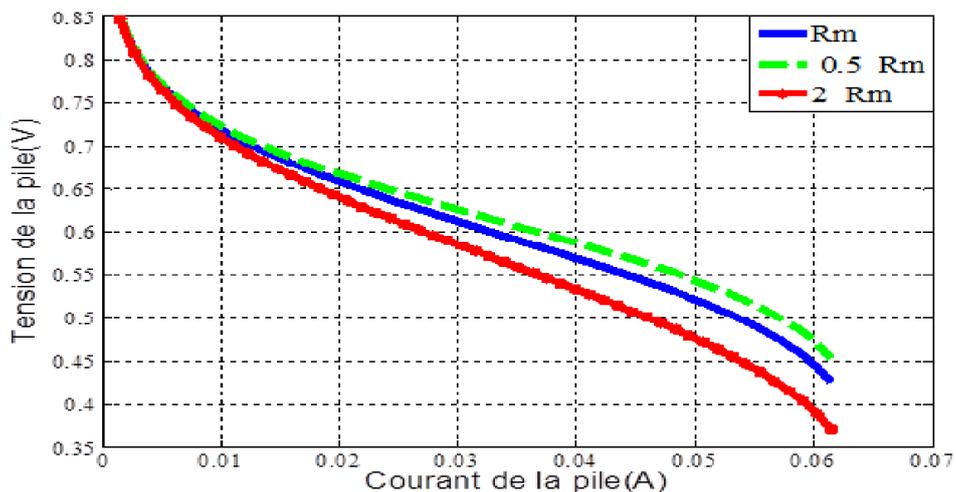


FIGURE 3.1 – Influence de la résistance de la membrane sur la chute ohmique et sur la tension totale PàC (valeur de la résistance :  $2R_m$ ,  $R_m$  et  $0.5R_m$ ).

On remarque sur la figure 3.1 que la variation de la résistance influe sur la partie linéaire de la caractéristique donc sur la chute ohmique, l'augmentation de la résistance implique une diminution de la tension avec des valeurs constantes de courant, ceci est expliqué par la translation de l'allure vers le bas. L'électrolyte et les électrodes obéissent à la loi d'Ohm, il s'agit d'une conduction ionique dans la membrane et électronique dans les électrodes qui sont influencés par une résistance global ( $R_m$ ) de la pile. Il faut citer que les ions ayant une mobilité bien plus faible que les électrons, ce qui explique que la résistance de la membrane est bien plus grande.

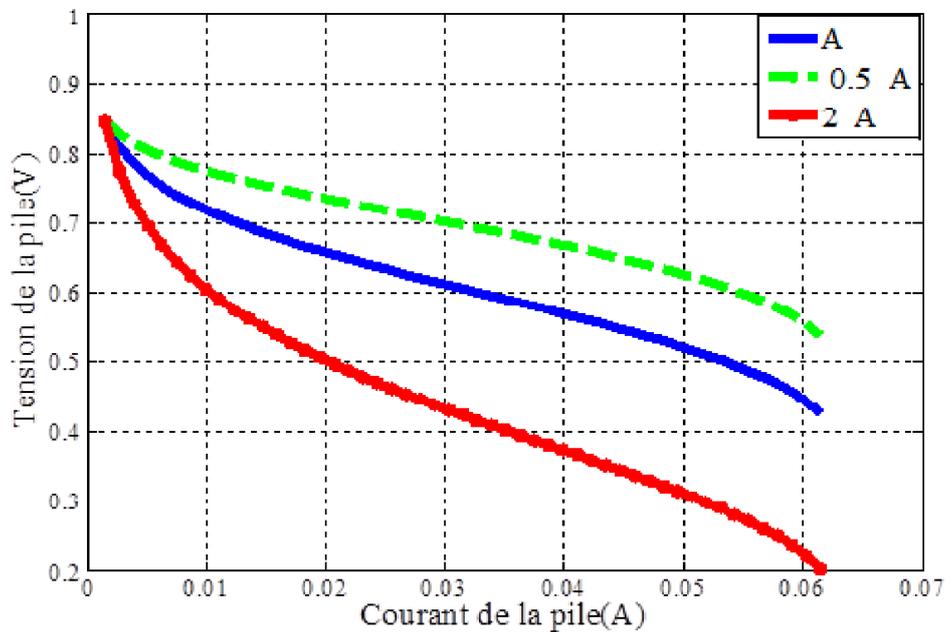


FIGURE 3.2 – Influence du paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale de la pile (valeur du coefficient : 2A, A et 0.5A).

La figure 3.2 représente l'influence du coefficient A qui est le coefficient des pertes d'activation, et il correspond à la pente de tafel, il est égale à  $\frac{RT}{2\alpha F}$  avec :

R : La constante universelle des gaz. T(K) : La température en Kelvein. F est le nombre de Faraday.  $\alpha$  : est le coefficient de transfert de charges il varie de 0,1 à 1 selon la réaction et le type des électrodes. Plus le coefficient augmente plus la réaction est lente en générale A est égale à 0,06.

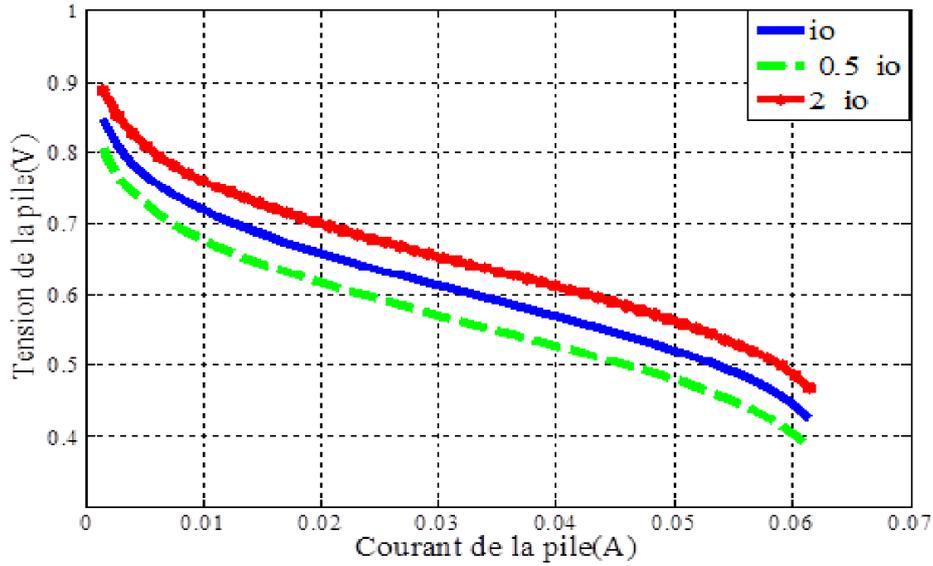


FIGURE 3.3 – Influence du courant d'échange  $i_o$  sur les pertes d'activation et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :  $2i_o, i_o$  et  $0.5 i_o$ ).

Le courant  $i_o$  est le courant d'échange et c'est à partir de sa valeur que la réaction commence à s'activer, l'augmentation du  $i_o$  implique la diminution des pertes d'activation comme montre la figure 3.3.

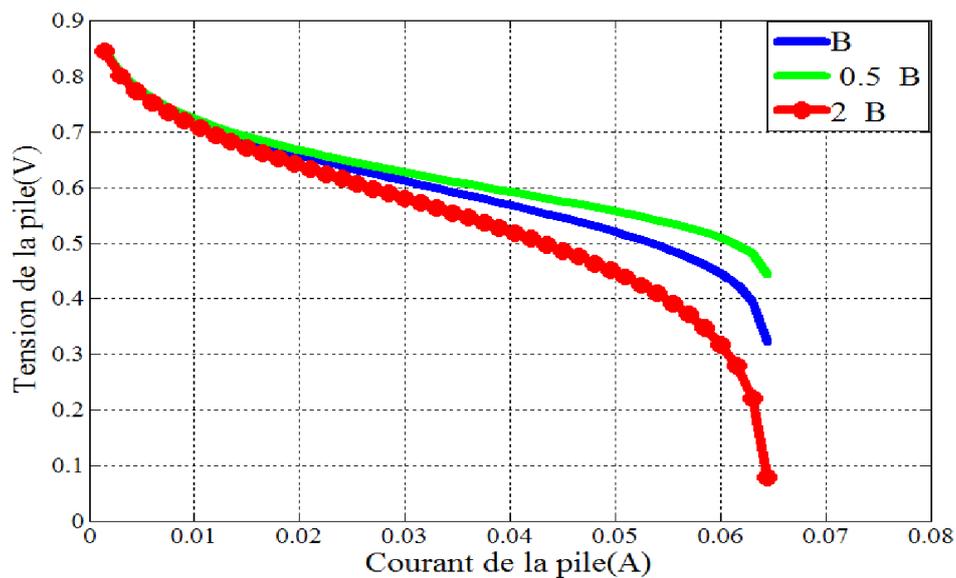


FIGURE 3.4 – Influence du paramètre B sur les pertes de transport de matière et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :  $2B, B$  et  $0.5B$ ).

La figure 3.4 montre l'influence du terme B sur les pertes de transport de matières. Ce dernier est un facteur multiplicateur de la chute de tension de diffusion.

Cette chute de tension n'intervient pas pour les faibles valeurs du courant, par contre elle intervient fortement pour les valeurs du courant qui s'approchent de la valeur du courant limite, B est égale à  $\frac{RT}{2F}$ .

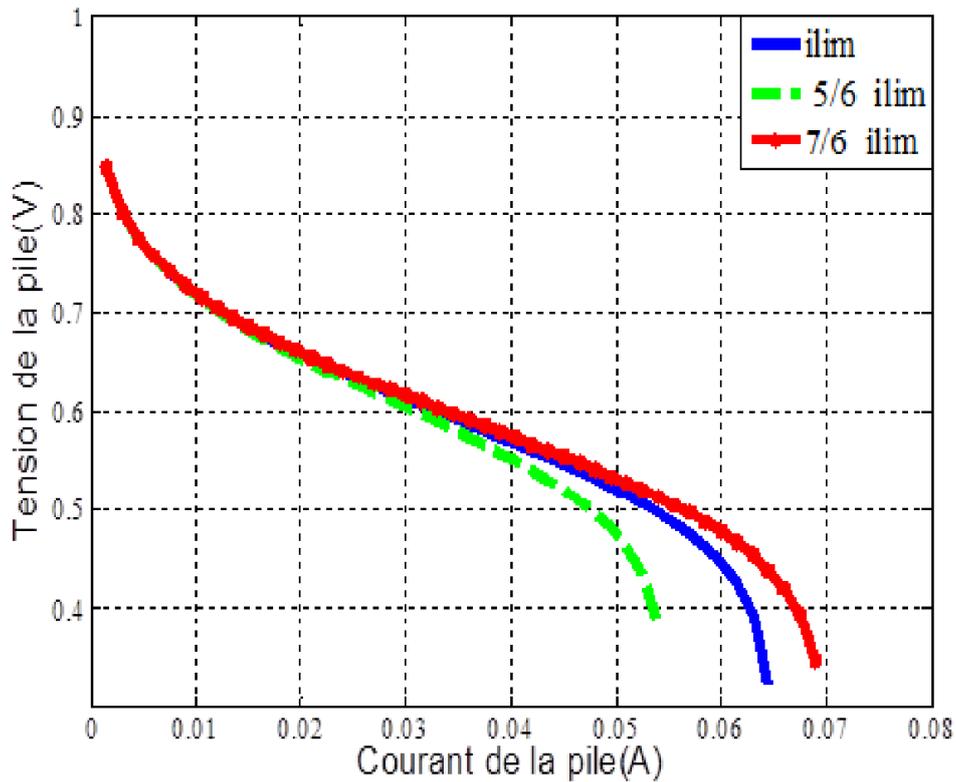


FIGURE 3.5 – Influence du courant limite sur les pertes de transport de matière et la tension totale de la pile (valeur du coefficient :  $5/6$  ilim, ilim et  $7/6$  ilim).

La figure 3.5 fait apparaître l'influence du terme ilim sur la région de transport de masse sa valeur détermine la zone de fonctionnement de la pile.

## 3.3 Modèle de la spectroscopie d'impédance

### 3.3.1 Définition

La méthode de mesure d'impédance ou bien la spectroscopie d'impédance consiste à obtenir l'impédance électrique d'un dispositif sur une large gamme de fréquence tout au long de la caractéristique de polarisation.

### 3.3.2 Méthode :

Le principe de cette méthode est d'appliquer un sinusoïdal de faible amplitude autour d'une valeur continue et à mesurer le signal de réponse (courant - tension) et par l'application de la loi d'ohm on peut calculer les parties réelles et imaginaires c'est-à-dire la phase et l'amplitude de l'impédance complexe [SADL06].

Si on applique une perturbation sinusoïdale sur la composante continue de la tension, l'expression totale de celle-ci devient :

$$V(\omega t) = V_0 + \Delta V \cdot \sin(\omega t)$$

L'intensité du courant mesuré sera déphasée de  $\phi$ , son expression sera de la forme suivante :

$$I(\omega t) = I_0 + \Delta I \cdot \sin(\omega t - \phi)$$

L'impédance autour du point de fonctionnement  $(I_0, V_0)$  a alors pour valeur :

$$Z(\omega) = \frac{\Delta V}{\Delta I} \exp(j\phi)$$

Où  $\Delta V$  et  $\Delta I$  sont respectivement les amplitudes de l'ondulation de la tension superposée sur la composante continue et du courant qui la traverse et  $\phi$  est le déphasage entre les ondes sinusoïdales de tension et de courant. On peut écrire l'impédance complexe sous cette forme aussi :

$$Z(\omega) = \text{Re}(Z(\omega)) + j\text{Im}(Z(\omega))$$

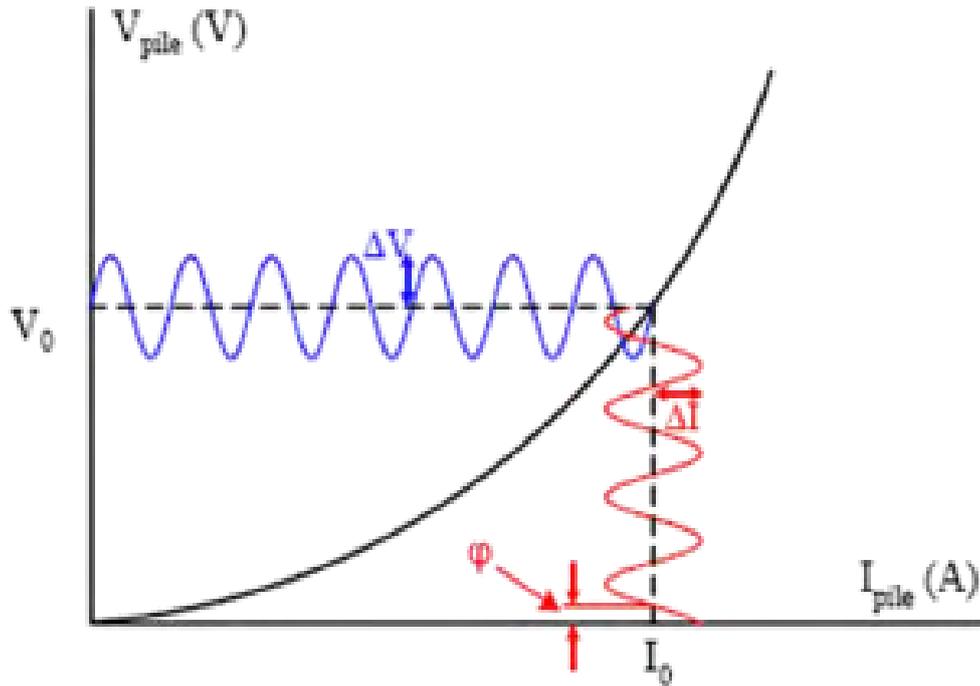


FIGURE 3.6 – Principe de linéarisation autour d'un point de fonctionnement [SADL06].

### 3.3.3 Représentation

Cette impédance définie pour une série de valeurs de la fréquence (ou de la Pulsation) des ondes de courant et de la tension, peut être représentée dans un Diagramme de Nyquist ou de Bode.

Dans le plan de Nyquist, l'abscisse d'un système de coordonnées cartésiennes correspond à la partie réelle de l'impédance  $Z(\omega)$  et l'ordonnée à sa partie imaginaire. Cette représentation est utilisée par les électriciens, les électro chimistes préfèrent porter en ordonnée  $-Im(Z(\omega))$ .

Dans le plan de Bode, l'abscisse correspond à la fréquence et l'ordonnée à son module. Les électriciens et les automaticiens utilisent  $20 \cdot \log|Z(\omega)|$ , en décibels, en fonction de  $\log(\omega)$  ou de  $\log(f)$ . Les électro chimistes portent  $\log|Z(\omega)|$  en fonction de  $\log(\omega)$  ou de  $\log(f)$ .

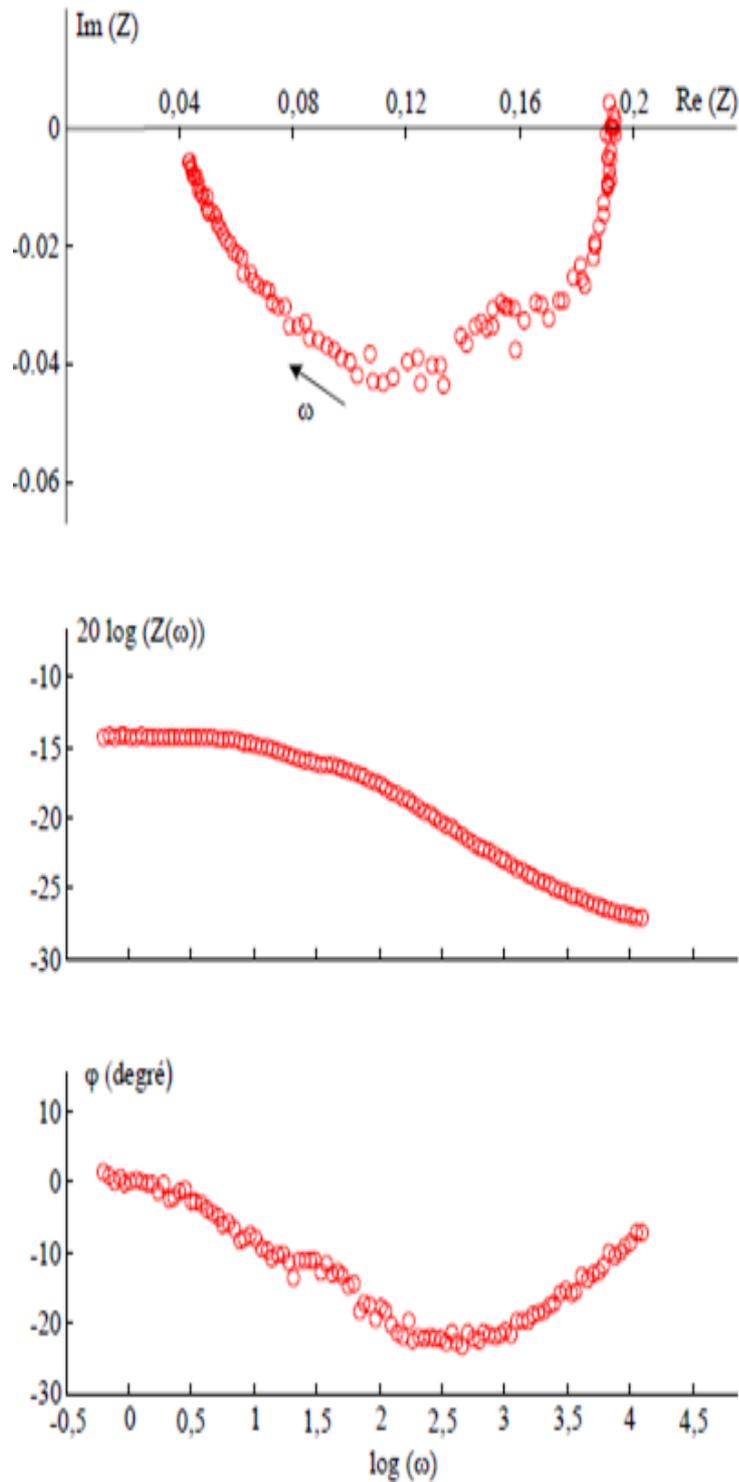


FIGURE 3.7 – Exemple expérimental d'impédance de la pile à combustible PEM du GREEN. En haut dans le plan de Nyquist, en bas dans le plan de Bode (gamme de fréquence considérée 0,05 Hz à 2 kHz) [SADL06].

### 3.3.4 Les impédances des éléments électriques et leurs représentations dans le plan de nyquist

#### 3.3.4.1 Élément résistif R

L'impédance d'une résistance est indépendante de la fréquence du réseau et elle est égale à  $Z=R$ .

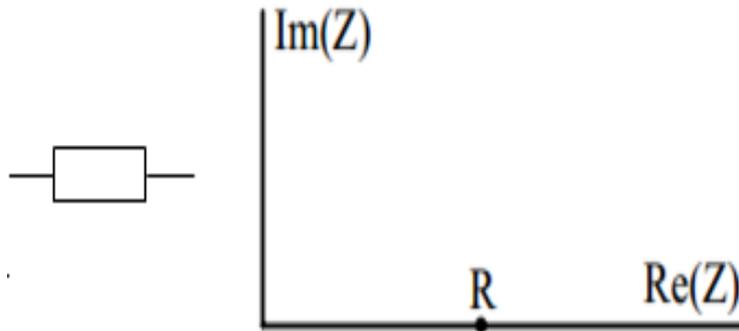


FIGURE 3.8 – Représentation d'un élément résistif

#### 3.3.4.2 Élément capacitif C

L'impédance d'une capacité vaut :  $Z(\omega) = \frac{1}{j\omega.C}$

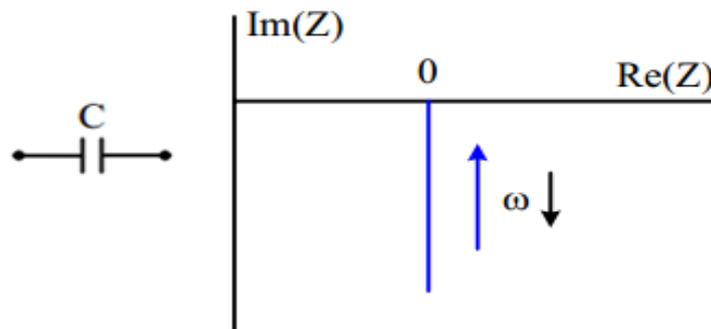


FIGURE 3.9 – Représentation d'un élément capacitif

Le graphe d'impédance dans le plan de Nyquist est une droite verticale coupant l'axe des réels à une valeur nulle aux hautes fréquences et tend vers l'infini aux basses fréquences.

### 3.3.4.3 Élément inductif L

L'impédance d'une inductance vaut :  $Z(\omega) = j\omega.L$

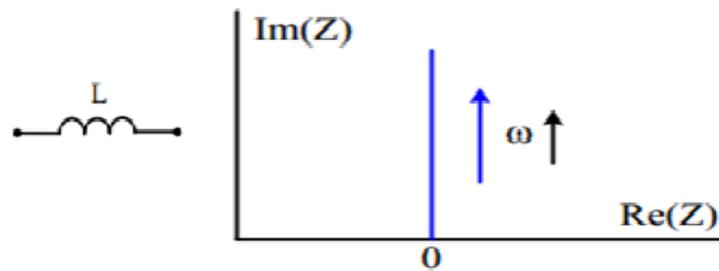


FIGURE 3.10 – Représentation d'un élément capacitif

Le graphe d'impédance dans le plan de Nyquist est une droite verticale coupant l'axe des réels à une valeur nulle aux basses fréquences et tend vers l'infini aux hautes fréquences.

### 3.3.4.4 Circuit RC série

L'impédance d'un circuit composé d'une résistance et d'un condensateur en série est :  $Z(\omega) = R + \frac{1}{j\omega.C}$ , son admittance s'écrit :  $Y(\omega) = \frac{1}{Z(\omega)}$

La représentation de l'impédance totale dans le plan de Nyquist donne une droite verticale qui à hautes fréquences tend vers le point correspondant à la partie réelle de  $Z$ . Par contre, la représentation de l'admittance dans le même diagramme est un demi-cercle tendant vers l'origine quand la fréquence tend vers zéro, et tendant vers le point  $Y = \frac{1}{R}$  aux hautes fréquences. Au sommet du demi cercle, la pulsation correspond à  $\omega = \frac{1}{RC}$ .

### 3.3.4.5 Circuit RC parallèle

L'impédance équivalente d'un circuit composé d'une résistance et d'un condensateur en parallèle est :  $Z(\omega) = \frac{R}{1+j\omega RC}$

Sa représentation dans le plan de Nyquist est un demi-cercle de rayon  $\frac{R}{2}$ .

Aux hautes fréquences, l'impédance du système tend vers zéro.

Aux basses fréquences, sa valeur tend à  $Z = R$ . Au sommet du cercle, la pulsation correspond à l'inverse de la constante de temps du circuit égale à  $\omega = \frac{1}{RC}$ .

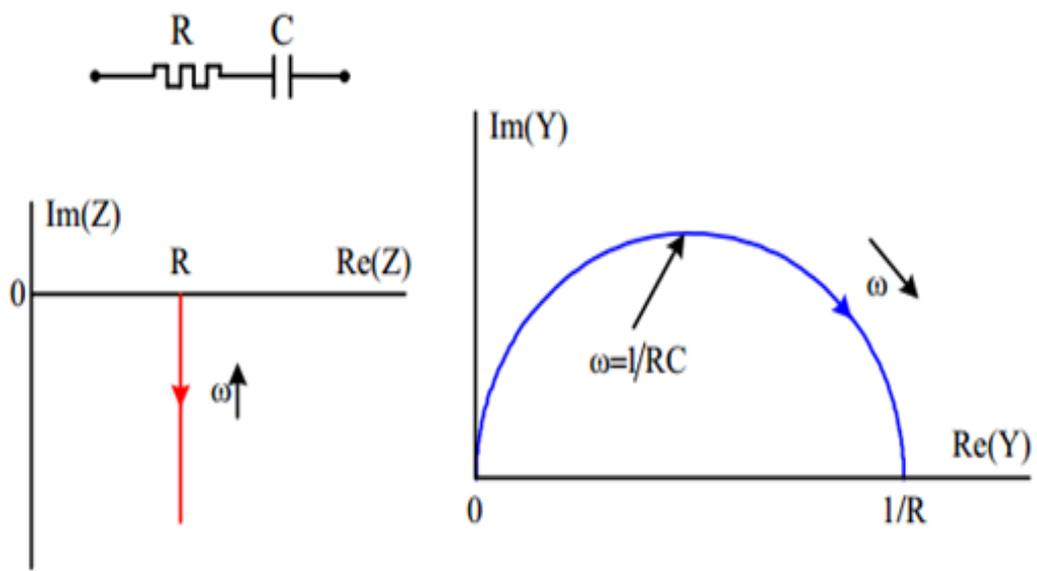


FIGURE 3.11 – Représentation d'un circuit RC série

Par contre, le tracé de Nyquist de l'admittance est une droite verticale, l'intersection avec l'axe des réels correspond au point  $Y = \frac{1}{R}$  pour une fréquence tendant vers zéro.

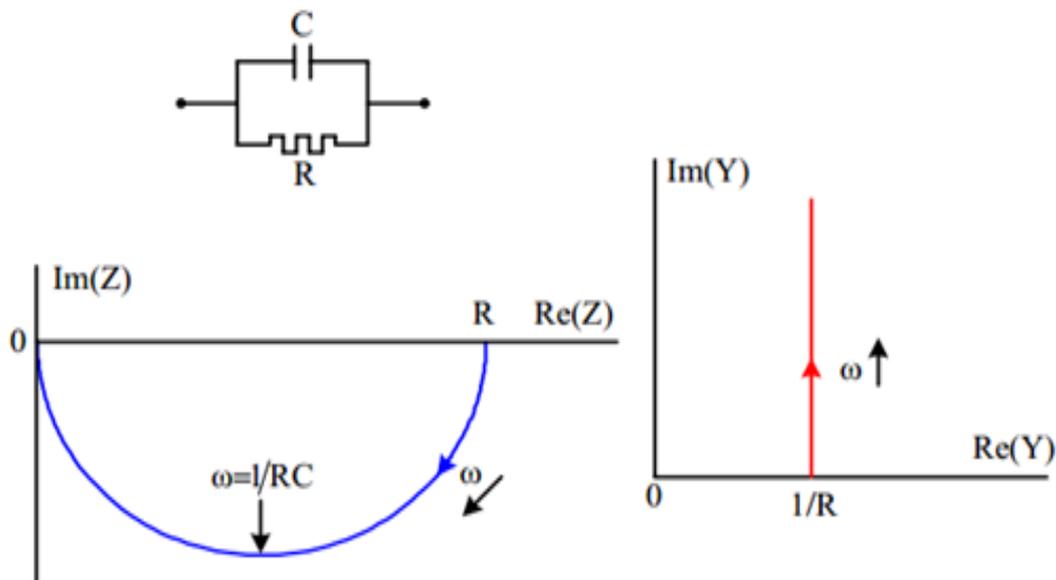


FIGURE 3.12 – Représentation d'un circuit RC parallèle

### 3.3.5 Modèle simple

La représentation la plus simple d'une cellule de pile à combustible sous la forme d'un schéma électrique est donnée ci-dessous. Dans ce cas, les phénomènes de diffusion sont négligés.

$$Z(\omega) = R_M + \frac{R_T}{1 + j\omega R_T C_{DC}}$$

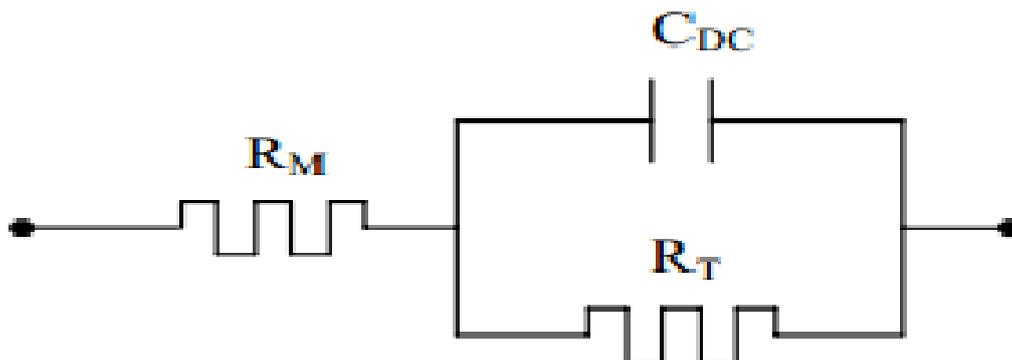


FIGURE 3.13 – Circuit électrique du modèle simple

Le tracé de cette impédance dans le plan de Nyquist correspond à un demi cercle de centre  $(R_M + \frac{R_T}{2}, 0)$  et de rayon  $\frac{R_T}{2}$ . A basse fréquence, l'impédance tend vers  $R_M + \frac{R_T}{2}$ , à haute fréquence, elle tend vers  $R_M$ , la résistance de la membrane et des connexions. Le maximum de l'effet capacitif correspond au point  $(R_M + \frac{R_T}{2}, -\frac{R_T}{2})$  et est obtenu pour  $\omega R_T C_{DC} = 1$

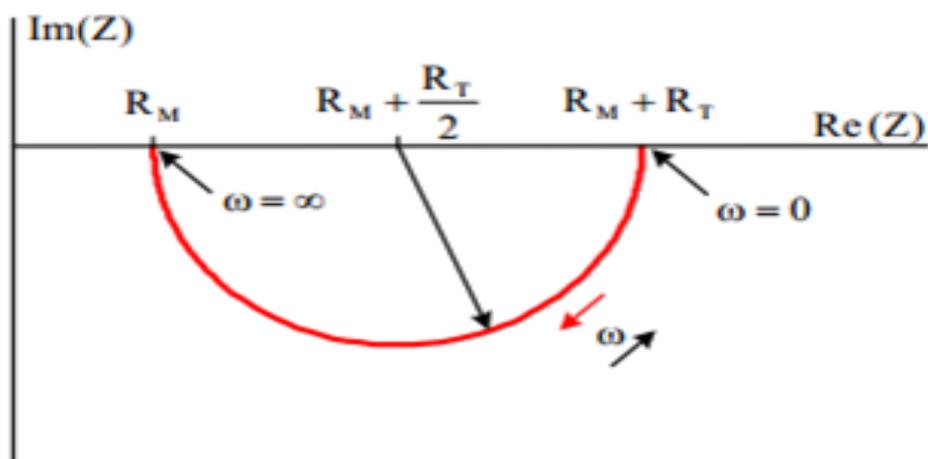


FIGURE 3.14 – Impédance du modèle simple dans le plan de Nyquist

## 3.4 Conclusion

L'influence de tous les paramètres sur la différente chute de tension ont été bien montrées et on trouve que chaque valeur de paramètre doit être indispensable pour avoir une caractéristique juste.

Une remarque aussi à ne pas négliger est que la zone linéaire existe dans toutes les chutes de tension, ce qui explique que cette zone existe dans la caractéristique statique même si on considère la valeur de la résistance de la membrane nulle (électrolyte parfait). En conclusion, la zone linéaire n'est pas due uniquement à la résistance de la membrane.

L'obtention de l'impédance de la pile à combustible présente de nombreux intérêts. D'une part, l'impédance donne accès à des paramètres internes inaccessibles lors de mesures directes en courant continu. D'autre part, la définition d'un modèle de type circuit électrique compatible avec les modélisations de convertisseurs statiques, donne des informations indispensables pour le dimensionnement des convertisseurs et des filtres d'interface. Elle permet d'identifier différents paramètres qui ne sont pas accessibles lors de mesures directes en courant continu.

# Chapitre 4

## Simulation et validation expérimentale

### 4.1 Introduction

**A** PRÈS la modélisation effectuée dans le chapitre précédent ,ce chapitre vise à validé expérimentalement les deux modèles étudiés, des essais statiques ont été pris et sur ceux ci le modèles statique doit être validé en identifiant ces paramètres séparément. Le modèle de la Spectroscopie d'Impédance Electrochimique (EIS) sous Matlab est une nouvelle façon de dessiner le spectre d'impédance de la pile à combustible que ce soit une seule cellule ou un stack de cellule . Le but de ce modèle est d'exécuter la méthode EIS en modelant le circuit électrique équivalent correspondant à la pile à combustible particulière et obtenir le spectre d'impédance pour la nouvelle analyse des systèmes ensuite le modèle est validé expérimentalement sur différents échelons de courant (des essais dynamique) réalisé sur la pile avec l'identification des paramètres du circuit équivalent.

## 4.2 Identification des paramètres de l'expression analytique

Pour l'identification des paramètres des deux modèles, Un programme sous Matlab est créé, il aperçut aux données pratiques et de la simulation qui sont enregistrées sur un data sheet Excel, ensuite le changement des paramètres se fait séparément sur le schéma bloc du Simulink et à chaque fois il aura une modification de ces paramètres, le programme calcule l'erreur absolue et l'erreur par la méthode des moindres carrés et il affiche les deux courbes des résultats expérimentaux et les résultats de la simulation en donnant les valeur d'erreur en chaque point.

La valeur  $E_{th}$  et celle du courant limite sont prises directement par les données pratiques car ils sont clairs dès que l'obtention de l'essai statique, donc le tâtonnement commence par la resistance de la membrane de telle façon d'approcher les deux courbes dans la partie linéaire et tous les autres paramètres doivent être constants, ensuite on joue sur le courant d'échange  $i_o$  pour superposer les deux courbes dans la région d'activation, les paramètres A et B sont définis déjà donc ils sont constants.

### 4.2.1 L'erreur absolue

Elle calcule la différence entre la caractéristique théorique et expérimentale point par point.

### 4.2.2 La méthode des moindres carrés

Elle consiste à minimiser la somme des carrés des distances entre les tensions mesurées et les tensions de l'expression analytique dont on cherche à identifier les éléments.

$$\lambda = \sum_{i=1}^N (V_m - V_s)^2 \quad (4.1)$$

avec :

$V_m$  : Valeur mesurées .

$V_s$  : Valeur de la simulation .

$N$  : Nombre de points pris.

### 4.3 Modèle statique

L'objectif de la mesure de la caractéristique statique est d'une part de mettre en évidence la relation entre la tension de sortie de la pile à combustible et le courant débité et d'autre part, de déterminer les paramètres de l'équation analytique approchant au mieux cette caractéristique.

La technique utilisé pour le prélèvement de la caractéristique statique est d'appliquer une charge de 100 ohm afin d'activer la réaction, ensuite la charge sera 50 ohm pour extraire la région linéaire de l'allure et enfin la charge diminue à 20 ohm pour avoir des courants forts qui tendent vers le courant limite, Donc la variation de la charge implique une variation de courant d'une manière qu'il aura un balayage de la caractéristique.

L'application des charges ne sera pas simultanée mais elle dure plus d'une minute avec des débits constants pour rester dans le régime permanent.

L'identification de tous les paramètres de l'expression 3.1 est faite en choisissant 52 points régulièrement repartis tout au long de la courbe dans le programme Matlab, de 0 A à 0.065 A (le courant limite), si l'erreur absolue est inférieure à 0.3, le modèle est considéré comme validé expérimentalement et les deux courbes sont superposées. Pour la méthode des moindres carrées, il ne faut pas que  $\lambda$  dépasse 0.02 pour que le modèle soit validé.

TABLE 4.1 – Paramètres identifiés par rapport aux paramètres plausibles

Paramètres	Plausibles	<b>identifiés</b>
$E_{th}(v)$	1.23	0.85
A	0.06	0.06
$i_o$	N'est pas donnée par le constructeur	0.0015
$R_m(\omega)$	1	0.9
B	0.05	0.05
$i_{lim}(A)$	0.1	0.065

Le résultat de l'identification est donné dans le tableau 4.1 et les paramètres identifiés sont pratiquement identiques aux paramètres originaux à l'exception de  $E_0$  et  $i_{lim}$  dont les valeurs présentent un certain écart.

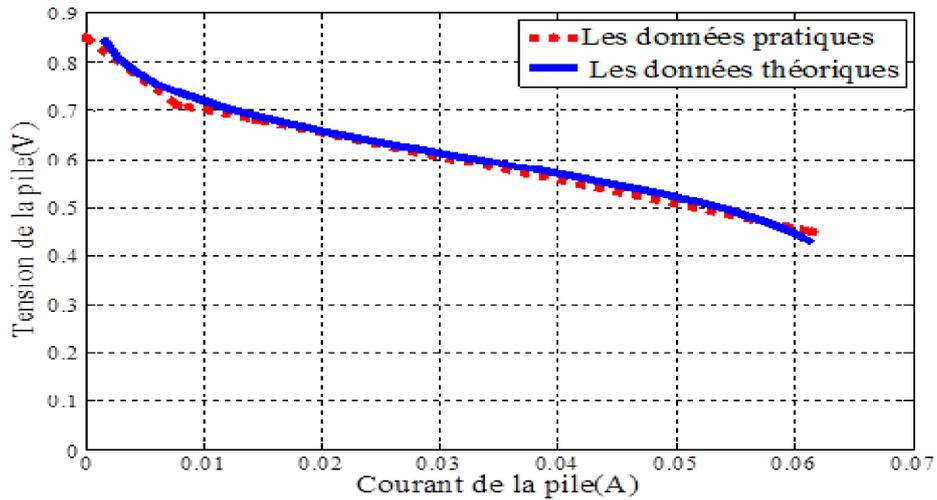


FIGURE 4.1 – L'allure de la caractéristique ( $i - v$ ) de la pile.

En fait  $E_{th}$  n'atteint jamais la valeur (1.23 V) en pratique et la faible valeur du courant de limite par rapport à la valeur donnée par le constructeur est due de la charge utilisée au cours de l'expérimentation. Par contre, la courbe tracée avec les paramètres identifiés se superpose parfaitement avec la courbe initiale figure 4.1.

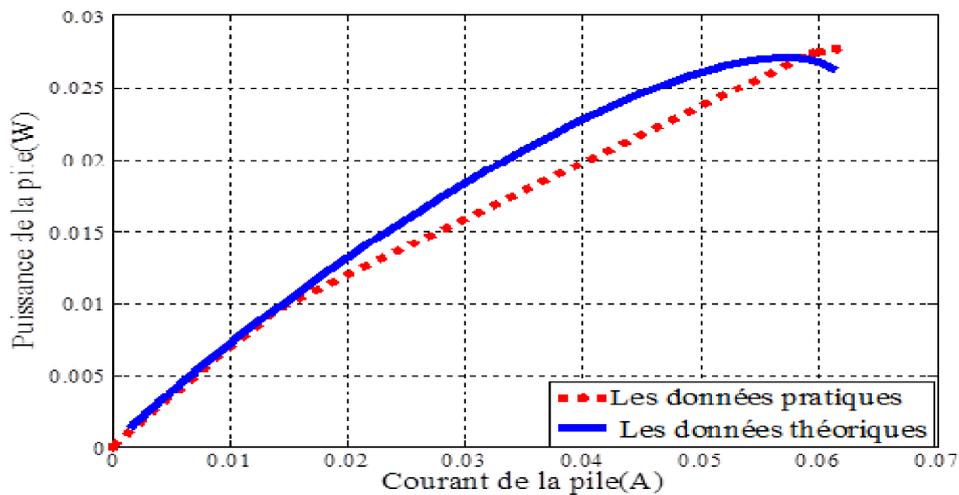


FIGURE 4.2 – L'allure de la caractéristique ( $i - p$ ) de la pile.

La puissance délivrée est donnée sur la figure 4.2. Le maximum de puissance est de 27mW. Pour une puissance donnée par le constructeur de 270 mW. Cet écart provient de la limitation en courant imposé par la charge.

La figure 4.3 présente la variation de l'erreur de absolue. Cette erreur est le résultat de la soustraction de la caractéristique théorique par celle de l'expérimentale, donc c'est une matrice de deux colonnes (courant et tension) et avec 52 lignes qui correspondent à l'incrément de l'indice  $i$ .

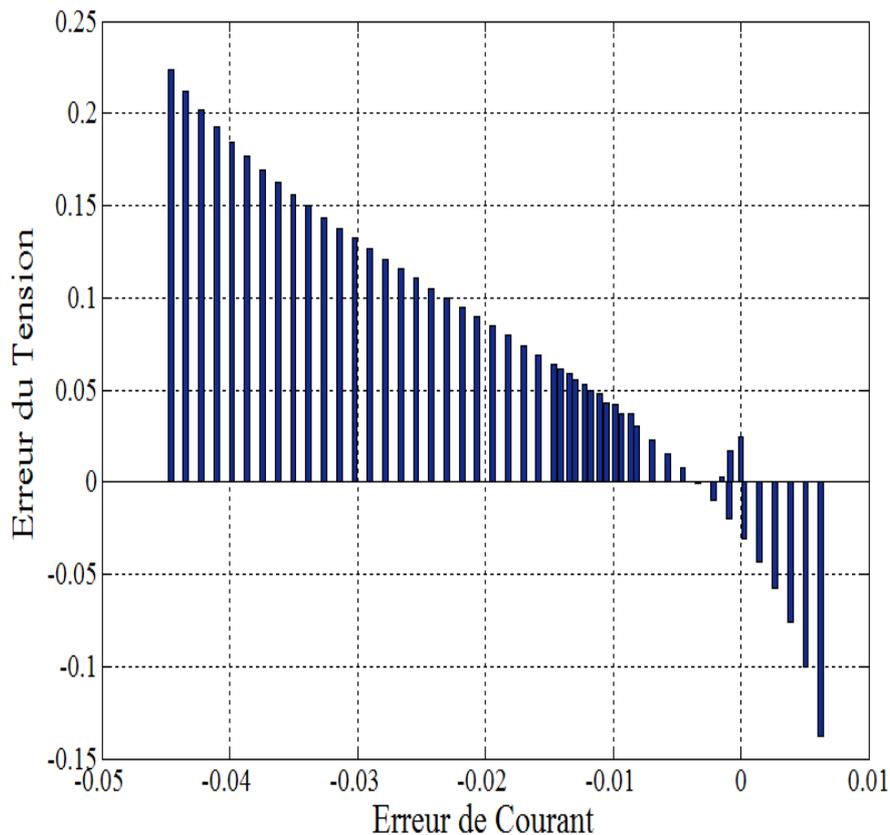


FIGURE 4.3 – L'erreur absolue.

Sa représentation est sous forme de bar, l'axe des x correspond au courant et l'axe des y correspond à la tension. L'erreur change de signe, ce ci est dû à la position de la courbe théorique par rapport celle de l'expérimentale, dès fois en dessus, dès fois en dessous.

## 4.4 Modèle de la spectroscopie d'impédance

Au départ, un circuit électrique sous Matlab/Simulink (représenté dans figure 4.4 ) modélise la pile à combustible en référant au modèle simple choisie dans le troisième chapitre.

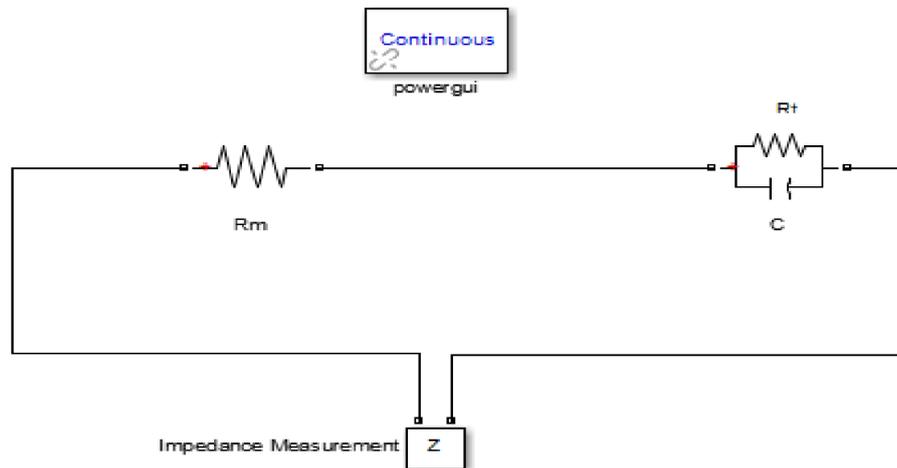


FIGURE 4.4 – Modèle simple sous Simulink.

Il doit s'assurer que nous obtiendrons le même spectre d'impédance tracé déjà. Le modèle consiste à des combinaison de composants électriques avec les mêmes paramètres qu'à l'intérieur de la littérature renvoyée.

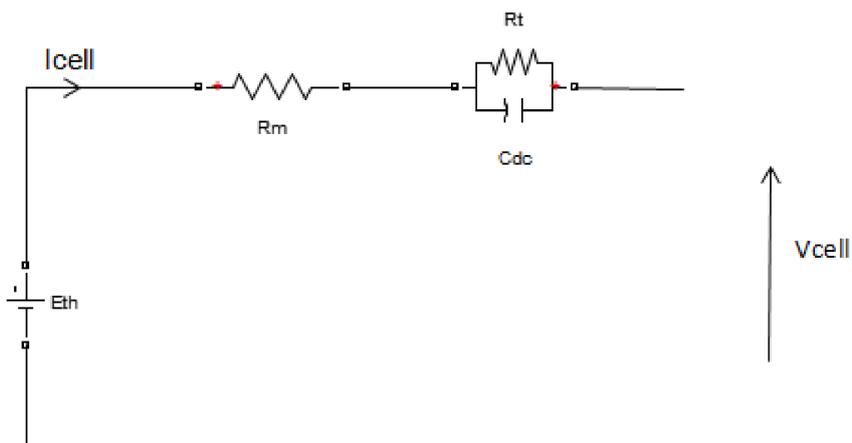


FIGURE 4.5 – Schéma électrique dynamique équivalent de la pile

Dès que que le modèle est prêt à fonctionner, La valeur d'impédance est mesurée en exécutant le bloc de commande Powergui. Dans ce circuit électrique équivalent, l'écart des tensions d'activation et d'ohmique sont représentés par les résistances  $R_t$  et  $R_m$  respectivement, les pertes de concentration sont négligées et l'effet de la double couche de charge est représenté par  $C_{dc}$ . Sachant que ce phénomène apparaît quand il y a une accumulation de charges entre deux matériaux différents qui sont en contact direct alors, la couche de charge dans l'interface électrode/électrolyte se comporte comme un condensateur. Pour pouvoir voir la validité de ce schéma, il faut passer le circuit électrique par la transformation de Laplace. Le schéma bloc sous Simulink sera présenté dans l'annexe, et la pile à combustible sera équivalent au schéma présenté dans la figure 4.5.

Le résultat est obtenu en forme des impédances et des fréquences, la figure 4.6 présente la phase et l'amplitude des impédances en fonction de la fréquence.

Chaque variation de fréquence dans l'intervalle de 0 à 2 kHz implique une variation de phase et de l' amplitude de l'impédance.

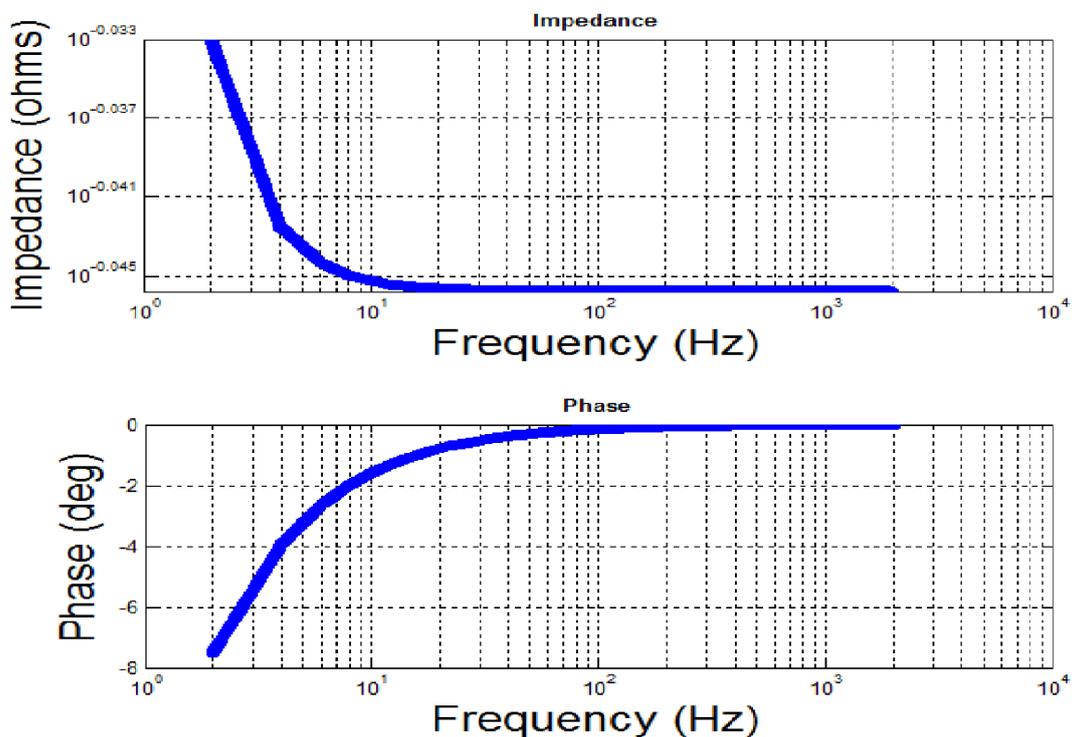


FIGURE 4.6 – Représentation du modèle dans le diagramme de Bode (gamme de fréquence considérée 0 Hz à 2 kHz).

Pour pouvoir tracer l'impédance équivalente dans le plan de Nyquist, un programme sous Matlab a été créé, il commence par l'initialisation des paramètres du circuit équivalent et la gamme de fréquence dont il va travailler, ensuite il boucle en comptant la partie réelle et imaginaire de l'impédance, Le tracé de ce programme est représenté dans la figure 4.7.

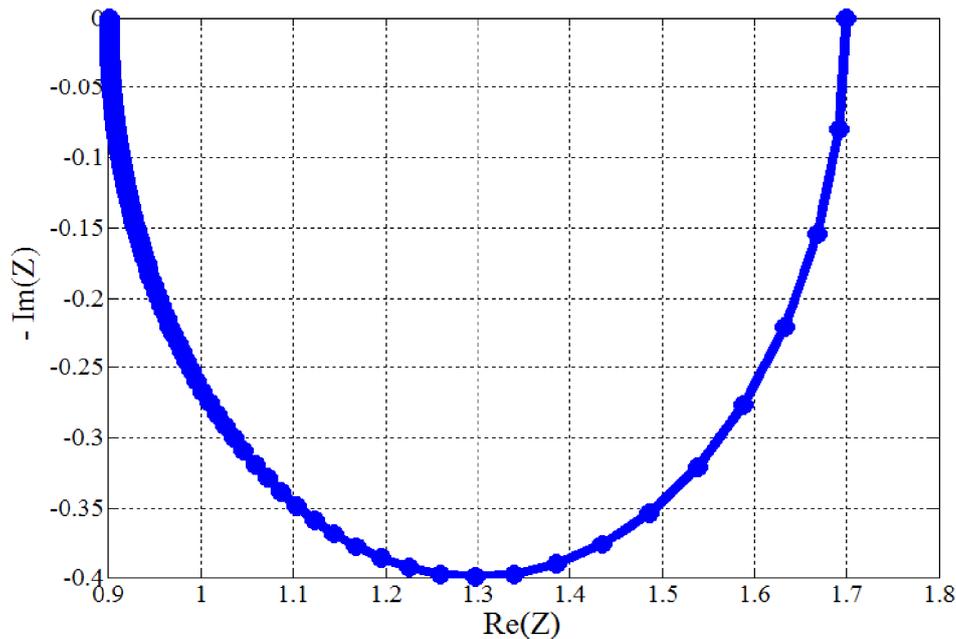


FIGURE 4.7 – Représentation du modèle dans le diagramme de Nyquist(gamme de fréquence considérée 0 Hz à 2 kHz).

Ce tracé de l'impédance équivalente dans le plan de Nyquist est un demi-cercle de rayon qui est égale à 0.4 et qui correspond à  $\frac{R_t}{2}$ .

A fréquence nulle l'impédance vaut 0.9 qui est  $R_m$  et pour  $f = 2000kHz$  l'impédance vaut 1.7, c'est la somme des résistance ( $Z = R_m + R_t$ )

Au sommet du demi-cercle, la pulsation correspond à l'inverse de la constante de temps ( $\tau = R_t.C$ )du circuit égale à  $\omega = \frac{1}{R_t.C}$

Un autre programme à été créé sous Matlab pour calculer l'erreur absolue et l'erreur relative entre les données pratiques et théoriques point par point, la valeur maximale de l'erreur relative est 0.016 dont il ne faut pas dépasser pour que le modèle puisse être considéré comme validé, et pour l'erreur par la méthode des moindres carrés la valeur est  $0,1710.10^{-4}$ .

La validation du modèle dynamique est faite sur un essai dynamique qui contient trois échelons de courant, Le premier échelon de courant est égale à 10 mA et dure 60 seconde, ensuite il atteint la valeur de 32 mA pendant une minute aussi et à la fin il est diminué a 15 mA.

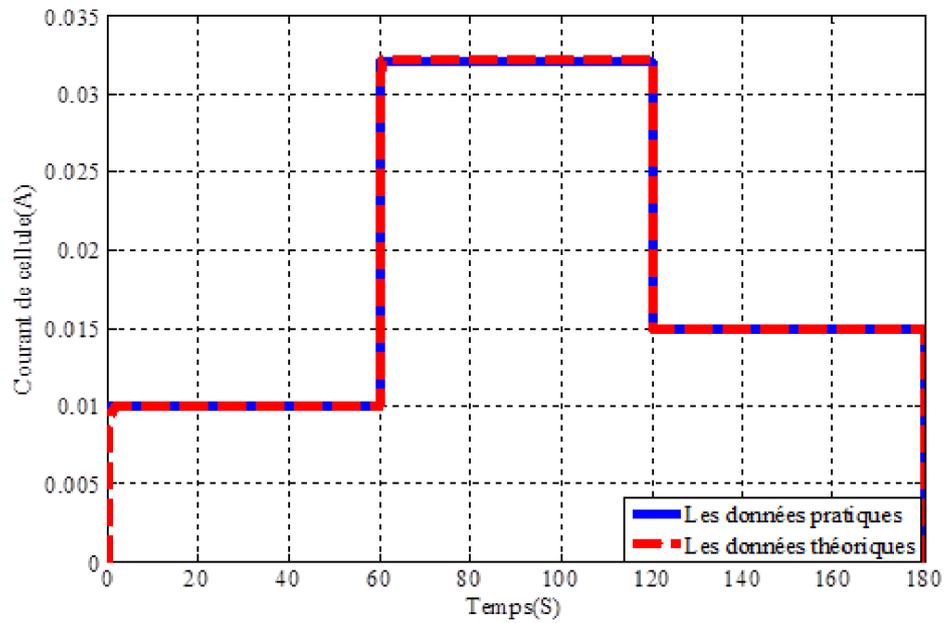


FIGURE 4.8 – Résultat expérimental d’une réponse transitoire de courant.

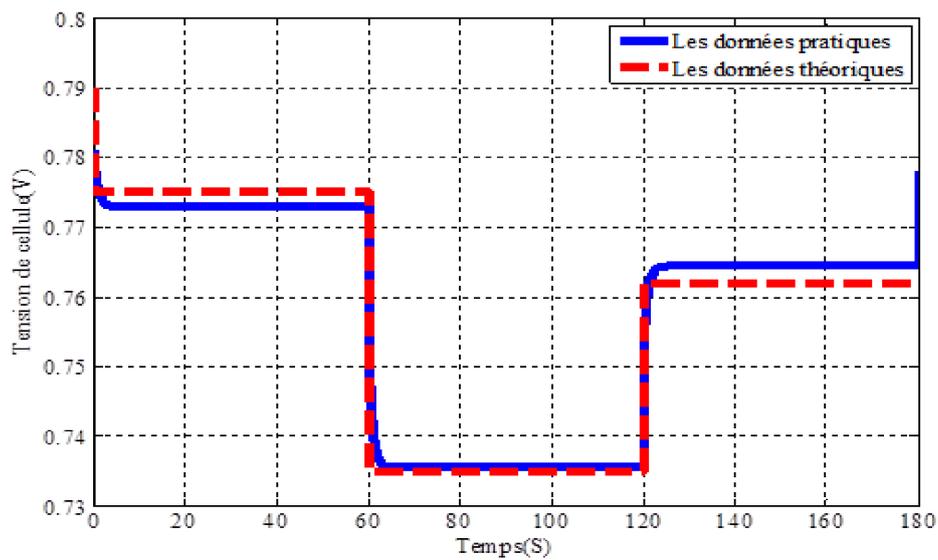


FIGURE 4.9 – Résultat expérimental d’une réponse transitoire de la tension.

Les figures 4.8 et 4.9 montrent les réponses transitoires de courant et de la tension de la pile à combustible PEM. On peut voir que comme la charge augmente et puis elle diminue le courant de sortie diminue et ensuite il augmente et vice versa. Cependant la tension de sortie n'atteint pas de nouvelle valeur immédiatement lorsque la charge est augmentée, les chutes de tension ont une certaine petite période pour s'étendre à la nouvelle valeur dans une façon exponentielle. Ceci est dû à la capacité de la double couche de charge formée à la surface électrode/électrolyte.

Le résultat de l'identification est donné dans le tableau 4.2. Pour le potentiel thermodynamique  $E_{th}$  et la résistance de la membrane  $R_m$  les résultats sont pareils aux celles du modèle statique et pour la capacité de double couche de diffusion, sa valeur est importante de point de vue électrique ce ci montre qu'elle n'est pas vraiment une capacité électrique mais elle représente l'effet capacitif de la surface (électrolyte/électrode).

TABLE 4.2 – Paramètres identifiés

Paramètres	identifiés
$E_{th}(v)$	0.85
$R_t$	0.8
$R_m(ohm)$	0.9
$C_{dc}$	0.64

Les résultats de la simulation et de l'expérimentation présentent ci-dessus indiquent clairement une superposition ce qui implique la validité du modèle choisie. Les résultats ont montrés aussi que le modèle est capable de prévoir le comportement transitoir de la tension et de courant. Ceci sera utile dans le développement d'une stratégie de contrôle pour la pile à combustible et en examinant des processus fortement dynamique comme l'emplacement de la pile à combustible sur un véhicule électrique.

## 4.5 Conclusion

Pour comprendre le comportement statique et dynamique d'une pile à combustible et valider les deux modèles proposés, Deux tests ont été effectués, le premier est un essai statique pour extraire la courbe de polarisation de la pile, il a été validé pratiquement sur le modèle statique étudié, l'intérêt principale d'étudier la pile à combustible dans le régime statique est de prédire son comportement dans un régime permanent ou la charge est fixe, par exemple dans une application stationnaire.

De plus, pour étudier le comportement dynamique de la pile à combustible ,un modèle de circuit équivalent de la pile est proposé par la méthode de la spectroscopie d'impédance, la réponse transitoire de courant et de tension de la pile ont été obtenu expérimentalement et ensuite comparées avec les réponses des échelons de courant réalisés par la simulation utilisant MATLAB/Simulink, Ce modèle a été validé en identifiant les paramètres du circuit équivalent proposé. Ce modèle est construit dans un fichier Simulink où les composants électriques comme des résistances, un condensateur, un bloc de mesure d'impédance et le bloc de powergui sont obtenus de la bibliothèque de Simulink, ensuite ces composants sont paramétrés et connectés ensemble en parallèle et en série selon ce modèle simple.

# Conclusion générale

## 4.6 Bilan et contributions

Le travail présenté dans ce mémoire de thèse contribue à la modélisation et la caractérisation expérimentale d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons(PEMFC). Parmi les différentes méthodes de production d'hydrogène, nous nous sommes intéressés plus particulièrement à l'électrolyse de l'eau par l'énergie solaire qui est l'un des méthode la plus propre, Pour cela un dimensionnement du système (électrolyse/pile à combustible) a été élaboré avec une caractérisation du panneau solaire utilisé pour la production d'hydrogène. Deux modèles ont été étudiés, le premier est un modèle statique et l'autre est dynamique qui sont destinés respectivement aux applications stationnaires et de transport.

Dans une première partie de ce travail, un état de l'art des piles à combustibles décrit leur développement au cours des deux dernières cycles ,ensuite ce chapitre consiste à décrire le principe de fonctionnement de la pile et afin de bien comprendre ce convertisseur électrochimique, sa structure interne a été bien détaillé. Enfin une récapitulation de toutes les applications avec une focalisation sur le marché de transport qui est l'une des applications la plus importante.

Avant de modéliser la pile à combustible, il est nécessaire de situer la méthode de production d'hydrogène. Dans ce sens, le deuxième chapitre est consacré au dimensionnement de l'électrolyse de l'eau à partir de l'énergie solaire. Le dimensionnement prend en compte la puissance et l'énergie fournies par le panneau solaire pour décomposer l'eau en hydrogène et oxygène et la puissance et l'énergie pour produire de l'électricité à partir de la pile. Une caractérisation du panneau et de la pile utilisés est primordiale dans ce chapitre.

Le troisième chapitre propose le modèle de Larminie et Dick qui répond au besoin des applications stationnaire, il est étudié et simulé en montrant l'influence de chaque paramètre de sa formule empirique par la multiplication et la division par 2. La deuxième partie est destinée au modèle simple de la spectroscopie d'impédance, il est défini, expliqué et représenté dans le diagramme de Bode et de Nyquist.

Dans la dernière partie de ce travail, une validation expérimentale des deux modèles, sur la pile étudiée en identifiant tous les paramètres que ce soit pour ceux du modèle statique ou bien les paramètres du schéma du modèle simple. Ceci est fait à l'aide d'un programme sous Matlab qui calcule les erreurs entre les données pratiques et théoriques et juge la validité du modèle d'après la superposition des courbes.

En conclusion, ce travail a démontré l'utilité de la modélisation et la caractérisation expérimentales pour la compréhension des phénomènes liées à la pile, la prédiction et l'amélioration du comportement des piles à combustible de types PEM lors de son emplacement dans un système électrique.

## Perspectives de recherche

Le perspective qui peut être envisagée à la suite de cette mémoire est de fabriquer une petite véhicule électrique comme une application des énergies renouvelables. Cette véhicule doit être alimentés par une pile à combustible (PEM) réversible et commandé par un Arduino, comme montre la figure 4.9. Celle-ci fonctionne dans les deux sens : en tant qu'électrolyte (pour la production d'hydrogène à partir d'un panneau solaire) et en tant que source d'énergie (pour la génération d'électricité à partir de l'hydrogène). Une fois l'hydrogène produit, la pile à combustible le transforme en énergie électrique, laquelle est utilisée pour entraîner le moteur du véhicule. Lorsqu'elle roule à l'hydrogène, les deux LED vertes claires situées sur le moteur clignotent. La voiture contourne automatiquement les obstacles qui se trouvent sur son chemin à cause d'un capteur de distance à ultra-son.



FIGURE 4.10 – Véhicule électrique.

# Annexe

## Moniteur de puissance

Afin de pouvoir éliminer l'utilisation des appareils de mesures (ampèremètre - voltmètre) qui consomme de la puissance électrique et surtout dans notre système (à l'ordre de quelques mA), un moniteur de puissance a été réalisé à partir d'un Arduino Uno, Il mesure la tension et le courant simultanément et il les affiche dans un écran LCD 16.2 et puis il les envoie vers le Simulink comme montre la figure 4.11.

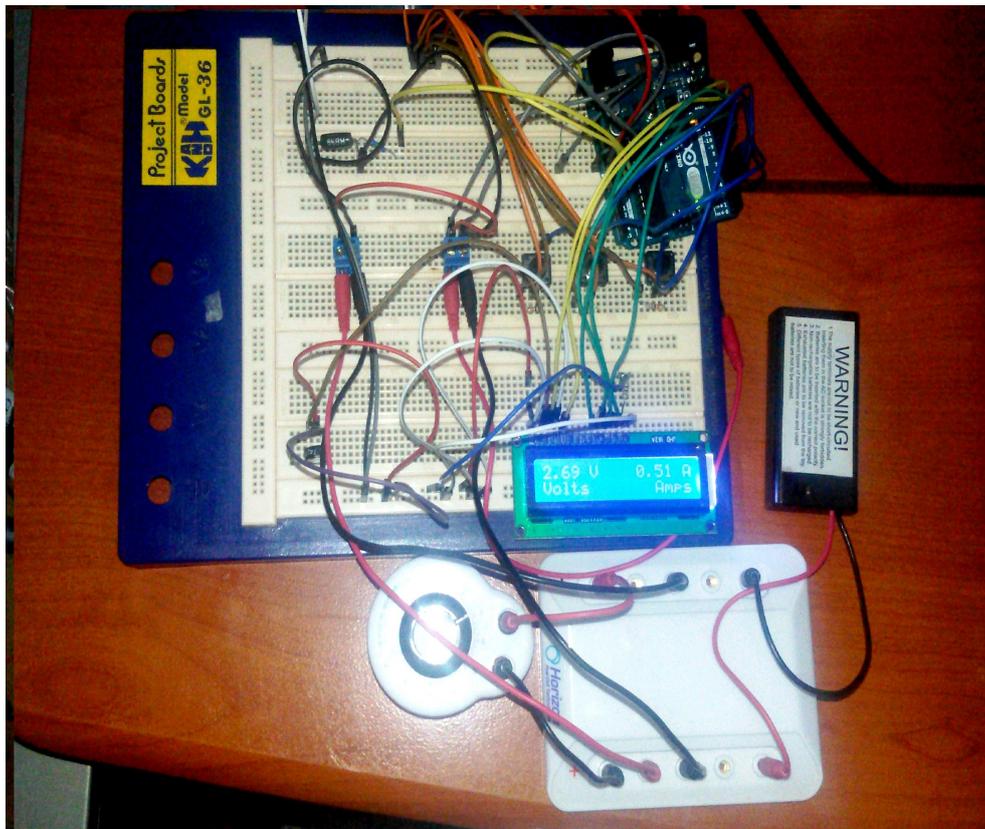


FIGURE 4.11 – Moniteur de puissance.

La liste des composants utilisée pour construire ce moniteur est :

- 1 Arduino.
- 1 Plaque d'essai.
- 1 Afficheur LCD 1602A.
- 2 Bornes à vis (Domino) avec 2 broches chacun.
- 3 Boutons poussoir à quatre pattes.
- 1 Potentiomètre de  $10K\Omega$ . *6 Résistances de  $10K\Omega$ .*
- 2 Résistances de  $100K\Omega$ .
- 1 Résistance de  $100\Omega$ .
- 1 Résistance de  $10\Omega$ .
- 1 Résistance de puissance  $0.47\Omega 5W$ .

# Bibliographie

- [Barb13] F. Barbir. *PEM Fuel Cells Theory and Practice*. elsevier Ed., 2013.
- [Bran01] . Brankovic S. R., \* J. X. Wang and R. R. Adzic. “A Novel Low Pt Loading, High CO Tolerance Fuel Cell Electrocatalyst”. *The Electrochemical Society*, pp. A217 – A220, 2001.
- [Corb00] *Les piles à combustible*, www.annso.freesurf.fr, 2000.
- [Dick00] L. et Dick. *Fuel Cell Systemes Explained*. wiley chichester Ed., 2000.
- [GLAN04] N. GLANDUT. *Une étude des PEMFC et de leurs membranes*. PhD thesis, Institut National Polytechnique De Grenoble, Octobre 2004.
- [Gro39] *On voltaic series and the combination of gases by platinum*, 1839.
- [Jiu08] Z. JiuJun. *PEM Fuel Cell Electrocatalysts and Catalyst Layers*. springer Ed., 2008.
- [Kord96] *Fuell Cells and Their Applications*, 1996.
- [Lits04] S. Litster and G. McLean. “PEM fuel cell electrodes”. *Journal of Power Sources*, Vol. 130, No. 1, pp. 61–76, 2004.
- [Pars00] I. A. I. C. Parsons. *Fuel Cell HandBook*. fifth Ed., 2000.
- [Qing03] J. O. J. Qingfeng Li, \* Ronghuan He and N. J. Bjerrum. “Approaches and Recent Development of Polymer Electrolyte Membranes for Fuel Cells Operating above 100  $\hat{A}^{\circ}\text{C}$ ”. *American Chemical Society*, No. 1, pp. 15–26, 2003.
- [ROMA07] N. ROMANI. *Modélisation et Commande du Système d’Alimentation en Air pour le Module de Puissance d’un Véhicule à Pile à Combustible avec Reformeur Embarqué*. PhD thesis, UNIVERSITE PARIS SUD11 -FRANCE, Septembre 2007.

- [SAAD14] A. SAADI. *Modélisation et commande du circuit d'air d'une pile à combustible PEMFC*. PhD thesis, Université Mohamed Khider Biskra, Décembre 2014.
- [SADL06] I. SADLI. *Modélisation Par impédance d'une Pile à combustible PEM pour Utilisation En Electronique De Puissance*. PhD thesis, Institut National Polytechnique De Lorraine - France, Décembre 2006.
- [SAFA12] M. SAFA. *Modélisation réduite de la pile à combustible en vue de la surveillance et du diagnostic par spectroscopie d'impédance*. PhD thesis, Université Paris - Sud, Ecole Doctorale :STITS (France), Octobre 2012.
- [TEKI04] M. TEKIN. *Contribution à l'optimisation énergétique d'un système pile à combustible embarqué*. PhD thesis, UNIVERSITE DE FRANCHE-COMTE, 2004.