

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- ELECTROTECHNIQUE



THESE DE DOCTORAT

En vue de l'obtention du diplôme de docteur en science en génie électrique

Modélisation et commande du circuit d'air d'une pile à combustible PEMFC

Réalisée par : **SAADI Aicha**

Devant le jury composé de :

Pr. BAHRI Mebarek	Université de Biskra	Président
Pr. ABOUBOU Abdennacer	Université de Biskra	Rapporteur
Dr. BECHERIF Mohamed	Université de Belfort - France	Co-Rapporteur
Pr. AZOUI Boubakeur	Université de Batna	Examineur
Pr. BAHY tahar	Université de Annaba	Examineur
Pr. HISSEL Daniel	Université de Belfort - France	Invité

Année Universitaire : 2013-2014

Dédicaces

À

mes parents,

à la mémoire de mon Frère "Antar",

mes frères et ma soeur,

et mes amies,

je dédie ce modeste travail.

Remerciements

Je voudrais exprimer ma sincère gratitude à mon directeur de thèse Professeur Aboubou Abdennacer pour ses conseils, sa patience et son support au cours de mon travail de thèse.

J'adresse très sincèrement mes plus vifs remerciements à mon co-encadrant Dr. Bacherif Mohamed, pour son soutien, ses encouragements tout au long de ce travail de recherche. Je tiens également à le remercier pour la confiance qu'il m'a accordée, pour sa patience et son calme.

Je voudrais spécialement remercier Professeur Daniel Hissel pour son esprit ouvert, pour son accord de m'accueillir en stage au sein du Laboratoire des piles à combustible FCLab à Belfort, Je suis fier d'avoir la chance de profiter de ses larges expériences et connaissances, ses remarques et ses suggestions clairvoyantes.

Je voudrais remercier vivement Dr. Bahri Mebarek, pour avoir accepté d'en présider le jury puis les membres du jury Pr. Azoui Boubakeur et Pr. El Behi tahar ainsi que le membre invité Pr. Daniel Hissel pour leurs évaluations de mon travail de thèse.

Que (Dr. Ayad Mohamed Yacine, Dr. Samir Jemei, Pr. Espanet Christophe, Dr. Patrice Noel, Dr. Abdesslem Djerdir, Dr. Nour-eddine Fenineche, Dr. Omar El kedim, M Xavier Froicois, M Hassan ouhmad. Ainsi que mes collègues Dr. Imad Matraji, Soichi Fkuhara, Faiz shakil Ahmed, Abdulkader Tabanjat, Okba Kraa, Saihi Hanane, Djedjiga Benouioua et Saida Oulghazi) trouvent à travers ces quelques lignes toute ma gratitude pour avoir répondu à mes nombreuses questions, pour le temps qu'ils m'ont accordé, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail de recherche et pour leur confiance durant mon stage.

J'exprime également ma gratitude au personnel administratif, aux secrétaires (Mary Laurence, Sabine lantz-Crelier et Karine Diez), et à l'ensemble des chercheurs du

FCLab pour leur aide, leur gentillesse, les bons moments passés ensemble et pour tout ce qu'ils ont pu m'apporter durant mon stage.

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

الخلية الوُقودية هي نظام توليد الطاقة، حيث يستفيد من تفاعل كيميائي بين الأكسجين و الهيدرجين لإنتاج الكهرباء و الحرارة في حين يقوم بطرح الماء. و لأنه أقل تلوثًا بالمقارنة مع أَلوقود الأحفوري، أنظمة الخلية الوُقودية تشهد تطورًا كبيرًا بالنسبة لكثير من تطبيقات الطاقة.

ظاغط أَلهواء مغذي الخلية الوُقودية بالأكسجين يعدُّ عنصرًا هامًا فهو يمكن أن يستهلك ما يصل إلى 20% من الطاقة الكهربائيّة المنتجة، في أسوأ الحالات. التحكم في نظام ضغط الهواء هو أيضًا مسألة مُهمّة لأنه يُؤثر علي الكفاءة و التشغيل الآمن للخللايا الوُقودية.

لتجنب نقص إمدادات الأكسجين إلي الخلية، فإن مُعدل أَلهواء الشامل الموردة يجب أن تدار بشكل مُناسب إستنادًا إلي طلب الحمولت الكهربائيّة. و في الوقت نفسه، الضغط يجب أن لا يكون فيه اختلافات كبيرة أو تموجات و التي يأمكنا أن تُتلف غشاء الخلية. في هذه الأطروحة تم تطوير نظام نمودي لضغط الهواء و تم تحليل الإقران بين المدخلات و المخرجات.

هذا العمل يركز علي حل مشاكل التحكم في نظام الخلايا الوُقودية و كيف ظاغط مزدوج البرغي.

كلمات المفتاح :

خلايا وقودية ;

النمذجة (نماذج ستاتيكية و ديناميكية) ;

الأجهزة في حلقة ;

التحكم التتالي.

Résumé

LA pile à combustible est un système de production d'énergie, qui tire profit de la réaction chimique entre l'oxygène et l'hydrogène pour produire de l'électricité et de la chaleur tout en ne rejetant que de l'eau. En raison de leur pollution moindre par rapport aux carburants fossiles, les systèmes pile à combustible connaissent un développement important pour de nombreuses applications de puissance.

Le compresseur d'air alimentant en oxygène la pile est un élément important dans les systèmes pile à combustible. Le compresseur peut consommer jusqu'à 20% de l'électricité produite dans les cas les plus défavorables.

Le contrôle du système de compression d'air est également une problématique importante car il affecte l'efficacité et la sécurité de fonctionnement de la pile à combustible. Pour éviter une sous-alimentation en oxygène de la pile, le débit massique d'air fourni doit être géré de façon appropriée en fonction de la demande de la charge électrique. Pendant ce temps, la pression ne doit pas montrer de trop grandes variations ou ondulations qui peuvent endommager la membrane de la pile. Dans cette thèse, un modèle du système de compression d'air est développé et le couplage entre les entrées et les sorties est analysé.

Ce travail se concentre enfin sur la résolution des problèmes de contrôle pour adapter ce compresseur à double vis au système pile à combustible.

Mots clés :

Pile à combustible PEM ; Modélisation(modèles statiques et dynamiques) ; Hardware In the Loop ; contrôle en cascade.

Abstract

FUEL cell is a power supply system, which takes advantage of the electro-chemical reaction between oxygen and hydrogen to produce electricity and heat, water as its by-product. Due to their lower pollution and high efficiency compared with fossil fuels, fuel cell systems are under extensive development for many power applications.

Air compressor supplying the oxygen to the stack is an important component in the fuel cell systems. The compressor can consume up to 20% of the generated power in the most severe cases.

The control of the air compression system is also an important issue, which affects the efficiency and the safety of the fuel cell. To avoid oxygen starvation of the stack, the mass flow of the supplied air has to be controlled appropriately according to the load demand. Meanwhile, the pressure should not have large deviations or ripples which may damage the stack membrane. In this dissertation, the model of the air compression system is developed and the coupling between the model inputs and outputs are analyzed.

The second part of this work focuses on solving the control problems to adapt the twin screw air compressor to the fuel cell system.

keywords :

PEM Fuel Cell; Modeling (static and dynamic models); Hardware In the Loop; Cascade control.

Modélisation et commande du circuit d'air d'une pile à combustible PEMFC

SAADI Aicha

28 décembre 2014

Table des matières

Table des matières	I
Liste des figures	V
Liste des tables	IX
Introduction générale	1
1 Généralité sur le système pile à combustible	7
1.1 Introduction	7
1.1.1 Avantages des piles à combustible	7
1.1.2 Inconvénients des piles à combustible	8
1.1.3 Types de piles à combustible	8
1.2 Pile à membrane électrolyte polymérique (PEMFC)	9
1.2.1 Description de PEMFC	11
1.2.1.1 Les plaques bipolaires	11
1.2.1.2 Les plaques distribuant les réactifs	12
1.2.1.3 Ensemble Membrane Electrode (EME)	13
1.2.2 Principe de fonctionnement	14
1.2.3 La force électromotrice (f.e.m.)	15
1.2.4 Potentiel thermodynamique réel de PàC	17
1.2.5 Dimensionnement d'un stack	18
1.2.6 Modélisation de PàC	19
1.3 Présentation du système PEMFC	20
1.3.1 Circuit d'alimentation en hydrogène	21
1.3.2 Système de refroidissement	21

1.3.3	Système d'humidification	22
1.3.4	Convertisseurs statiques	22
1.3.5	Système de contrôle	22
1.3.6	Circuit d'alimentation en oxygène	23
1.4	Compresseurs	24
1.4.1	Synthèse sur le choix du compresseur	25
1.5	Conclusion	26
2	Modèles statiques de PEMFC	27
2.1	Introduction	27
2.2	Description du banc d'essais	28
2.3	Modèle d'Amphlett et al.	30
2.3.1	Pertes ohmiques	33
2.3.2	Pertes de concentration	34
2.3.3	Influence de la pression et de la température sur la caractéristique de la PàC	35
2.4	Modèle statique de Larminie et Dicks	36
2.5	Modèle de Chamberlin - Kim	40
2.6	phénomène considérées	41
2.7	Comparaison entre les Modèles Statiques	42
2.8	Conclusion	45
3	Modèles dynamiques de PEMFC	46
3.1	Introduction	46
3.2	État de l'art des modèles dynamiques	47
3.3	Modèle dynamique de Larminie	49
3.4	Modèle dynamique de Garnier	49
3.5	Modèle dynamique de Larminie-Dicks	50
3.6	Modèle d'impédance	50
3.6.1	Les différentes techniques utilisées en SIE	51
3.6.1.1	La première technique	51
3.6.1.2	La deuxième technique	52
3.6.1.3	la troisième technique	52

3.7	Modèles à circuits électriques équivalents	53
3.7.1	Modèle dynamique simplifié	54
3.7.2	Approche par équivalences électriques	56
3.7.3	Principe de modélisation	57
3.7.3.1	Analogie fluidique électrique	57
3.7.3.2	Cas particulier d'un fluide compressible	59
3.7.4	Modèle de la pile	61
3.7.4.1	Système d'admission des gaz	61
3.8	Cœur de pile	62
3.8.0.2	Considérations générales	62
3.8.0.3	Circuits équivalents pour l'oxygène et l'hydrogène	64
3.8.0.4	Circuits équivalents pour l'azote	64
3.8.0.5	Circuits équivalents pour la vapeur d'eau	65
3.8.0.6	Identification des paramètres	66
3.9	Modèles circuits électriques équivalents(Becherif)	70
3.10	Comparaison Des Modèles Dynamiques	71
3.11	Conclusion	75
4	Modélisation et commande du système complet	76
4.1	Introduction	76
4.2	Problématiques de la commande dans la PàC	76
4.2.1	Maximisation de l'énergie fournie par la PàC	76
4.2.2	Gestion de l'eau	77
4.2.3	Gestion de la température	77
4.2.4	Dégradation de la membrane	78
4.3	Etat de l'art sur la commande des systèmes PàC	78
4.4	Modèle dynamique du système à pile à combustible	80
4.5	Modélisation du moto-compresseur	80
4.5.1	Moteur MSAP	80
4.5.2	Compresseur	83
4.5.2.1	Modélisation du compresseur centrifuge	84
4.5.2.2	Modélisation du compresseur à double vis	86

4.6	Modèle de base	88
4.6.1	Modèle de 4 états	89
4.6.2	Entrées-sorties du système	93
4.6.3	Performance du système	94
4.7	Conception de Contrôle et simulation	95
4.7.1	boucle externe	96
4.7.2	boucle interne	97
4.7.3	Montage expérimental	98
4.7.4	Commande fondée sur la logique floue	101
4.8	Conclusion	103
	Conclusion	104
	AnnexeA	106
	AnnexeB	108
	AnnexeC	111
	Bibliographie	116

Liste des figures

1	Dessin de la première PàC par William Robert Grove	2
1.1	Vue interne des différents composants d'une PàC de technologie PEM,(UBZM) :(1) <i>Plaques d'extrémités ; (2) Plaques collectrices de courant ; (3) Joints d'étanchéité ; (4)</i> <i>Plaques de distribution en gaz réactifs ; (5) Assemblage membrane électrode . . .</i>	11
1.2	Canaux utilisés pour l'étude comparative :(a) <i>serpentin ; (b) distribution</i> <i>parallèle. [Fern07]</i>	12
1.3	Concentration en oxygène sur la plaque bipolaire cathodique :(a) <i>ca-</i> <i>naux en serpentin ; (b) en parallèle.</i>	13
1.4	Schéma de principe de fonctionnement d'une pile à combustible PEMFC.	15
1.5	Caractéristique tension et puissance de la pile en fonction de la densité de courant.	18
1.6	Schéma simplifié du système à PàC	20
1.7	Répartition des puissances consommées par :(a) le système PàC et (b) les différents auxiliaires, [Duba06].	21
1.8	Différentes méthodes d'alimentations en air des PàC	24
1.9	Classification de différentes technologies de compresseurs	25
1.10	Plages de fonctionnement de différentes technologies de compresseurs [Mbou10]	25
2.1	Banc d'essais 1kW, [Hern06]	29
2.2	Courbe expérimentale du courant, de la tension et de la température P=400W	30
2.3	Courbe expérimentale du courant, de la tension et de la température P=700W	30

2.4	L'effet de pression	36
2.5	L'effet de température	36
2.6	PàC caractéristique tension-courant, deux puissances (700W et 400W), à $T = 55^\circ \text{C}$	36
2.7	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 $0.5R_m$) . . .	37
2.8	Influence de paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale PàC (valeur du coefficient A : $2A$, A et $0.5A$)	37
2.9	Influence du courant d'échange i_0 sur les pertes d'activation et sur la tension totale PàC (valeur du courant d'échange : $2i_0$, i_0 et $0.5i_0$) . . .	38
2.10	Influence du paramètre B sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PàC (valeur du coefficient B : $2B$, B et $0.5B$) . . .	38
2.11	Influence du courant limite I_{lim} sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PàC (valeur du courant limite I_{lim} : $2I_{lim}$, I_{lim} et $0.5I_{lim}$)	38
2.12	Simulation et résultats expérimentaux de Modèle statique de Larminie et Dicks, obtenu pour deux puissances 400W et 700W	39
2.13	Simulation et résultats expérimentaux de Modèle statique de Chamberlin - Kim et Dicksde, obtenu pour deux puissances 400W et 700W	40
2.14	Courbes de modèles statiques pour 400W	42
2.15	Courbes de modèles statiques pour 700W	42
3.1	modèle dynamique de Larminie ([Larm94])	49
3.2	Modèle dynamique de Garnier	49
3.3	Modèles d'impédance et Larminie-Dicks	50
3.4	Modèles circuit électrique [Page07]	54
3.5	Modèle dynamique simplifié	55
3.6	Modèle du conduit	58
3.7	Conducteur réel associé à la loi de Poiseuille	58
3.8	Circuit électrique équivalent pour des composants pneumatiques	61
3.9	Circuit électrique équivalent pour le système d'humidification d'air	62
3.10	Circuit équivalent pour l'oxygène/hydrogène	64

3.11	Circuit équivalent pour l'azote	65
3.12	Circuit équivalent pour la vapeur d'eau	65
3.13	Caractérisation de différentes résistances	69
3.14	Modèles circuits électriques équivalents(Becherif)	71
3.15	Evolution des différents paramètres au cours de l'essai	72
3.16	Tensions simulées et expérimentales obtenues pour une pile PEMFC 700W	72
3.17	Tensions simulées et expérimentales obtenues pour une pile PEMFC 400W	73
3.18	Courbe de variation dynamique du stack PàC (courant, la tempéra- ture et de puissance)	73
3.19	Tension simulée et expérimentale d'essai dynamique	74
3.20	Erreur relative de modèles	74
4.1	Caractéristiques dynamiques de moteur MSAP	82
4.2	Banc d'essai du compresseur centrifuge [Matr13a]	84
4.3	Compresseur à double vis	86
4.4	Cartographie du rendement volumétrique en fonction de la pression à la sortie du compresseur et de la vitesse angulaire du compresseur .	87
4.5	Cartographie du rendement du compresseur en fonction de la pression à la sortie et du débit d'air du compresseur	87
4.6	Rendement volumétrique du compresseur à double vis par simulation et par expérimentation	87
4.7	Représentation des états dans le système à PàC	88
4.8	Structure de la commande en cascade	96
4.9	La structure de simulation Hardware-in-Loop	98
4.10	Caractéristiques, débit, pression, puissance et courant quadratique de groupe moto-compresseur	98
4.11	Essai statique en bas régime pour différent niveaux de vanne	99
4.12	Essai statique pour différents niveaux de vanne et vitesse	99
4.13	Variation du courant et du tension de la Pile à combustible	99
4.14	Variation de la vitesse angulaire du compresseur	99

4.15	Variation du débit d'air du compresseur	99
4.16	Variation du courant quadratique du moteur	100
4.17	Vitesse et débit améliorés	101
4.18	Courant quadratique du moteur amélioré	101
4.19	Structure du régulateur flou	102
4.20	Forme des fonctions d'appartenance	102
4.21	Surface caractéristique du régulateur flou	102
4.22	Vitesse angulaire du compresseur obtenue par contrôleur PI et flou . .	102
4.23	Banc de test moto-compresseur	111
4.24	Photo moto-compresseur	112
4.25	Photo onduleur (vue de face)	113
4.26	Photo onduleur (vue arriere)	113
4.27	Photo vanne de régulation	113
4.28	Photo boitier d'acquisition	114
4.29	: Ecran de visualisation	114

Liste des tables

1.1	Différents types de piles à combustible, [Roma07] et [Wolf03]	10
2.1	Paramètres du modèle statique de Larminie-DICKS et CHAMDERLIN-KIM	41
2.2	Propriétés de modèles Statiques	44
3.1	Propriétés de modèles dynamiques	74
4.1	Matrice d'inférence du régulateur flou à cinq fonctions d'appartenance par variable	102
..		

Introduction générale

AUCUN carburant de substitution ne répond aujourd'hui à toutes les exigences de coût, d'acceptation par l'opinion publique, de sécurité d'approvisionnement et d'infrastructure de production pour concurrencer les combustibles fossiles traditionnels essence, gazole et gaz naturel comprimé qui bénéficient de près d'un siècle de constante amélioration par l'industrie pétrolière. Actuellement, la crise énergétique et l'augmentation du niveau de pollution sont des problèmes majeurs à travers le monde. Des sources d'énergies nouvelles, renouvelables et propres doivent donc être considérées et ceci sera l'un des éminents enjeux des prochaines années, tant sur le plan économique qu'environnemental [El S06], [Ahme08].

La pile à combustible (PàC) est une alternative sérieuse (en Anglais : Fuel Cell (FC)). Par son rendement électrique et énergétique élevé, ses très faibles émissions de gaz nocifs, sa faible nuisance sonore et sa production localisée, occupe une place très importante dans ce domaine. Ces avantages expliquent les motivations fortes pour le développement et la recherche dans ce domaine. Dans le futur proche, la technologie des PàC sera considérée comme source d'énergie primaire renouvelable, en particulier pour les applications de transport [Hann12]. Cependant, pour faire face au double défi de réduire les rejets en polluants, émis par les véhicules et leurs émissions de gaz à effet de serre, les constructeurs automobiles ont lancé de vastes programmes de recherche afin d'utiliser l'hydrogène comme carburant dans des PàC n'émettant que de la vapeur d'eau ; toutefois l'impact de l'hydrogène sur la traction automobile dépendra largement de son mode de production et de l'ensemble des coûts du cycle énergétique de la production à la consommation qui, pour l'instant, nécessitent aussi beaucoup de travaux de recherche.

Il y a 175 ans, en 1839, la première PàC a été inventée par Sir William Robert

Grove, un professeur de philosophie expérimentale à l'Institut Royal de Londres. Depuis, il est connu comme « le Père de la pile à combustible ». Ses expériences sur l'électrolyse - l'utilisation de l'électricité pour séparer l'eau en hydrogène et oxygène ont mené à la première mention d'un dispositif qui plus tard se nommera pile à combustible. Il a pensé qu'il était possible de renverser le procédé d'électrolyse et de produire de l'électricité en faisant réagir de l'oxygène avec de l'hydrogène. Pour vérifier cette théorie il a enfermé deux bandes de platines dans des bouteilles séparées, l'une contenant de l'hydrogène l'autre de l'oxygène (figure 1). Quand ces récipients ont été immergés dans de l'acide sulfurique dilué ; un courant a commencé à s'établir entre les deux électrodes et de l'eau s'est formée dans les bouteilles de gaz. Pour augmenter la tension produite, il a placé plusieurs de ces dispositifs en série et a produit ce qu'il a appelé une « batterie à gaz », le précurseur de la PàC moderne [Thou05].

Ce principe constitue actuellement la méthode la plus efficace pour générer de

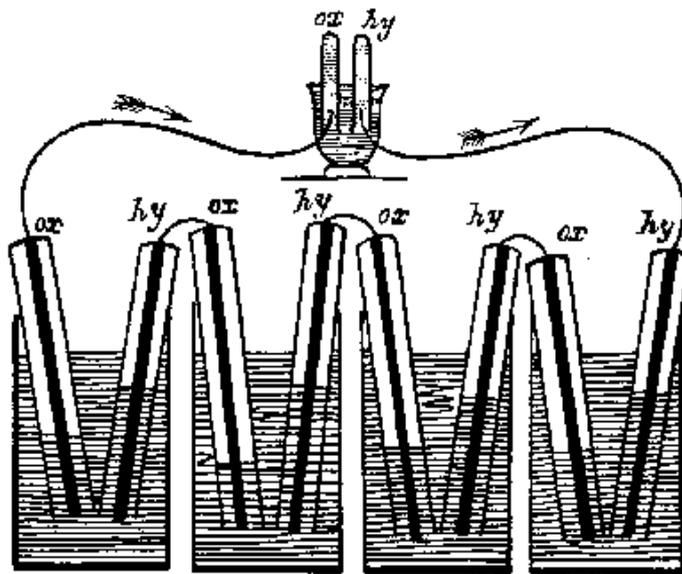


FIGURE 1 – Dessin de la première PàC par William Robert Grove

l'énergie électrique à partir de l'hydrogène. C'est pourquoi elle est devenue un des convertisseurs d'énergie clefs pour l'avenir tant pour les applications stationnaires que pour les applications embarquées (portables, voitures, bus, avions, scooters, bateaux et sous-marins) [Wang11].

Le cœur de la PàC est un système compliqué qui nécessite un grand nombre d'auxi-

liaires pour fonctionner sous de bonnes conditions de sécurité et de performance. Il reçoit en entrée de l'hydrogène (sous pression) et de l'oxygène injecté par l'intermédiaire d'un compresseur (excepté pour les PàC de faible puissance qui prennent de l'oxygène de l'air ambiant). Le système PàC comporte la pile et ses auxiliaires, considéré comme un système très complexe, dans lequel se produisent des phénomènes divers allant des phénomènes chimiques, pneumatiques, fluidiques et électriques.

Les auxiliaires de la pile comportent :

- le circuit de refroidissement,
- le circuit d'humidification,
- les convertisseurs statiques,
- le système de contrôle,
- le circuit d'alimentation en oxygène (provenant de l'air),
- le circuit d'alimentation en hydrogène.

La compression de l'air est souvent réalisée par un moteur électrique dont la commande en vitesse est proportionnelle au débit d'air injecté dans la PàC. L'injection de l'air doit se faire de manière optimale afin d'assurer un bon fonctionnement et la durée de vie de la PàC. En effet, un manque d'oxygène aura pour conséquence un déficit dans la réaction d'oxydoréduction et ainsi la PàC ne sera pas en mesure de délivrer la tension et le courant demandés par la charge. D'un autre côté, de l'oxygène en excès dans la PàC aura pour conséquence d'assécher les membranes, ce qui causera des dommages irréversibles. Malgré l'investissement sur la technologie de PàC, plusieurs problématiques restent ouvertes et font l'objet de plusieurs axes d'études comme :

- la création de centrales pour la production d'hydrogène et l'installation d'infrastructures de distribution.
- l'amélioration des matériaux de fabrication de la PàC, et surtout de la membrane, afin de prolonger leur durée de vie.
- la réduction des coûts du système PàC et de sa maintenance.
- la commande du système en vue d'améliorer ses performances.

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés plus particulièrement à répondre à deux questions importantes et actuelles :

- La première question concerne la modélisation de la pile à combustible : Parmi

les modèles existants, quel est celui qui peuvent décrire le comportement de la PàC du type PEMFC ?

Est-ce- qu'on peut développer et établir un nouveau modèle en tenant compte des non linéarités inhérentes (dynamique de fluide, saturation de la vapeur d'eau,..etc),

- La deuxième question concerne la commande du circuit d'air : Plusieurs techniques de commande sont employées dans les systèmes pile à combustible, le choix d'une commande convient d'améliorer le fonctionnement de la pile ainsi que l'augmentation du rendement de système.

Organisation de la thèse

Cette thèse est divisée en quatre chapitres (hors introduction et conclusion générales), récapitulant les tâches réalisées et les résultats obtenus dans le cadre de ce travail de recherche.

Chapitre 1 :

Après quelques rappels sur le fonctionnement d'une PàC de type PEMFC, nous décrivons les différents circuits auxiliaires du système PàC nécessaire à son fonctionnement. Nous rappelons quelques rudiments sur les compresseurs. De plus, nous présentons une étude comportant les choix de technologies de compresseur d'air les mieux adaptées aux applications des PàC.

Chapitre 2 :

Le deuxième chapitre aborde la partie de modélisation et d'identification des modèles statiques connus. Il vise à évaluer les différents modèles d'analyse qui sont utilisés pour la modélisation de pile à combustible (PEMFC). Les trois modèles statiques ; modèle Amphlett, modèle Larminie-Dicks et le modèle Chamberlin-Kim sont montrés. Ils sont étudiés et validés expérimentalement en identifiant leurs paramètres séparément. Par conséquent, les résultats expérimentaux sont comparés au banc d'essai de la pile à combustible pour les deux puissances nominales (400W et 700W).

Chapitre 3 :

la caractéristique de courbe de polarisation ($V - I$) d'une cellule est étudiée via trois modèles dynamiques différents (Dicks, d'impédance et Circuit électrique équivalent) qui sont comparés à celles expérimentales.

Chapitre 4 :

Le dernier chapitre est consacré à la commande du circuit d'air (groupe pile à combustible et moto-compresseur). Deux stratégies de commande sont présentées ; un régulateur (PI) et la logique floue, ainsi qu'une validation expérimentale. Les travaux ont été validés expérimentalement sur deux bancs d'essai (PàC et compresseur) situés au FCLAB.

Cette thèse s'achève par une conclusion générale et quelques perspectives pouvant s'inscrire à la suite de ce travail, ainsi que quelques annexes.

Publications scientifiques relatives à ce travail

Revue internationale

- A. Saadi, M. Becherif, A. Aboubou, M.Y. Ayad "Comparison of proton exchange membrane fuel cell static models" Renewable Energy, Volume 56, August 2013, Pages 64-71.
- M. Becherif, A. Saadi, D. Hissel, A. Aboubou and M.Y. Ayad, "Static and dynamic proton exchange membrane Fuel Cell models", Journal of Hydrocarbons Mines and Environmental Research, ISSN : 2107-6510, Vol.2, Issue 1, pp : 19-26, June 2011.

Conférences internationales

- A. Saadi, M. Becherif, D. Hissel and A. Aboubou "State space modeling of PEM Fuel Cell with a Moto-Compressor System" 5th International Conference on Fundamental Development of Fuel Cells, FDFC 2013, 16-18th April 2013, Karlsruhe, Germany.
- A.Saadi, M. Becherif, D.Hissel, A. Aboubou and M.Y. Ayad "Static Proton Exchange Membrane Fuel Cell models comparison" 'International Conference on Renewable Energy : Generation and Applications' ICREGA'12 United Arab Emirates, 2012.

Conférences nationales

- M. Becherif, A. Saadi, D. Hissel, A. Aboubou and M.Y. Ayad ; "Summary of the PEM Fuel Cell modeling," International Symposium on Environment Friendly Energies in Electrical Applications, November 2010, Ghardaïa, Algeria.

Chapitre 1

Généralité sur le système pile à combustible

1.1 Introduction

La forte modularité de la PàC introduit un vaste champ d'applications potentielles. On distingue trois grands types d'applications :

- portables (de quelques milliwatts à quelques kilowatts),
- transport (de la dizaine à quelques centaines de kilowatts),
- stationnaires (de quelques centaines de kilowatts au mégawatt).

1.1.1 Avantages des piles à combustible

- Haut rendement énergétique : Le rendement énergétique net électrique dépend du type de pile, et généralement élevé.
- Silencieuses : Lors de leur fonctionnement, les piles sont silencieuses : dans les systèmes PAC, seuls certains organes comme les compresseurs, les pompes, le système de ventilation, produisent un léger bruit.
- Emissions de pollution limitées : On cite les piles à combustible comme atout dans la lutte contre la pollution, les émissions produites par un système pile dépendent étroitement du carburant utilisé et de son origine.
- Modularité : Les piles sont constituées de cellules élémentaires mises en parallèle ou en série pour obtenir la puissance voulue. Il est donc possible en

adaptant le nombre de cellules ainsi que la surface de chacune d'obtenir toutes les puissances possibles entre 1 kW et plusieurs MW.

- Diverses températures de fonctionnement : dans les deux cas basse ou élevée le fonctionnement de la pile est bien assuré.
- Pas de parties rotatives : Il n'y a aucune partie rotative dans une pile à combustible, aucun mouvement : il n'y a donc pas d'usure mécanique pour le $\frac{1}{2}$ ur de la pile.

1.1.2 Inconvénients des piles à combustible

les piles à combustible présentent beaucoup d'avantages, cependant elles présentent des inconvénients aussi :

- Le coût global [Guil04],
- La fiabilité du système,
- La logistique de production du carburant.

1.1.3 Types de piles à combustible

Une distinction des différents types de PàC peut être faite par plusieurs critères [Mekh12] et [Gidd12] :

- La valeur du PH de l'électrolyte :
On distingue des électrolytes acides et alcalins. Les ions mobiles dans l'électrolyte sont donc des cations ou des anions.
- La nature de l'électrolyte :
Il existe des électrolytes liquides ou solides.
- La température :
Généralement, une pile basse température fonctionne à des températures inférieures à $200^{\circ}C$. Au-delà, la pile est dite à haute température.
- Le combustible :
La plupart des PàC convertissent de l'hydrogène. Il y en a qui font un reformage interne, c'est-à-dire que dans les conditions de température interne et en présence d'un catalyseur, d'autres gaz combustibles sont convertis en hydrogène. La pile à méthanol direct par exemple permet d'établir une oxydation

du méthanol liquide.

Les différents types de PàC sont rappelés dans le tableau 1.1, [Roma07] et [Wolf03]

1.2 Pile à membrane électrolyte polymérique (PEMFC)

Parmi les différents types de piles à combustible couramment développées, c'est la filière dite « à membrane échangeuse de protons » qui a été retenue par presque tous les acteurs de programmes automobiles dans le monde [Barb05]. Généralement appelée PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell), elle intéresse également les industriels pour des applications stationnaires (centaines de kW), portables (jusqu'à 100W) et transportables (de l'ordre de 100kW). Cette technologie retient l'attention pour trois raisons essentielles. Sa température de fonctionnement, relativement basse ($<100^{\circ}\text{C}$), d'environ 80°C , laisse envisager une technologie simplifiée pour assurer un démarrage rapide et une évacuation aisée de la chaleur produite à température ambiante ; ce premier point est essentiel pour l'application automobile (La température de fonctionnement dans le domaine de l'automobile est entre -40°C et 85°C). Elle est ensuite insensible à la présence de CO_2 dans l'air, contrairement à la filière alcaline. Ainsi, la PEMFC peut facilement utiliser l'oxygène de l'air ambiant dans la réaction chimique produisant de l'électricité.

Enfin, elle est de technologie toute solide et peut donc prétendre à la fois à des durées de vie sensiblement supérieure aux filières à électrolyte liquide, ainsi qu'à une industrialisation plus simple de la filière. Ceci permet d'envisager un coût prospectif compatible avec le marché visé, d'autant qu'elle offre une compacité sensiblement supérieure à celle des autres filières [Larm03] et [Ryan06]. La technologie PEMFC concentre actuellement le plus gros effort de recherche et développement dans le monde. Les recherches visent essentiellement à augmenter les performances (en termes de rendement, compacité et masse) et à diminuer le coût (d'un facteur 5 à 100 selon le type d'application).

TABLE 1.1 – Différents types de piles à combustible, [Roma07] et [Wolf03]

Paramètre	PEMFC	AFC	PAFC	MCFC	SOFC	DMFC
Puissance électrique	1 W - 250 kW	10 - 50 kW	100 - 200 kW	500 kW - 10 MW	1 kW - 10 MW	mW - 100 kW
Densité de courant	0,6 A.cm ⁻²	0,09 A.cm ⁻²	0,18 A.cm ⁻²	0,13 A.cm ⁻²	0,25 - 1,25 A.cm ⁻²	-
Rendement	30 - 50 %	40 - 60 %	35 - 45 %	50 - 60 %	50 - 70 %	20 ? 30 %
Durée de vie	5000 h	2000 h	40000 h	20000 h	20000 h	100000 h
Pression	2 - 5 bar	1 bar	1 bar	1 bar	1 bar	-
Température	60 - 90 °C	50 - 250 °C	160 - 220 °C	600 - 700 °C	800 - 1000 °C	90- 120 °C
Electrolyte	Polymère perfluoré (solide)	Hydroxyde de potassium (liquide)	acide phosphorique (liquide)	carbonate de lithium / potassium (liquide)	Céramique (solide)	Polymère
Catalyseur	Platine	Platine, nickel	Platine	Nickel	Pérovskites	Platine
Combustible	Hydrogène pur ou reformé	Hydrogène	Gaz naturel reformé	Reformage interne de gaz naturel	Gaz naturel direct	méthanol
Applications	Transports portables, stationnaires	Spatiales transports	Transports stationnaires	Stationnaires	Transports stationnaires	applications mobile transport

D'autre part, il est important de noter qu'un module de pile à combustible, doit pour fonctionner, être associé à des équipements auxiliaires qui assurent l'approvisionnement des réactifs (hydrogène et air), leur conditionnement (pression, débit), la gestion des produits de la réaction (eau, chaleur, électricité). Ces annexes peuvent représenter jusqu'à 60% en masse et en volume du système et une dépense énergétique de l'ordre de 20%. Parmi elles, le stockage du combustible constitue un verrou technologique majeur, car il conditionne pour certaines applications l'autonomie du système.

1.2.1 Description de PEMFC

Une PàC basse température à électrolyte polymère (PEMFC) est composée au minimum de 5 éléments pour un module élémentaire (voir figure 1.1) [Wast10].

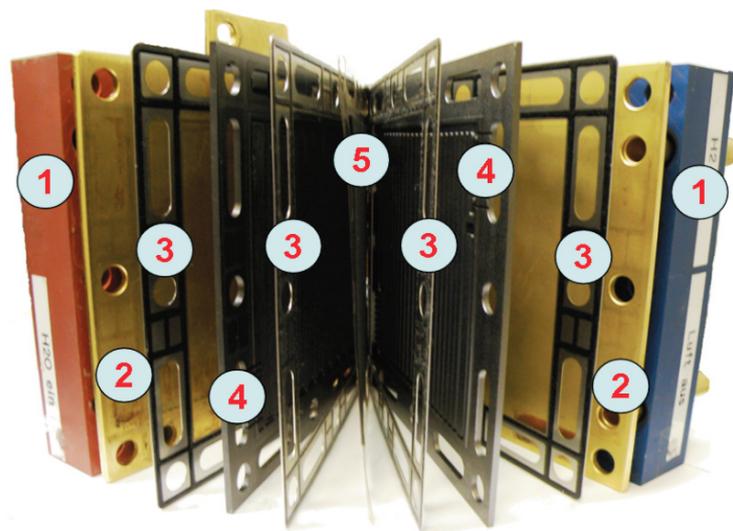


FIGURE 1.1 – Vue interne des différents composants d'une PàC de technologie PEM,(UBZM) : (1) Plaques d'extrémités ; (2) Plaques collectrices de courant ; (3) Joints d'étanchéité ; (4) Plaques de distribution en gaz réactifs ; (5) Assemblage membrane électrode

1.2.1.1 Les plaques bipolaires

Les deux plaques d'extrémité assurent le maintien mécanique de l'ensemble et servent aussi à l'alimentation en gaz ainsi qu'au refroidissement de la cellule. Le matériel utilisé pour la construction de ces plaques varie suivant le constructeur

(aluminium, matériaux composites...). Leur participation à l'évacuation de la chaleur fait qu'elles sont parfois pourvues d'ailettes. Cependant, ces plaques doivent répondre aux impératifs suivants : rigidité et résistance à la corrosion [Ryan06]. C'est aux bornes des plaques collectrices de courant que l'on connecte la charge électrique. Généralement recouvertes d'une fine couche d'or, elles doivent présenter le minimum de résistance aux transferts d'électrons. Des joints sont nécessaires pour assurer l'étanchéité entre compartiments et vis-à-vis de l'extérieur. Les déformations physiques subies par l'empilement de cellules peuvent entraîner d'importantes fuites au sein des compartiments. L'utilisation de joints souples est alors indispensable. Réalisés généralement à partir de silicone, ils doivent être particulièrement résistants en milieu acide et corrosif.

1.2.1.2 Les plaques distribuant les réactifs

Les plaques de distribution en gaz réactifs (ou plaques bipolaires) assurent l'amenée des gaz depuis l'entrée de la PàC jusqu'à la couche de diffusion. Ces plaques peuvent servir en outre au passage du fluide calorifique. Généralement construites en graphite usiné, les dernières solutions sont à base d'acier galvanisé embouti et permettent d'entrevoir une réduction des coûts de fabrication pour la grande série. Les plaques doivent en outre évacuer efficacement les gaz non consommés et l'eau produite par la réaction. Ceci est habituellement réalisé par l'emploi d'un excès de gaz. Le nombre de canaux, leurs dimensions, conditionnent fortement le transport des gaz et de l'eau dans la cellule. La conception des canaux est particulièrement importante pour assurer à la fois une répartition homogène des gaz réactifs sur toute la surface de l'électrode et minimiser les pertes de charge (c'est-à-dire les différences de pressions entre l'entrée et la sortie du stack d'une même ligne de gaz) [Wahd06] et [Noiy13].

De nombreux travaux de recherche se sont concentrés sur la distribution de gaz dans la pile, notamment sur la forme et la profondeur des canaux [Chen11] et [Sier11]. [Fern07] se sont intéressés à l'influence des canaux sur la répartition de densité de courant de pile. En comparant le fonctionnement de piles avec différents types de canaux (figure 1.2), les auteurs déterminent le type de canaux qui permet d'obtenir la meilleure densité de puissance expérimentalement pour les canaux de distribution

en serpentin (figure de gauche) et en parallèle (figure de droite).

La figure 1.3 montre la comparaison des distributions de concentration d'oxygène

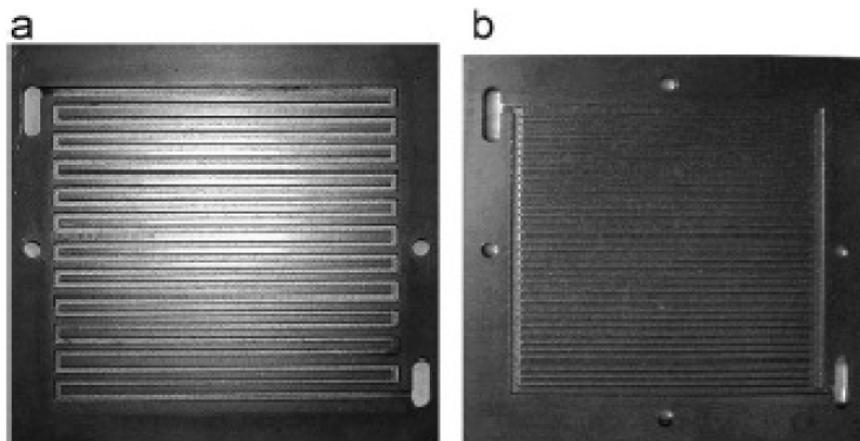


FIGURE 1.2 – Canaux utilisés pour l'étude comparative : (a) *serpentin*; (b) *distribution parallèle*. [Fern07]

pour des canaux de distribution en serpentin (a) et en parallèle de flux (b). Dans le cas (b), on constate un net appauvrissement (moins prononcé dans le cas (a)). Cette forte disparité se traduit par de moins bonnes performances de la pile dans le cas de canaux de distribution parallèle que dans le cas des canaux de type serpentin. L'hétérogénéité de la distribution d'oxygène implique également une hétérogénéité forte dans le cas des canaux en serpentin pour la distribution de densité de courant. La densité de courant dans la région du milieu est proche de zéro pour des canaux d'écoulement parallèle, ce qui a pour conséquence des performances médiocres.

1.2.1.3 Ensemble Membrane Electrode (EME)

Enfin, une PàC repose également sur un ensemble appelé couramment Ensemble Membrane Electrode (EME), ou encore cœur de pile. Le dispositif est composé d'une membrane échangeuse de protons et de deux électrodes chargées en platine et thermocollées de chaque côté de l'électrolyte.

La membrane

La membrane est réalisée à partir de matériaux ionomères comme le Nafion[®] de DuPontTM [Thou05] ou les électrolytes du constructeur GoreTM. Ces membranes,

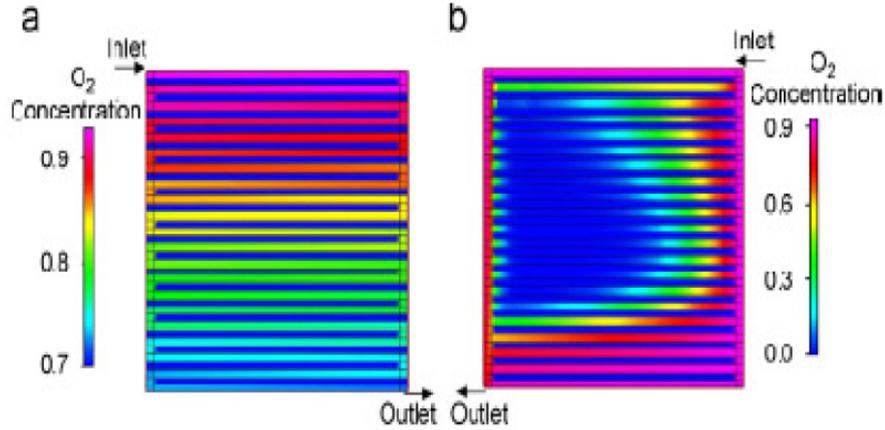


FIGURE 1.3 – Concentration en oxygène sur la plaque bipolaire cathodique : (a) canaux en serpentins ; (b) en parallèle.

soumises à des milieux acides et corrosifs, doivent présenter une bonne résistance chimique à ce type d'environnement [Ryan06]. Les contraintes mécaniques dues à la nature de la membrane, à l'eau présente dans la membrane, aux surpressions ainsi qu'à la température de fonctionnement (entre 50°C et 85°C) peuvent provoquer des déformations de la membrane. Ces effets de contraction/ expansion de l'électrolyte réduisent la durée de vie de la membrane. Il faudra donc veiller à ce que la membrane supporte ces contraintes sans donner lieu à des dégradations importantes des performances. La membrane doit aussi être imperméable aux gaz réactifs. Le passage de molécules d'hydrogène ou d'oxygène à travers l'électrolyte présente en effet des risques en termes de sécurité (domaine d'explosivité de l'hydrogène), mais entraîne aussi une réduction du rendement global de la PàC ainsi qu'une diminution de sa durée de vie. Les piles ZSW utilisées sont pourvues de membranes Gore qui ont une épaisseur de $25\mu\text{m}$ [Wahd06]. Cette sorte de membrane est constituée d'un matériau polymère perfluoré (type Nafion) sur lequel sont greffés des groupements sulfonates SO_3^{-1} .

Les couches de diffusion

La fabrication d'une PàC de type PEMFC nécessite l'utilisation de couches de diffusion (GDL pour Gas Diffusion Layer). Ces couches possèdent trois rôles. Tout d'abord alimenter en gaz toute la couche active en ayant une diffusion la plus uni-

forme possible sur la surface de l'électrode et en limitant les pertes de charge des réactifs (entre les canaux de la plaque bipolaire et la couche active). La deuxième fonction de la couche de diffusion concerne la gestion de l'eau. Elle doit évacuer l'eau produite par la demi-réaction de réduction de l'oxygène (comportement hydrophobe). Enfin, elle doit assurer le passage des électrons avec une résistivité minimale. Les éléments principaux constituant la GDL sont le polytétrafluoroéthylène et le carbone.

Les électrodes

La couche active microporeuse des électrodes est la zone où se produisent les réactions électrochimiques. Elle doit assurer le passage des gaz jusqu'aux grains de platine, la conduction des électrons et assurer le passage des protons entre les sites catalytiques et la membrane. Constituée principalement de carbone, une très faible quantité de platine y est déposée, entre $0,2\text{mg}/\text{cm}^2$ et $0,8\text{mg}/\text{cm}^2$. La réduction du chargement en platine a été rendue possible grâce à la réduction de la taille des grains de platine (quelques nm environ) rendant l'accessibilité des réactifs aux sites de platine plus aisée.

1.2.2 Principe de fonctionnement

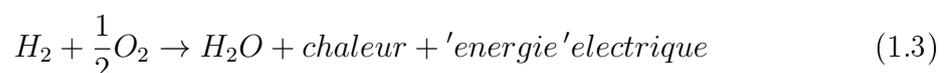
Une pile à combustible de type PEM est constituée d'un empilement de cellules électrochimiques en série [Make08]. Chaque cellule est le siège d'une réaction électrochimique inverse de l'électrolyse de l'eau, la réaction d'oxydoréduction (en présence de platine) fait réagir l'hydrogène et l'oxygène pour produire de l'eau, de l'électricité et de la chaleur selon les équations suivantes : Anode : couple H^+/H_2



Cathode : couple O_2/H_2O



Réaction globale :



Cette réaction crée une différence de potentiel entre les électrodes de l'ordre du 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 électrochimiques en série afin d'obtenir une tension suffisamment élevée pour l'exploiter, d'un point de vue électrique, avec un rendement satisfaisant.

Le principe de fonctionnement de la pile à combustible peut être résumé par le schéma suivant :

L'électrolyte est une membrane polymérique mince qui permet le passage des pro-

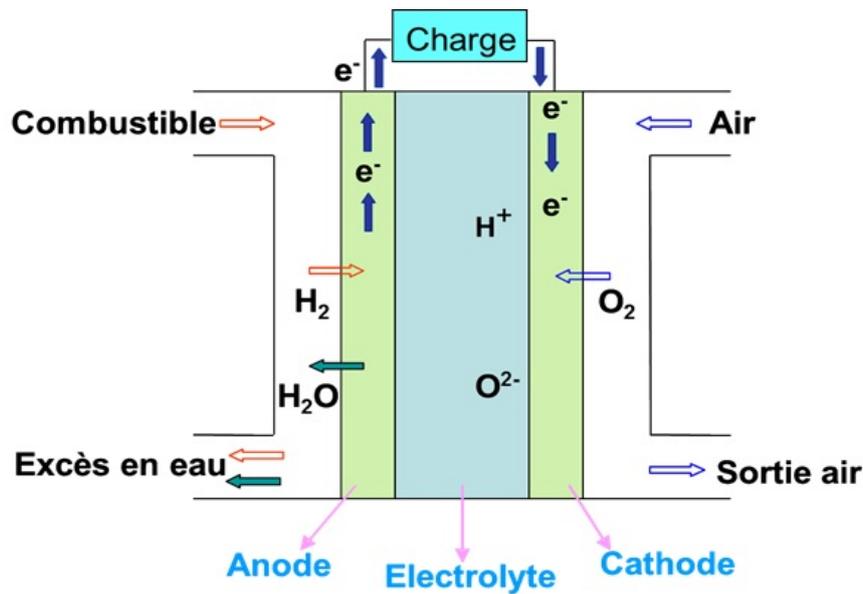


FIGURE 1.4 – Schéma de principe de fonctionnement d'une pile à combustible PEMFC.

tons (H^+). Un catalyseur à base de platine est utilisé aux électrodes. Le monoxyde de carbone peut être absorbé sur ce catalyseur s'il n'est pas éliminé pendant le procédé de purification, d'où une diminution de l'efficacité de la pile à combustible. De nombreux Laboratoires sont à la recherche de catalyseurs plus robustes et moins chers, et d'électrolytes polymériques échangeurs d'ions plus efficaces et également moins coûteux. Les plaques bipolaires peuvent être faites à partir de feuilles de graphite, de composites ou de métaux à base de carbone [Lach04].

1.2.3 La force électromotrice (f.e.m.)

Une cellule électrochimique de pile à combustible réalise la transformation d'une énergie chimique en une énergie électrique. Dans le cas théorique d'une réaction réversible, la relation entre ces deux formes d'énergie s'écrit :

$$E_{th} = -\frac{\Delta G}{nF} \quad (1.4)$$

Où :

- E_{th} est la force électromotrice théorique d'une cellule à l'équilibre (circuit ouvert)
- F est la constante de Faraday
- n est le nombre d'électrons échangés dans la réaction électrochimique élémentaire, (ici $n = 2$)
- ΔG est l'énergie chimique transformée en énergie électrique, appelée « variation d'enthalpie libre » ou encore « variation d'énergie libre de Gibbs ».

Influence des conditions expérimentales de la réaction : La variation d'enthalpie libre ΔG dépend des conditions de la réaction, et plus précisément des activités des espèces :

$$\Delta G = \Delta G^\circ + RT \ln(\prod (a_i)^{v_i}) \quad (1.5)$$

ΔG° : Variation d'enthalpie libre standard de la réaction à la température T , i.e. définie par rapport à la pression de référence de 1 bar. Par définition, l'état physique d'un corps pur sous la pression $P^0 = 1$ bar, à la température T , est appelé état standard du corps pur à cette température. $RT \ln(\prod (a_i)^{v_i})$: Influence de l'activité des produits et des réactifs notés a_i , suivant les coefficients stœchiométriques v_i .

Dans le cas de la réaction d'oxydoréduction entre H_2 et O_2 :

- l'activité du produit est celle de l'eau liquide égale à 1.
- l'activité des réactifs est celle de H_2 et O_2 ; les coefficients stœchiométriques sont respectivement 1 et 1/2 pour H_2 et O_2 .

Remarque : la notion d'activité exprime l'écart entre le comportement d'un constituant dans une solution non idéale et celui de ce constituant dans une solution idéale.

On utilise :

- pour les espèces en solution la concentration $a = [C]$.

- pour les gaz les pressions partielles $a = P$.
- pour les solides l'activité est égale à 1.

La pression partielle est le produit de la pression totale du mélange de gaz par la fraction molaire du gaz considéré.

En fait, ce terme prend en compte l'écart entre la pression réelle et la pression standard de 1 bar. On obtient alors :

$$RT \ln(\prod (a_i)^{v_i}) = RT \ln((P_{H_2}(P_{O_2})^{\frac{1}{2}})) \quad (1.6)$$

La forme générale de l'équation de **Nernst** est comme suit :

$$E = E^0 + \frac{RT}{nF} \ln \left(\frac{\prod \text{activité des réactifs}}{\prod \text{activité des produits}} \right) \quad (1.7)$$

Grandeurs standards : Le terme ΔG° permet de définir un potentiel standard à l'équilibre thermodynamique, qui est le potentiel maximal théoriquement atteignable E° dans les conditions standards de pression. Cette différence de potentiel standard, est propre au couple rédox O_2/H_2 .

A $25^\circ C (298K)$ et $P = 1 \text{ bar}$, $\Delta G^\circ = -237,2 \text{ kJ/mol}$ pour de l'eau produite à l'état liquide [Guil05].

On peut de même définir un potentiel standard : $E^0 = \Delta G^\circ / nF$. Le potentiel vaut alors $E^0 = 1,23V$. La valeur de E^0 est une valeur théorique qui n'est jamais atteinte en pratique.

1.2.4 Potentiel thermodynamique réel de PàC

Le potentiel thermodynamique théorique de la pile à combustible PEMFC H_2/O_2 à $25^\circ C$ et à 1 atm est de l'ordre de 1,23 V, mais le potentiel réel (V) de la cellule décroît par rapport au potentiel thermodynamique d'équilibre quand le courant débite. D'après la loi de Nernst, cette différence de potentiel, qu'on appelle E_{th} , dépend à la fois des pressions partielles des réactifs et de la température. La tension E_{th} est le potentiel thermodynamique réversible de la réaction. Mais il existe des irréversibilités qui induisent une chute de tension aux bornes d'une cellule.

La tension utilisable lorsque la pile est parcourue par un courant raisonnable, s'éloigne

de l'équilibre à cause des pertes irréversibles montrées à la figure???. De nombreuses sources contribuent à des pertes irréversibles dans une pile à combustible.

$$V = E_{th} - pertes \quad (1.8)$$

Les pertes, appelées souvent polarisation, proviennent principalement de trois sources : la polarisation d'activation, la polarisation ohmique, et de la polarisation de concentration. Cette caractéristique peut être décomposée en trois phénomènes prépondérants en fonction de la valeur de la densité de courant.

- La première zone représente la surtension d'activation anode et cathode qui est le phénomène le plus important pour les faibles densités de courant.
- La deuxième zone caractérise le comportement ohmique de la cellule, c'est la zone la plus utilisée en fonctionnement car elle est linéaire et elle est valable sur une forte plage de variation de la densité de courant.
- La troisième zone liée à la limitation par diffusion et nuage.

Comme on peut le constater sur la figure 1.5, à faible densité de courant, la polarisation d'activation est dominante. Les pertes ohmiques, qui sont directement proportionnelles à la densité de courant, deviennent ensuite prépondérantes sur une large gamme de densité de courant. Et enfin, à hautes densités de courant, les pertes dues au transport du gaz deviennent dominantes.

1.2.5 Dimensionnement d'un stack

Pour concevoir la pile à combustible correspondant au cahier des charges d'un projet donné, le concepteur dispose de deux degrés de liberté [Guil05] :

- Le nombre N de cellules mises en série qui fixe la tension du stack,
- La surface A d'une cellule qui fixe le courant du stack.

Le dimensionnement du stack consiste à déterminer le nombre et la surface des cellules qui composent un stack de piles à combustible. Ce dimensionnement doit tenir compte de la puissance nominale de la pile et de la densité de courant que nous souhaitons avoir. La puissance électrique brute de l'empilement se calcule par la relation suivante :

$$P_{st} = N.V.J.A_s \quad (1.9)$$

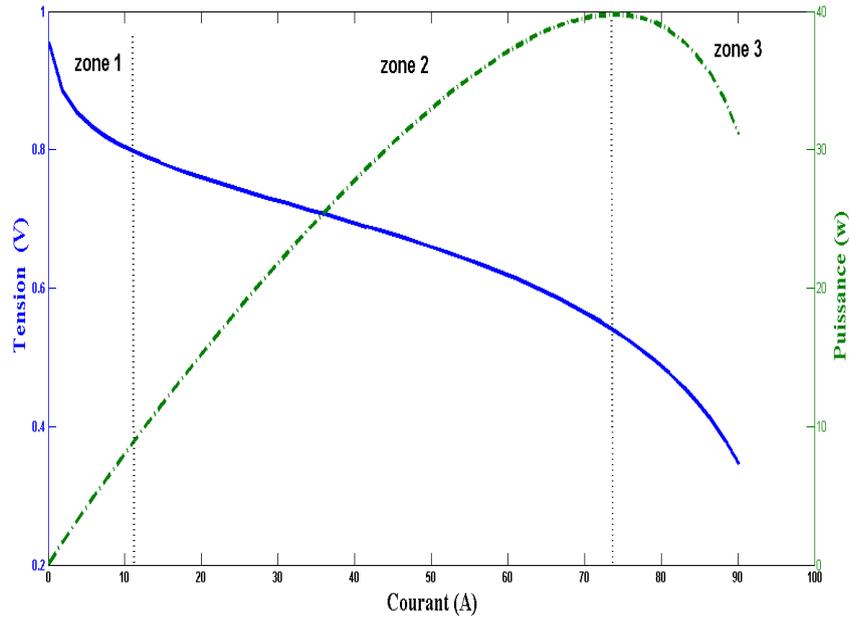


FIGURE 1.5 – Caractéristique tension et puissance de la pile en fonction de la densité de courant.

Avec :

P_{st} : Puissance électrique brute du stack (W)

N : Nombre de cellules de l'empilement

V : Tension par cellule (V)

J : Densité de courant (A/m^2)

A_s : Surface active des cellules (m^2)

V et J sont liées par la caractéristique *tension/courant* de la pile, il reste donc trois variables indépendantes à ajuster de façon à obtenir la puissance souhaitée. Les contraintes liées à l'application vont nous permettre de faire les choix nécessaires. Il est intéressant d'avoir la tension V_{st} la plus élevée et donc le courant I_{st} le plus faible possible car cela limite les pertes joule dans la cellule [Lach04].

$$V_{st} = N.V \quad (1.10)$$

$$I_{st} = J.A_s \quad (1.11)$$

Pour satisfaire cette contrainte, il est possible :

- D'augmenter le nombre de cellules jusqu'à la limite technologique actuelle.

- D’augmenter la tension par cellule, en diminuant la densité de courant donc en augmentant la surface de cellule. Ce choix va en outre dans le sens d’un bon rendement de pile.

1.2.6 Modélisation de PàC

La modélisation des piles correspond à une phase très importante des recherches car elle participe à une meilleure compréhension et représentation des phénomènes mis en jeu au sein des PàC. Il existe ainsi, à ce jour, un certain nombre de modèles de piles PEM qui ont chacun leurs propres spécificités et utilités. Les modèles développés dans la littérature peuvent être classés en trois catégories principales [Bech10c] et [Bech11b] : les modèles détaillés basés sur des équations différentielles partielles, les modèles empiriques basés sur des tables et des cartographies expérimentales, les modèles statiques utilisant des équations statiques linéaires ou non linéaires et qui négligent les différentes dynamiques et les modèles dynamiques qui négligent les variations spatiales. D’un autre point de vue, tous les modèles peuvent être classés en deux grandes familles, les modèles microscopiques et les modèles macroscopiques. La première catégorie comprend les modèles développés au niveau cellulaire et qui tiennent compte des variations spatiales des paramètres et des performances locales. Les principes complexes d’électrochimie, de la thermodynamique et de la mécanique des fluides sont utilisés pour développer ce type de modèles. A partir de ces modèles, les performances et le rendement de la pile en fonctionnement statique peuvent être déterminés. Aussi, ces modèles sont utiles pour la conception des composants de la pile à combustible et pour le choix des points de fonctionnement.

1.3 Présentation du système PEMFC

Le fonctionnement d’un cœur de pile à combustible nécessite un grand nombre d’auxiliaires indispensables à son bon fonctionnement. Le système global (cœur de pile et auxiliaires) est appelé système pile à combustible. Il est généralement constitué d’un cœur de pile, de l’alimentation en hydrogène, de l’alimentation en air (oxygène), d’un circuit de refroidissement, d’un circuit d’humidification, d’un ou plusieurs

convertisseurs statiques et d'un système de contrôle. Les auxiliaires d'une pile à combustible consomment une partie non négligeable de l'énergie produite par celle-ci, entraînant ainsi la dégradation du rendement du système [Teki04]. Leur conception est donc souvent un élément clé dans le développement d'un système pile à combustible. En effet, ils constituent des ensembles multi-physiques très complexes où les paramètres de fonctionnement interagissent fortement entre eux. Le schéma complet du système pile à combustible (figure 1.6). Le rendement électrique (PàC) d'un "stack" est relativement élevé (supérieur à 50 %). Le comportement du "stack" est fortement influencé par celui des auxiliaires en fonctionnement statique mais encore plus en fonctionnement dynamique, ce qui est fondamental pour une application transport. La consommation des auxiliaires pénalise très fortement le rendement électrique du générateur PàC. Ces auxiliaires consomment à eux seuls près de 25 à 35 % de l'énergie électrique disponible en sortie de la PàC [Gran08]. La figure 1.7 représente la répartition des puissances consommées par le système PàC et par les différents auxiliaires. Dans des conditions optimales avec un rendement électrique du système PàC de 65 % (35 % consommé par les différents auxiliaires), le rendement du groupe électrogène à PàC chute jusqu'à 32 %.

1.3.1 Circuit d'alimentation en hydrogène

Suivant l'application visée, le mode d'alimentation retenu peut différer. L'hydrogène peut être stocké tout simplement dans un réservoir, ou fabriqué à partir d'un hydrocarbure par un processus de reformage.

Le gaz stocké dans un réservoir à des pressions de l'ordre de 300 bar à 700 bar. Afin de satisfaire les conditions de pression en entrée de la pile (jusqu' à 3 bar), il est nécessaire d'ajouter entre le stockage et la pile, un détendeur permettant de réguler la pression d'hydrogène en entrée de la pile. L'inconvénient d'un tel mode de stockage est que l'énergie utilisée pour comprimer l'hydrogène représente 7% de l'énergie stockée si l'hydrogène est comprimé à 200 bars (et donc plus si la pression est plus élevée).

Dans le cas d'un processus de reformage, la complexité du système croît et la production d'hydrogène dégage du dioxyde de carbone. Ce type d'alimentation sera

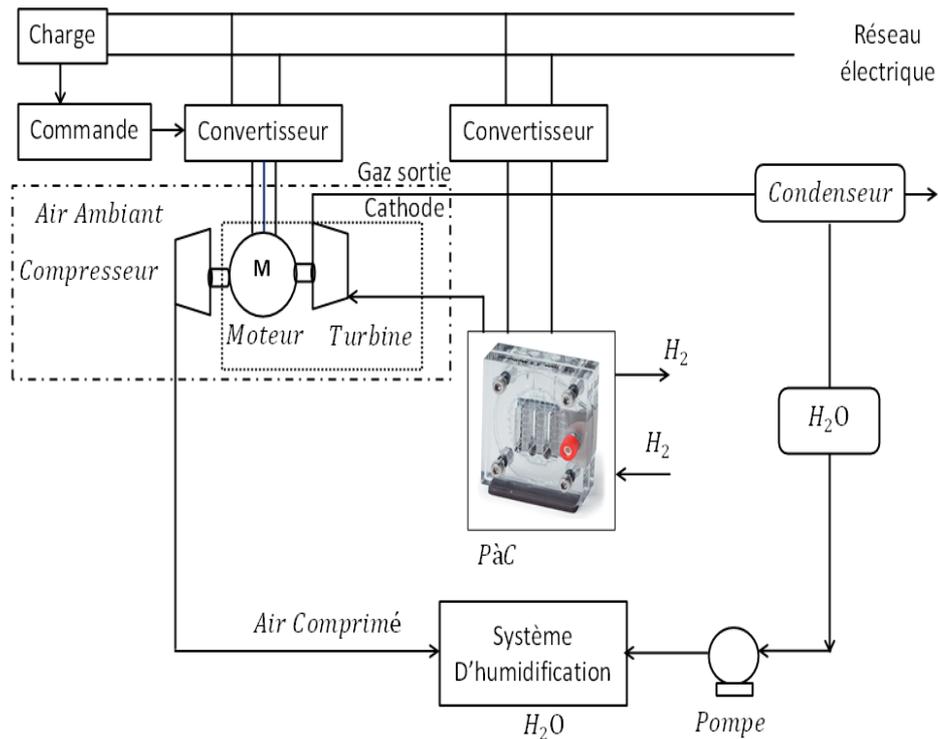


FIGURE 1.6 – Schéma simplifié du système à PàC

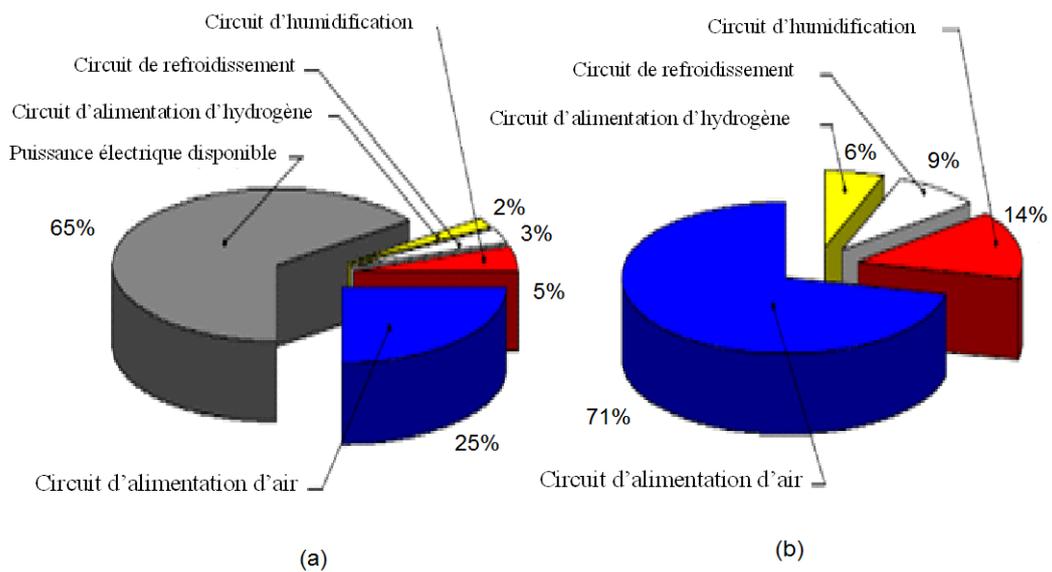


FIGURE 1.7 – Répartition des puissances consommées par :(a) le système PàC et (b) les différents auxiliaires, [Duba06].

certainement utilisé comme solution transitoire avant le «tout hydrogène» car le réseau de distribution des hydrocarbures est déjà présent [Reus03],

1.3.2 Système de refroidissement

La conversion électrochimique de l'hydrogène et de l'oxygène en électricité produit également de la chaleur. Celle-ci doit être évacuée afin de maintenir la température de la pile constante. L'évacuation de cette chaleur, pour des petites puissances, peut être réalisée avec un ventilateur (convection forcée d'air) qui peut être le même que celui alimentant la pile en air [Hank08]. Dans le cas des piles de plus fortes puissances, la convection forcée à air ne suffit plus à évacuer la chaleur donc la température est régulée à partir d'un circuit de circulation en eau dans la pile. Des plaques de refroidissement sont donc insérées entre les cellules élémentaires du stack et sa température est ainsi régulée grâce au débit du fluide circulant dans un circuit indépendant.

1.3.3 Système d'humidification

Généralement les piles de type (PEMFC) requièrent un circuit d'humidification des gaz afin que la membrane ne soit pas déshydratée (augmentation de la résistance ionique de la membrane) ou que les électrodes ne soient pas noyées en raison d'un excédent d'eau. Ce circuit a donc pour rôle d'humidifier les gaz en entrée de la pile, généralement à partir de l'eau produite par la pile, Récupérée au moyen d'un condenseur. L'assèchement ou la sur-humidification de la membrane diminue la production d'énergie électrique et limite la durée de vie de la pile.

1.3.4 Convertisseurs statiques

les auxiliaires de la pile disposent de nombreux convertisseurs statiques. Ils sont nécessaires pour la gestion d'énergie dans le système contenant la pile. La tension de la pile, relativement faible, varie en fonction du courant débité. Un convertisseur statique est donc nécessaire pour faire l'interface entre la pile et le bus continu. Pour cet objectif, le convertisseur choisi dépend du cahier des charges, et est généralement de type continu-continu, élévateur de tension et unidirectionnel en courant [Huan09]. Selon l'application, des composants de stockage, comme les batteries et les supercondensateurs, peuvent être connectés au bus continu par des convertisseurs. Sur le même bus, des convertisseurs sont aussi connectés pour assurer le lien avec

une charge électrique quelconque alimentée par la pile, comme un moteur électrique [Guil04].

1.3.5 Système de contrôle

Le système pile à combustible et ses auxiliaires sont fortement interdépendants et de façon non linéaire. Pour assurer un bon fonctionnement (rendement, sécurité de la pile, temps de réponse, contraintes mécaniques, etc...), il est nécessaire d'avoir un système de contrôle global qui agit sur les différents sous-systèmes en interaction :

- contrôle des convertisseurs statiques pour la gestion d'énergie.
- contrôle du débit des gaz et du groupe moto-compresseur.
- contrôle de la pompe à eau et du ventilateur nécessaires au refroidissement.
- contrôle de la température de l'humidificateur.

1.3.6 Circuit d'alimentation en oxygène

L'oxygène est l'un des vecteurs indispensable au fonctionnement d'une pile à combustible. Bien qu'il enveloppe notre environnement, il reste insuffisant dans l'air qui le contient. Cependant, l'air ne contient que 21% d'oxygène. Afin d'alimenter la pile en oxygène, différentes méthodes sont utilisées : l'oxygène pur ou air comprimé par un compresseur ou soufflante ; dans certains cas, l'énergie disponible dans les gaz de sortie (air appauvri en oxygène) de la pile peut être récupérée par une turbine. Pour les petites puissances, une soufflante peut suffire.

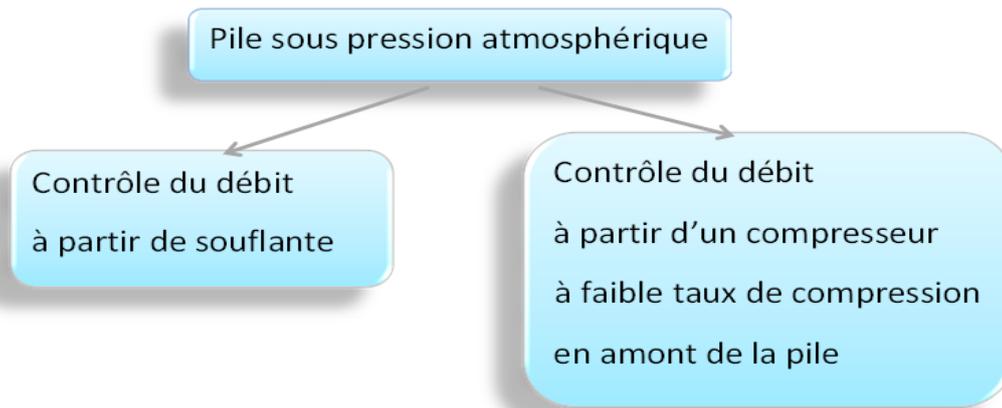
Les piles à combustible PEMFC peuvent fonctionner à partir d'oxygène pur (cas des piles utilisées dans les sous-marins et les engins spatiaux). Celui-ci est alors stocké sous pression dans un réservoir. Dans le cas des applications terrestres, stationnaires ou embarquées, les piles à combustible sont majoritairement alimentées en air.

La fourniture d'air à la pile est assurée, suivant le niveau de pression requis (voir la figure 1.8), au moyen d'une soufflante (jusqu'à environ 0.5 bar de pression relative) ou d'un compresseur (de l'ordre de 1 à quelques bars relatifs). Celui-ci doit fonctionner sans huile ou éventuellement muni d'un filtre à huile et être doté d'un filtre. Le débit d'air est ensuite dirigé directement vers la pile. Les limitations liées aux performances dynamiques de la soufflante ou du compresseur doivent alors être

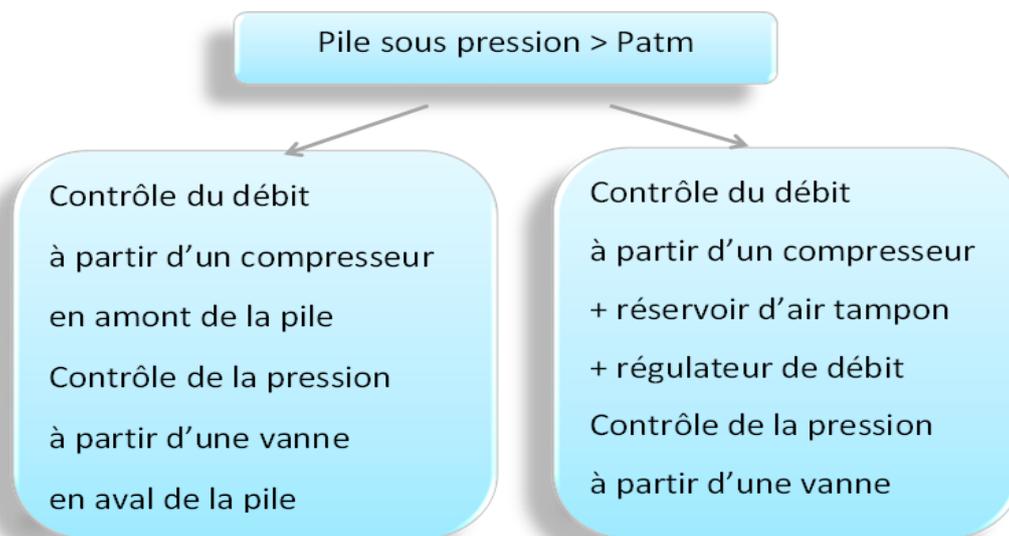
prises en compte dans un mode de gestion de la pile impliquant des débits variables [Blun07b] .

Le débit d'air peut également être acheminé dans un réservoir tampon pour s'affranchir en partie des restrictions liées à la dynamique de l'organe de compression. Ce type de solution peut par exemple être mis en œuvre sur une plate-forme d'essais ; le compresseur est alors associé à un filtre (piégeant des particules de fine taille, par exemple supérieure à $5 \mu m$) et à un sécheur pouvant imposer des points de rosée bas sur une gamme de débit donnée [Blun07b]. L'air est disponible à une pression de l'ordre de 10 bar dans la cuve faisant office de réserve tampon. Généralement, un ou plusieurs régulateurs de débit massique en parallèle sont présents entre la réserve et l'entrée du stack. Comme dans le cas du circuit combustible, une vanne de contre-pression peut aussi permettre d'ajuster le niveau de pression en entrée de pile [Cand07] . La différence de pression entre les compartiments anodique et cathodique doit cependant être maintenue dans une gamme raisonnable (0 à 0.3 bar) de manière à ne pas occasionner de déchirure de la membrane ni de déplacements des joints d'étanchéité placés entre les plaques bipolaires. Le débit d'air est quant à lui fixé, d'une part, en fonction du niveau de courant électrique à atteindre, d'autre part, vis-à-vis du besoin lié à l'évacuation de l'eau liquide pouvant potentiellement se trouver dans le compartiment cathodique. L'objectif final est d'éviter tout fonctionnement en sous-stœchiométrie, même locale, pouvant occasionner une chute des performances, voire parfois, à une dégradation de la pile. Des pressions partielles d'oxygène satisfaisant au bon déroulement de la réaction chimique doivent être assurées au sein du stack. Pour cela, un taux de sur stœchiométrie cathode proche de deux est généralement préconisé.

L'utilisation d'un compresseur n'est pas sans conséquences sur le rendement global du système. Celui-ci est alimenté par la pile à combustible et lui prélève une puissance non négligeable qui peut représenter jusqu'à 25% de la puissance électrique délivrée par la pile. Le compresseur est donc un auxiliaire très important dans la pile et de nombreux verrous technologiques sont à lever dans ce domaine : il doit permettre l'alimentation en air, l'évacuation de l'eau produite sans assécher la membrane de la pile et assurer une bonne dynamique du système (c.-à-d., répondre en temps réel aux sollicitations du système).



(a) Méthodes de gestion de l'air dans une pile fonctionnant sous pression



(b) Méthodes de gestion de l'air dans une pile fonctionnant à pression élevée.

FIGURE 1.8 – Différentes méthodes d'alimentations en air des PàC

1.4 Compresseurs

La figure 1.9 montre la classification des différentes technologies de compresseurs existant sur le marché [Mbou10]. le choix d'un compresseur se fait généralement en fonction de la qualité d'air recherchée, de la pression de refoulement et des besoins en air qui déterminent une capacité de production. Ce choix s'effectue entre les grandes technologies : centrifuge, vis sèches, vis lubrifiées, à lobes, à palettes, à pistons lubrifiés, à pistons secs ou à spirale. Les conditions de choix sont :

- qualité du gaz.

- propreté du gaz (gaz exempt d'huile).
- débit, pression (taux de compression).

Pour ces deux derniers points, la figure 1.10 donne une information sur les plages habituelles de fonctionnement des diverses catégories de compresseurs

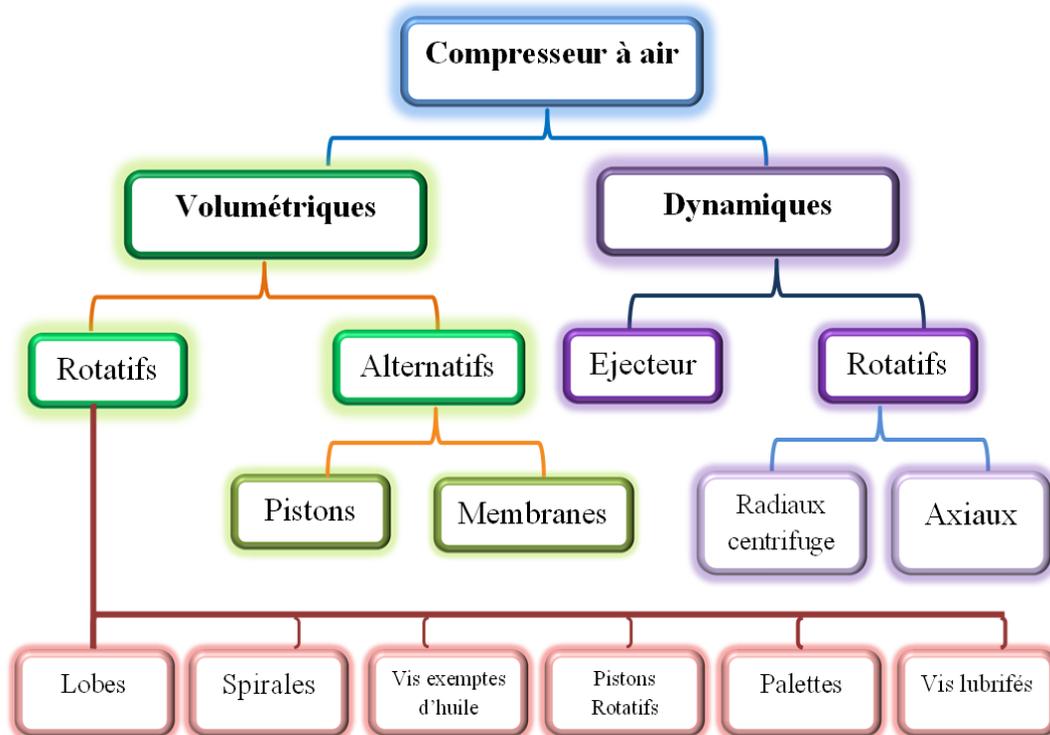


FIGURE 1.9 – Classification de différentes technologies de compresseurs

1.4.1 Synthèse sur le choix du compresseur

Une analyse des technologies mentionnées ainsi qu'une comparaison avec les critères essentiels du cahier des charges d'une PàC de type PEMFC permet de donner les conclusions suivantes :

Le compresseur centrifuge présente l'avantage d'avoir une compacité inégalée par rapport aux compresseurs volumétriques. Le processus de compression est continu et ne présente aucune variation de pression. Cependant il faut penser à trouver des moyens de lubrification de l'arbre tournant au moyen d'une solution exempte d'huile. Les vitesses de rotation étant supérieures à 80 000 tr/min, la conception d'une machine électrique d'entraînement et de son contrôle sont indispensables. Ce type de compresseur ne peut pas fonctionner à pression constante sur toute la plage de débit

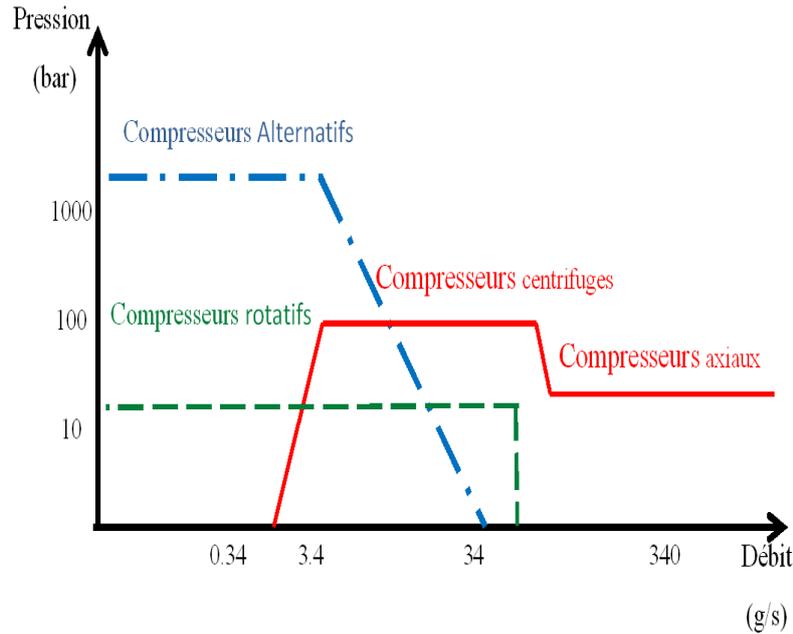


FIGURE 1.10 – Plages de fonctionnement de différentes technologies de compresseurs [Mbou10]

d'une pile à combustible et l'humidification ne peut être directement intégrée dans le processus de compression.

La pile ne peut pas supporter de variation de pression importante et la dynamique désirée interdit l'utilisation d'un système tampon entre la pile et le compresseur. Il est donc impossible d'utiliser le principe du compresseur à piston linéaire.

La pile ne peut pas supporter même quelques ppm d'huile ou de graisse. Les systèmes qui utilisent des jeux d'engrenages (lubrification obligatoire) et qui ont des chambres de compression difficiles à étanchéifier ne peuvent pas non plus être utilisés. Il est donc très difficile et non viable économiquement d'utiliser le compresseur à piston rotatif. Afin de diminuer l'encombrement du moto-compresseur, il est souhaitable d'avoir une vitesse de rotation élevée. D'autre part l'une des préoccupations principales est d'obtenir un moto-compresseur avec un rendement élevé. Le compresseur à palettes est très mal adapté aux grandes vitesses de rotation [Blun07a]. Il n'est donc pas judicieux de l'utiliser.

Le but final est de réaliser un compresseur qui puisse être concevable industriellement. Le coût de réalisation du compresseur à vis étant donné la complexité des

formes des vis et la précision nécessaire pour pouvoir obtenir un bon rendement sera prohibitif et incompatible avec une production en grande série.

Le compresseur scroll semble bien adapté aux contraintes du cahier des charges d'une pile à combustible PEMFC. En effet, il possède un bon rendement sur toute la plage de fonctionnement désiré, il permet d'avoir une compression régulière et le taux de compression réalisable peut largement dépasser les 2 ; 3 bars absolus [Blun07a].

Le compresseur roots semble également bien adapté au fonctionnement aux vitesses désirées. Il offre de nombreux avantages par sa simplicité, son bon rendement et la qualité du gaz fournie.

1.5 Conclusion

Les piles à combustible sont en passe d'évoluer du cap de la recherche et des projets pilotes vers des premières applications industrielles et ces performances doivent encore être améliorées. Dans ce chapitre, nous avons réalisé une description globale d'une pile à combustible de type PEMFC, de son fonctionnement et de son intégration dans un système pile à combustible. La complexité de ce dernier due aux auxiliaires. Parmi ces auxiliaires, le circuit d'amenée d'air composé d'un compresseur, d'où un rappel théorique, comparaison entre les différents types et ses meilleurs choix avec la PàC ont été fait.

Chapitre 2

Modèles statiques de PEMFC

2.1 Introduction

Après l'introduction du système pile à combustible, bref rappel sur les types de piles et leurs fonctionnements, description de différents circuits auxiliaires primordiales y compris le groupe moteur-compresseur, ce chapitre vise à évaluer les différents modèles d'analyse qui sont utilisés pour la modélisation de pile à combustibles (PEMFC). Les trois modèles statiques ; modèle Amphlett, modèle de Larminie-Dicks et le modèle Chamberlin-Kim sont traités.

Ils sont étudiés et validés expérimentalement en identifiant leurs paramètres séparément. Par conséquent, les résultats expérimentaux sont comparés au banc d'essai de la pile à combustible pour les deux puissances nominales (400W et 700W). Dans la littérature, plusieurs modèles de piles à combustible ont été décrits. Ces modèles diffèrent suivant les objectifs fixés. Des relations algébriques simples ont été proposées en régime stationnaire pour décrire la caractéristique de polarisation courant-tension de PàC. Ces relations peuvent tenir compte des conditions de fonctionnement (pression, température de fonctionnement). Ces modèles incluent une description des surtensions relatives à des paramètres obtenus par ajustement expérimental.

Ainsi, la plupart des modèles sont validés par des données expérimentales. La méthode de validation générale est de comparer la courbe de polarisation simulée et la courbe de polarisation obtenue expérimentalement. Si les deux courbes (V-I) se superposent, le modèle est considéré comme fiable [Path05]. Dans [Khun11], les per-

performances d'un stack PàC d'échelle de laboratoire, qui fonctionne à l'hydrogène / air, sont mesurées expérimentalement pour différentes vitesses et différentes températures d'écoulement d'air. Les données expérimentales sont utilisées pour déterminer les paramètres d'un modèle analytique complet qui décrit la courbe V-I. Dans [Haji11] explique le processus en ce qui concerne les quatre aspects suivants : taux de variation de tension, la valeur initiale de la tension dynamique, temps pour atteindre l'état d'équilibre et facteur de résistance dynamique.

Les modèles semi-empiriques combinent écart théorique, dérivée et équations algébriques empiriques. Le modèle Amphlett et al. [Amph95] prend en compte l'évaluation mécanique des PàC et l'application de techniques de modélisation de régression empirique, afin de développer un modèle électrochimique pour une PEMFC. Cependant, [More09] un modèle semi-empirique simple peut être utilisé pour évaluer les performances des PEMFC, avec moins de calculs que les autres modèles. Il se compose d'une seule équation, dont les paramètres sont obtenus en utilisant les moindres carrés d'ajustement des données expérimentales. Le modèle prend en compte les principales variables de l'opération, à savoir PàC ; la température de fonctionnement, la densité de courant et les pressions à la cathode et à l'anode. La précision du modèle a été validée avec des données provenant de deux modules (BPS Nexa) de puissance différentes, et il est montré que le modèle peut être utilisé pour prédire avec précision la performance PàC. L'objectif de [AlBa05] est d'obtenir un modèle empirique prenant en compte les variations du processus pour estimer la performance PàC sans calculs nombreux. Le modèle prend en compte non seulement la densité de courant, mais aussi les variations des paramètres du procédé d'exploitation, tels que ; les pressions de gaz, la température, l'hygrométrie et les gaz utilisés.

2.2 Description du banc d'essais

Les essais expérimentaux effectués dans le cadre de cette thèse ont été réalisés sur un banc du laboratoire FCLab (voir figure 2.1). Ce banc d'essais a été conçu à l'origine pour tester des piles ayant des puissances allant jusqu'à $1kW$. En outre, il permet de fixer et mesurer les principaux paramètres de fonctionnement du système

pile. Entre autres des grandeurs physiques contrôlables on peut citer la température la pression, l'hygrométrie, les débits des gaz alimentant la pile et la température du cœur de pile. Le système d'acquisition des données a été réalisé à travers une carte National Instruments et le logiciel Labview. Il faut remarquer que ce banc d'essais n'offre pas la possibilité de mesurer les différentes grandeurs physiques à l'intérieur du cœur de pile. D'après le cahier des charges, il nous a paru intéressant de tester

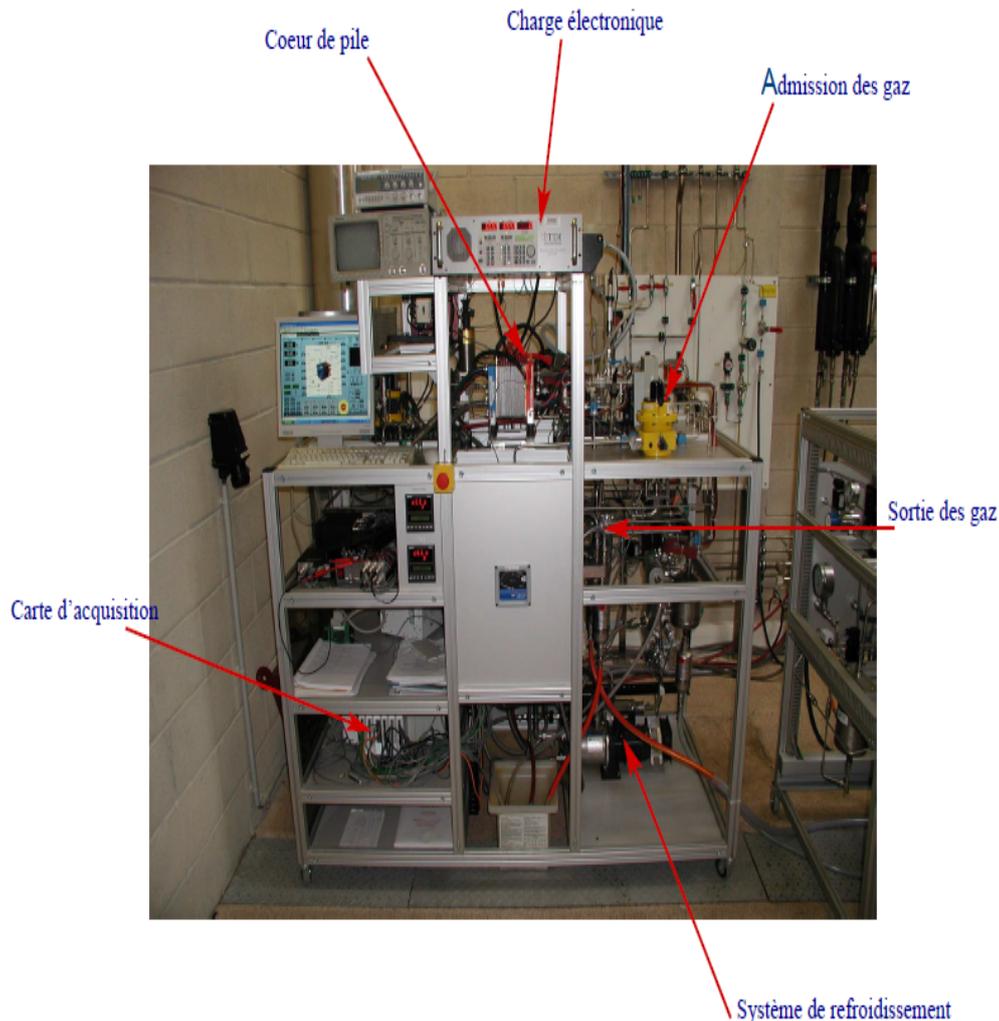


FIGURE 2.1 – Banc d'essais 1kW, [Hern06]

ces modèles, sur la base d'un châssis déporté de type *PXI* de chez National Instruments. Ce type de matériel est tout d'abord couramment utilisé dans l'industrie. De plus, le *PXI* est une plate-forme ouverte pour le test, la mesure et le contrôle sur PC. Il offre en outre la bande passante la plus large et la latence la plus faible. Nous utiliserons aussi le langage Labview développé par National Instruments. Basé

sur le langage G, Labview est un langage graphique intuitif qui affiche le code sous forme d'organigrammes de manière à le développer, le comprendre et le maintenir facilement. Labview présente aussi l'avantage d'être plus rapide à programmer qu'un logiciel fonctionnant en ligne de code [Wast10].

Pour cela, le travail a été effectué avec Labview Real-Time pour réaliser l'acquisition des données et Labview pour réaliser le traitement de l'information. Un ordinateur fonctionnant sous l'environnement Windows et utilisant le langage de programmation Labview s'occupe du traitement des données (calculs bénins, affichage et stockage) précédemment mesurées par le châssis PXI déporté (cible temps réel). Il supervise aussi l'opération d'acquisition en envoyant des ordres ainsi que des paramètres de mesures[Wahd06].

Le stack PàC considéré est composé de 20 cellules individuelles ayant chacune une surface active de 100cm^2 . Différents tests sur la PàC ont été considérés à des niveaux de puissances électriques de 400W et 700W [Hern06]. La température de fonctionnement mesurée est de $55\text{ }^\circ\text{C}$. Lors de ces essais, différentes intensités de courant sont appliquées à la PàC en régime permanent et transitoire. La base de données a été utilisée pour paramétrer le modèle de la PàC à l'environnement Matlab -Simulink. Tout d'abord, La PàC est activée avec une puissance d'environ 400W et une charge qui consomme un courant d'environ 30 A sous une tension de $13,8\text{V}$ et une température de $55\text{ }^\circ\text{C}$. Comme le montre la figure 2.2, le comportement à l'état stable par rapport à des variations de courant est atteint après environ 100 secondes. La valeur du courant est augmentée jusqu'à 55A , avec une légère variation de la tension. Pour obtenir cette puissance, on fait augmenter lentement la pression de l'air et de l'hydrogène : l'air de $1,17(\text{bar})$ à $1,45(\text{bar})$ et de l'hydrogène à partir de $1(\text{bar})$ à $1,1(\text{bar})$. Le circuit de refroidissement garantit une température de fonctionnement stable d'environ $55\text{ }^\circ\text{C}$ comme le montre la figure 2.3.

Le passage du régime transitoire en régime permanent se fait par étapes régulières pour assurer le bon fonctionnement de la PàC. Les figures 2.2 et 2.3 et résument les conditions de l'expérience, qui serviront à modéliser la PàC dans les paragraphes suivants du chapitre.

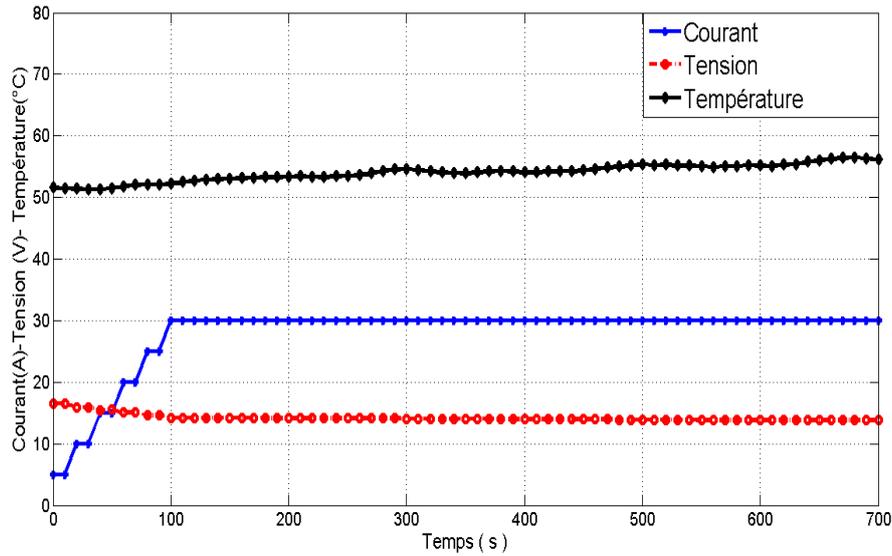


FIGURE 2.2 – Courbe expérimentale du courant, de la tension et de la température
P=400W

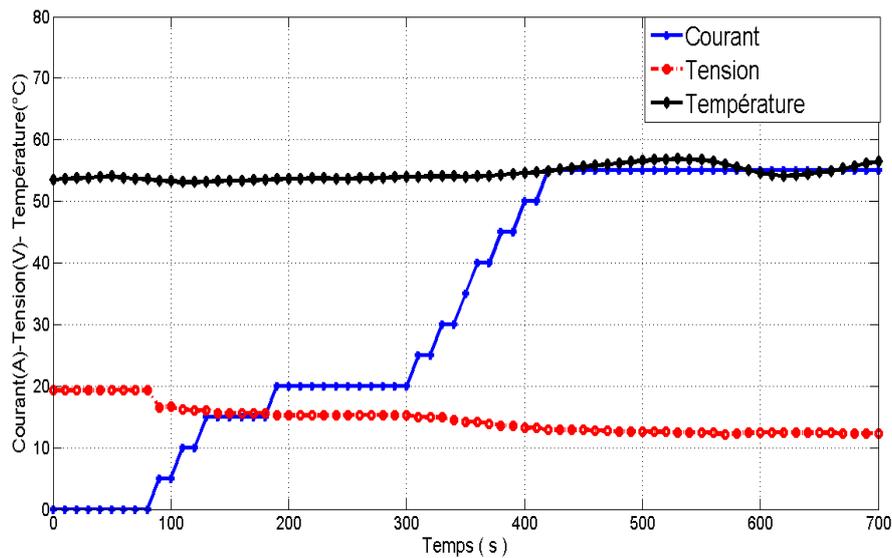


FIGURE 2.3 – Courbe expérimentale du courant, de la tension et de la température
P=700W

2.3 Modèle d'Amphlett et al.

Il n'existe pas a priori de bons ou de mauvais modèles qui soit adaptés ou non à la fonction que nous voulons lui faire remplir. Le modèle doit permettre de tester différentes configurations ou choix des paramètres. Le modèle de stack de PàC retenu est

celui présenté par (J.C.Amphlett et al.), ce modèle électrochimique semi-empirique simple et complet, peut être utilisé pour décrire le comportement dynamique d'un stack de PàC. Il permet de prendre en compte différents paramètres dont leurs définitions sont essentielles pour un bon résultat, la régulation des performances du stack en fonction de l'intensité de courant, et par conséquent décrire un comportement proche de la réalité. Le modèle présenté par Amphlett et al. [Amph95], qui est largement cité dans la littérature, est basé sur les équations de Nernst et de Tafel. les paramètres physiques du système pris en compte sont :

- les pressions effectives de l'oxygène et de l'hydrogène,
- la température au bord,
- la concentration de l'oxygène,
- la concentration de l'hydrogène.

En utilisant les valeurs thermodynamiques du changement d'entropie à l'état standard, la tension est donnée en [Amph95] ; avec la température T exprimée en Kelvin, et, les pressions partielles P_{H_2} et P_{O_2} . La tension réelle aux bornes d'une cellule est inférieure à la tension en boucle ouverte à cause des différents types de pertes. Le potentiel thermodynamique est défini par une équation de Nernst sous forme développée comme :

$$E_{th} = 1.229 - 0.85 \times 10^{-3}(T - 298.15) + 4.3085 \times \left[\ln(P_{H_2}) + \frac{1}{2} \ln(P_{O_2}) \right] \quad (2.1)$$

Où : T désigne la température de la cellule et est égale à 328K.

P_{H_2} et P_{O_2} sont les pressions d'hydrogène et d'oxygène partielles(atm). La tension en boucle ouverte de la PàC est calculée à partir du bilan énergétique entre l'énergie chimique des gaz réactifs et l'énergie électrique. En mode de fonctionnement, trois types de pertes principales influencent la tension de sortie de la pile. La tension d'une cellule élémentaire de la PàC est alors, le potentiel réel de la PàC est diminué de son potentiel d'équilibre thermodynamique E_{th} à cause des pertes irréversibles. Quand le courant passe, une déviation du potentiel thermodynamique est due à des travaux d'électricité effectués par la cellule. L'écart de potentiel par rapport à la valeur d'équilibre est appelé η . Par conséquent, l'expression de la tension d'une

cellule unique est :

$$V = E_{th} - \eta_{act} - \eta_{ohmc} - \eta_{diff} \quad (2.2)$$

E_{th} est la tension théorique en boucle ouverte,

η_{act} représente les pertes d'activation,

η_{ohmc} les pertes ohmiques,

η_{diff} les pertes de concentration.

La PàC comporte plusieurs cellules élémentaires placées en série, alors la tension aux bornes de la pile est la somme des tensions de ces cellules individuelles. En supposant que les cellules sont identiques, la tension de la pile peut être calculée en multipliant la tension d'une cellule par le nombre total N de cellules composant la pile :

$$V_{st} = N.V \quad (2.3)$$

Les pertes d'activation sont dues à la vitesse des réactions chimiques au niveau de la surface de réaction. Une partie de l'énergie est utilisée pour activer et accélérer les réactions chimiques, ce qui est à la base de cette chute de tension qui est fortement non linéaire. En d'autres termes, la polarisation d'activation est présente quand le taux d'une réaction électrochimique à la surface de l'électrode est contrôlé par le ralentissement de la cinétique pour cette électrode. Il existe aussi une autre raison de chute de tension qui est due aux courants de fuite.

L'expression simple proposée par J.C. Amphlett et al. pour toute la surtension d'activation est exprimée dans l'équation 2.4.

$$\eta_{act} = \xi_1 + \xi_2 T + \xi_3 T \ln((C_{O_2}^*)) + \xi_4 T \ln(I) \quad (2.4)$$

I est le courant de fonctionnement de la pile (A) et $\xi_1, \xi_2, \xi_3, \xi_4$ des coefficients paramétriques appropriés à chaque modèle physique de PàC dont un modèle bien développée dans le papier [Saad13], identifie les paramètres exactes utilisée dans cette thèse, qui sont donner par l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \xi_1 &= -0.948 \\ \xi_2 &= k_{Cell} + 0.197 \times 10^{-3} \ln(A_{fc}) + 4.3 \times 10^{-5} \ln(CH) \\ \xi_3 &= 6.3 \times 10^{-5} \\ \xi_4 &= 0.72 \times 10^{-4} \end{aligned} \quad (2.5)$$

($C_{O_2}^*$) représente les concentrations de l'oxygène (mol/cm^3) dissout dans un film d'eau à l'interface de la membrane gaz/liquide sur la surface catalytique de la cathode, elle est exprimée en fonction de sa pression par la loi de Henry [Amph94] :

$$C_{O_2}^* = \frac{P_{O_2}^*}{5.08 \times 10^6 e^{-(498/T)}} \quad (2.6)$$

A des basses densités de courant, la forme de la courbe est principalement déterminée par la polarisation d'activation de la cathode. La cathode est généralement l'électrode qui limite la performance d'exécution de la PEMFC, car la densité de courant d'échange de la réaction de réduction de l'oxygène est basse, elle est approximativement de l'ordre 5 à 6 fois inférieure à celle de la réaction au niveau de l'anode [Mann00].

$$P_{O_2}^* = P_{cath} \cdot [1 - \chi_{H_2O}^{sat}] \quad (2.7)$$

P_{cath} est la pression de l'oxygène à la cathode, $\chi_{H_2O}^{sat}$ est la fraction molaire de saturation de l'eau dans le gaz humidifié et supposée $\approx 50\%$, on obtient alors :

$$P_{O_2}^* = \frac{1}{2} \cdot P_{cath} \quad (2.8)$$

A l'anode, on utilise de l'hydrogène pur, qui ne contient pas du monoxyde de carbone.

$$P_{H_2}^* = P_{anode} \cdot [1 - \frac{1}{2} \chi_{H_2O}^{sat}] \quad (2.9)$$

P_{anode} est la pression de l'hydrogène à l'anode, et ($\chi_{H_2O}^{sat} = 0.5$), l'équation 2.9 devient :

$$P_{H_2}^* = \frac{3}{4} \cdot P_{anode} \quad (2.10)$$

2.3.1 Pertes ohmiques

Les pertes ohmiques sont dues à la résistance que rencontre le flux d'ions en traversant l'électrolyte et à la résistance que rencontrent les électrons dans les électrodes. Cependant, les pertes apparaissant au niveau de l'électrolyte sont les plus

importantes et peuvent être réduites en diminuant l'épaisseur de l'électrolyte et en améliorant sa conductivité ionique [LACH05]. L'électrolyte et les électrodes obéissant à la loi d'Ohm, il s'agit, dans la membrane électrolyte polymère, d'une conduction ionique. Or, les ions ayant une mobilité bien plus faible que les électrons, la résistance de la membrane est bien plus grande. On peut exprimer les pertes ohmiques par l'équation suivante :

$$V_{ohm} = I.(R_M + R_C) \quad (2.11)$$

R_C est la résistance équivalente de contact à la conduction des électrons, R_M est la résistance équivalente de la membrane à la conduction des protons, elle est calculée à partir de la relation suivante :

$$R_M = \frac{r_M \cdot l}{A_{fc}} \quad (2.12)$$

Où l est l'épaisseur de la membrane (μm), r_M est la résistance spécifique de la membrane (ohm.cm) [Chan09a], obtenue par la relation suivante :

$$r_M = \frac{181.6 + \left[1 + 0.03 \left(\frac{I}{A_{fc}} \right) + 0.062 \left(\frac{T}{303} \right)^2 \left(\frac{I}{A_{fc}} \right)^{2.5} \right]}{\left[\lambda_{HO_2/SO_3^-} - 0.634 - 3 \cdot \frac{I}{A_{fc}} \right] \cdot \exp \left[4.18 \left(\frac{T-303}{T} \right) \right]} \quad (2.13)$$

Le terme $[181.6/(\lambda_{HO_2/SO_3^-} - 0.634)]$ représente la résistance spécifique de la membrane (ohm.cm) à $I = 0$ et à une température de $30^\circ C (T = 303K)$. Le terme exponentiel au dénominateur est le facteur de correction de la température si cette dernière n'est pas à $30^\circ C$. $y = \lambda_{H_2O/SO_2^-}$ est la teneur en eau dans la membrane, admettant une valeur minimale et maximale respectivement de 0 et de 22 [Tats98] et [Wang05b]. A_{fc} est la surface active de la pile (cm^2).

2.3.2 Pertes de concentration

Lorsque, à une électrode, il y a une perte de potentiel dû à l'incapacité du système à maintenir la concentration initiale des réactants, on a alors la formation d'un gradient de concentration. De nombreux facteurs peuvent contribuer à la polarisation de concentration : la faible diffusion du gaz à travers les électrodes poreuses, la dissolution des réactants ou des produits dans l'électrolyte, la diffusion des réactifs

ou des produits du site de la réaction vers l'électrolyte ou l'inverse. Ces pertes sont données par la relation suivante :

$$V_{con} = -B\left(1 - \frac{J}{J_{max}}\right) \quad (2.14)$$

où B est une constante empirique qui dépend du type de pile et de son état de fonctionnement [Amph96], J est la densité de courant du fonctionnement permanente (A/cm^2), J_{max} est la densité de courant maximale.

2.3.3 Influence de la pression et de la température sur la caractéristique de la PàC

L'augmentation de la température influe positivement sur la tension de la pile, autrement dit si l'on augmente la température aux environs de $90^\circ C$, la tension augmente jusqu'à une valeur de 1 volt/cellule environ, ce qui entraîne l'augmentation de la puissance fournie par la pile, néanmoins limitée par la charge ; ce que nous pouvons voir sur la figure 2.4. La température accélère d'une part, les réactions chimique à l'intérieure de la pile et d'autre part, diminue les pertes d'activation et les pertes ohmique, par conséquent les pertes de concentration sont constantes. Il faut signaler que pour les pertes ohmiques qui suivent une forme linéaire, la température agit directement sur la résistance spécifique de la membrane. Par contre, pour les pertes d'activation, en plus de la diminution de ces pertes, la température amortie sa non linéarité pour des valeurs élevées de densité de courant. La température de la pile doit resté limité ($< 100^\circ C$) pour qu'on puisse garder l'efficacité de la membrane et le fonctionnement normale des composants du cœur de la pile, donc on ne peut pas dépasser une certaine limite ($T_{max} = 100^\circ C$) qui est nécessaire à l'obtention d'une conductivité ionique suffisante de l'électrolyte et maintenir l'eau à l'état liquide dans la membrane puisque au-delà de T_{max} l'évaporation de l'eau va sécher complètement la membrane, ce qui empêche la pénétration des protons H^+ de la l'anode vers la cathode diminuant ainsi la tension de la pile. La basse température ($T_{min} = 25^\circ C$) permet l'évacuation aisée de la chaleur hors de la pile car la chaleur est dégagée avec de l'eau liquide sous forme d'eau chaude.

Pour voir l'effet de la pression sur la PEMFC, on a fixé la température à $55^\circ C$

et on a varié les pressions d'oxygène et d'hydrogène. L'augmentation des pressions provoque l'augmentation de la tension et la puissance aux bornes de la pile. les pertes ohmiques et de concentration restent invariables et linéaires, ce qui veut dire que la variation de la pression ne fait aucun effet sur eux. Par contre, les pertes d'activation augmentent proportionnellement en fonction de cette pression mais d'une manière moins sévère que celle obtenue avec la variation de température. On remarque que ξ_1 influe nettement la tension de circuit ouvert, tandis que, ξ_3 et ξ_4 ; sur la tension d'une manière non linéaire. Comme représenté sur la figure 2.6, le choix correct du

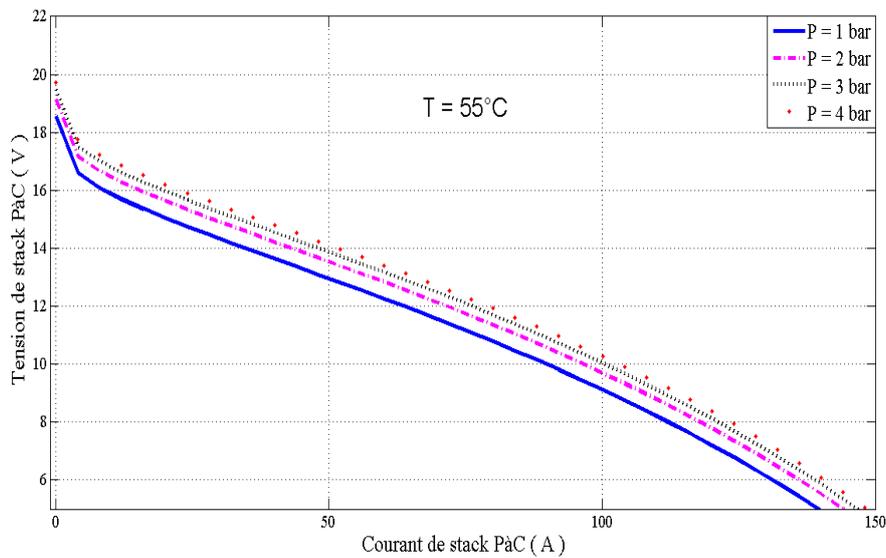


FIGURE 2.4 – L'effet de pression

ξ_4 permet de déterminer η_{act} pour les deux puissances, quelle que soit la variation du courant. Le modèle Amphlett donne une grande précision dans la conception des PEMFC quelle que soit la valeur du courant. Il présente la caractéristique en deux zones principales : la première est la perte d'activation à partir de la tension en circuit ouvert, et la seconde est la perte ohmique. Cette dernière change en fonction de la variation de courant en utilisant l'état d'équilibre électrochimique généralisé du modèle (GSSEM), (Mann et al). Dans [Mann00] on résume des travaux plus détaillé de la modélisation PaC. Toutefois, cette précision n'a pas été obtenue en utilisant l'équation de [Amph95] et [Amph94]. Pourtant, quatre équations de perte d'activation et trois pertes ohmiques ont été utilisées. La résistance de la membrane a été calculée en termes de courant et de température. Parmi les aspects négatifs

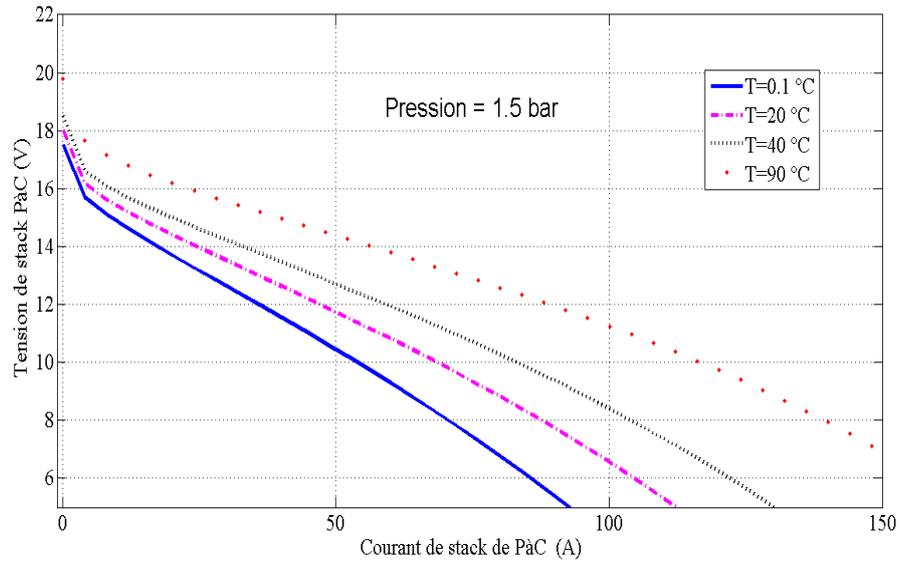


FIGURE 2.5 – L'effet de température

de ce modèle, il impose la prise en compte de nombreuses données physiques et géométriques provenant du PaC.

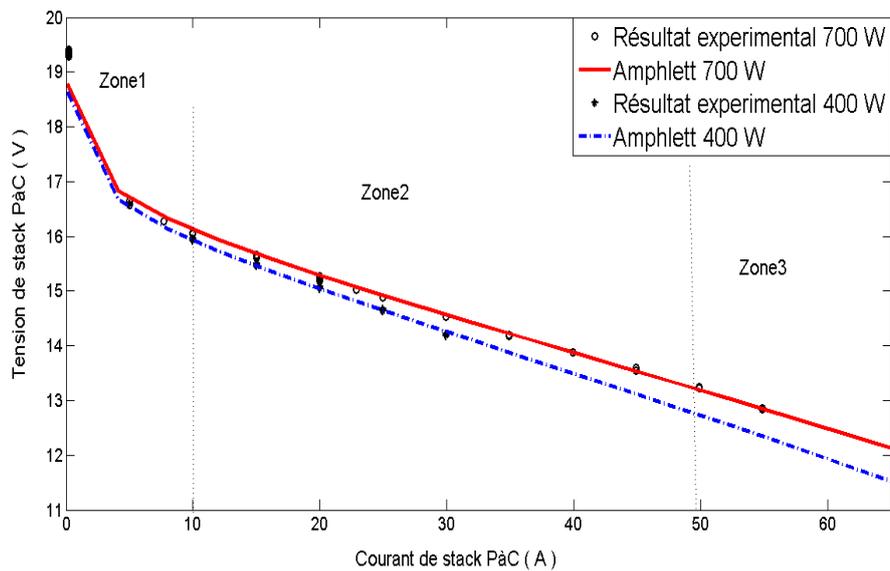


FIGURE 2.6 – PaC caractéristique tension-courant, deux puissances (700W et 400W), à $T = 55 \text{ } ^\circ\text{C}$.

2.4 Modèle statique de Larminie et Dicks

Certain auteurs utilisent des équations empiriques pour décrire la caractéristique courant tension de la pile en régime permanent. Ce type de modèle ne permet de représenter que l'allure de la tension en fonction du courant débité en régime stationnaire, mais il tient compte du courant limite pour lequel la tension PàC s'effondre. Les paramètres, dans ce cas, sont déterminés en fonction des résultats expérimentaux. Larminie et Dicks utilisent des équations empiriques pour décrire la caractéristique tension-courant de PàC [Larm03]. Dans ce cas, les paramètres sont déterminés par identification des résultats expérimentaux. L'expression de la tension est la suivante :

$$V = E_0 - A \log \left(\frac{I + i_n}{i_0} \right) - R_m(I + i_n) - B \log \left(1 - \frac{I + i_n}{i_{Lim}} \right) \quad (2.15)$$

Où E_0 : la tension réversible sans perte de la pile à combustible,

I : Le courant délivré par la pile,

i_0 : le courant de l'échange,

A la pente de la droite de Tafel,

I_{lim} : le courant limite,

B : la constante de transfert de masse,

i_n : le courant interne,

R_m membrane et résistances de contact.

Il est intéressant de montrer l'influence de ces paramètres sur la chute de tension lorsque ceux-ci sont divisés ou multipliés par 2. L'influence d'une variation de la résistance de la membrane est montrée sur la figure 2.7. La valeur de la résistance modifie la pente de la caractéristique statique dans sa zone linéaire. La figure 2.7 fait apparaître le terme A sur la chute de tension d'activation et la tension de la pile. Ce terme est un facteur multiplicateur des pertes d'activation. Le courant d'échange i_0 est présenté sur la figure 2.9, son influence sur la chute de tension est moins importante pour une augmentation ou une diminution par un facteur 2. La chute de tension d'activation augmente quand i_0 diminue. La figure 2.10 expose 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 intervient peu pour

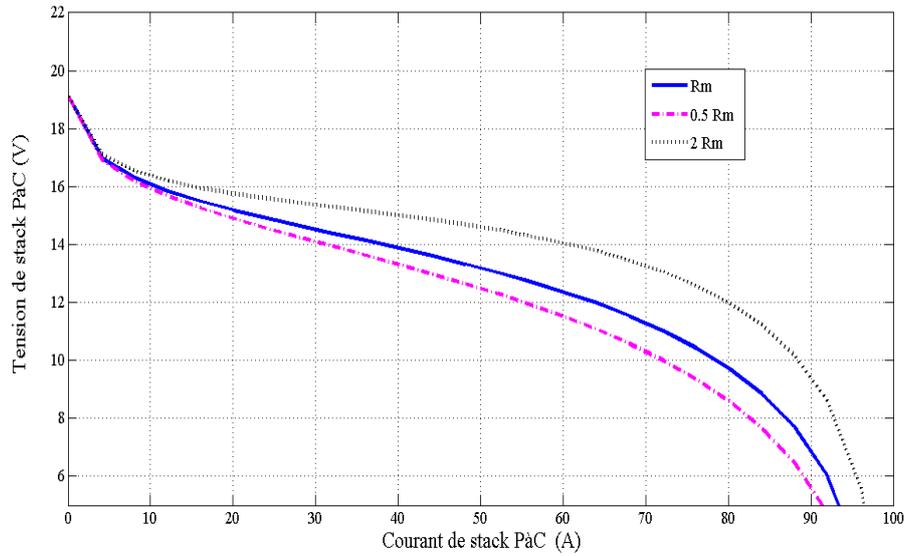


FIGURE 2.7 – Influence de la résistance de la membrane sur la chute ohmique et sur la tension totale PaC (valeur de la résistance : $2R_m$, R_m et $0.5R_m$)

les faibles valeurs de courant, par contre elle intervient fortement pour les valeurs du courant qui s'approchent de la valeur du courant limite. L'influence du courant limite est donnée à la figure 2.11, sa valeur détermine la zone de fonctionnement de PaC. Théoriquement, A et B sont données par :

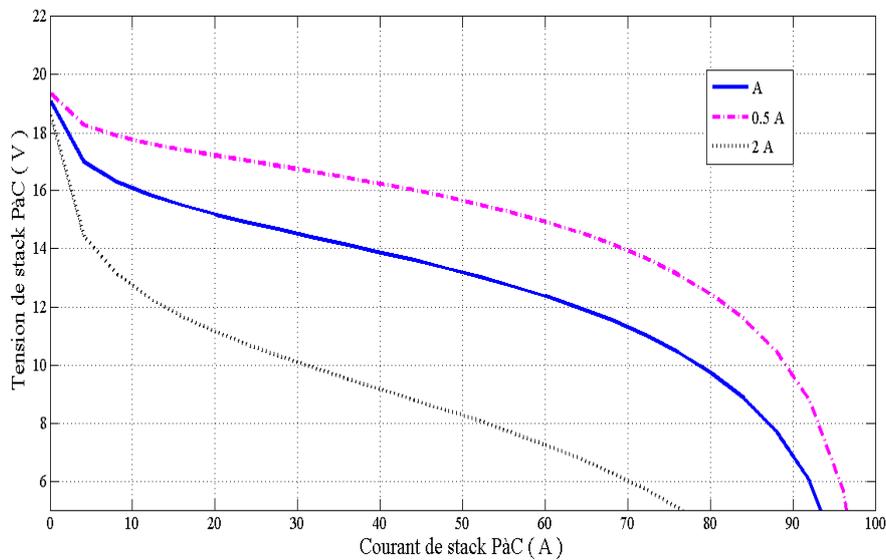


FIGURE 2.8 – Influence de paramètre A sur les pertes d'activation et la tension totale PaC (valeur du coefficient A : $2A$, A et $0.5A$)

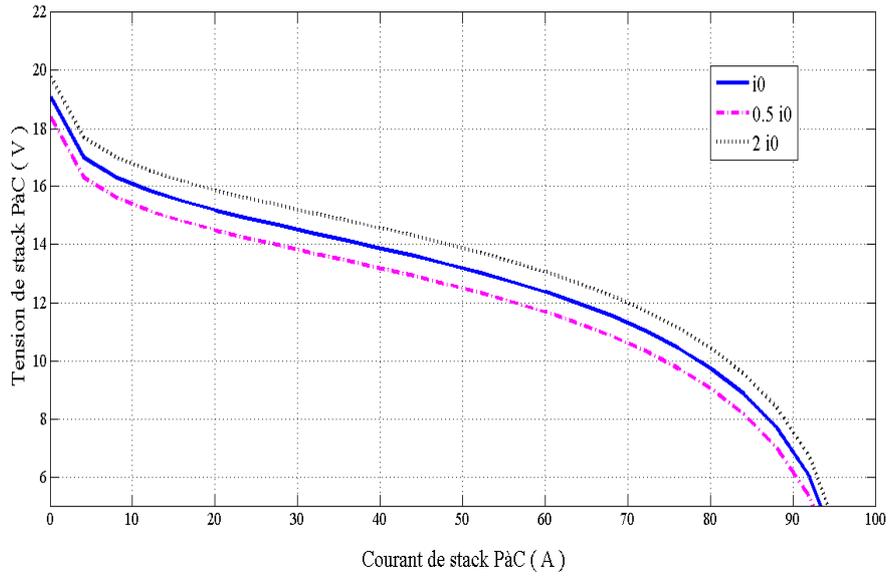


FIGURE 2.9 – Influence du courant d'échange i_0 sur les pertes d'activation et sur la tension totale PaC (valeur du courant d'échange : $2i_0, i_0$ et $0.5i_0$)

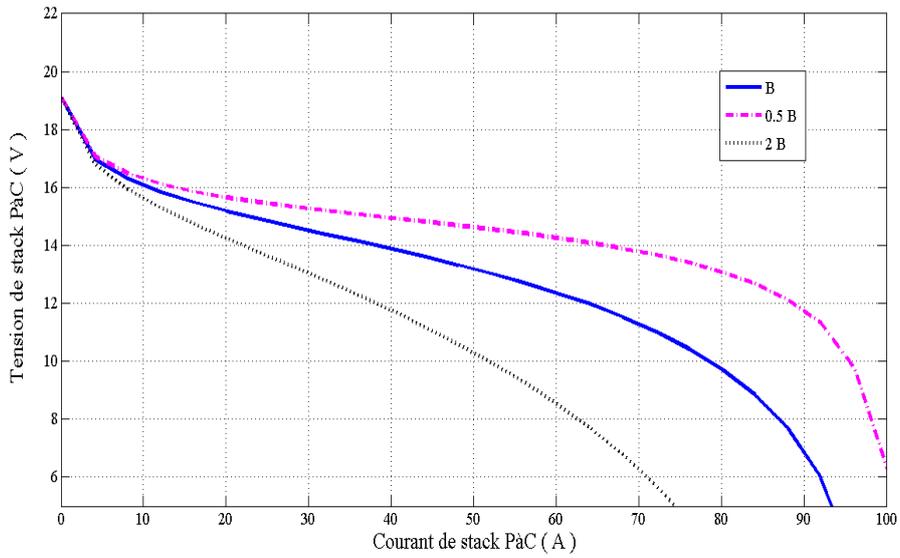


FIGURE 2.10 – Influence du paramètre B sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PaC (valeur du coefficient B : $2B, B$ et $0.5B$)

$$A = \frac{R.T}{2.\alpha.F} \quad (2.16)$$

$$B = \frac{R.T}{2.F} \quad (2.17)$$

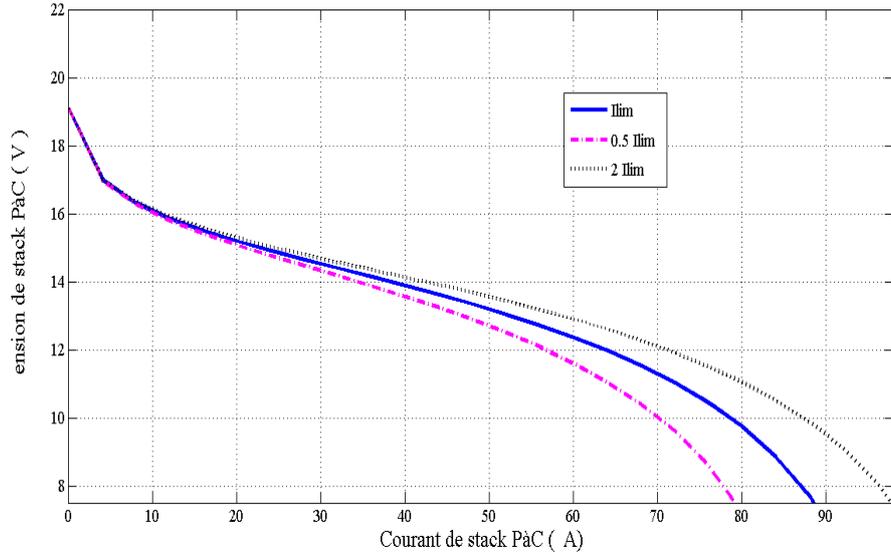


FIGURE 2.11 – Influence du courant limite I_{lim} sur les pertes de transport de matière et sur la tension totale PaC (valeur du courant limite I_{lim} : $2I_{lim}$, I_{lim} et $0.5I_{lim}$)

Où, R est la constante universelle des gaz, $T(K)$ la température, F est le nombre de Faraday et α est appelé le coefficient de transfert de charge. Sa valeur dépend de la réaction mise en jeu et du matériau d'électrode, mais il doit être dans la gamme de 0 à 1. Pour l'électrode à hydrogène, la valeur est d'environ 0,5. Pour l'électrode à oxygène, il est compris entre 0,1 et 0,5 [Larm03]. i_0 est la densité de courant d'échange à laquelle la surtension commence à se déplacer à partir de zéro. Les pertes d'activation sont causés par le croisement des courants de combustible et internes. L'électrolyte est conducteur ionique, mais il supporte les très petites quantités de conduction d'électrons (courants internes). De plus, un peu d'hydrogène peut être diffusé à partir de l'anode vers la cathode à travers l'électrolyte. L'hydrogène réagit directement avec l'oxygène, produisant du courant à partir de la cellule.

Ce gaspillage de carburant migre à travers l'électrolyte qui est appelé « croisement de carburant ». Ces deux effets sont équivalents [Larm03], mais le croisement de carburant est probablement plus important. Les deux effets, croisement de carburant et de courant interne « in », sont considérés comme équivalent à un courant interne i_n . La limitation de courant détermine le domaine de la PaC, elle est d'environ 100A dans notre cas [Sadl06]. L'augmentation des pertes d'activation entraîne la diminution du courant d'échange i_0 . B est un facteur multiplicateur de pertes de

diffusion. Il est minimisé a des faibles valeurs de courant, tandis qu'a de valeurs fortes de courant, il approche de la valeur de limitation de courant. Supposons que :

$$I_T = I + i_n; C = 1/i_{Lim} \quad (2.18)$$

et

$$E_{o1} = E_o + A \cdot \log(i_o) \quad (2.19)$$

On obtient l'équation (13) :

$$V = E_{o1} - A \log(I_T) - R_m(I_T) - B \log(1 - C \cdot I_T) \quad (2.20)$$

Pour une petite valeur de courant, l'équation devient :

$$V = E_{o1} - A \log(I_T) - R_m(I_T) \quad (2.21)$$

En choisissant deux points de mesure et résolution de l'équation, les paramètres sont faciles à trouver. Ces valeurs indicatives sont les paramètres initiaux du programme de simulation Matlab utilisant la méthode dynamique de la génératrice. Cette méthode est basée sur le calcul d'erreur qui est donnée par (2.22). Les paramètres sont ajustés à chaque fois. Après un certain nombre d'itérations, l'erreur est réduite au minimum avec une bonne précision. Les paramètres sont donnés dans le Tableau 2.1.

$$Error = \frac{V_{st,Simule} - V_{st,Mesure}}{V_{st,Mesure}} \cdot 100 \quad (2.22)$$

Avec ces valeurs, les caractéristiques statiques atteintes de la figure 2.12 sont multipliés par le nombre de cellules. Ces courbes sont composées de trois grandes régions correspondant à la prédominance des phénomènes d'activation électrochimique (zone 1), une partie linéaire (zone 2), où la chute de tension est due principalement à des résistances internes électroniques et ioniques et la dernière région où les cinétiques de diffusion des gaz à travers les électrodes devient le facteur limitant (zone 3). Cette dernière zone est caractérisée par une chute de tension rapide.

2.5 Modèle de Chamberlin - Kim

En négligeant i_n (très petite valeur) et la combinaison i_0 de l'équation de Tafel avec le potentiel de Nernst, l'équation 2.15 est parfois simplifiée [Larm03]. En outre,

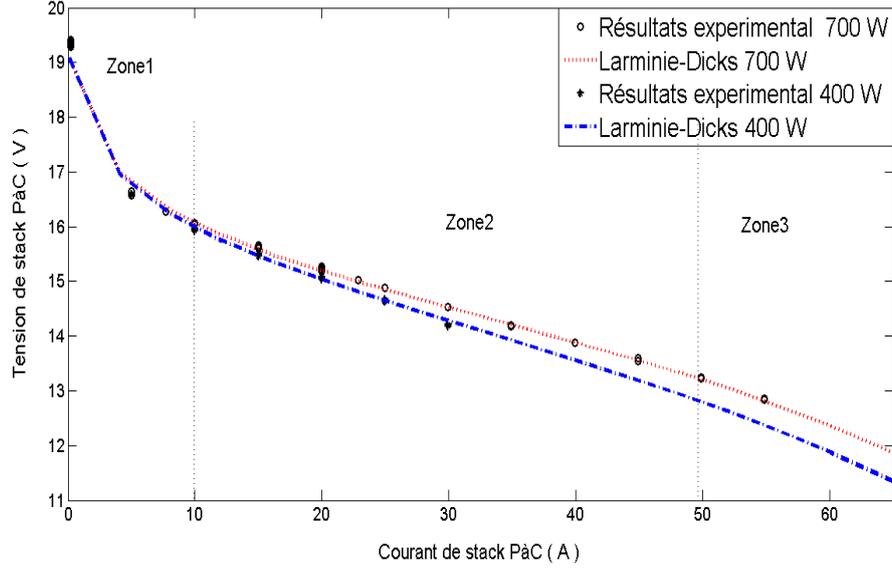


FIGURE 2.12 – Simulation et résultats expérimentaux de Modèle statique de Larminie et Dicks, obtenu pour deux puissances 400W et 700W

une autre équation (entièrement empirique) des pertes d'activation est devenue plus favorisée en raison de ses bons résultats [Kim95]. Le modèle de Chamberlin-Kim décrit la tension de cellule en fonction de la densité de courant, avec cinq paramètres comme indiqué dans l'équation (2.23). Ce modèle s'adapte parfaitement les résultats expérimentaux [Kim95].

$$V(J) = E_o - b \ln(J) - R_s \cdot J - m_1 \cdot \exp(n_1 \cdot J) \quad (2.23)$$

Où V est la tension de cellule (V), J est la densité de courant ($A \cdot cm^{-2}$), E_o est la tension en circuit ouvert (V), b est le paramètre de Tafel pour la réduction de l'oxygène (V), R_s est la résistance, « m_1, n_1 » sont les paramètres de la diffusion ($V \cdot et A^{-1}$). Chaque terme de l'équation (2.23) est dominant dans chaque région de la caractéristique ($V - J$), (voir la figure 2.13). Dans le modèle de Chamberlin-Kim, les valeurs des constantes dans l'équation (2.23), (cinq paramètres : E_o, b, R_c, m, n) varient en fonction de nombreux facteurs, y compris la composition des assemblées membrane-électrode (MEA), le combustible et l'oxydant utilisé, en plus de la température locale, la pression et l'humidité de la MEA. Ils dépendent aussi de la pile elle-même, de sorte qu'il ne peut pas être transposé à une autre PàC sans nouvelle identification paramétrique.

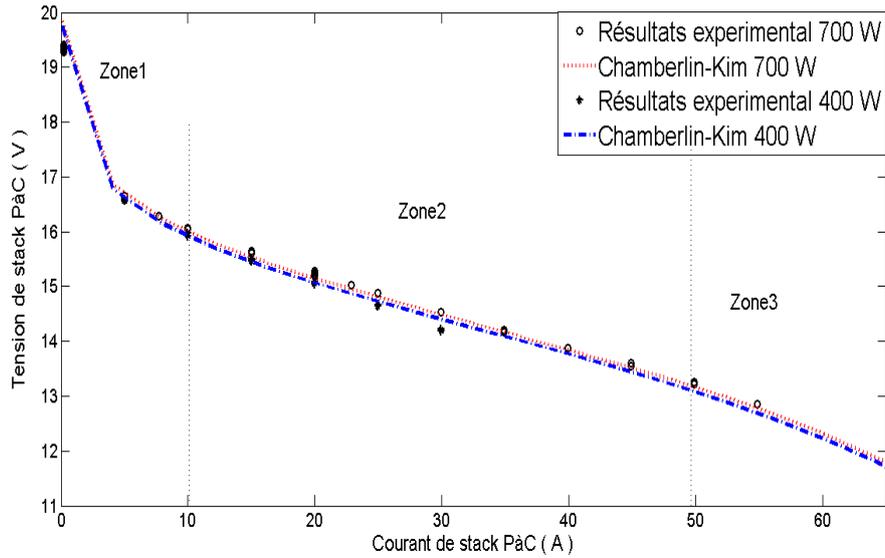


FIGURE 2.13 – Simulation et résultats expérimentaux de Modèle statique de Chamberlin - Kim et Dicksde, obtenu pour deux puissances 400W et 700W

Pour obtenir les paramètres de Chamberlin-Kim, un programme de sortie secondaire est utilisé dans Matlab qui repose sur l'ajustement des courbes. On a utilisé la méthode d'erreur de moindre carré avec "fiting Data". Pour obtenir le coefficient estimé, la méthode de moindre carré minimise la somme des résidus aux carrés. Les paramètres du modèle de Chamberlin-Kim sont présentés dans le tableau 2.1, mais il est remarqué que le modèle de Kim produit une erreur relative estimée à 1,4 %.

2.6 phénomène considérées

Le comportement de PàC est fortement non-linéaire, et il dépend de divers facteurs, comme la température, la pression de réactif, l'hydratation de la membrane, les concentrations en réactifs, la charge électrique, et d'autres facteurs. Pour simplifier cette analyse, un ensemble d'hypothèses, qui sont généralement entrepris dans des études similaires, sont considérés. Il est nécessaire de noter que les résultats devaient être bons en tenant compte des hypothèses énumérées ci-dessous :

- Les gaz utilisés pour la réaction chimique sont purs ; H_2 , O_2 (idéaux et uniformément distribués),

TABLE 2.1 – Paramètres du modèle statique de Larminie-DICKS et CHAMDERLIN-KIM

Larminie-Dicks		Chamberlin-Kim	
Paramètres	Valeur	Paramètres	Valeurs
E_0 (V)	0.98	E_0 (V)	0.905
i_o (A)	0.36	b (V)	0.0384
A	0.05	m (V)	0.0019
i_{Lim} (A)	100	n (A^{-1})	0.0551
B	0.205	R_s (Ωcm^2)	1.4
i_n (A)	0.5		

- Les gaz ont une concentration uniforme dans les canaux d'alimentation et aucune perte de pression,
- Pas de réaction parasite modélisée,
- Les propriétés thermodynamiques sont évaluées à la température moyenne de la pile,
- Les variations de température à travers l'empilement sont négligés,
- La capacité de chaleur massique globale de la pile est supposé constante,
- Les paramètres pour les cellules individuelles peuvent être regroupés pour constituer un stack de PàC,
- Les réactifs sont saturés avec de la vapeur,
- La membrane est complètement saturée d'eau,
- Le domaine de puissance (400W à 700W) est relativement convergent, et le modèle PàC fonctionne dans des conditions de température, pression et résistivité de la membrane relativement constantes,

2.7 Comparaison entre les Modèles Statiques

Pour comparer avec précision les modèles statiques, les caractéristiques ont été établies sur la même figure pour les puissances de 400W et 700W. En conséquence, les conditions d'expérimentation ont été respectées en ce qui concerne les paramètres de chaque modèle.

la figure 2.14 montre les modèles d'Amphlett, de Larminie-Dicks et de Chamberlin-Kim qui présentent des erreurs de tension en circuit ouvert (courant de charge nulle). Les erreurs de ces modèles sont respectivement de 2,1 %, 0,26 % et 3,94 %. Pour une puissance de 400W, le courant est de 30A. Dans ces conditions, les modèles d'Amphlett et de Larminie-Dicks donnent une bonne précision parce que leurs erreurs ne sont respectivement que de 0,2 % et 0,06 %, tandis que, l'erreur du modèle de Chamberlin-Kim est d'environ 0,97 %. Cette dernière augmente à 1,4 % à 50A où la caractéristique PàC s'écarte des caractéristiques des modèles d'Amphlett et de Larminie-Dicks. La figure 2.15 présente les tableaux de puissance de 700W. Les trois

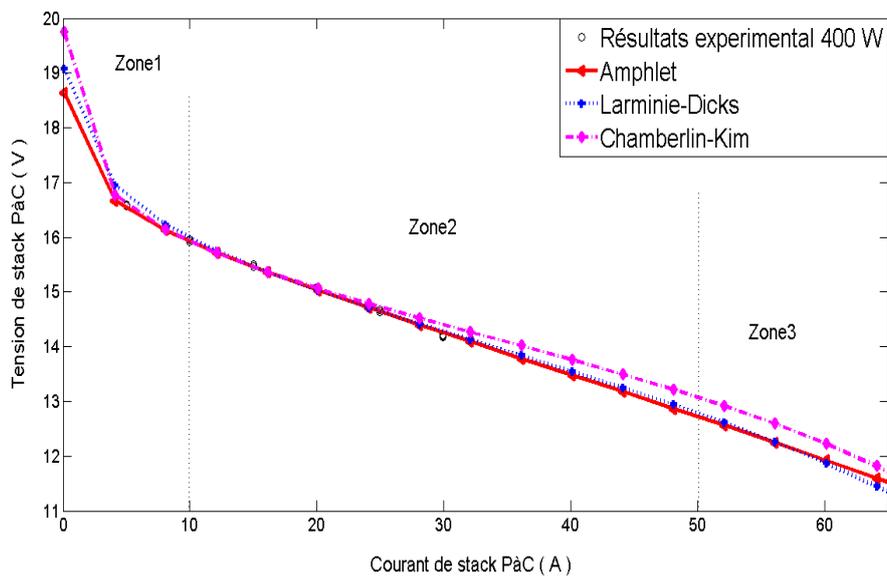


FIGURE 2.14 – Courbes de modèles statiques pour 400W

modèles ont une erreur considérable au début de fonctionnement de PàC, c-à-d zone de perte d'activation (zone1). Par conséquent, les erreurs dans le modèle d'Amphlett sont de 2,84 %, dans le modèle de Larminie-Dicks de 1,29 % et de 2,53 % dans le modèle de Chamberlin-Kim. Ces erreurs diminuent pour être compatibles avec les caractéristiques des PàC à la fin de la deuxième zone et le début de la troisième zone, mais ce dernier ne minimise pas les erreurs lorsque le courant est de 50A. Les erreurs des deux modèles Amphlett et Larminie-Dicks sont de 0,97%, mais l'erreur du modèle de Chamberlin-Kim est de 1,27 %. D'après les résultats des figures 2.14 et 2.15, les paramètres dans le tableau ci-dessus présentent de bons résultats pour la pile de 700W. Pour les deux puissances, le modèle de Larminie-Dicks est le plus robuste et

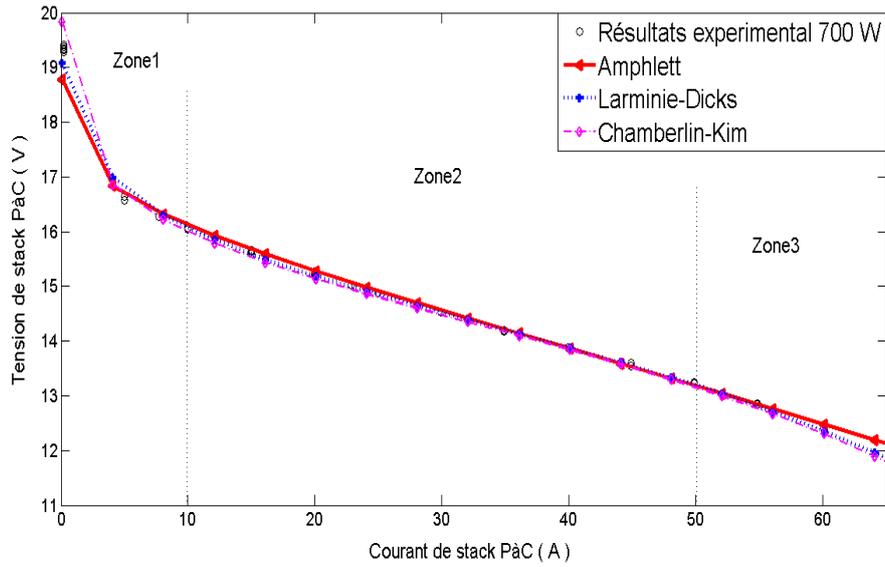


FIGURE 2.15 – Courbes de modèles statiques pour 700W

le plus efficace malgré sa simplicité. D'autre part, le modèle Chamberlin-Kim est le moins robuste. Les résultats du modèle de Amphlett sont proches de ceux du modèle de Larminie-Dicks cependant ce modèle est plus complexe. Contrairement aux modèles de Larminie-Dicks le modèle d'Amphlett ne donnent pas la caractéristique logarithmique dans la zone 3. Enfin, une brève comparaison dans le tableau 2.2. II résume les propriétés les plus importantes des modèles statiques énoncées dans le présent chapitre.

TABLE 2.2 – Propriétés de modèles Statiques

	Amphlett	Larminie-Dicks statique	Chamberlin- Kim
Nombre de paramètre	7	7	5
Nombre de variable (input /output)	4	1	1
simplicité	Complexe : Il considère tous les paramètres physiques dans le système	Complexe : Il prend en compte trois courants. Par conséquent, les pertes ohmiques,et de diffusion ont été additionnés dans la partie linéaire.	Simple : Il néglige le courant « i_n » et combine « i_0 » de l'équation Tafel avec le potentiel Nersnt.
Précision	Grande précision	bonne précision	Erreur maximale d'environ 1,4 %
Finesse	Prédiction de la performance et le comportement des PàC.Ce qui est important dans l'électrochimie	L'utilisation fréquente dans les véhicules hybrides. Adéquation de la conception et de contrôle	L'utilisation fréquente dans les véhicules hybrides. Adéquation de la conception et de contrôle
Effet de la température	Considérant la température	néglige La température mais théoriquement les constantes A et B changent avec	Température négligée,mais théoriquement les constantes a et b changent avec

2.8 Conclusion

Le modèle statique donne des résultats stables et importants à travers le régime permanent. Le modèle d'Amphlett peut être considéré comme le modèle le plus complexe, mais préférable car plus précis. la tension en circuit ouvert obtenue par ce modèle est identique aux résultats expérimentaux.

Le modèle de Chamberlin-Kim est le plus simple, mais les paramètres choisis ont donné un pourcentage d'erreur maximale d'environ 1,4 % avec une puissance de 400W dans la troisième zone. En outre, le modèle de Larminie-Dicks statique donne des résultats acceptables. Cela prouve son utilisation fréquente dans les véhicules hybrides, car il n'est pas influencé par la variation de courant.

Chapitre 3

Modèles dynamiques de PEMFC

3.1 Introduction

DE nombreux modèles, de stack PàC ou de systèmes PàC existent qui doivent être construits avec un objectif principal :

- Qui consiste à décrire le comportement électrochimique,
- ou à optimiser le système.

Dans les paragraphes qui suivent, la caractéristique de polarisation ($V - I$) d'une cellule est étudiée via trois modèles dynamiques différentes (Dicks, d'impédance et circuit électrique équivalent) et sont ensuite comparés avec les données expérimentales. [Hern06] propose un modèle électrique équivalent de la piles. [Bech10b] et [Bech11a] ont développé un modèle simple et fiable pour une PàC adapté aux applications en génie électrique et de contrôle automatique. Ce modèle a été obtenu en utilisant une analogie entre les phénomènes pneumatiques / fluide de la PàC et de leurs équivalents électriquement appropriées. Les effets de la température et de l'humidité ont été pris en compte. La variation du volume d'eau de condensation ainsi que la capacité de mémorisation des canaux sont modélisées par des condensateurs. Ce chapitre traite de l'exhaustivité du modèle et de sa validité pour le diagnostic et le contrôle. Ce modèle a été combiné avec des modèles de convertisseurs électriques pour élaborer des lois de contrôle et pour étudier l'interaction entre une PàC et un groupe moto-compresseur. Pour cela, il est comparé avec les modèles les plus célèbres et importants qui sont des modèles dynamiques de Larminie-Dicks et modèle

d'impédance. Cette étude comparative est présentée dans la dernière section de ce chapitre.

3.2 État de l'art des modèles dynamiques

Sur la base de ces critères d'utilisation, il est possible de déterminer le type du modèle (modèle théorique ou semi-empirique, modèle dynamique ou statique, mono-, bi-ou modèle en trois dimensions). Pour assurer une simulation au niveau du système, les modèles de pile à combustible doivent être en mesure de refléter avec précision les caractéristiques de PàC. Ils existent deux types de modèle de PàC :

- le modèle statique,
- et le modèle dynamique,

Dans le chapitre précédent, on a proposé trois modèles statiques tels que : Amphlett, Larminie-Dicks et Chamberlin-Kim. Ces modèles ont été étudiés et validés expérimentalement par caractérisation de leurs paramètres [Saad13], tel que proposé dans [Bech10b] et [Bech11a], un circuit électrique équivalent de la pneumatique et de la fluide dans un stack de PàC fut développé. Ce modèle allie la simplicité d'un circuit électrique et les tentatives de modéliser les phénomènes physiques survenant à l'intérieur de PàC. Les effets de la variation de la température et de l'humidité de la cellule sont pris en compte dans ce modèle. Les auteurs [Ifti06] ont proposé un modèle dynamique de PàC a l'avantage d'avoir peu de paramètres et est validé sur une large plage de fréquences, il permet en outre de simuler une réponse dynamique précise de la PàC. [Hadd08] développe un modèle dynamique pour une seule cellule de la PàC. Le modèle étudie les phénomènes de charge et le transport de masse à travers les éléments de la cellule. Il intègre également l'aspect électrique lié à une cinétique de réaction, en proposant un circuit électrique équivalent de la cellule. La consommation de gaz et le taux d'humidification et l'humidité de la membrane sont prises en considération. La plupart des modèles actuels utilisée pour l'analyse du système PàC sont basés sur la courbe de polarisation empirique et néglige les effets dynamiques de la concentration de l'eau, de la température et de la distribution de réactifs sur les caractéristiques. Dans [Kim10], un modèle simplifié a été proposé pour prévoir les comportements dynamiques de PàC, et on a établi les paramètres du

modèle à partir des constantes et des résultats transitoires. [Wing05] suggère un modèle dynamique simple de (grands-signal), dont les paramètres de PàC peuvent être trouvés grâce à la méthode de courant interrompu. Cette méthode permet d'estimer les paramètres du modèle dynamique. Cependant, il y avait un doute sur l'influence des perturbations (petits signaux) dans la PàC. Par conséquent, des mesures de spectroscopie d'impédance ont été réalisées sur la PàC pour déterminer si le modèle de large-signal était applicable à des excitations de petits signaux.

Dans la conception et le contrôle des systèmes PàC, la référence [Andr09] examine l'utilisation de la spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE) pour la caractérisation et l'élaboration d'un modèle d'impédance pour une pile à haute température (HT-PEM). Un modèle simple de circuit équivalent peut être utilisé pour simuler le comportement de la PàC, mais l'impédance dépend d'autres variables telles que la température, le courant et le flux d'espèces. La technique de spectroscopie d'impédance électrochimique a été démontrée comme un outil puissant pour valider un modèle fréquentiel, fin et compact d'une PàC en tenant compte de la diffusion et du transfert de charge. La technique de modélisation se distingue complètement des approches traditionnelles car elle utilise une dérivation non entier. Elle facilite plus particulièrement la conception d'un modèle de la PàC, fiable sur une large gamme de fréquences avec un nombre limité de paramètres. En outre, chaque paramètre du modèle a une signification physique [Ahme08]. Les auteurs dans [Homb05] étudient une seule(PàC) dans son ensemble, la modélisation par un circuit électrique équivalent (CE) en utilisant la technique de spectroscopie d'impédance électrochimique. Cette étude définit la structure du CE, des valeurs de ses paramètres, et propose une interprétation physique concernant ces paramètres. Toutefois, les observations relatives à l'SIE ont été utilisées pour caractériser les effets macroscopiques de la déshydratation et des inondations sur l'impédance de PEMFC [Mrid06]. [Dunc59] a été intéressé à reprendre sur deux questions basiques de recherche de PàC : diagnostic et de modélisation, en particulier EIE (spectroscopie par impédance électrochimique) appliqué à une PàC. Un modèle d'impédance de PàC a été proposé. Il emploie un circuit équivalent dérivé par la technique de l'analyse de la réponse en fréquence (FRA). Les résultats calculés sont ensuite vérifiées par des expériences sur trois PàCS disponibles dans le commerce : Avista Labs *SR-12(500W)*, Ballard

Nexa (1.2kW) et *BCS – Tech*(300W) PEMFC system [Famo03].

3.3 Modèle dynamique de Larminie

Larminie a publié le modèle de circuit électrique «original» d'une pile à combustible en 1994, comme le montre la figure 3.1. On modélise les électrodes et l'électrolyte en tant qu'éléments de circuit. Les électrodes sont chacune représentées par un condensateur en parallèle avec une résistance et un potentiel de tension. Les résistances représentent les résistances faradiques de l'anode et la cathode, les condensateurs sont des condensateurs associés faradique, et la somme de potentielle tension est égale à la tension en circuit ouvert de la pile à combustible. Une résistance, R_e , modélise l'électrolyte, qui est un inhibiteur de l'écoulement d'hydrogène [Larm94]. Avec ce modèle, Larminie présente une technique d'interruption du courant pour déterminer les valeurs des composants. V est un appareil de mesure de tension qui mesure la tension du modèle lorsqu'on passe de l'état initial à l'état de charge de R_1 .

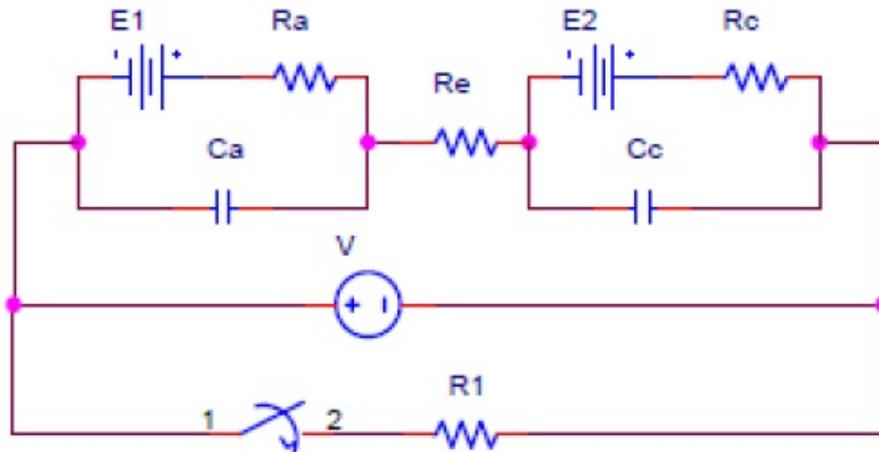


FIGURE 3.1 – modèle dynamique de Larminie ([Larm94])

3.4 Modèle dynamique de Garnier

Le modèle de Garnier est représenté dans la figure 3.2. Le modèle est basé sur le calcul de l'impédance électrochimique d'une PàC. La résistance R_m représente

la résistance de l'électrolyte. R_a et R_c représentent les pertes ohmiques (liées à des phénomènes de transport d'électrons). C_a et C_c , qui sont des condensateurs à double couche, représentent la charge de la double couche. Les impédances parallèles R_c , R_{wa} , C_{wa} et R_{wc} , C_{wc} , représentent les pertes dues aux fluctuations de la concentration d'hydrogène et d'oxygène à la surface des électrodes. Le modèle est validé par sa réponse à un changement d'étape dans le courant de la pile à combustible et par la comparaison des courbes de polarisation [Garn03].

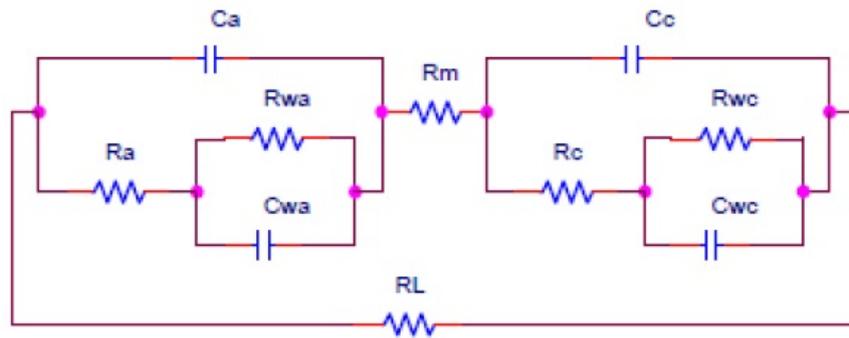


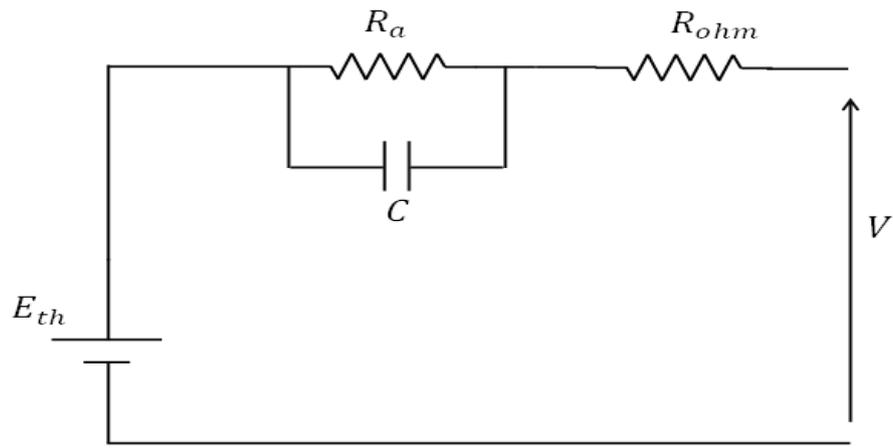
FIGURE 3.2 – Modèle dynamique de Garnier

3.5 Modèle dynamique de Larminie-Dicks

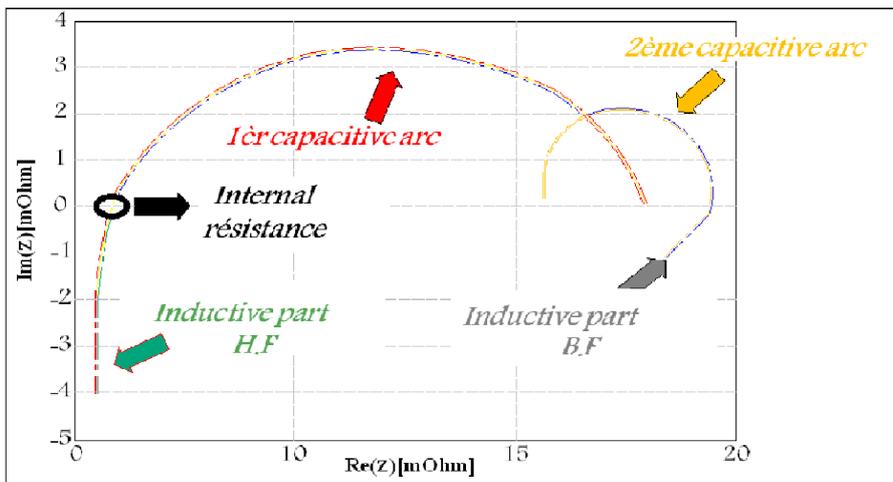
Le modèle Larminie-Dicks est représenté sur la figure 3.3(a), il modélise la polarisation d'activation, la polarisation de concentration, la polarisation ohmique et la tension de Nernst. R_a , perte d'activation et de concentration, est liée à la capacité de double couche. R_{ohmic} est liée à l'écoulement d'hydrogène et d'électrons. Le condensateur C représente la double couche de charge, il retarde donc la dissipation des charges électroniques près de l'interface électrolyte-électrode. Le modèle Larminie-Dicks simplifie les phénomènes physiques et électrochimiques de la PàC via un circuit électrique équivalent.

3.6 Modèle d'impédance

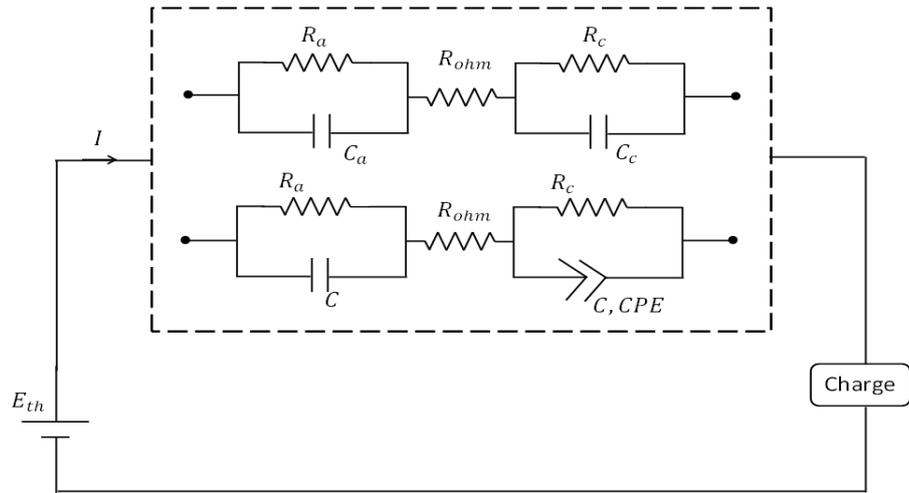
La Spectroscopie d'Impédance Electrochimique est une méthode largement employée pour l'analyse fondamentale des phénomènes existants dans les dispositifs



(a)



(b)



(c)

FIGURE 3.3 – Modèles d'impédance et Larminie-Dicks

électrochimiques. Les prémices de la mesure d'impédance électrochimique remontent à la fin du XIX^{me} siècle avec les travaux d'Emil Gabriel Warburg sur les processus

de diffusion entre un liquide et un solide et ceux d'Oliver Heaviside sur le calcul opérationnel pour résoudre des équations différentielles en les transformant en équations algébriques ordinaires. Il aura fallu attendre les années 1960 et les travaux d'Epelboin et de son équipe [Daro95] pour que la théorie de la SIE apparaisse comme une méthode d'analyse possible pour étudier les mécanismes de corrosion. Leurs travaux ont notamment permis la conception du premier spectromètre d'impédance électrochimique, le Solartron 1172. Ce premier système permettait l'étude fréquentielle d'un composant à des fréquences comprises entre $0,1mHz$ et $9,99kHz$. Dès lors, de nombreux travaux ont été entrepris pour comprendre les réactions électrochimiques se produisant aux interfaces (Frumkin, Armstrong, Smith)[Wast10]. Le cumul de leurs recherches a permis une plus grande compréhension des mécanismes de corrosion. Dans les années 80, le champ d'application de la SIE était limité à l'étude des phénomènes électrochimiques corrosifs. Il s'est étendu ensuite aux domaines des batteries, [Momm12], [Osak03],[Yuan14] et [Momm14] et est aussi utilisée pour les PàC [Spr96], [Bult02] et [Petr13]. Les impédances équivalentes sont utilisées pour déterminer les paramètres électrochimiques (capacité de double couche, résistances de la membrane et des connexions et résistance de transfert de charges...) ou pour analyser le comportement interne de la PàC :

- influence de l'humidification et du séchage des membranes [Liu03].
- observation du comportement de la pile en présence de monoxyde de carbone dans l'hydrogène [Wagn04].
- surveillance de la durée de vie de la pile [Wahd07] et [Wahd08].

La spectroscopie d'impédance électrochimique est une méthode expérimentale qui impose l'utilisation d'un courant électrique de type AC et fait varier les fréquences dans la PàC, en mesurant l'impédance correspondante. Aujourd'hui, il est plus fréquent d'utiliser pour la réalisation de cette méthode un analyseur de fréquences.

3.6.1 Les différentes techniques utilisées en SIE

La spectroscopie d'impédance est une méthodologie qui a vu son principe évoluer suivant les applications et les études. Il est possible de distinguer trois ou quatre

types de technique de SIE suivant que l'on considère l'interruption de courant comme une méthode dérivant de la SIE ou pas. Les trois autres méthodes se différencient principalement par la forme des stimuli électriques appliqués au système électrochimique. Chacune des trois techniques présente des avantages et des inconvénients propres.

3.6.1.1 La première technique

Elle consiste à appliquer un signal bruité aléatoire (bruit blanc) et à mesurer la réponse bruitée du système. L'avantage du signal bruité est qu'il contient un riche contenu harmonique. Il n'est donc pas nécessaire de répéter plusieurs fois la mesure de l'impédance pour chaque fréquence. Cependant, il n'est pas possible d'obtenir directement l'impédance électrochimique pour chaque fréquence permettant de tracer le spectrogramme d'impédance complet. Une étape de traitement des données est alors nécessaire. Cette étape vise à décomposer le signal temporel en une multitude d'harmoniques à fréquences distinctes. Pour ce faire, on utilise la transformée de Fourier classique ou la transformée de Fourier multi-sinus [Brun04].

3.6.1.2 La deuxième technique

Fait référence à l'approche classique utilisée dans la plupart des mesures par SIE. Le principe consiste à appliquer un signal de très faible amplitude (courant ou tension) mono-fréquentiel de type $e(t)=E_m \sin(\omega t)$, et à mesurer la réponse du système (tension ou courant). L'application de la loi d'Ohm permet de calculer les parties réelles et imaginaire ou la phase et l'amplitude de l'impédance complexe. Une étape intermédiaire entre la mesure et la détermination de l'impédance vise à éliminer le bruit environnant afin d'améliorer la qualité de mesure. La transformée de Fourier rapide est classiquement utilisée [Brun04].

3.6.1.3 la troisième technique

En tout point similaire à la SIE classique, elle utilise néanmoins des signaux excitateurs à forte amplitude. En effet, l'utilisation d'un fort stimulus électrique ayant comme conséquence une variation de plusieurs centaines de mV sur les électrodes

conduit en général à un système instable. L'instabilité d'un système est indiquée par exemple dans le contenu harmonique. La détection dans la réponse du système de plusieurs multiples de la fréquence fondamentale (avec des amplitudes non négligeables) constitue d'ailleurs un excellent moyen pour réaliser le test de linéarité. Dans le cadre de la PàC, cette technique a été employée par [Niya13]. Pour mesurer l'impédance à différentes fréquences, un analyseur de réponse en fréquence (FRA) et un banc de charge sont nécessaires. Une onde sinusoïdale est produite par la FRA et appliquée à PàC via le banc de charge. Ensuite, la réponse du système est capturée par FRA, et un spectre d'impédance est ainsi calculé. Le résultat obtenu ou de spectre d'impédance est généralement tracé dans un plan de Nyquist ou de Bode (phase module). Les spectres d'impédance obtenus dans le plan de Nyquist peuvent être facilement analysés par des circuits électriques équivalents (voir la figure 3.3(b)). Dans ce type d'analyse, chaque composant électrique passif utilisé (résistance, condensateur, inductance) modélise une caractéristique physique ou un processus chimique de la PàC. Le circuit équivalent le plus couramment utilisé dans les modèles de mesure est le circuit Randles. Le circuit Randles originale comprend une résistance dépendant de la fréquence et du condensateur, qui sont parallèles à un condensateur classique, et une résistance conventionnelle qui est dans un mode série à l'ensemble du système. L'élément Warburg a été introduit au circuit d'origine pour la première fois par Grahame [Niya13] et [Yuan07]. Il a divisé les réactions électrochimiques dans 6 classes différentes et a présenté différents circuits équivalents. Le circuit équivalent Randles n'a pas été déterminé sur la base des équations d'administration de piles à combustible. Toutefois, en remplaçant le condensateur classique avec un autre élément de base de l'électrochimie, appelé élément de phase constante (*CPE*) [Pere14]. Dans un modèle équivalent de Stack PàC, tel que représenté sur la figure 3.3(c), l'impédance sera donnée par la fonction suivante :

$$Z_{CAP}(s) = \frac{R_a}{R_a C_a s + 1} + \frac{RC}{R_c C_c s + 1} + R_{ohm} \quad (3.1)$$

Ou en utilisant Warberg impédance Z_{CC-CPE} , qui est définie par :

$$Z_{C_c,CPE} = \frac{1}{Z_0 (j\omega)^n} \quad (3.2)$$

Où $j = (-1)^{1/2}$, est la fréquence angulaire, Z_0 une constante dimensionnelle, et n est la constante d'exposant et peut varier entre -1 et 1 .

Si $n = 1$, CPE est capacité idéal.

Lorsque $n = 0,5$, CPE est l'impédance de Warburg.

Si $n = 0$, la résistance CPE est idéale, et si $n = -1$, CPE est une inductance.

3.7 Modèles à circuits électriques équivalents

Les modèles circuits électriques sont généralement destinés à un usage système, c'est-à-dire qu'ils ont pour but l'étude du fonctionnement d'un système électrique comportant une PàC. Dans la littérature, plusieurs type de modèles peuvent être utilisés, le choix s'est porté sur un circuit équivalent de PàC présenté par [Diar98], par la suite ce circuit a été introduit dans des modèles allant du plus simple présenté dans [Seye11] à des modèles plus complexes et sophistiqués [Yu04], [Wang05a],[Samo10],[Hern05], [Kim13] (présenté par [Page07] dans La figure 3.4).

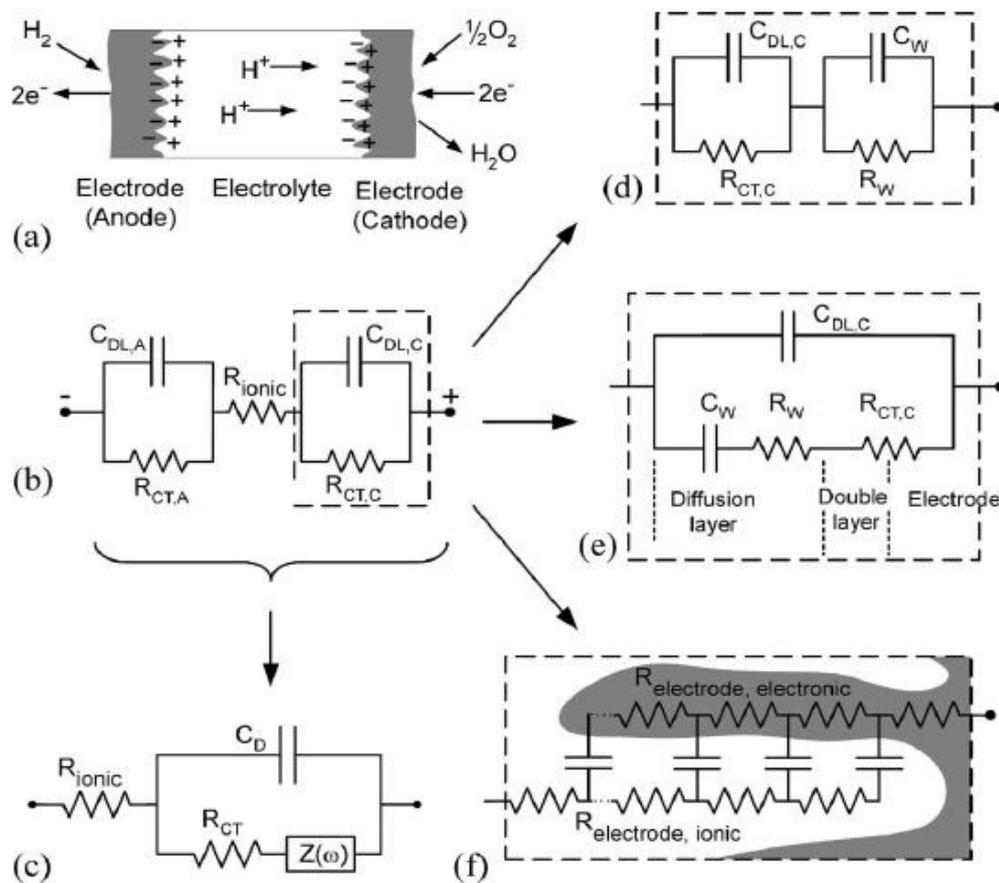


FIGURE 3.4 – Modèles circuit électrique [Page07]

3.7.1 Modèle dynamique simplifié

La représentation sous forme de circuit électrique présentée en figure 3.5 est de structure simple : une source de tension correspondant au potentiel de Nernst en série avec quelques résistances représentant les chutes de tension d'activation, de concentration et ohmique (essentiellement due à la membrane), la double couche électrique (située aux interfaces membrane/électrode) est représentée par C_{dc} . Les impédances du circuit équivalent sont déterminées de manière empirique ou semi-empirique. L'équation (2.1) donne le potentiel de Nernst en fonction des pressions partielles des réactants et l'équation (2.3) la chute d'activation, leurs coefficients étant identifiés expérimentalement. Enfin, la tension aux bornes de la PàC s'obtient en retranchant à la tension de Nernst les chutes de tension d'activation, de tension ohmique et de concentration équations (2.10) et (2.14). La dynamique fluide a également été prise en compte au travers d'une relation faisant intervenir la pression partielle de l'hydrogène (respectivement l'oxygène) et le débit d'hydrogène entrant dans la pile (respectivement d'oxygène). Ce type de modélisation est clairement

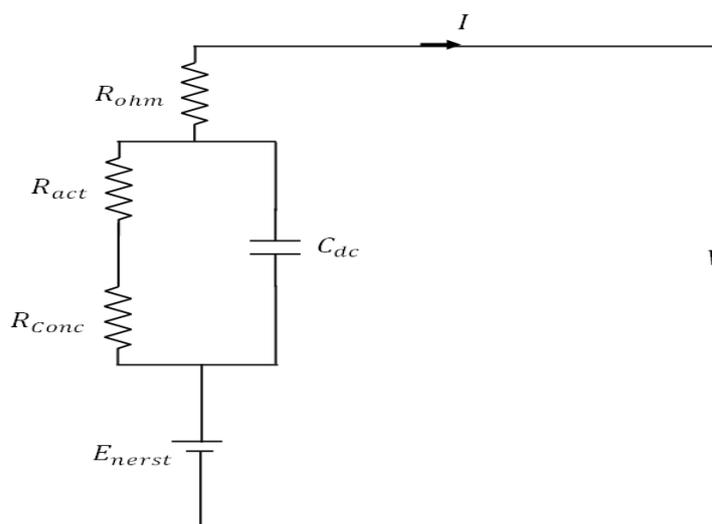


FIGURE 3.5 – Modèle dynamique simplifié

orienté système, ce sont des modèles dynamiques globaux qui permettent de prédire la réponse électrique (tension ou courant) du stack. Ces modèles n'ont pas pour but d'analyser les phénomènes du cœur de pile.

$$P_{H_2} = \frac{1}{1 + \tau_{H_2}s} (W_{H_2}^{in} - 2K_r I) \quad (3.3)$$

$$P_{O_2} = \frac{\frac{1}{K_{O_2}}}{1 + \tau_{O_2}s} (W_{O_2}^{in} - 2K_r I) \quad (3.4)$$

La constante K_r est définie comme étant le rapport entre le taux d'hydrogène et le courant de pile.

$$W_{H_2}^r = \frac{NI}{2FU} \quad (3.5)$$

Où U est le facteur d'utilisation

K_{H_2} gain du débitmètre d'hydrogène

K_{O_2} gain du débitmètre d'oxygène

τ_{H_2} constante de temps du débitmètre d'hydrogène

τ_{O_2} constante de temps du débitmètre d'oxygène

$W_{H_2}^r$ débit d'hydrogène ayant réagi

$W_{H_2}^{in}$ débit d'hydrogène entrant dans la pile

$W_{O_2}^{in}$ débit d'oxygène entrant dans la pile

P_{H_2} pression partielle d'hydrogène

P_{O_2} pression partielle d'oxygène

F constante de Faraday

I courant de pile

N nombre de cellules du stack.

3.7.2 Approche par équivalences électriques

Le principe de modélisation est fondé essentiellement sur la similitude topologique des systèmes électriques et des systèmes pneumatiques. Le modèle proposé a été établi en tenant en compte des non linéarités inhérentes à la PàC du type PEM (dynamique des fluides, saturation de la vapeur d'eau, etc.), ce qui permet une meilleure prédiction du comportement de la pile [Bech10b]. Tout au long de ce chapitre, la modélisation est effectuée sous certaines hypothèses :

- (H1) Tous les gaz sont supposés être des gaz parfaits.
- (H2) La température de pile est uniforme.
- (H3) Les variations de pression produites par des variations de vitesse de l'écoulement sont négligées.

- (H4) La différence de pression entre l'entrée et la sortie est très faible.
- (H5) La pression à la sortie du cœur de pile est supposée proche de la pression atmosphérique.
- (H6) L'évolution de la pression entre l'entrée et la sortie du cœur de pile est supposée proportionnelle au débit de gaz.
- (H7) Les variations du volume des canaux sont supposées négligeables.
- (H8) La variation temporelle de la température de la pile est considérée suffisamment lente pour être assimilée à une constante.
- (H9) L'écoulement est assumé être laminaire.
- (H10) Seuls l'azote et la vapeur d'eau sont supposés susceptibles de se diffuser à travers la membrane.
- (H11) l'écoulement est diphasique.
- (H12) Le volume de l'eau liquide est négligeable par rapport au volume global à la cathode ou à l'anode.
- (H13) Les pressions totales à l'anode ainsi qu'à la cathode peuvent être mesurées.
- (H14) La masse et l'énergie d'un écoulement laminaire sont conservées dans le cas d'un fluide supposé incompressible et non visqueux.
- (H15) la viscosité est constante entre un point "a" et un point "b" de l'écoulement
- (H16) le fluide est compressible.
- (H17) La pression à l'intérieur du composant est uniforme.
- (H18) Les pertes de charge ont lieu à l'entrée et à la sortie exclusivement.
- (H19) Chaque espèce est considérée comme un gaz parfait.
- (H20) Les interactions entre les différentes espèces sont négligées.
- (H21) Les propriétés de superposition des circuits électriques sont applicables.
- (H22) Le gaz est de nature mono-espèce.
- (H23) L'eau est produite à la cathode par la réaction électrochimique.
- (H24) Une migration forcée de l'eau de l'anode vers la cathode est le résultat du phénomène d'électro-osmose.
- (H25) La pression de vapeur d'eau est limitée par la pression de saturation de l'eau, qui est une fonction de la température.

3.7.3 Principe de modélisation

3.7.3.1 Analogie fluide électrique

Dans la physique classique, la matière, la charge et l'énergie sont des grandeurs conservatives. Les lois nœuds et des mailles de Kirchoff sont en fait des représentations de ces principes fondamentaux appliquées à l'analyse des circuits électriques. Le modèle électrique est établi à partir du principe de similitude topologique des systèmes électriques et des systèmes pneumatiques. Dans cette approche, un circuit équivalent électrique est construit à partir des principes de conservation de la charge, de la masse et de l'énergie. Chaque composant pneumatique possède un composant électrique équivalent. En analysant le comportement physique des composants et des grandeurs pneumatiques, il est possible d'établir une analogie entre ceux-ci et les composants et grandeurs électriques, pour ensuite définir les équivalences entre ces deux systèmes isomorphes.

Le courant électrique et le débit d'un fluide partagent les mêmes principes dans leur définition, ils peuvent donc être représentés mathématiquement de façon identique. Le formalisme de cet isomorphisme est donné dans l'équation (3.6). Il est ainsi possible d'affirmer que le courant électrique est un équivalent idéal aussi bien pour le débit molaire que pour le débit massique.

Environnement électrique :

$$I = \frac{dq}{dt} \quad (3.6)$$

Environnement pneumatique :

$$W_{m,net} = \frac{dn}{dt} \quad (3.7)$$

Avec :

$$W_{m,net} = W_{m,in} - W_{m,out} \quad (3.8)$$

Selon la loi de continuité de Bernoulli, nous assumons que :

(H14) la masse et l'énergie d'un écoulement laminaire sont conservées dans le cas d'un fluide supposé incompressible et non visqueux.

A partir des hypothèses précédentes, un conduit pneumatique idéal possède un comportement analogue à celui d'un conducteur électrique idéal.

L'hypothèse d'incompressibilité du fluide implique que le débit se conserve tout au

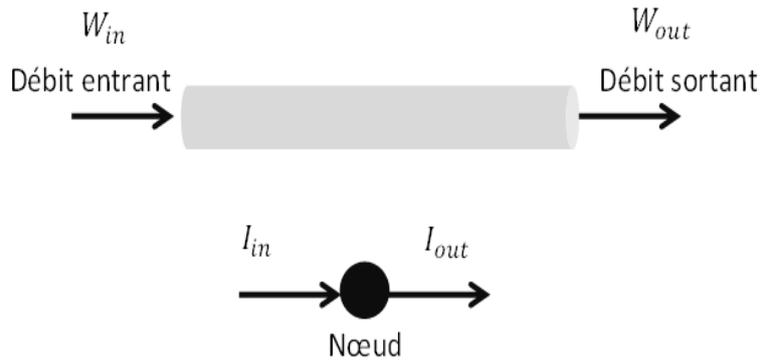


FIGURE 3.6 – Modèle du conduit

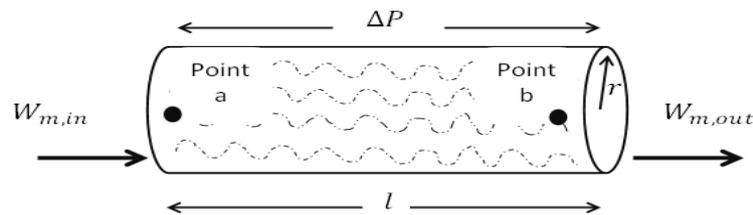


FIGURE 3.7 – Conducteur réel associé à la loi de Poiseuille

long du conduit et le débit net (bilan entre débit d'entrée et débit sortie) devient nul. Si en plus les pertes mécaniques sont négligées, l'énergie de l'écoulement est conservée et le conduit pourra être représenté par un nœud dans un réseau électrique équivalent (figure 3.6).

Dans une approche réaliste, il est évident que des pertes mécaniques sont introduites par des forces non conservatives au sein du fluide. Ces pertes mécaniques ou pertes de charge, sont généralement modélisées par une équation empirique connue sous la loi de Poiseuille. Cette loi établit l'existence d'une relation de proportionnalité entre le débit et les pertes de charge dans un écoulement laminaire pour un fluide incompressible. Sous l'hypothèse : (H15) la viscosité est constante entre un point 'a' et un point 'b' de l'écoulement (voir figure 3.7). Une équivalence entre la loi de Poiseuille et la loi d'Ohm peut être proposée (3.9).

Environnement pneumatique :

$$W_m = \Delta P \left(\frac{\pi r^2}{8\mu l} \right) \quad (3.9)$$

Environnement électrique :

$$I = \frac{\Delta V}{R} \quad (3.10)$$

Alors, la résistance et le potentiel pneumatique peuvent être défini par :

$$\left\{ \begin{array}{l} R_f \equiv \frac{8\mu l}{\pi r^2} \\ et \\ \Delta P \equiv \Delta V \end{array} \right. \quad (3.11)$$

En vertu de (3.9), il est possible d'établir l'équivalence entre la tension électrique et la pression pneumatique (3.11). Dans le cas particulier où les conditions de validité de la loi de Poiseuille sont respectées, la résistance équivalente R_f restera constante pour l'écoulement considéré. Dans un conduit réel, la résistance est distribuée uniformément tout au long du conduit. Néanmoins, dans le processus de modélisation, la résistance totale des conduits sera concentrée en des résistances ponctuelles.

3.7.3.2 Cas particulier d'un fluide compressible

Dans le cas d'un fluide compressible, le conducteur pneumatique ne peut pas être modélisé exclusivement par une résistance. En fait, dans un écoulement d'un fluide compressible, la masse du fluide à l'intérieur du conducteur peut varier $W_{M,net} \neq 0, W_{m,net} \neq 0$. Il est alors impossible de modéliser les caractéristiques du fluide à partir d'un modèle exclusivement résistif. L'introduction d'un élément permettant de modéliser la capacité de stockage des conduits s'avère alors indispensable.

Pour trouver le composant adéquat, il faut partir de la loi des gaz parfaits. A des conditions de température et de volume constantes, l'équation des gaz parfaits peut s'écrire comme (3.15). Il est possible d'observer que l'équation des gaz parfaits est isomorphe à l'équation de la tension aux bornes d'un condensateur (3.16). Une comparaison directe entre (3.15) et (3.16) permet de définir le concept de capacité C_f du fluide comme décrit en (3.17). En conclusion, sous l'hypothèse :

(H16) le fluide est compressible,

Un conducteur pneumatique possédera des caractéristiques résistives et capacitatives et son modèle équivalent sera donné par un circuit R_C .

$$\frac{dP}{dt} = \frac{RT}{v} \frac{dn}{dt} \quad (3.12)$$

Avec

$$W_m = \frac{dn}{dt} \quad (3.13)$$

On a

$$\frac{dP}{dt} = \frac{RT}{v} W_m \quad (3.14)$$

Environnement pneumatique :

$$\Delta P = \frac{RT}{v} \int_t^{t_0} W_m dt \quad (3.15)$$

Environnement électrique :

$$\Delta V = \frac{1}{C} \int_t^{t_0} I dt \quad (3.16)$$

La capacité pneumatique peut être définie comme

$$C_f = \frac{v}{RT} \quad (3.17)$$

Un circuit RC en configuration en ' T' ' est donc choisi comme modèle équivalent électrique pour le conducteur pneumatique. Dans la configuration en ' T' ', le condensateur C_f est placé entre deux résistances (R_{in}, R_{out}) (voir la figure 3.8). Cette configuration permet d'adapter finement la dynamique du modèle à celle de la conduite, dans des conditions diverses, tout en préservant une certaine simplicité dans le modèle.

Les réservoirs des divers types, tels que ceux qui font partie du système d'humidification et de condensation, suivent également les mêmes principes physiques. Il est ainsi possible de modéliser les réservoirs et d'autres composants de façon analogue aux conducteurs, par un circuit RC en configuration en " T ". Pour la modélisation des réservoirs possédant des volumes relativement importants, deux hypothèses additionnelles sont considérées :

(H17) La pression à l'intérieur du composant est uniforme.

(H18) Les pertes de charge ont lieu à l'entrée et à la sortie exclusivement.

Les pertes de charge (ΔP) trouvées expérimentalement entre l'entrée et la sortie d'un composant seront donc modélisées par les résistances d'entrée et de sortie (R_{in}, R_{out}) du circuit RC équivalent. Cette approche trouve son fondement théorique dans les équations d'embout [Pukr02b] et [Pukr02a]. Ces équations sont de nature empirique ; elles décrivent un cas particulier de la loi de Poiseuille.

3.7.4 Modèle de la pile

La prochaine étape dans le processus de modélisation consiste à regrouper les sous modèles individuels obtenus à partir de la méthodologie décrite précédemment,

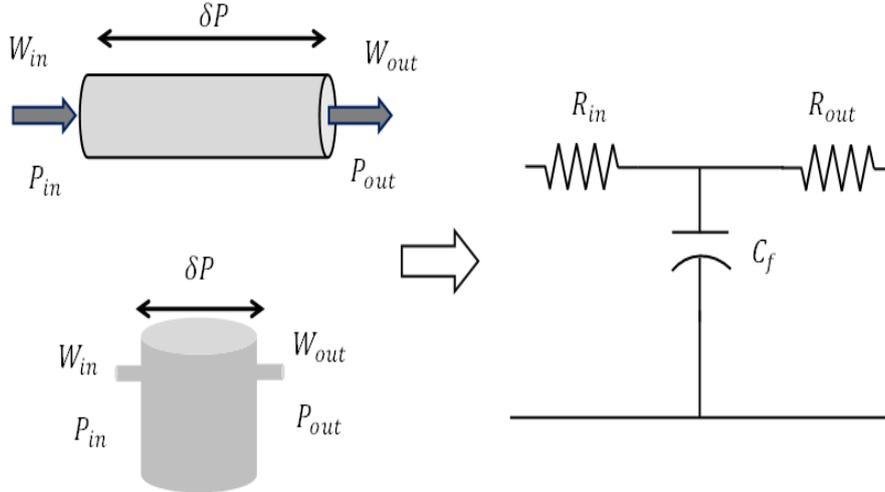


FIGURE 3.8 – Circuit électrique équivalent pour des composants pneumatiques

pour obtenir un circuit électrique équivalent comme modèle global du système pile à combustible. Pour ce faire, le système PàC sera supposé être divisé en trois sous-systèmes principaux : Le système d'admission des gaz comprend tous les éléments en amont de pile, les conduits de gaz, les vannes et le système d'humidification.

- Le cœur de pile lui même ;
- Le système d'évacuation des gaz comprend tous les éléments en aval du cœur de pile ;
- Les systèmes d'admission et d'évacuation des gaz seront donc modélisés avec moins de détails.

3.7.4.1 Système d'admission des gaz

le système d'humidification mérite une attention toute particulière étant donné que de la vapeur d'eau $W_{m,vap}$ est ajoutée au débit d'air sec $W_{m,in}$ et que la gestion de l'eau est un facteur clé pour le bon fonctionnement de la pile.

$$W_{hum,out} = W_{sec,in} - W_{m,vap} \quad (3.18)$$

Où

$$W_{m,vap} = f(W_{sec,in}, H_r, T) \quad (3.19)$$

En régime permanent, le bilan molaire dans l'humidificateur peut s'exprimer par l'équation (3.21). La quantité d'eau ajoutée $W_{m,vap}$ est fonction du débit d'air sec, de la température et du niveau d'hygrométrie souhaitée. Le taux d'évaporation peut varier selon l'état du système et l'hygrométrie à imposer ; il est donc nécessaire d'utiliser un composant électrique actif pour le modéliser dans le circuit électrique équivalent. Une source de courant commandée sera ainsi utilisée pour modéliser l'introduction d'eau (dans sa phase vapeur) au circuit d'air. Dans le modèle de l'humidificateur, il est aussi nécessaire de considérer les non linéarités issues de la saturation de la pression de vapeur d'eau. Le seuil maximum de la pression de vapeur imposée par la pression de saturation est introduit dans le circuit électrique par une diode Zenner que l'on peut observer dans la figure 3.9. La source de courant commandée et la diode Zenner donnent au modèle de l'humidificateur son caractère non linéaire.

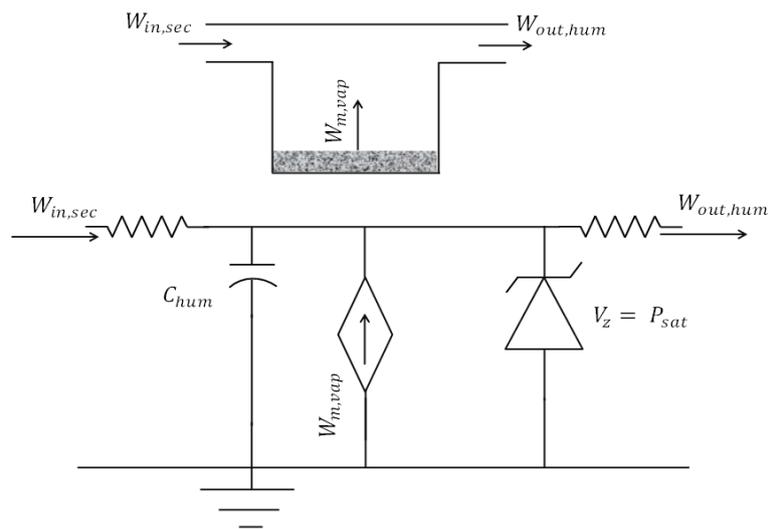


FIGURE 3.9 – Circuit électrique équivalent pour le système d'humidification d'air

3.8 Cœur de pile

3.8.0.2 Considérations générales

Les conduits de gaz dans la pile sont constitués principalement par des canaux qui peuvent aussi être modélisés par un circuit RC en configuration en "T". Les

paramètres du circuit (valeurs de résistance et capacité) sont fonction de la géométrie des canaux, de leur localisation dans la pile et de la nature du gaz considéré. D'une manière analogue au phénomène décrit pour l'humidificateur, le débit molaire à l'entrée de la pile et à sa sortie ne sont pas nécessairement identiques. De la vapeur d'eau est ajoutée (à la cathode) au débit d'air ($W_{in,sec}^c$) du fait de la réaction électrochimique ($W_{m,H_2O,r}$)

$$W_{m,H_2O,r} = \frac{NI}{2F} \quad (3.20)$$

du phénomène d'électro-osmose ($W_{m,H_2O,e}$)

$$W_{m,H_2O,e} = D.NI \quad (3.21)$$

et à la diffusion à travers la membrane (W_{m,H_2O}^m).

Les débits molaires d'oxygène, d'hydrogène et d'azote sont également variables ; de plus, la consommation d'oxygène et d'hydrogène par la réaction électrochimique $W_{m,O_2,r}$ (laquelle est fonction de la charge électrique imposée à la pile (3.22) et (3.23)

$$W_{m,O_2,r} = \frac{NI}{4F} \quad (3.22)$$

$$W_{m,H_2,r} = \frac{NI}{2F} \quad (3.23)$$

Dans le modèle développé ici, le comportement de chaque gaz est considéré en fonction de son propre état, raison pour laquelle un seul circuit RC est insuffisant pour obtenir un modèle permettant la prédiction du comportement de toutes les espèces. Ainsi, l'utilisation d'un modèle fondé sur des simples circuits RC ne permet pas l'estimation des différentes fractions molaires des espèces dans le cadre du fonctionnement de la pile sous charge.

Dans le but de concevoir un modèle pertinent permettant de décrire l'évolution des pressions partielles des différentes espèces à l'anode et à la cathode, les hypothèses suivantes sont considérées :

(H19) Chaque espèce est considérée comme un gaz parfait.

(H20) Les interactions entre les différentes espèces sont négligées.

(H21) Les propriétés de superposition des circuits électriques sont applicables.

D'après les considérations précédentes, le modèle consistera en quatre circuits RC

unitaires différents (un pour chaque espèce considérée : H_2, O_2, N_2, H_2O), mais couplés par des conditions limites de pression et débit (pression et débit globaux à respecter à l'entrée et à la sortie de la pile). Les valeurs de pression et débit (tension et courant équivalents respectivement) pour un point "i" donné seront obtenues par la somme des tensions et courants calculés au point "i" dans chacun de ces circuits unitaires (application du principe de superposition) :

$$Cathode \begin{cases} P^c(i) = \sum_k P_k^c(i) \\ \\ W_m^c(i) = \sum_k W_{m,k}^c(i) \end{cases} \quad \text{pour } k \in \{N_2, O_2, H_2O\} \quad (3.24)$$

et

$$Anode \begin{cases} P^a(i) = \sum_k P_k^a(i) \\ \\ W_m^a(i) = \sum_k W_{m,k}^a(i) \end{cases} \quad \text{pour } k \in \{N_2, H_2, H_2O\} \quad (3.25)$$

3.8.0.3 Circuits équivalents pour l'oxygène et l'hydrogène

En considérant que l'hydrogène et l'oxygène ne se diffusent pas à travers la membrane, les circuits représentant les canaux à la cathode et à l'anode pour ces deux espèces peuvent être analysés de façon indépendante. Le circuit résultant d'une telle approche est donné dans la figure 3.10. Il est à noter que la structure du circuit est valable aussi bien pour l'oxygène à la cathode que pour l'hydrogène à l'anode ; seules les valeurs numériques doivent être adaptées dans chaque cas. Dans le cas de l'oxygène et de l'hydrogène, les taux de consommation $W_{O_2,r}$ et $W_{H_2,r}$ sont fonctions du courant débité "I", du nombre de cellules "N" de la pile et du nombre d'électrons transférés (3.22, 3.23). La consommation d'oxygène et d'hydrogène est modélisée en intégrant une source de courant commandée dans le circuit électrique figure (3.10).

3.8.0.4 Circuits équivalents pour l'azote

Dans la littérature (voir [Famo03], [Golb04] et [Yerr03]), les modèles proposés pour la description du comportement de la PàC ne tiennent pas compte de la diffusion de

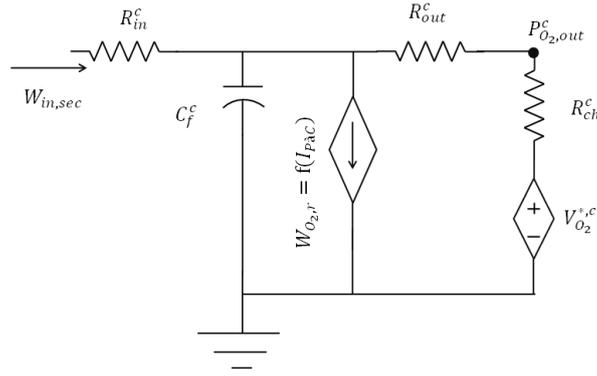


FIGURE 3.10 – Circuit équivalent pour l’oxygène/hydrogène

l’azote. En effet, ce phénomène est en général négligé lors d’un fonctionnement en mode ouvert. Cependant, si la pile fonctionne en "mode fermé" (la vanne de sortie côté anode est fermée, ce qui est le cas quand la minimisation de consommation de combustible est souhaitée), une quantité non négligeable d’azote peut s’accumuler transitoirement dans les canaux à l’anode, ce qui peut être considéré comme un dysfonctionnement qui entraîne une chute de la tension de pile.

La diffusion d’un gaz à travers la membrane est proportionnelle au gradient de pression et au gradient de concentration du gaz entre les canaux à la cathode et les canaux à l’anode comme il est illustré par le cas particulier de l’eau dans l’équation de $(W_{H_2O}^m)$. Les coefficients de diffusion peuvent être modélisés par des résistances constantes si une linéarisation autour du point de fonctionnement est envisagée, ou avec des résistances variables, si l’activité de l’eau de chaque côté de la membrane et donc le contenu d’eau de la membrane présentent des variations importantes. La consommation d’azote est modélisée en intégrant une source commandée de courant dans le circuit électrique de la figure 3.11 où la résistance $R_{N_2}^m$ représentant le coefficient de diffusion de l’azote est également constante.

3.8.0.5 Circuits équivalents pour la vapeur d’eau

Dans le cadre de la modélisation du comportement de la vapeur d’eau, nous assumons les hypothèses (H23, H24 et H25). Si la pile fonctionne dans des conditions de pression de vapeur proches de la pression de saturation P_{sat} , l’apparition d’eau dans sa phase liquide dans les canaux est possible et son effet doit donc être pris en

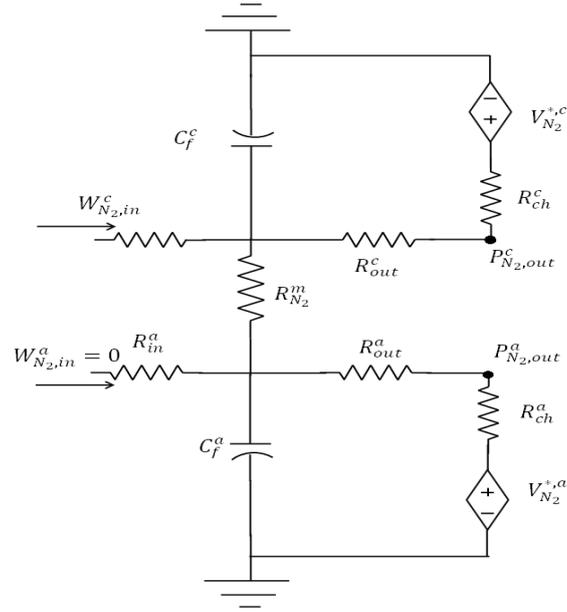


FIGURE 3.11 – Circuit équivalent pour l'azote

compte dans le modèle.

$$W_{H_2O}^{c,a} \leq P_{sat} \quad (3.26)$$

L'eau produite par la réaction électrochimique $W_{m,H_2O,r}$ et l'eau transférée par le phénomène d'électro-osmose $W_{m,H_2O,e}$ sont fonction du courant débité par la pile. Son effet combiné est modélisé par des sources de courant placées sur des nœuds représentant l'anode et la cathode, dans le circuit électrique équivalent pour l'eau. La liaison entre la cathode et l'anode permettant la diffusion de l'eau est modélisée par une résistance reliant le nœud "cathode" et le nœud "anode" de façon analogue à la diffusion d'azote présentée précédemment. Le changement de phase qui a lieu à des pressions proches de la pression de saturation et produisant un condensat sous forme de gouttelettes en suspension ou formant une zone humide sur les parois des canaux. Il est nécessaire d'introduire un élément avec un comportement non linéaire dans le circuit, permettant de rendre compte du seuil imposé par la pression de saturation. L'introduction d'une diode Zenner en parallèle avec le condensateur permet de limiter la tension (équivalent électrique pour la pression) de la valeur imposée, selon la température d'opération de la pile. Le débit de condensation est lui aussi représenté par la diode Zenner sous la forme du courant traversant la diode Zenner, voir le schéma dans la figure 3.12.

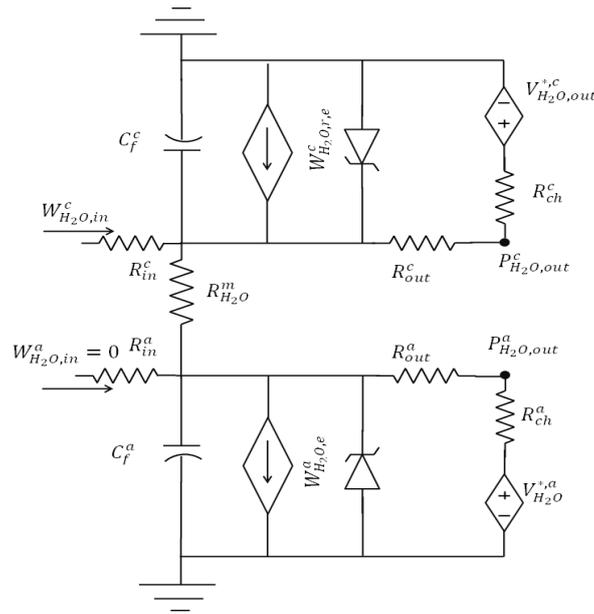


FIGURE 3.12 – Circuit équivalent pour la vapeur d'eau

3.8.0.6 Identification des paramètres

Coefficients de diffusion

Dans la plus part des situations, la diffusion de l'azote à travers la membrane peut être négligée, néanmoins dans des cas très particuliers tels que le fonctionnement en mode "hydrogène fermé", la sortie de l'hydrogène est fermée et est ouverte seulement pour purger le canal anodique. L'azote peut s'accumuler en quantité suffisamment importante pour affecter le rendement de la pile. Si on suppose donc, que seuls l'azote et la vapeur d'eau peuvent se diffuser à travers la membrane (c'est-à-dire l'hypothèse (H9)). Ceci implique que les débits de diffusion des espèces à travers la membrane concernent seulement les espèces N_2 et H_2O . La modélisation du passage de l'eau à travers la membrane est donnée par deux relations différentes. Ceux-ci sont dépendantes de la surface de la membrane, de la densité du courant et du degré relatif d'humidité. Le débit de transfert de l'eau à travers la membrane est régi par deux phénomènes différents [Nguy93] et [Spri91].

Le premier phénomène est le transfert de l'eau de l'anode vers la cathode et s'appelle flux électro-osmotique. Le débit moléculaire de l'eau dans une cellule est donné en fonction de la densité du courant (i), du nombre de "Faraday" (F) et du coefficient d'électro-osmose (n_d) [Hina08]. Ce dernier est le nombre de molécules d'eau qui

traversent la membrane [Ryan06]. Les débits molaires au niveau de la membrane sont donnés par :

$$\begin{aligned}
N_{H_2} &= \frac{I}{\varepsilon A_{fc} 2F} \\
N_{O_2} &= \frac{I}{\varepsilon A_{fc} 4F} \\
N_{v,an} &= \frac{1}{\varepsilon} N_{v,mb} \\
N_{v,ca} &= \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{I}{2F A_{fc}} + N_{v,mb} \right)
\end{aligned} \tag{3.27}$$

Avec F la constante de Faraday, I le courant et $N_{v,mb}$ le flux d'eau de vapeur compte tenu de la traînée électro-osmotique et des phénomène de diffusion.

$$N_{v,mb} = n_d \frac{J}{F} - \alpha_w D_w \frac{c_{v,ca,mb} - c_{v,an,mb}}{t_{mb}} \tag{3.28}$$

avec n_d le coefficient électro-osmotique, J la densité de courant, α_w un paramètre ajustable, D_w le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans membrane et t_{mb} l'épaisseur de la membrane. Le coefficient électro-osmotique, vapeur coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans la membrane D_w et les concentrations de la vapeur d'eau sont calculés par :

$$\begin{aligned}
n_d &= \frac{2.5 \lambda_{mb}}{22} \\
D_w &= 3.5 \times 10^{-6} \left(\frac{\lambda_{mb}}{14} \right) \exp \left[\frac{-2436}{T} \right] \\
c_{v,e,mb} &= \frac{\rho_{mb,dry}}{M_{mb,dry}} \lambda_e
\end{aligned} \tag{3.29}$$

Avec λ_{mb} est la teneur en eau de la membrane, $\rho_{mb,sec}$ la densité de membrane sèche, $M_{mb,sec}$ la membrane sèche masse molaire et λ_e la membrane teneur en eau à côté de l'électrode concernant. La teneur en eau de la membrane est une interpolation linéaire de deux fonctions polynômiales représentant la teneur en eau de la membrane à $30^\circ C$ présenté par [Spri91] et à $80^\circ C$ présenté par [Hina94]. Cependant en fonction de la valeur de l'activité de l'eau la fonction peut être considérée comme linéaire ou constante.

$$\lambda_j = \begin{cases} (\lambda_j^{80^\circ C} - \lambda_j^{30^\circ C}) \left(\frac{T-303}{353-303} \right) + \lambda_j^{30^\circ C} & \text{pour } 0 \leq a \leq 1 \\ \left(\frac{16.8 - \lambda_j^{a=1}}{3-1} \right) (a_j - 1) + \lambda_j^{a=1} & \text{pour } 1 < a \leq 3 \\ 16.8 & \text{pour } a > 3 \end{cases} \tag{3.30}$$

Avec la fonction de la teneur en eau de la membrane de l'activité de l'eau tel que :

$$\begin{aligned}\lambda_j^{30} &= 0.043 + 17.81a_j - 39.85a_j^2 + 36a_j^3 \\ \lambda_j^{80} &= 0.3 + 10.8a_j - 16a_j^2 + 14.1a_j^3\end{aligned}\tag{3.31}$$

Avec a l'activité de l'eau et j l'indice définissant l'électrode en regard de la surface de la membrane ou la membrane elle-même, et l'activité de l'eau est donnée respectivement à l'anode et à la cathode par :

$$\begin{cases} a^c = \frac{P_{H_2}^c O}{P_{sat}} \\ a^a = \frac{P_{H_2}^a O}{P_{sat}} \end{cases}\tag{3.32}$$

La pression de vapeur saturante, dont on a besoin pour calculer les fractions molaires d'eau aux entrées des couches de diffusion, dépend de la température d'humidificateur. On peut la déterminer en utilisant l'expression empirique de C.-Y. Hsu et al. [Hsu09] :

$$\begin{aligned}\log(P_{sat}(T)) &= -2,1794 + 0.02953.(T - 273) \\ &\quad - 9,18937.10^{-5}(T - 273)^2 + 1,4454.10^{-7}.(T - 273)^3\end{aligned}\tag{3.33}$$

avec T en Kelvin et P_{sat} en atm. On peut aussi avoir recours (ce que nous ferons) à la formule de M. Wöhr [Noiy12], T étant alors en Kelvin et P_{sat} en Pa :

$$P_{sat}(T) = 100.10^A \frac{B}{C+T-273}\tag{3.34}$$

avec $A = 8,073$, $B = 1656,39$ K, et $C = 226,86$ K.

Identification des Résistances et Condensateurs

D'une façon générale, tous les composants possédant un volume non négligeable seront modélisés en les découplant en trois parties :

- La première partie consiste à modéliser le volume des composants par une capacité C_f ,
- La deuxième partie modélise l'embout d'entrée (considéré de volume négligeable) par une résistance d'entrée R_{in} ,
- La dernière partie modélise l'embout de sortie (considéré lui aussi de volume négligeable), par une résistance de sortie R_{out} .

En utilisant cette méthode pour tous les composants, les pertes de charge sont concentrées aux entrées et sorties de chaque élément, permettant d'obtenir la même disposition en T du circuit RC (figure 3.8) pour tous les éléments des circuits pneumatiques du système.

En considérant que l'écoulement est laminaire, la valeur des résistances est supposée rester constante. Cette simplification est fréquemment utilisée dans la littérature [Yerr03], [Golb04] et [Pukr04b]. Cependant, nos résultats expérimentaux suggèrent fortement que la relation entre les pertes de charge et le débit ne correspond pas à une équation linéaire, mais plutôt à une équation quadratique de la forme (3.35)

$$\Delta P = aW^2 + b \quad (3.35)$$

Où a est un coefficient lié à la résistance pneumatique et b est un coefficient d'ajustement pour l'offset due des différences d'étalonnage des capteurs existant entre les capteurs à l'entrée et à la sortie du banc d'essais expérimental utilisé.

En partant de l'hypothèse que les pertes de charge peuvent être présentées de la forme (3.36) (loi de Poiseuille avec section transversale et viscosité constante) et en considérant (3.35), il est possible de définir la résistance pneumatique par (3.37).

$$\Delta P = R_f.W \quad (3.36)$$

$$R_f = a.W \quad (3.37)$$

Les systèmes d'admission et d'évacuation des gaz sont similaires, il est donc possible de construire des modèles similaires pour ces deux systèmes. Néanmoins, le comportement des gaz dans ce sous-système que constituent les évacuations, ne fait pas partie de nos priorités de modélisation. Nous considérons donc que pour notre propos, une impédance $R_{ch}^{a,c}$ est suffisante pour modéliser le système d'évacuation des gaz. Il est important de préciser que la valeur de l'impédance $R_{ch}^{a,c}$ est fortement liée au banc d'essais, et non pas à la pile ni au système pile lui-même.

Pour modéliser les résistances pneumatiques, certains auteurs se contentent d'une approche linéaire [Hern05], [Famo03]. Des essais expérimentaux, montrent que les résistances pneumatiques sont loin d'être constantes. En fait, les résistances de charge R_{ch}^c , R_{ch}^a , d'entrée R_{in}^c , R_{in}^a , de sorties R_{out}^c , R_{out}^a présentent un comportement proportionnel aux débits de gaz. Des résultats expérimentaux explicitant ce point sont

présentés dans la figure 3.13. Les coefficients a et b dans (3.41) sont fonctions de la capacité des canaux et des résistances pneumatiques d'entrée et de sortie. Leurs valeurs sont estimées à partir des essais dynamiques autour d'un point de fonctionnement en utilisant la méthode des moindres carrés récursifs, permettant de remonter aux valeurs de capacités et de résistances.

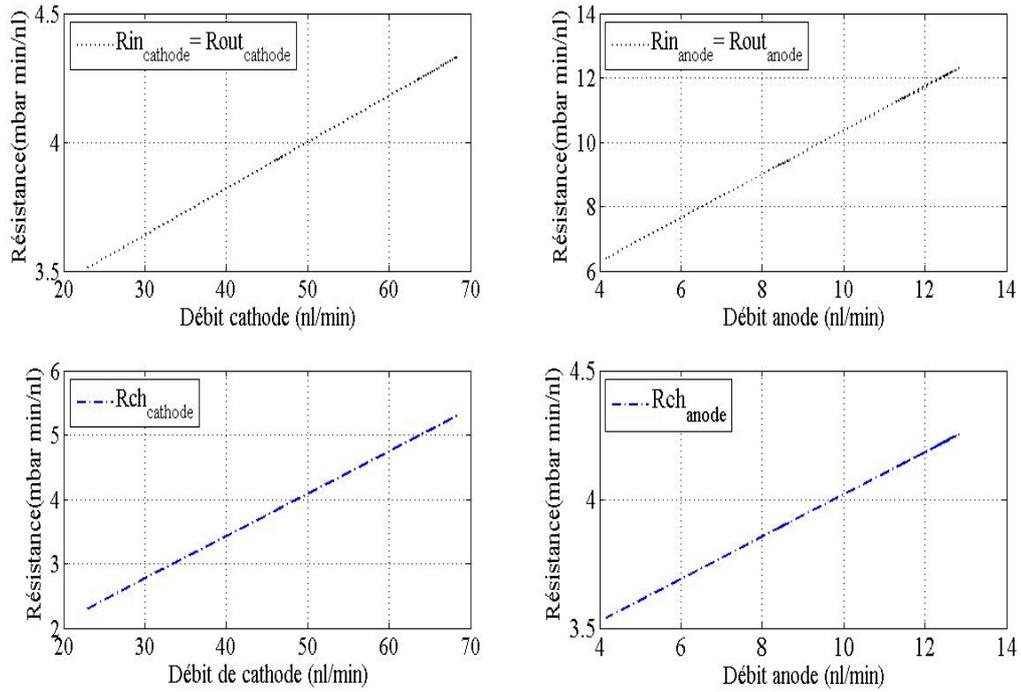


FIGURE 3.13 – Caractérisation de différentes résistances

La capacité C_m est introduite pour modéliser la relation entre le contenu d'eau dans la membrane et l'activité d'eau a_m à ses surfaces. Une valeur approchée de cette relation pour une membrane de type Nafion 117 est donnée dans [NGU93]. les capacités des couches de diffusion sont obtenues à partir de (3.38). Le volume libre est donné par l'équation suivante :

$$v = N.P.L.H.E \quad (3.38)$$

où :

N : le nombre d'électrodes,

P : le coefficient de porosité,

L : la longueur de l'électrode,

H : la hauteur de l'électrode,

E : l'électrode,

La capacité peut être calculée à partir de l'équation (3.17).

Les paramètres nécessaires sont donnés dans [Hern06].

3.9 Modèles circuits électriques équivalents(Becherif)

Le circuit global donc formulé est représenté sur la figure 3.14. Chacun des débits est désigné par la lettre W . Nous devons développer les équations de manière à résoudre pour les débits inconnus dans le condensateur et de prédire le potentiel global de la pile. Cette section présente la formulation de ces équations basées sur les lois de Kirchhoff, qui sont ensuite utilisés pour effectuer les simulations. La lettre W désigne le débit alors que les exposants I , a , c et m désignent la fonction de courant anodique, cathodique ou sections membrane, respectivement débit, [Bech10b] et [Bech11a].

Les indices en premier lieu sont la première lettre de l'espèce qu'ils dénotent, par exemple, avec de l'eau, H pour hydrogène, etc , C_f désigne soit le débit ou la chute de pression à travers le condensateur dans la section correspondante .

' r ' , ' $r - e$ ' , ' m ' , ' in ' , ' out ' et ' sat ' désignent réagi , inverser électro , membrane , entrée, sortie et la saturation.

Les équations ci-après concernent les débits dans les différentes branches du circuit représenté sur la figure 3.14

$$W_{in}^c + W_{w,r}^I + W_{w,r-e}^I = W_{O,r}^I + W_{Psat}^c + W_{N,m} + W_{w,m} + W_{out}^c \quad (3.39)$$

$$W_{in}^a + W_{N,m} + W_{w,m} + W_{Cf}^m = W_{Cf}^c + W_{w,r-e}^I + W_{H,r}^I + W_{Psat}^a + W_{out}^a \quad (3.40)$$

$$V_{Cf}^c = (R_{out}^c + R_{ch}^c)W_{out}^c + V^c \quad (3.41)$$

$$V_{Cf}^a = (R_{out}^a + R_{ch}^a)W_{out}^a + V^a \quad (3.42)$$

$$V_{in}^c = (R_{in}^c)W_{in}^a + V_{Cf}^c \quad (3.43)$$

$$V_{Cf}^m = (0.5R_{w,m} + R_{out}^a + R_{ch}^a)W_{out}^a + P^a \quad (3.44)$$

$$V_{Cf}^m = (0.5R_{w,m} + R_{out}^a + R_{ch}^a)W_{out}^a + V^a \quad (3.45)$$

$$\frac{dV_{Cf}^c}{dt} = \frac{W_{Cf}^c}{C_f^c} \quad (3.46)$$

$$\frac{dV_{Cf}^a}{dt} = \frac{W_{Cf}^a}{C_f^a} \quad (3.47)$$

$$\frac{dV_{Cf}^m}{dt} = \frac{W_{Cf}^m}{C_f^m} \quad (3.48)$$

$$V^{ca} = R_{N,m} W_{N,m} \quad (3.49)$$

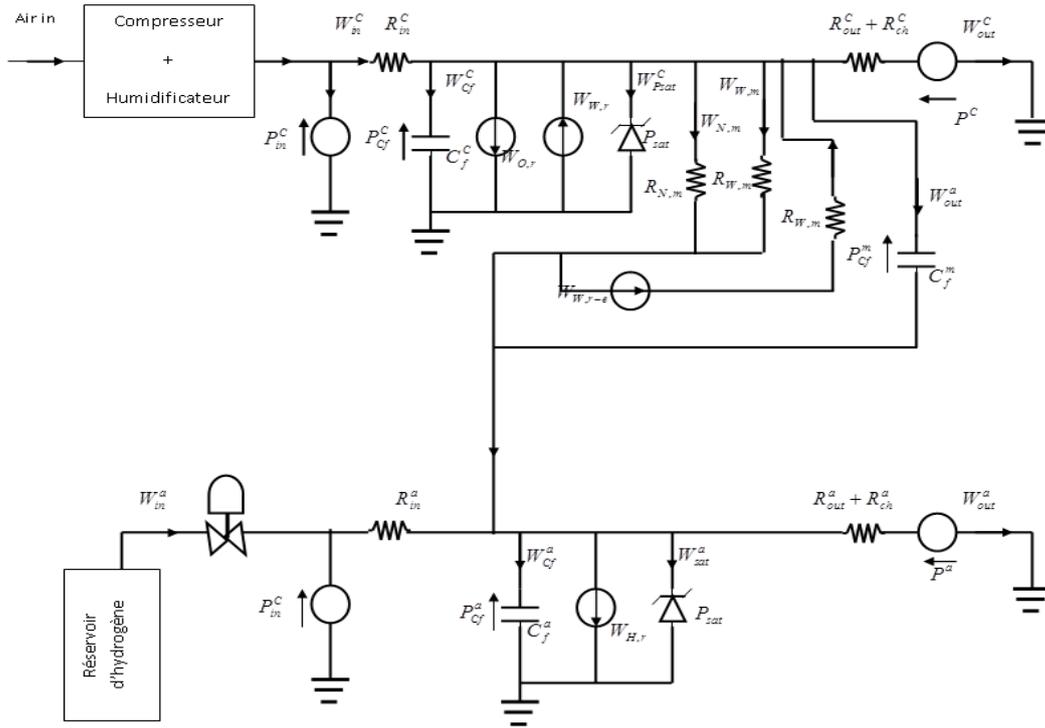


FIGURE 3.14 – Modèles circuits électriques équivalents(Becherif)

3.10 Comparaison Des Modèles Dynamiques

Le PàC utilisée dans cette étude est de type (PEMFC) et a été assemblée avec des membranes disponibles dans le commerce (*GoreMESGAPrimeasrie5510*). Une description détaillée de l'installation d'essai de $1kW$ peut être trouvée dans [Hiss05]. Le banc d'essai a été conçu pour tester une PàC de $1kW$ dans différents modes de fonctionnement et pour différents paramètres de fonctionnement (pression, la température des gaz, température de fonctionnement, le taux d'utilisation de gaz, les

taux d'humidification pour l'air et l'hydrogène entrants, la charge électrique). De nombreux paramètres physiques mis en jeu dans la pile peuvent être contrôlés et mesurés afin de contrôler les conditions de fonctionnement de la PàC le plus fidèlement possible. En outre, les débits d'entrée et de sortie, les pressions, les températures, les tensions des cellules individuelles, et le courant peuvent être suivis en utilisant un interface développé avec *Labview*TM.

Dans chacun des essais, les pressions d'entrées hydrogène et air sont asservies au fur et à mesure que le courant augmente par incréments de 5 ou 2A. Ainsi, la puissance électrique délivrée par la pile croît et la tension de pile chute petit à petit. Quand une cellule atteint le seuil de $381mV$, la puissance maximale atteinte au cours de l'essai est relevée et fait figure de réponse. Il est à noter que la puissance électrique maximale peut être obtenue pour des valeurs de courants différentes voir la figure 3.15.

Dans les essais, nous avons recours au mode régulation de pression. Des débits de gaz côtés hydrogène et air sont alors fixés à l'aide des régulateurs de débit massique qui permettent de maîtriser le débit de gaz dans la pile à partir d'une consigne générée par le programme de gestion du processus (développé sous Labview). Les consignes de débits de gaz sont calculées par le programme à partir des relations liant ces débits de fluides gazeux au courant de pile. Les données utilisées dans la simulation sont recueillies à partir d'une pile PEMFC de 20 cellules par $100cm^2$ de surface de chaque cellule, l'épaisseur de la membrane est de $25\mu m$ et de la puissance nominale est d'environ $700W$. De nombreux paramètres physiques mis en jeu dans la pile peuvent être mesurés. Entrée-sortie grandeur mesurée sont les débits de canal cathode et anode, entrée-sortie pressions d'air de cathode et anode, la température moyenne et l'humidité de PàC, la tension de la pile et du courant qui est traditionnellement considéré comme une perturbation mesurable au système. En outre, les pertes des tensions : activation, de concentration et ohmiques sont dépendant du courant. La pression d'hydrogène est calculée comme une étape intermédiaire de calcul de la tension thermodynamique qui est obtenue par l'équation de Nernst. La tension de la pile est la différence entre les tensions thermodynamiques et les pertes. Lors de ces essais, différentes échelons de courant sont appliquées à la PàC ce présenter le comportement en régime permanent et transitoire. Tout d'abord, la

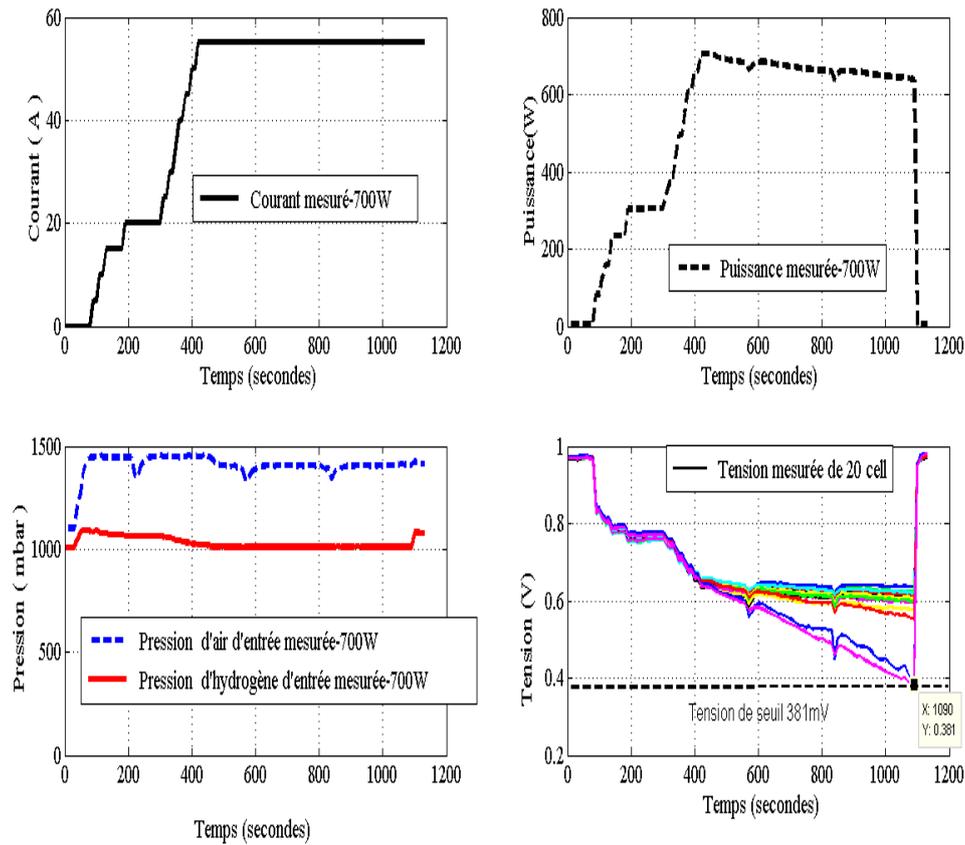


FIGURE 3.15 – Evolution des différents paramètres au cours de l’essai

PàC est activée avec une puissance d’environ $700W$ et une charge qui consomme un courant d’environ $55A$ (3.16). Dans la figure (a), la tension de la pile commence à partir de la tension de circuit ouvert (OCV). En dehors de cette zone, la tension de simulation est sensiblement proche de la tension obtenue expérimentalement, les deux sont environ de $11.8V$. Larminie-Dicks a simplifié les phénomènes physiques et électrochimiques de la PàC vers le circuit électrique équivalent. Ce circuit permet de concevoir la caractéristique de la conception du combustible dans 3.3-(a). Nous considérons l’anode et la cathode similaires, mais leurs interactions sont réversibles. Comme il est remarqué, nous avons abrégé certains phénomènes communs, de sorte que la caractéristique obtenue soit nettement influencée et peut être substituée. L’utilisation d’un modèle d’impédance pour présenter une PàC est donnée par la figure 3.3-(c), avec l’impédance proposée. La variation de la charge de $700W$ à $400W$ sous un faible courant de $55A$ à $30A$, font que les deux modèles Larminie-Dicks et

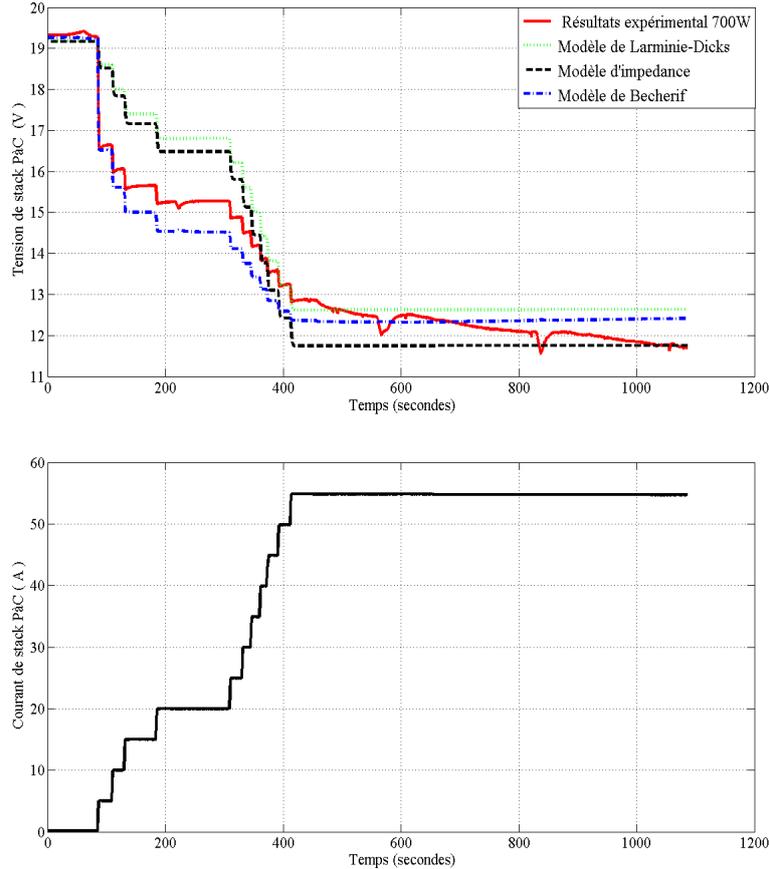


FIGURE 3.16 – Tensions simulées et expérimentales obtenues pour une pile PEMFC 700W

d'impédance ne donnent pas les résultats désirés. Après l'ajustement de ces valeurs de résistances et de capacités, les courbes de tension de stack PàC sont représentées sur la figure 3.17. Dans ces modèles dynamiques, le changement de courant est simuler par le changement de charge. Les variables des caractéristiques de stack PàC qui ont été observés et les résultats de la simulation sont représentés sur les figures 3.15, 3.16 et 3.17.

Pour vérifier la validité du modèle, une autre expérience sur la PEMFC 1kW avec 20 cellules a été réalisée. Dans la figure 3.18, les réponses dynamiques de la puissance de la pile mesurée et de la température sont présentées pour un courant de charge de la pile compris entre 0 et 30A, puis entre 55A et 40A en diminuant de plus en plus les variations. Lorsque le courant de charge de la pile a été progressivement augmenté de 0 à 30A, la puissance de la pile augmente jusqu'à environ 400W,

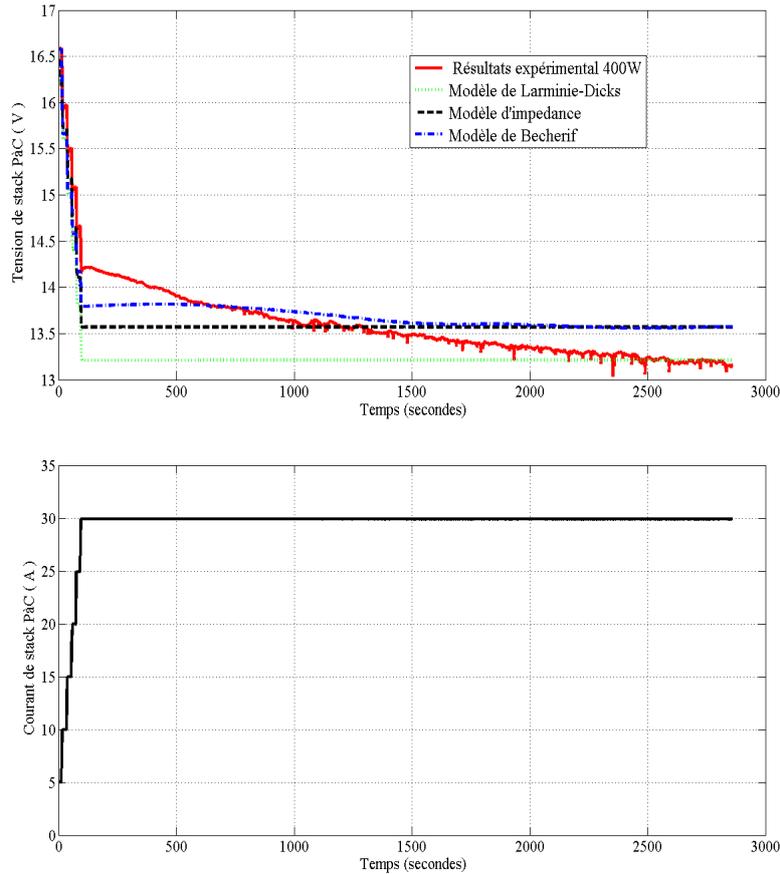


FIGURE 3.17 – Tensions simulées et expérimentales obtenues pour une pile PEMFC 400W

la température de la pile passe de $50^{\circ}C$ à $54^{\circ}C$ en raison du libèrement de chaleur dégagée pendant la réaction électrochimique. Lorsque le courant de charge de la pile passe de $55A$ à $40A$, la température de la pile diminue à $2^{\circ}C$. La figure 3.19 donne les résultats de la mesure de la tension transitoire et les courbes de réponse dynamiques lorsque le courant de charge est passé de $0A$ à $30A$, $55A$ et $40A$. A partir de la figure, on peut voir que la courbe de tension augment progressivement lorsque le courant de la pile diminue et lorsque la charge diminue. Dans ce cas, les paramètres sont fixés pour tracer les courbes de tension des Larminie-Dicks et d'impédance.

Bien que les paramètres du modèle de circuit électrique équivalent (Becherif) sont restés fixe pour toutes les expériences. La figure montre clairement une bonne précision du modèle de circuit électrique équivalent (Becherif) si elle est comparée aux deux autres modèles. Ceci est confirmé par la figure 3.20 qui donne une erreur re-

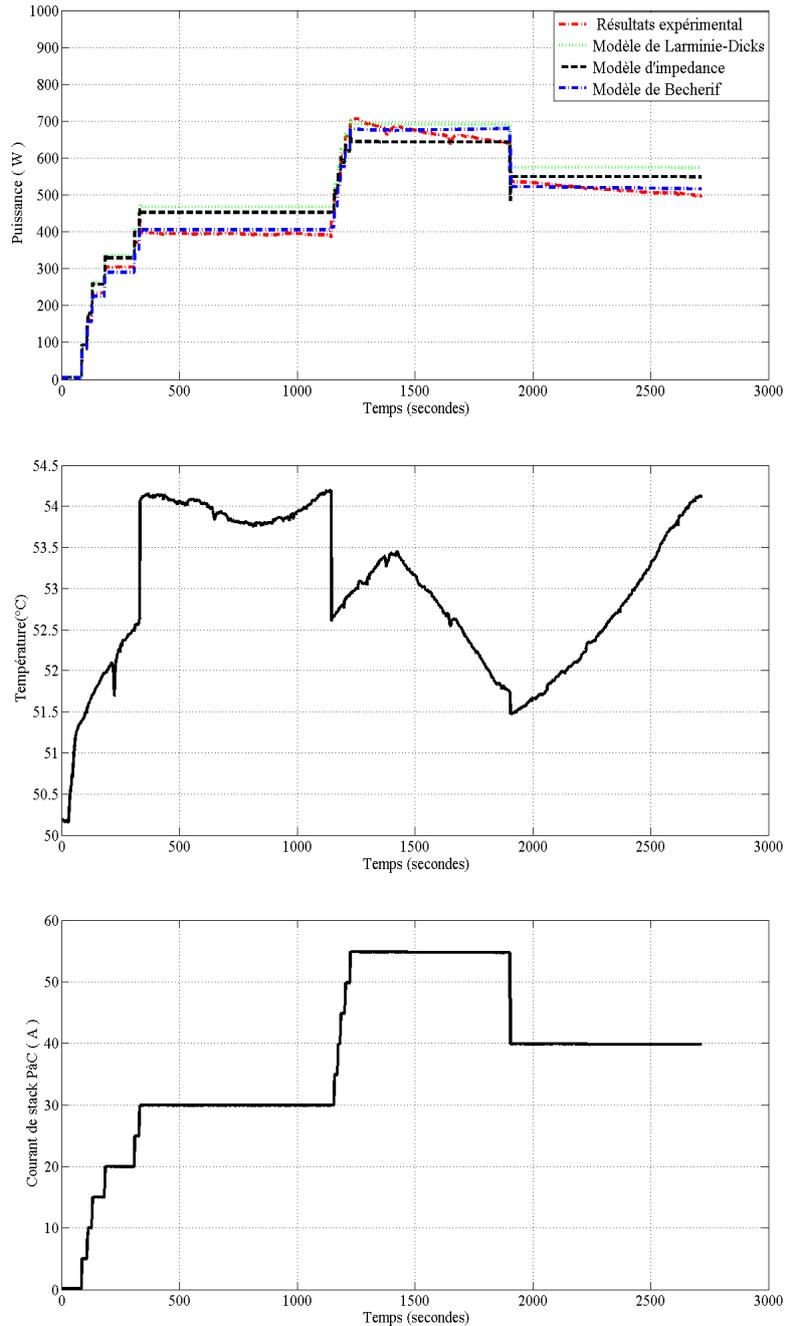


FIGURE 3.18 – Courbe de variation dynamique du stack PàC (courant, la température et de puissance)

lative pour chaque modèle. Le modèle de Larminie-Dicks est le plus simple, mais il donne une erreur maximale qui est d'environ 20%, le modèle d'impédance en dépit de sa complexité, à une erreur plus acceptable qui ne dépasse pas 15%. Avec une erreur ne dépassant pas 5% au maximum, le modèle de circuit électrique équivalent (Be-

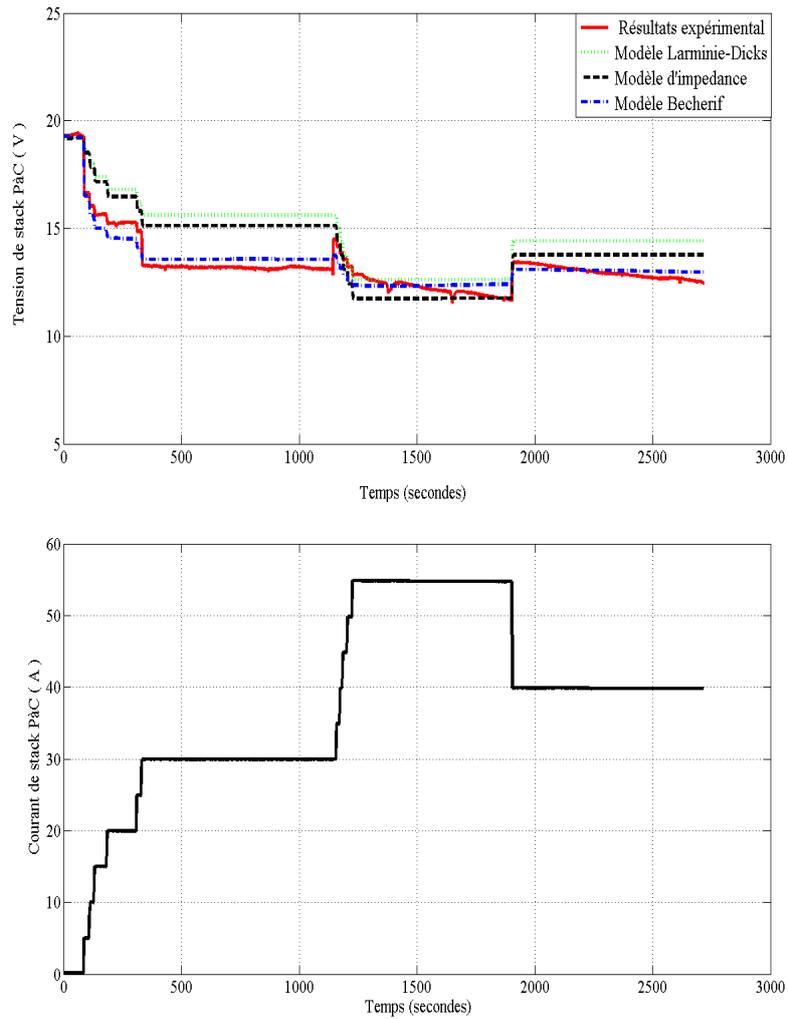


FIGURE 3.19 – Tension simulée et expérimentale d’essai dynamique

cherif) présente de bien meilleurs résultats. Le tableau 3.1 de comparaison résume les propriétés les plus importantes des modèles indiqués dans ce présent chapitre.

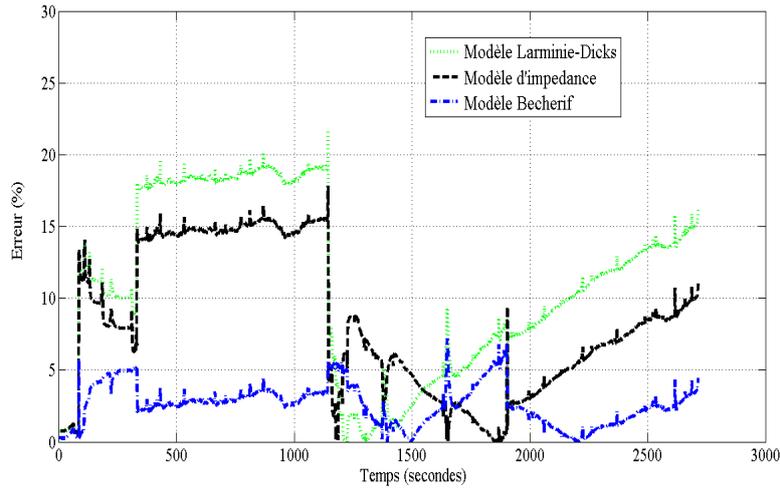


FIGURE 3.20 – Erreur relative de modèles

TABLE 3.1 – Propriétés de modèles dynamiques

	Larminie-Dicks	Impedance	Circuit électrique équivalent
Nombre de paramètre	4	6	10
Nombre de variable (input/output)	1/1	1/1	11/4
simplicité	Simple	Complex	Complex
Précision	modeste précision	bonne précision	Haute precision
Finesse	L'utilisation fréquente dans les véhicules hybrides, relié au convertisseur	L'utilisation fréquente dans le diagnostic et le système embarqué	Proposé pour tous les domaines : le diagnostic, le contrôle et système embarqué
Effet de la température	Négliger	Négliger	Considérant la température

3.11 Conclusion

Les modèles dynamiques notamment des circuits électriques sont conçus habituellement pour définir un système. C'est-à-dire qu'ils sont conçus pour étudier la fonction d'un système électrique comportant une PàC. Dans ce chapitre, trois modèles dynamiques des PEMFC sont étudiés. Ils ont été modélisés dans l'environnement Matlab/Simulink. Une série de simulation et analyses ont été effectuées. Prenant en compte la tension et les différentes puissances de PàC avec changement de charge. La comparaison entre les données et les résultats expérimentaux des simulations montrent que les modèles donnent de bons résultats. Le modèle de Larminie-Dicks est le modèle le plus simple, en ce qui concerne le modèle d'impédance et le modèle par circuit électrique équivalent (Becherif), ce dernier offre une précision quatre fois supérieure au modèle Larminie-Dicks et trois fois supérieure au modèle d'impédance, car il est moins sensible aux fluctuations de puissances et aux variations relatives aux conditions de charge.

Chapitre 4

Modélisation et commande du système complet

4.1 Introduction

LE rendement et la performance de la pile à combustible sont liés fortement aux fonctionnements de ses auxiliaires. Quand une charge est alimentée par la PàC, l'oxygène et l'hydrogène sont consommés, puis de la chaleur et de l'eau sont générés dans le système. Ainsi pour bien mener le fonctionnement d'un système PàC, la régulation des débits, des pressions, de la température et de l'eau est exigée. Une variété de problèmes de contrôle a été identifiée et discutée dans la littérature.

4.2 Problématiques de la commande dans la PàC

4.2.1 Maximisation de l'énergie fournie par la PàC

Les auxiliaires du système à PàC sont alimentés en électricité par la pile. Le compresseur est l'auxiliaire qui consomme le plus d'énergie. Il peut atteindre jusqu'à 20% de la puissance totale [Pukr04a]. Pour cela le contrôle du système d'alimentation en air est important, il permet d'optimiser la puissance nette de la PàC. Cette dernière est égale à la différence entre la puissance fournie par la pile à combustible et la puissance consommée par les auxiliaires. D'après [Pukr04c], la puissance nette optimale est atteinte pour un rapport d'excès d'oxygène compris entre 2 et 2,5.

Ce coefficient est égal au rapport entre le débit d'oxygène à l'entrée de la cathode et le débit d'oxygène qui réagit avec l'hydrogène. L'objectif est donc de maintenir un rapport d'excès d'oxygène optimal, afin d'atteindre un niveau de débit d'air suffisant. Cela permet de répondre au besoin nécessaire de la charge et d'optimiser la puissance nette du système à PàC. Une méthode d'optimisation de la puissance nette délivrée par la PàC est proposée par [Chan09b] et [ORou09] en utilisant la méthode de l'Extremum Seeking. Cet algorithme est une méthode effective pour les problèmes d'optimisation, et pour les systèmes dynamiques mal connus.

4.2.2 Gestion de l'eau

Le problème de la gestion de l'eau est de maintenir un coefficient d'hydratation de la membrane constant. Cette dernière est sensible au séchage et au noyage [McCa08]. Ces deux contraintes ralentissent la vitesse de passage des gaz et dégradent la membrane. Il est démontré expérimentalement qu'un excès d'eau dégrade la tension électrique de sortie de la PàC [McKa08], et un manque d'hydratation réduit sa durée de vie. Par contre, un taux d'humidité élevé est souhaitable pour assurer la conductivité des protons à travers la membrane. Il faut noter qu'une mauvaise gestion de l'eau peut créer une chute de tension de 20% à 40% [Bchi97]. [Wang05b] montre que la dynamique de changement de l'humidité dans la pile a une constante de temps qui est beaucoup plus lente que celle des gaz entrant, bien que l'humidité a un effet direct sur la conductivité de la membrane et la résistance interne.

4.2.3 Gestion de la température

Les piles à combustible de type PEM sont sensibles à la température durant le fonctionnement. Une température élevée accélère la réaction chimique et ainsi améliore la performance du système. Mais hélas, comme cet air est injecté dans la PàC, cela va aussi provoquer le séchage de la membrane, il faut donc trouver la température idéale de fonctionnement. Les problématiques d'hydratation du système sont dépendantes de la gestion de l'eau et de la gestion de température, comme traitées dans [Paqu08] et [Will11]. L'impact de la gestion de l'eau et de la température sur le système PàC est étudié dans [Badr01]. Un modèle pour la prédiction des réponses

transitoires de la PàC a été donné dans [Amph96]. Les phénomènes transitoires de transfert de chaleur ont été incorporés dans ce modèle.

4.2.4 Dégradation de la membrane

Lors du fonctionnement, il est indispensable de garder la différence entre la pression de l'anode et celle de la cathode inférieure à 0,5 bar. Cette différence peut déformer la membrane et réduire la durée de vie de la PàC. Pour cela, les pressions dans la cathode et dans l'anode sont fixées à une pression donnée. En gardant une pression élevée fixe, la pile ne risque pas un manque d'oxygène dans la cathode lors de la variation de la charge [Li09].

4.3 Etat de l'art sur la commande des systèmes PàC

Ces dernières années, plusieurs stratégies de commandes ont été proposées pour contrôler le système d'alimentation en air de la PàC. Parmi les différents approches de modélisation on peut citer l'approche de modélisation dédiée au contrôle [Pukr04c] et [Suh06]. Plusieurs types de commandes ont été proposés dans [Pukr04b], [Pukr04a] et [Pukr04c]. Dans [Pukr04c], une première modélisation dynamique complète du système PàC a été développée. Le modèle proposé est constitué de 9 équations dynamiques basées sur des relations thermodynamiques. L'optimisation de la puissance nette est obtenue, en appliquant un contrôleur par anticipation, tout en linéarisant le modèle autour d'un point de fonctionnement. La régulation du débit d'air en se basant sur la mesure de débit à l'entrée des tuyaux d'air introduit une limitation puisque le débit d'air actuel à l'entrée de la cathode n'est pas le même que celui à la sortie du compresseur [Pukr04b]. D'autre part, une puissance élevée demandée par le compresseur, si ce dernier est alimenté directement par la pile, peut causer une diminution dans la puissance fournie par la pile. A noter que l'alimentation en hydrogène est plus importante que celle en air quand un réformeur est utilisé, sachant que ce dernier a une dynamique relativement lente [Pukr05].

Des travaux sont basés sur le modèle proposé par [Suh06] qui représente le système d'air d'une PàC type PEM. Sous certaines hypothèses, les auteurs ont réduit le

modèle de 9 à 4 états. Ainsi, un régulateur de type proportionnel intégral (PI) est appliqué. Par la suite les auteurs dans [Talj09c], [Talj11] [Talj10] et [Talj09a] ont réduit le modèle 4 états proposé par 3 états "partiellement linéaire". Des validations par simulations et par expérimentations montrent que l'erreur relative causée par la réduction ne dépasse pas 5 %. Une autre étude de stabilité a prouvé que le système peut être localement stabilisable autour de tout point de fonctionnement avec un simple contrôleur proportionnel (P) ou proportionnel-intégral (PI). La stratégie de commande est illustrée par une boucle de contrôle en cascade dont différentes lois de commande ont été proposées, pour la boucle interne réglant le débit d'air. Un mode glissant d'ordre supérieur, l'algorithme du super-twisting, avec gains variables, a été synthétisé et validé expérimentalement sur deux bancs d'essais, l'un au FCLab et l'autre au LGEP. Cette méthode a été comparée expérimentalement à un contrôleur (IP) et un régulateur RST.

Quelques travaux comme [Grgn06], les paramètres de la PàC sont considérés constants (température, humidité, volume des électrodes et les paramètres du compresseur). Cependant, ces paramètres varient durant le fonctionnement réel, des variations paramétriques ont été appliquées dans [Kunu09] et une commande par mode glissant d'ordre 2 est élaborée pour contrôler le débit d'air du compresseur. Dans [Matr12b] et [Matr12a], deux systèmes d'alimentation en air de la pile ont été étudiés. Le premier est basé sur l'utilisation d'un compresseur à double vis [Matr13b]. Dans ce cas, la contrainte considérée est celle du manque d'oxygène à la cathode. Ainsi, un gestionnaire de charge basé sur la technique d'Extremum Seeking basée sur le modèle est appliqué pour éviter cette contrainte. Le deuxième système étudié utilise un compresseur centrifuge, les contraintes qui peuvent être violées sont le risque que le compresseur fonctionne hors de sa zone nominale (zone de pompage) et aussi le manque d'oxygène à la cathode. Le problème de commande a été résolu en utilisant la commande non-linéaire par mode glissant d'ordre 2 où deux types d'algorithme sont synthétisés, l'algorithme du mode glissant d'ordre 2 sous-optimal et l'algorithme du Super Twisting adaptatif ainsi que la technique de l'Extremum Seeking.

Le besoin pour des stratégies de contrôle qui peuvent répondre rapidement et réguler les conditions opératoires de la PàC a été souligné. Malgré le grand nombre de publications traitant de la modélisation des PàC, les modèles appropriés pour les

études de contrôle restent peu nombreux.

4.4 Modèle dynamique du système à pile à combustible

Le choix du type du moto-compresseur dépend de la pression de refoulement et des besoins en air qui déterminent une capacité de production et aussi la qualité d'air recherché. Le choix du compresseur se fait en fonction de la gamme de puissance de la PàC et aussi sur la plage de fonctionnement (plage de pression et débit) [Teki04].

4.5 Modélisation du moto-compresseur

Différents types de compresseurs peuvent être utilisés pour l'alimentation en air de la pile. Deux types de compresseurs ont été étudiés et modélisés dans le cadre de ce travail de thèse : le compresseur centrifuge et le compresseur à double vis. Ces deux types de compresseurs sont entraînés par un moteur synchrone à aimant permanent. La vitesse du moteur est contrôlée par un onduleur.

4.5.1 Moteur MSAP

Le moteur synchrone à aimants permanents s'impose dans les applications nécessitant des performances dynamiques et statiques très élevées, et plus particulièrement, dans les systèmes embarqués (par exemple en aéronautique et dans le domaine aérospatial) en raison de son rapport puissance/masse élevé.

La modélisation d'un moteur synchrone à aimants permanents est identique à celle d'une machine synchrone classique sauf que l'excitation en courant continu attachée au rotor est remplacée par le flux de l'aimant. Donc, le modèle est issu du modèle de la machine synchrone classique [Chia05]. Le moteur est alimenté par un onduleur de tension à trois bras comprenant chacun deux cellules de commutation. Chaque cellule est composée d'un interrupteur à base de composants de haute fréquence de découpage (IGBT par exemple), commandé à l'amorçage et au blocage et d'une diode antiparallèle.

Dans l'étude de l'ensemble commande-onduleur-moteur-compresseur, on s'intéresse uniquement au comportement dynamique des variables électriques et mécaniques de la machine. Du fait que les constantes de temps des machines et des régulateurs sont très grandes devant le temps de transition d'un état à l'autre des composants semi-conducteurs, on peut faciliter la modélisation et réduire le temps de simulation en modélisant l'onduleur par un ensemble d'interrupteurs idéaux : c'est-à-dire résistance nulle à l'état passant, résistance infinie à l'état bloqué, réaction instantanée aux signaux de commande [Didi09] et [Baba01]. Cette méthode est la plus couramment utilisée dans l'étude de l'ensemble onduleur-moteur. Le moteur a été modélisé à partir des tensions simples que nous notons V_{an} , V_{bn} et V_{cn} . L'onduleur est commandé à partir des grandeurs logiques S_i , à partir de tension d'alimentation qui correspondent dans notre cas à la tension fournie par la PàC $U_o = V_{st}$, les tensions de sortie d'onduleur sont comme suit :

$$\begin{bmatrix} V_{an} \\ V_{bn} \\ V_{cn} \end{bmatrix} = \frac{1}{3} \cdot U_o \cdot \begin{bmatrix} 2 & -1 & -1 \\ -1 & 2 & -1 \\ -1 & -1 & 2 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} S_a \\ S_b \\ S_c \end{bmatrix} \quad (4.1)$$

Le dispositif de commande a pour rôle d'assurer l'autopilotage et la régulation des courants dans le but de maintenir les courants réels mesurés au niveau des phases de la machine aussi proches que possible de leurs références. Pour cela, la technique mise en œuvre est le contrôle des courants par modulation de largeurs d'impulsions (M.L.I.).

Afin de modéliser les machines triphasées, la transformation de Park est couramment utilisée pour obtenir l'expression des variables dans un repère tournant $d - q$. La technique de la commande vectorielle est utilisée pour établir un modèle linéaire et transformer la machine synchrone à aimant en une structure équivalente à la machine à courant continu à excitation séparée du point de vue couple, réalisant un découplage du couple et du flux.

L'objectif principal de la commande vectorielle des MSAP est donc de contrôler le couple de manière optimale selon un critère choisi [Buhl97]. Compte tenu de l'importance de la contrainte thermique dans les machines électriques, le critère choisi correspond souvent à la minimisation des pertes joules à couple donné. Celles-ci, étant proportionnelles au courant efficace, nous amènent à minimiser $Id^2 + Iq^2$.

Mais ce critère demande la solution d'un problème d'optimisation qui impose le contrôle simultané de I_d et I_q . On remarque que cette stratégie permet d'éliminer le problème de couplage entre les axes (d,q).

Lorsque le courant est nul, la forme du couple électromagnétique sera [Gran08] :

$$C_e = \frac{3}{2} \cdot p \cdot \phi_f \cdot I_q \quad (4.2)$$

Où : ϕ_f : flux magnétique engendré par les aimants Wb . p : Nombre de paires de pôles.

Comme le flux est constant, le couple est directement proportionnel à I_q [Talj09b] et [Tawe03], d'où la représentation suivante :

$$C_e = k_t \cdot I_q \quad (4.3)$$

Avec :

$$k_t = \frac{3}{2} \cdot p \cdot \phi_f$$

On a présenté sur la figure 4.1, la vitesse, le couple électromagnétique, les deux composantes d'axe directe I_d et en quadrature I_q , de la MSAP ; le courant statorique de la phase (a) et la tension statorique de la phase (a) (V_a). La machine est alimentée par une source de tension triphasée. Le couple électromagnétique présente une allure identique à celle du courant d'axe "q" du fait de la linéarité existante entre ces deux grandeurs. Sa valeur de crête est très grande et se stabilise à une valeur moyenne nulle, qui compense les pertes par frottement (couple à vide). Le courant I_d augmente rapidement puis se stabilise à sa valeur nominale après un temps assez court, avec l'application d'un échelon du couple résistant ($C_r > 0$) à l'instant ($t = 0.5s$), on remarque que les caractéristiques suivent cette variation puis se stabilisent au régime permanent. On note que le couple résistant égale au couple du compresseur $C_r = C_{cp}$.

4.5.2 Compresseur

Différents type de compresseurs peuvent être utilisés pour l'alimentation en air de la PàC, deux types parmi eux existent à la plate forme FCLAB et peuvent être

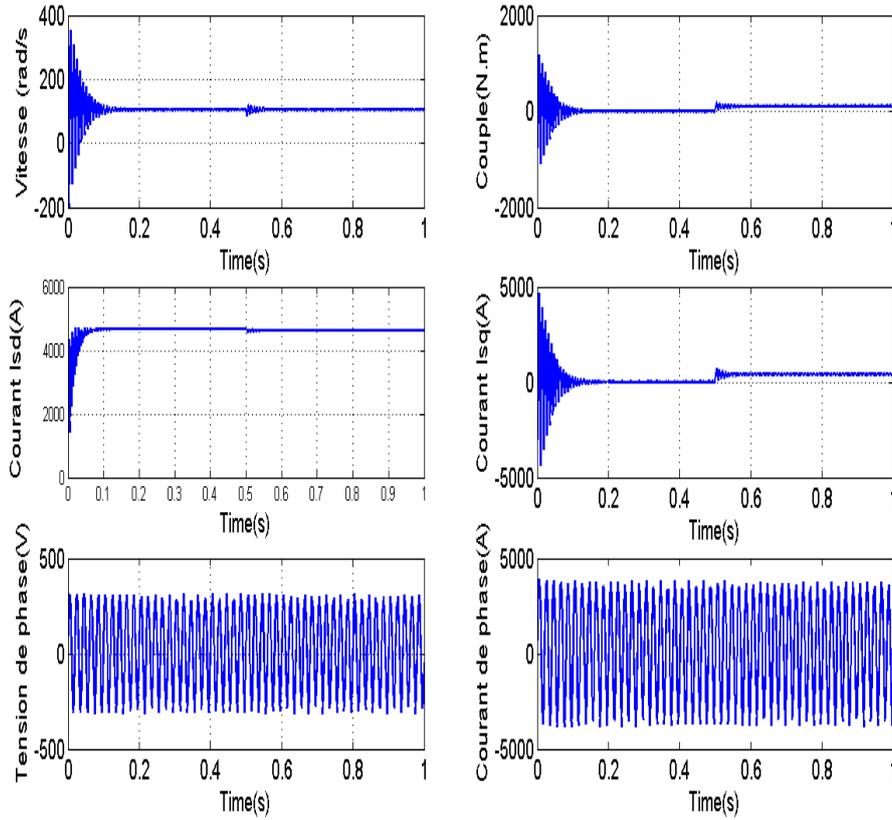


FIGURE 4.1 – Caractéristiques dynamiques de moteur MSAP

couplés avec la pile : compresseur centrifuge et à double vis. Un modèle est proposé pour chaque compresseur dans les deux paragraphes suivants. Ils sont entraînés par un moteur MSAP. La vitesse du moteur est contrôlée par un onduleur. Ce dernier reçoit une consigne du courant quadratique (I_q) générée par le contrôleur. Grâce à la commande vécatorielle, le courant direct I_d est forcé à zéro et les courants triphasés I_a , I_b et I_c sont reconstruits afin d'alimenter le moteur. L'accélération angulaire du moteur $\frac{d\omega_{cp}}{dt}$ est donnée par :

$$\frac{d\omega_{cp}}{dt} = \frac{1}{J_{cp}} (\tau_{cm} - \tau_{cp} - \tau_f) \quad (4.4)$$

où τ_{cm} , τ_{cp} et τ_f sont respectivement les couples du moteur, du compresseur et du frottement. Ils sont donnés par :

$$\tau_{cm} = \eta_{cm} \frac{k_t}{R_{cm}} (v_{cm} - k_v \omega_{cp}) \quad (4.5)$$

ou :

$$\tau_{cm} = \eta_{cm} \cdot k_t \cdot I_q \quad (4.6)$$

$$\tau_{cp} = \frac{C_p T_{atm}}{\omega_{cp} \eta_{cp}} \left[\left(\frac{p_{sm}}{p_{atm}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] W_{cp} \quad (4.7)$$

$$\tau_f = f \cdot \omega_{cp} \quad (4.8)$$

où :

k_t est la constante du moteur,

f est le frottement visqueux du moteur ($Nm/rad.s^{-1}$),

J_{cp} est l'inertie du système (Kg/m^2),

η_{cm} est le rendement du moteur (voir [43]),

W_{cp} est le débit d'air du compresseur,

η_{cp} est le rendement du compresseur,

T_{atm} la température d'entrée de compresseur,

p_{sm} la pression d'air dans les tuyaux d'alimentation entre le compresseur et la cathode de la pile.

4.5.2.1 Modélisation du compresseur centrifuge

Le compresseur centrifuge est de la famille turbo-machine. Le compresseur utilisé sur le banc d'essai est fabriqué par la société ROTREX. Le système d'alimentation en air est équipé d'un circuit de lubrification et un refroidisseur. Le moteur utilisé est le même que dans le cas du compresseur à double vis. Le banc d'essai est présenté sur la figure 4.2. La vitesse maximale de la roue à aube du compresseur peut atteindre 20.000 tr/min. Ainsi, la vitesse angulaire de l'arbre du compresseur est limitée à 15.900 tr/min. Celui-ci est calculé par le coefficient de réduction du compresseur, donné par le constructeur égal à 12,7. La rotation du compresseur est effectuée par le moteur, à l'aide d'une courroie et d'une poulie. Le compresseur possède une poulie d'un diamètre de 60 mm. Sachant que la vitesse angulaire maximale du moteur est de 12.000 tr/min, le diamètre de la poulie est de 90 mm ce qui donne un rapport de réduction de 1,5. Cela limite le moteur à une vitesse angulaire de 10.600 tr/min. La relation entre la vitesse angulaire du compresseur ω_{cp} et du moteur ω_{cm} est donnée comme suit :

$$\omega_{cp} = kr \cdot \omega_{cm} \quad (4.9)$$

où kr est le rapport de réduction de la vitesse, il est égal à 19,05. Deux grandeurs

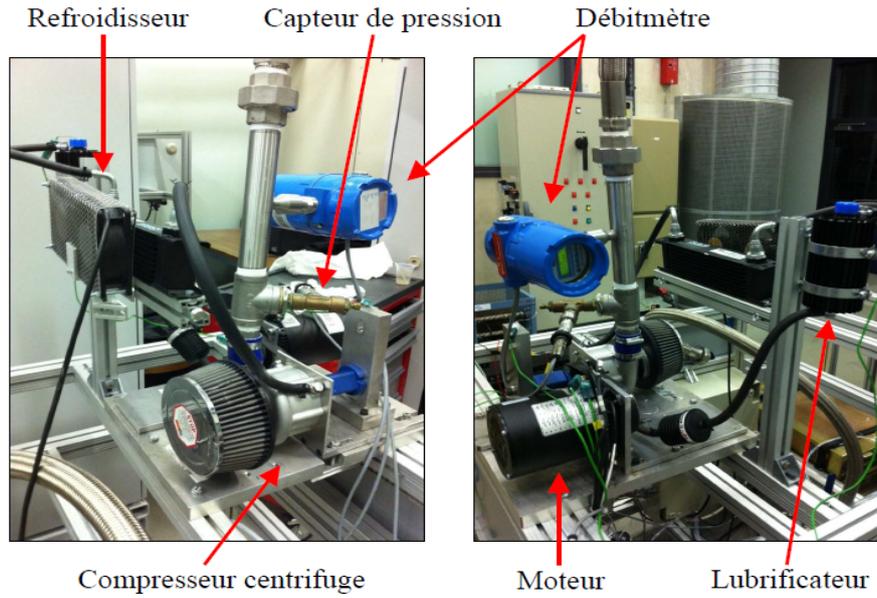


FIGURE 4.2 – Banc d'essai du compresseur centrifuge [Matr13a]

sont modélisées : le débit d'air du compresseur et son rendement. Le débit d'air est modélisé par la méthode d'adaptation non linéaire de Jensen et Kristensen [Pukr04b] et [Pukr04c]. Il est fonction du rapport de pression p_{sm}/p_{atm} , de la température d'entrée T_{atm} et de la vitesse angulaire ω_{cp} du compresseur.

Ce type de modélisation est dédié aux turbomachines, et plus spécifiquement pour les compresseurs centrifuges. Afin de standardiser le principe de modélisation dans les mêmes conditions (température et pression), il est impératif de corriger les valeurs mesurées. D'après [Cunn00] les valeurs corrigées sont la vitesse angulaire du compresseur (N_{cr}) en (tr/min) et le débit d'air W_{cr} en (en kg/s). Ces valeurs corrigées sont utilisées dans la cartographie du compresseur. Elles sont données par :

$$N_{cr} = N_{cr} / \sqrt{\theta} \quad (4.10)$$

$$W_{cr} = W_{cp} \sqrt{\theta} / \delta \quad (4.11)$$

Avec :

$$\theta = T_{cp,in} / 288K \quad (4.12)$$

$$\delta = p_{cp,in} / 1atm \quad (4.13)$$

N_{cr} est la vitesse angulaire du compresseur, W_{cp} est le débit d'air du compresseur, δ est le terme de correction de la pression et θ est le terme de correction de la température. En utilisant la méthode (4.14), un paramètre principal doit être défini, et il est donné :

$$\psi = C_p T_{cp,in} \left[\left(\frac{p_{cp,out}}{p_{cp,in}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] / \left(\frac{U_c^2}{2} \right) \quad (4.14)$$

où C_p est la chaleur spécifique, $T_{cp,in}$, est la température à l'entrée du compresseur et $p_{cp,in}$ et $p_{cp,out}$ sont les pressions en amont et en aval du compresseur respectivement. U_c est la vitesse linéaire ; Elle est calculée en fonction de la vitesse angulaire corrigé du compresseur N_{cr} :

$$U_c = \frac{\pi}{60} d_c N_{cr} \quad (4.15)$$

où d_c est le diamètre de l'arbre du compresseur.

Le débit normalisé du compresseur est défini comme suit :

$$\phi = \frac{W_{cr}}{\rho_a \frac{\pi}{4} U_c d_c^2} \quad (4.16)$$

où ρ_a est la masse volumique de l'air est aussi défini dans l'annexe(A) Les variables ψ et ϕ déjà définies sont corrélées par la relation suivante :

$$\emptyset = \emptyset_{max} \left\{ 1 - \exp \left[\beta \left(\frac{\psi}{\psi_{max}} - 1 \right) \right] \right\} \quad (4.17)$$

où \emptyset_{max} , β et ψ_{max} sont des fonctions polynomiales du nombre M ,

$$\begin{aligned} \phi_{max} &= a_4 M^4 + a_3 M^3 + a_2 M^2 + a_1 M + a_0 \\ \beta &= b_2 M^2 + b_1 M + b_0 \\ \psi_{max} &= c_5 M^5 + c_4 M^4 + c_3 M^3 + c_2 M^2 + c_1 M + c_0 \end{aligned} \quad (4.18)$$

Le nombre M spécifique de l'entrée est défini par :

$$M = \frac{U_c}{\gamma R_a T_{cp,in}} \quad (4.19)$$

où R_a est la constante de l'air gaz ($2,86910^{-2} J/(kg.K)$). Dans l'équation (4.19), a_i , b_i et c_i sont des coefficients de regressions obtenus par adaptation de la courbe aux données du compresseur. Le débit massique d'air (kg/s) est alors calculé en utilisant l'équation (4.16) :

$$W_{cr} = \phi \rho_a \frac{\pi}{4} d_c^2 U_c \quad (4.20)$$

4.5.2.2 Modélisation du compresseur à double vis

le compresseur à double vis, qui appartient à la famille des compresseurs volumétriques est fabriqué par la société Opcon Autoroto, spécifiquement pour les systèmes PàC. Il contient deux vis hélicoïdales. Une vis est liée directement au moteur. Cela indique que la vitesse angulaire du compresseur (ω_{cp}) est égale à la vitesse angulaire du moteur (ω_{cm}). Le débit d'air à la sortie du compresseur est continu sur toute la plage de fonctionnement, avec un rendement très élevé. Un système de lubrification est recommandé pour lubrifier la chambre de compression. Un mécanisme dédié au circuit de lubrification assure que l'huile ne se mélange pas à l'air comprimé dans la PàC. Le banc d'essai est représenté sur la figure 4.3. Le compresseur



FIGURE 4.3 – Compresseur à double vis

que nous étudions, a un débit maximal de $100g/s$ pour une vitesse de rotation de $12.000tr/min$. La modélisation du compresseur repose sur deux variables : le débit W_{cp} et le rendement du compresseur η_{cp} .

$$W_{cp} = \frac{1}{2\pi} V_{cpr/tr} \cdot \eta_{v-c} \cdot \rho_a \cdot \omega_{cp} \quad (4.21)$$

où :

η_{v-c} est le rendement volumétrique,

$V_{cpr/tr}$ est le volume comprimé par tour (m^3/tr),

ρ_a est la masse volumique de l'air (kg/m^3),

ω_{cp} est la vitesse angulaire du compresseur en (rad/s).

Le rendement volumétrique a été modélisé grâce à des données expérimentales. Ces résultats sont obtenus par des essais quasi-statiques, qui ont été effectués pour des pressions de sortie constantes avec une variation de la vitesse angulaire du compresseur. Cela nous a permis de modéliser le rendement volumétrique. Les valeurs expérimentales du rendement sont tracées sur la figure 4.4 en fonction de la vitesse angulaire et de la pression absolue à la sortie du compresseur [Matr13a]. Grâce à

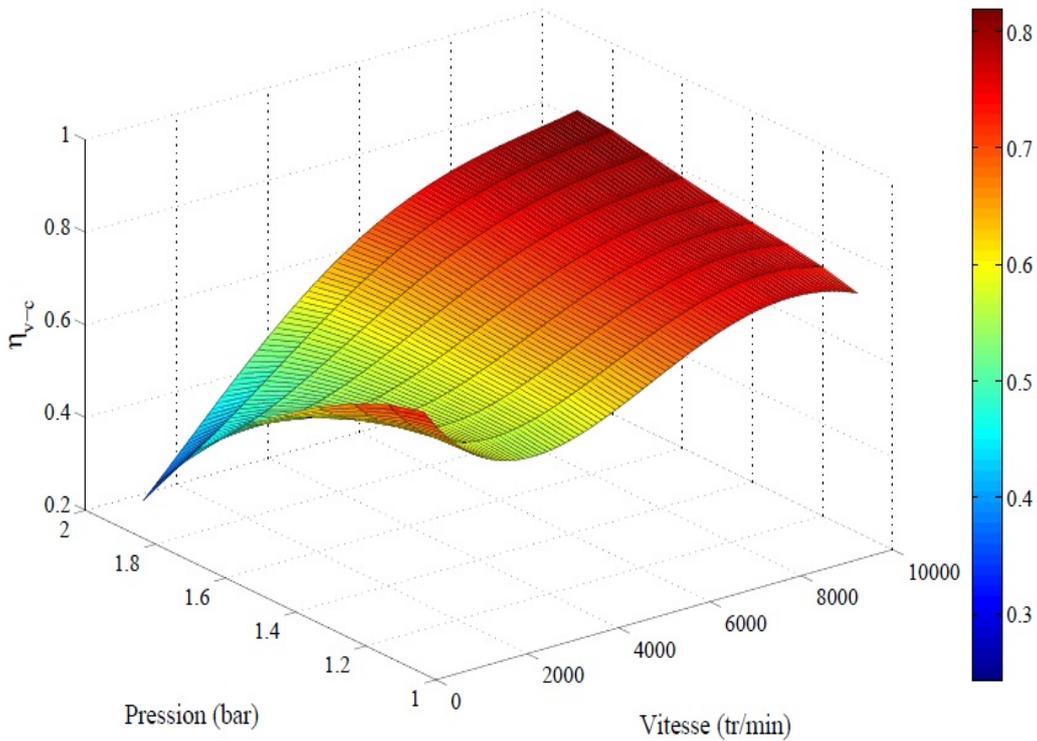


FIGURE 4.4 – Cartographie du rendement volumétrique en fonction de la pression à la sortie du compresseur et de la vitesse angulaire du compresseur

une interpolation, le rendement volumétrique η_{v-c} est modélisé sous forme d'un polynôme de degré 4, en fonction de la vitesse angulaire (N_{cp}) en tr/min et de la pression à la sortie du compresseur ($p_{cp,out}$).

Le rendement du compresseur η_{cp} est calculé à partir des données expérimentales,

par la relation suivante :

$$\eta_{cp} = \frac{P_{ad}}{P_{mca}} \quad (4.22)$$

où P_{ad} et P_{mca} sont respectivement la puissance adiabatique et mécanique. En se basant sur ces données, le rendement est tracé, en fonction du débit d'air et de la pression à la sortie du compresseur, sur la figure 4.5. Grâce à cette interpolation, le rendement du compresseur est modélisé par un polynôme de degré 4 en fonction du débit d'air et de la pression à la sortie du compresseur.

la validation statique du modèle en boucle ouverte consiste en une variation lente de la vitesse angulaire du compresseur pour une pression constante à sa sortie. Les deux courbes sur la figure 4.6 montrent la validité de l'équation de débit présenté dans (4.21).

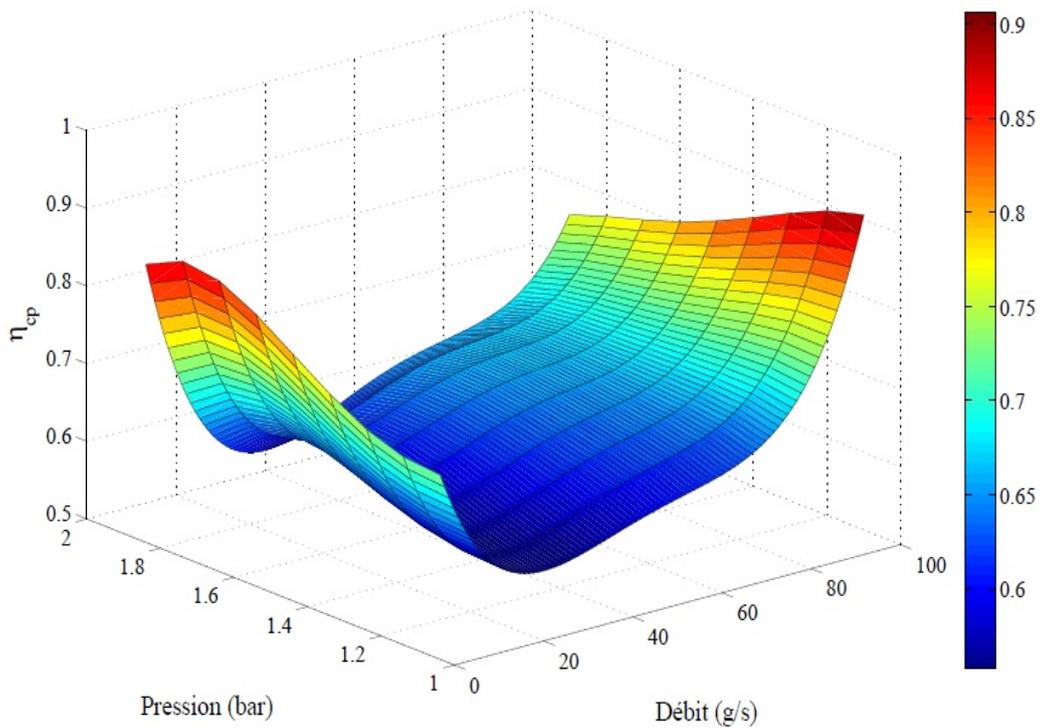


FIGURE 4.5 – Cartographie du rendement du compresseur en fonction de la pression à la sortie et du débit d'air du compresseur

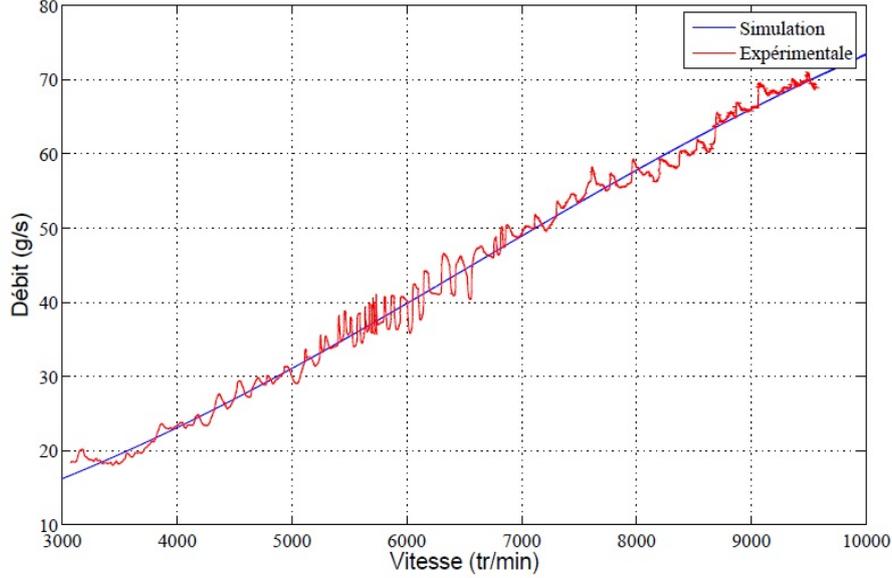


FIGURE 4.6 – Rendement volumétrique du compresseur à double vis par simulation et par expérimentation

4.6 Modèle de base

La figure 4.7 présente les emplacements des états d'un système PàC composé de quatre sous-systèmes principaux : le système d'hydrogène qui alimente l'anode en hydrogène gaz, le système d'air qui alimente la cathode en oxygène, l'humidificateur et le système de refroidissement qui maintiennent respectivement le degré d'humidité et la température de la pile à combustible. Ce système global est représenté par un modèle dynamique de 9 états, proposé dans [thèse pukruchpain], et qui est principalement basé sur les équations thermodynamiques des fluides. Les 9 variables d'états, dont les dynamiques en interaction représentent le comportement du système, sont les suivantes :

$$[m_{O_2}, m_{H_2}, m_{N_2}, \omega_{cp}, p_{sm}, m_{sm}, m_{\omega,an}, m_{\omega,ca}, p_{rm}] \quad (4.23)$$

où :

m_{O_2} est la masse d'oxygène,

m_{H_2} est la masse d'hydrogène au niveau de l'anode,

m_{N_2} est la masse d'azote,

ω_{cp} est la vitesse angulaire du groupe moto-compresseur,

p_{sm} est la pression d'air dans les tuyaux d'alimentation entre le compresseur et la

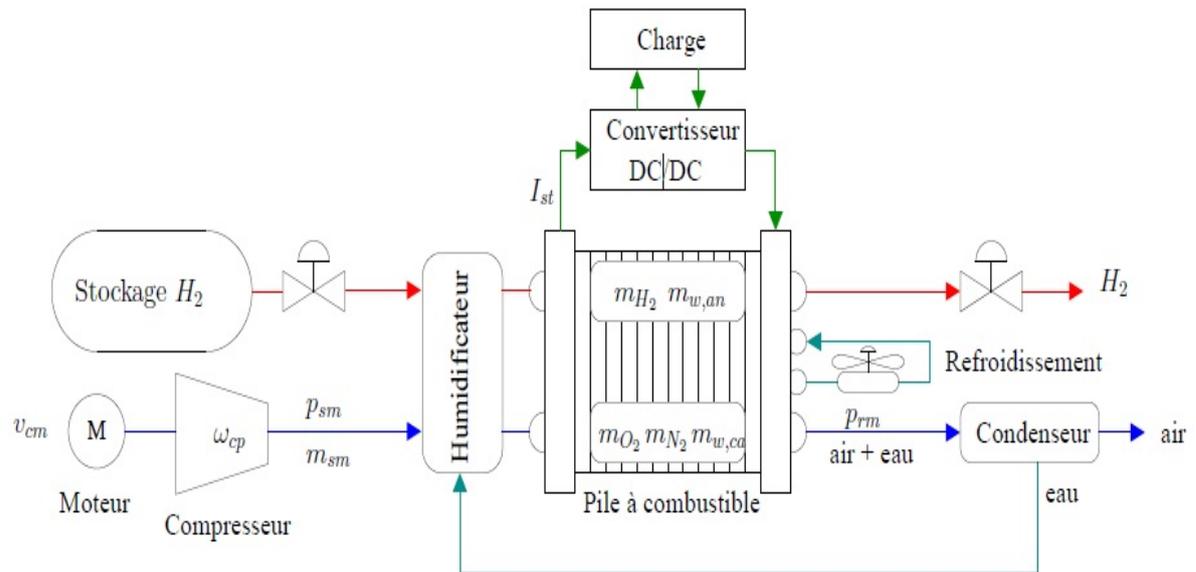


FIGURE 4.7 – Représentation des états dans le système à PàC

cathode de la pile,

m_{sm} est la masse d'air dans les tuyaux d'alimentation entre le compresseur et la cathode de la pile,

$m_{w,an}$ est la masse d'eau au niveau de l'anode,

$m_{w,ca}$ est la masse d'eau au niveau de la cathode,

p_{rm} est la pression de l'air dans les tuyaux de retour à la sortie de la cathode.

Sachant que le degré d'humidité et la température ont des dynamiques relativement lentes, le problème de commande de ces deux sous-systèmes peut être découplé du reste du système. D'autre part, l'hydrogène étant stocké sous-pression, le sous-système d'hydrogène est contrôlé par une valve électrique relativement rapide par rapport au sous-système d'air qui est alimenté par un dispositif mécanique (i.e., un moteur électrique et un compresseur), permettant ainsi une nouvelle décomposition basée sur la différence entre les échelles de temps. De plus, le but du contrôle du débit d'hydrogène est de minimiser la différence de pression de part et d'autre de la membrane, autrement dit, la différence entre les pressions au niveau de la cathode et de l'anode. L'objectif alors est de ne pas déchirer ou d'endommager la membrane suite aux contraintes physiques importantes qui peuvent être causées par une éventuelle pression différentielle énorme à travers la membrane.

4.6.1 Modèle de 4 états

Tenant compte des plusieurs hypothèses physiques le modèle d'ordre 9 a été réduit par K.W. Suh et A. Stefanopoulou dans [Suh06]. Il traite uniquement le système d'alimentation en air et les comportements fluidiques au niveau de la cathode, dont les variables d'état sont les suivants :

$$x = [x_1, x_2, x_3, x_4] \quad (4.24)$$

Les principaux hypothèses physiques qui ont permis le passage du modèle d'ordre 9 au modèle d'ordre 4 sont les suivantes :

- $m_{\omega,ca}$ et p_{rm} : on suppose que les gaz sont humidités à 100% ou saturés, tant à l'anode qu'à la cathode. A noter que ces deux variables représentent les quantités d'eau dans l'anode et la cathode respectivement.
- m_{H_2} : le gaz étant saturé, les proportions entre la quantité d'eau et celle d'hydrogène (au niveau de l'anode) sont fixes. D'autre part, le contrôle de la pression de l'anode est assuré par une valve électrique qui a une dynamique beaucoup plus rapide que la dynamique du circuit d'air, alimenté par un système mécanique moto-compresseur. Cela permet de découpler la dynamique de cette variable selon une autre échelle de temps.
- m_{sm} : on suppose que l'air dans les tuyaux d'air vérifie les propriétés d'un gaz parfait : la masse d'air est donc liée à sa pression. D'autre part, sachant que la température varie avec une dynamique très lente, on suppose que la température du compresseur est constante par rapport à la dynamique mécanique du système. La masse devient proportionnelle à la pression avec un coefficient de proportionnalité constant.
- p_{rm} : le volume des tuyaux de retour à la sortie de la cathode étant négligeable, la chute de pression à travers ces tuyaux est aussi négligeable. On suppose alors qu'on a directement la pression atmosphérique à la sortie de la cellule.
- Puisque les gaz sont parfaits, on peut remplacer les masses d'oxygène et d'azote dans la cathode par leurs pressions partielles respectives. On suppose que la température de la pile est maintenue constante : la masse et la pression sont donc proportionnelles. En considérant la loi des gaz parfaits et la continuité

des masses d'oxygène et d'azote à l'intérieur du comportement cathodique, on trouve

$$\begin{aligned}
\frac{dp_{O_2}}{dt} &= \frac{\bar{R}T_{st}}{M_{O_2}V_{ca}} (W_{O_2,in} - W_{O_2,out} - W_{O_2,rct}) \\
\frac{dp_{N_2}}{dt} &= \frac{\bar{R}T_{st}}{M_{N_2}V_{ca}} (W_{N_2,in} - W_{N_2,out}) \\
\frac{d\omega_{cp}}{dt} &= \frac{1}{J_{cp}} (\tau_{cm} - \tau_{cp} - \tau_f) \\
\frac{dp_{sm}}{dt} &= \frac{\bar{R}T_{pt}}{M_{a,atm}V_{sm}} (W_{cp} - W_{O_2,out} - W_{ca,in})
\end{aligned} \tag{4.25}$$

où :

V_{ca} est le volume de la cathode,

R est la constante universelle des gaz,

M_{O_2} et M_{N_2} sont les masses molaires de l'oxygène et de l'azote respectivement.

W_{cp} provenant du compresseur, du débit d'air sortant du tuyau dans la cathode, et de la température du fluide supposée constante tout au long de ce tuyau d'air.

V_{sm} est le volume de ce tuyau,

$M_{a,atm}$ est la masse molaire de l'air atmosphérique. J_{cp} l'inertie de l'ensemble moteur-compresseur,

τ_{cm} est le couple du moteur,

τ_{cp} est le couple de charge du compresseur,

τ_f est le couple de frottement.

Les débits entrant d'oxygène et d'azote s'exprime en fonction du débit d'air $W_{ca,in}$ entrant dans la cathode :

$$W_{O_2,in} = \frac{x_{O_2,atm}}{1 + \omega_{atm}} W_{ca,in} \tag{4.26}$$

$$W_{N_2,in} = \frac{1 - x_{O_2,atm}}{1 + \omega_{atm}} W_{ca,in} \tag{4.27}$$

où $x_{O_2,atm}$ est la fraction de masse d'oxygène dans l'air entrant

$$x_{O_2,atm} = \frac{y_{O_2,atm}M_{O_2}}{y_{O_2,atm}M_{O_2} + (1 + y_{O_2,atm})M_{N_2}} \tag{4.28}$$

avec la fraction molaire d'oxygène $y_{O_2,atm} = 0.21$ et le rapport d'humidité de l'air entrant

$$\omega_{atm} = \frac{M_v}{y_{O_2,atm}M_{O_2} + (1 - y_{O_2,atm})M_{N_2}} \frac{\phi_{atm}p_{sat}}{p_{atm} - \phi_{atm}p_{sat}} \tag{4.29}$$

où $p_{sat} = p_{sat}(T_{st})$ est la pression de saturation de la vapeur, et ϕ_{atm} est l'humidité relative aux conditions ambiantes, la valeur moyenne de 0.5 est adoptée par la suite.

La différence de pression entre les tuyaux d'amenée d'air et la cathode étant relativement faible, on suppose que la relation débit-pression est comme suit :

$$W_{ca,in} = k_{ca,in} (p_{sm} - p_{ca}) \quad (4.30)$$

où $k_{ca,in}$ est la constante de débit de l'orifice des tuyaux d'air, et la pression de la cathode p_{ca} , supposée la même tout au long du compartiment cathodique, s'exprime comme suit :

$$p_{ca} = p_{O_2} + p_{N_2} + p_{sat} \quad (4.31)$$

Le débit d'oxygène ayant réagi dépend du courant I_{st} absorbé de la pile, et s'exprime par

$$W_{O_2,rc} = M_{O_2} \frac{nI_{st}}{4F} \quad (4.32)$$

où n est le nombre de cellules élémentaires dans la pile, et F la constante de Faraday. Les débits d'oxygène et d'azote à la sortie de la cathode sont calculés à partir des fractions d'oxygène et d'azote dans la pile après réactions, et ils s'expriment par :

$$W_{O_2,out} = \frac{M_{O_2} p_{O_2}}{M_{O_2} p_{O_2} + M_{N_2} p_{N_2} + M_v p_{sat}} W_{ca,out} \quad (4.33)$$

$$W_{N_2,out} = \frac{M_{N_2} p_{N_2}}{M_{O_2} p_{O_2} + M_{N_2} p_{N_2} + M_v p_{sat}} W_{ca,out} \quad (4.34)$$

Dans les grandes piles fonctionnant sous pression, la différence entre la pression de la cathode et celle ambiante est énorme, alors le débit total d'air à la sortie de la cathode se calcule par l'équation du flux d'embout [Heyw98] .

$$W_{ca,out} = \frac{C_D A_T}{\sqrt{RT_{st}}} p_{ca} \left(\frac{p_{atm}}{p_{ca}} \right)^{\frac{1}{\gamma}} \left\{ \frac{2\gamma}{\gamma-1} \left[1 - \left(\frac{p_{atm}}{p_{ca}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \right] \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (4.35)$$

$$Pour, \frac{p_{atm}}{p_{ca}} > \left(\frac{2\gamma}{\gamma-1} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}}$$

$$W_{ca,out} = \frac{C_D A_T}{\sqrt{RT_{st}}} p_{ca} \gamma^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma+1)}} \quad (4.36)$$

$$Pour, \frac{p_{atm}}{p_{ca}} \leq \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}}$$

Avec :

γ est la proportion des capacités de chaleur spécifiques de l'air, C_D est le coefficient de décharge de l'ouverture de la sortie, et A_T est la surface d'ouverture de la sortie.

La température de l'air à la sortie du compresseur s'exprime en fonction de son rendement η_{cp} comme suit :

$$T_{cp} = T_{atm} + \frac{T_{atm}}{\eta_{cp}} \left[\left(\frac{p_{sm}}{p_{atm}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} - 1 \right] \quad (4.37)$$

on a exprimé la forme mathématique de modèle comme suit :

$$x' = f(x) + g_u u + g_\xi \xi \quad (4.38)$$

avec le vecteur d'état :

$x = [x_1, x_2, x_3, x_4]$ où : x_1 et x_2 sont les pressions partielles de l'oxygène p_{O_2} et de l'azote p_{N_2} dans le compartiment cathodique respectivement,

x_3 est la vitesse angulaire du compresseur,

x_4 est la pression d'air,

p_{sm} est la pression dans les tuyaux d'air à l'entrée de la cathode,

ξ est le courant de la pile I_{st} , considéré généralement comme une perturbation mesurable du système,

u , qui représente la tension d'alimentation v_{cm} du moteur du compresseur, est l'entrée de commande. Les composantes du vecteur $f(x)$ sont :

$$\begin{aligned} f_1(x) &= c_1(-x_1 - x_2 + x_4 - c_2) - \frac{c_3 x_1 \psi(x_1, x_2)}{c_4 x_1 + c_5 x_2 + c_6}, \\ f_2(x) &= c_8(-x_1 - x_2 + x_4 - c_2) - \frac{c_3 x_2 \psi(x_1, x_2)}{c_4 x_1 + c_5 x_2 + c_6}, \\ f_3(x) &= -c_9 x_3 - \frac{c_{10}}{x_3} \left[\left(\frac{x_4}{c_{11}} \right)^{c_{12}} - 1 \right] h_3(x_3, x_4), \\ f_4(x) &= c_{14} \left[1 + c_{15} \left[\left(\frac{x_4}{c_{11}} \right)^{c_{12}} - 1 \right] \right] \times [h_3(x_3, x_4) - c_{16}(-x_1 - x_2 + x_4 - c_2)]. \end{aligned} \quad (4.39)$$

La fonction $\psi(x_1, x_2)$ est le débit d'air à la sortie de la cathode, défini par :

$$\psi(x_1, x_2) = \begin{cases} c_{17}(x_1 + x_2 + c_2) \left(\frac{c_{11}}{x_1 + x_2 + c_2} \right)^{c_{18}} \times \sqrt{1 - \left(\frac{c_{11}}{x_1 + x_2 + c_2} \right)^{c_{12}}}, \\ \text{Pour } \frac{c_{11}}{x_1 + x_2 + c_2} > c_{19}, \\ \text{et} \\ c_{20}(x_1 + x_2 + c_2), \text{ Pour } \frac{c_{11}}{x_1 + x_2 + c_2} \leq c_{19} \end{cases} \quad (4.40)$$

Les vecteurs d'entrée sont $g_u u = c_{13} e_3$ et $g_\xi = -c_7 e_1$, avec e_i le i^{me} élément de la base Euclidienne. Toutes les constantes c_i , $i = 1; \dots; 24$ sont positives, et dépendent

des paramètres physiques de la PàC, Les coefficients sont résumés dans l'annexe (A) :

4.6.2 Entrées-sorties du système

Les entrées du système sont définies en deux catégories : Le courant quadratique (I_q) est considéré comme une entrée, c'est la variable de la commande du compresseur. Ce courant se retrouve dans l'équation de l'accélération du compresseur présenté dans (4.4). Il contrôle la vitesse angulaire du compresseur, ainsi que son débit d'air. Le courant de la PàC (I_{st}) est considéré comme une perturbation mesurable du système qui reflète instantanément le besoin de la charge. Dans la plupart des modélisations des PàC, le courant de la PàC est considéré mesurable. Par contre, dans [Um00], la tension de la pile est utilisée comme une entrée pour analyser la distribution de la densité de courant. Dans notre cas, où la tension est v_{cm} considérée comme une sortie, elle est calculée selon les équations des chapitres précédents à partir du courant de la pile (mesurable) et des pressions des gaz. La puissance électrique absorbée par le moteur du compresseur est :

$$P_{cm} = v_{cm}I_{cm} = \tau_{cm} \cdot \omega_{cp} \quad (4.41)$$

A noter que le moto-compresseur peut être alimenté directement par la pile à combustible ou par une source de puissance auxiliaire. Dans le cas où la pile alimente le moteur du compresseur, la puissance nette délivrée à la charge, et qui constitue une variable de performance du système pile à combustible, est la différence entre la puissance fournie par la pile et celle absorbée par le moteur.

$$P_{net} = P_{st} - P_{cm} \quad (4.42)$$

Avec :

$$P_{st} = v_{st}I_{st} \quad (4.43)$$

Les sorties sont des variables mesurables, ils permettent d'apprécier la performance du système. Le vecteur des paramètres mesurables de la PàC est donné par :

$$y = \begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ y_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} v_{st} \\ p_{sm} \\ W_{cp} \end{bmatrix} \quad (4.44)$$

Avec : y_1 est la tension de PàC (v_{st}), y_2 est la pression du collecteur d'admission d'air (p_{sm}) et y_3 est le débit d'air du compresseur (W_{cp}).

4.6.3 Performance du système

Le vecteur de performance de la PàC est défini par :

$$z = \begin{bmatrix} z_1 \\ z_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} P_{net} \\ \lambda_{O_2} \end{bmatrix} \quad (4.45)$$

où z_1 est la puissance nette délivrée par la pile (P_{net}) et z_2 est le rapport d'excès d'oxygène (λ_{O_2}). La deuxième variable de performance est la stœchiométrie ou le rapport d'excès en oxygène

$$\lambda_{O_2} = \frac{W_{O_2,in}}{W_{O_2,rct}} \quad (4.46)$$

qui est le rapport entre le débit d'oxygène entrant et celui réagi à la cathode. La stœchiométrie est généralement réglée à $\lambda_{O_2}^*$ pour plusieurs raisons dont la réduction de la formation de couches d'azote sur la surface active des réactions électrochimiques. Les valeurs de λ_{O_2} inférieure à 1 indique un manque d'oxygène qui a des conséquences graves sur la durée de vie de la pile à combustible.

Pour la circulation d'hydrogène, deux cas sont possibles : (i) la recirculation de l'anode [Karn06] en réinjectant l'hydrogène sortant à l'entrée de l'anode, (ii) fermeture de la sortie de l'anode [Pukr04b] , qui est la solution adoptée dans ce travail. On suppose que l'hydrogène est saturé dans l'anode, sans noyage ni diffusion d'azote de la cathode vers l'anode. D'autre part, on suppose que le contrôle régule bien la pression de l'anode pour suivre celle de la cathode. Partant de ces hypothèses, la pression d'hydrogène qui influence la tension de sortie v_{st} est calculée comme suit :

$$P_{an} = P_{ca} \quad (4.47)$$

$$P_{H_2} = P_{an} - P_{sat} \quad (4.48)$$

Pour la modélisation de système pile avec compresseur à double vis on a utilisé les mêmes équations de pression de sortie et la vitesse de rotation mentionné ci-dessus par contre l'équation de modèle de circuit électrique équivalent détaillé dans

le chapitre trois a été employé pour déterminer la pression cathodique injectée dans la pile.

4.7 Conception de Contrôle et simulation

Rappelons que les performances d'un système à pile à combustible sont : la puissance nette de la PàC (z_1) et le rapport d'excès d'oxygène (z_2). Pour le modèle du système avec compresseur centrifuge à 4 variables d'états présenté dans la section précédente, on a considéré les sorties et les entrées du système comme suit, d'où Le vecteur de sortie mesurable est :

$$y = \begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ y_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} h_1(x_1, x_2) \\ x_4 \\ h_3(x_3, x_4) \end{bmatrix} \quad (4.49)$$

où y_1 est la tension $v_s t$ de la pile (ainsi connue par la courbe de polarisation) et y_3 est la cartographie du débit du compresseur W_{cp} . Les variables de performance du système pile à combustible sont :

$$z = \begin{bmatrix} y_1 \xi - c_{21} u (u - c_{22} x_3) \\ \frac{c_{23}}{c_{24} \xi} (x_4 - x_1 - x_2 - c_2) \end{bmatrix} \quad (4.50)$$

On a simulé le modèle à 4 variables d'états sous les conditions de fonctionnement suivantes ; une tension de 400V, fournie par la PàC, dont un convertisseur élévateur est intercalée entre la pile et l'onduleur, En général l'objectif de la commande d'un système PàC est de maximiser la puissance nette z_1 fournie par la PàC. La sûreté de fonctionnement est une condition clé nécessaire pour l'état de santé et la durée de vie de la pile à combustible. Un problème majeur, confronté par cette dernière en transitoire, est le risque de manque d'oxygène lors d'un appel de courant important [Pukr04c] et [Suh06] . Pour éviter ce problème, le coefficient stœchiométrique doit être maintenue autour d'une valeur optimale [Matr13a], [Talj09b] et [Zhao14], ou constante [Gruj04] et [Suh06]. Il faut alors accélérer le moteur du compresseur qui est généralement alimenté directement par la pile elle-même. Ceci constitue un des principaux problèmes de contrôle du système PàC dont l'objectif principal de notre travail c'est de proposer une méthodologie de contrôle du système d'alimentation en

air afin de garantir un bon fonctionnement de système.

La décomposition du système PàC en des sous-systèmes simples interconnectés motive la conception d'une structure de contrôle distinguée permet de régler tout types de contrôleurs. En raison de la complexité du système, on a structuré notre contrôleur sous forme de cascade contenant deux boucles (voir la figure 4.8). La boucle externe contrôle le rapport d'excès d'oxygène, en générant une consigne de vitesse angulaire du compresseur. Puis, la boucle interne contrôle la vitesse angulaire du compresseur en agissant sur le moteur synchrone à aimant permanent.

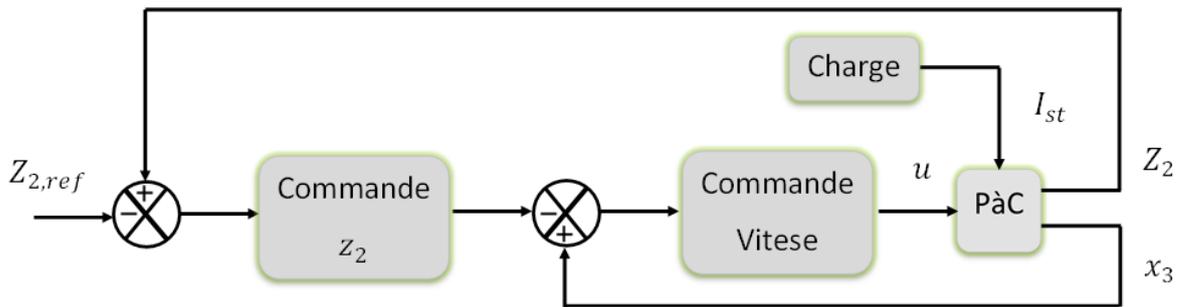


FIGURE 4.8 – Structure de la commande en cascade

4.7.1 boucle externe

La boucle externe consiste à forcer le rapport d'excès d'oxygène à sa valeur optimale, en agissant sur la vitesse angulaire du compresseur. Cette dernière est considérée comme une entrée fictive. La variable de réglage de la boucle externe est donnée par :

$$\begin{aligned} e_z &= z_2 - z_{2,ref}, \\ &= \frac{C_{23}}{C_{24}\varepsilon} (x_4 - x_1 - x_2 - C_2) - z_{2,ref} \end{aligned} \quad (4.51)$$

Un objectif primordial de la commande est de maximiser la puissance nette z_1 fournie par la PàC. Selon le courant demandé par la charge, la valeur maximale de la puissance nette est obtenue pour un rapport d'excès d'oxygène entre 2 et 2,5 [Pukr04c]. La maximisation de la puissance nette correspond donc à maintenir le rapport d'excès d'oxygène à sa valeur optimale lors du fonctionnement. Dans le but de déterminer la valeur optimale de z_2 , on peut citer [Bech10a] et [Zhon08], qui s'intéressent à la modélisation de pile environnée afin de fournir en permanence le

maximum de puissance à la charge (MPPT). La valeur optimale de z_2 , a été choisi égale à deux par [Talj09c] et [Talj10]. Mais la référence [Matr13b] a étudié les variations de z_2 et de z_1 en régime statique, à partir des résultats expérimentaux, pour différents courants de la charge et grâce aux résultats expérimentaux, la valeur optimale de z_2 , est représentée sous forme d'un polynôme du troisième degré.

La puissance z_1 est supposée typiquement réglée à l'aide des dispositifs d'électronique de puissance externes. C'est pourquoi, on se fixe comme objectif de contrôle de synthétiser un contrôleur qui régule z_2 autour d'une valeur constante désirée, typiquement choisie égale à $z_2^* = 2$.

Dans ce chapitre, notre travail est centré sur la boucle interne qui représente le problème de contrôle du système moto-compresseur d'alimentation.

Sachant qu'une fonction linéaire statique (éq : 4.21) relie le débit d'air à la vitesse angulaire du compresseur, le problème de commande du débit d'air devient similaire à celui de la commande en vitesse d'un MSAP [Marc93].

4.7.2 boucle interne

La boucle interne consiste à forcer la vitesse angulaire du compresseur à sa référence, en agissant sur le courant quadratique I_q du moteur. La variable de réglage de la boucle interne est définie par :

$$e_z = x_3 - z_{3,ref} \quad (4.52)$$

Une étude présentée par [Talj09b] focus sur la stabilité basée sur les caractéristiques de monotonie du système a montré que ce système est facilement localement stabilisable, autour de n'importe quel point de fonctionnement, par un simple Proportionnel (P) ou Proportionnel-Intégral (PI) à condition de bien choisir la variable de retour. Ainsi, le vrai problème de commande devient une question de performance et de robustesse, plus qu'une question de stabilité.

4.7.3 Montage expérimental

Dans cette section on présente le banc d'essai utilisé pour la validation expérimentale. Les expériences ont été menées sur un banc d'essai Hardware-in-Loop

(HIL), celui-ci se compose d'un compresseur à double vis et d'un émulateur de système à pile à combustible en temps réel. La pile émulée est de puissance de 33 kW composée de 90 cellules en série. Le compresseur à double vis est entraîné par un moteur synchrone à aimant permanent. Le banc d'essai est équipé avec un processeur temps réel National Instruments CompactRIO. Celui-ci est utilisé pour la commande et l'acquisition de données du système. La structure de simulation HIL est représentée sur la figure 4.9.

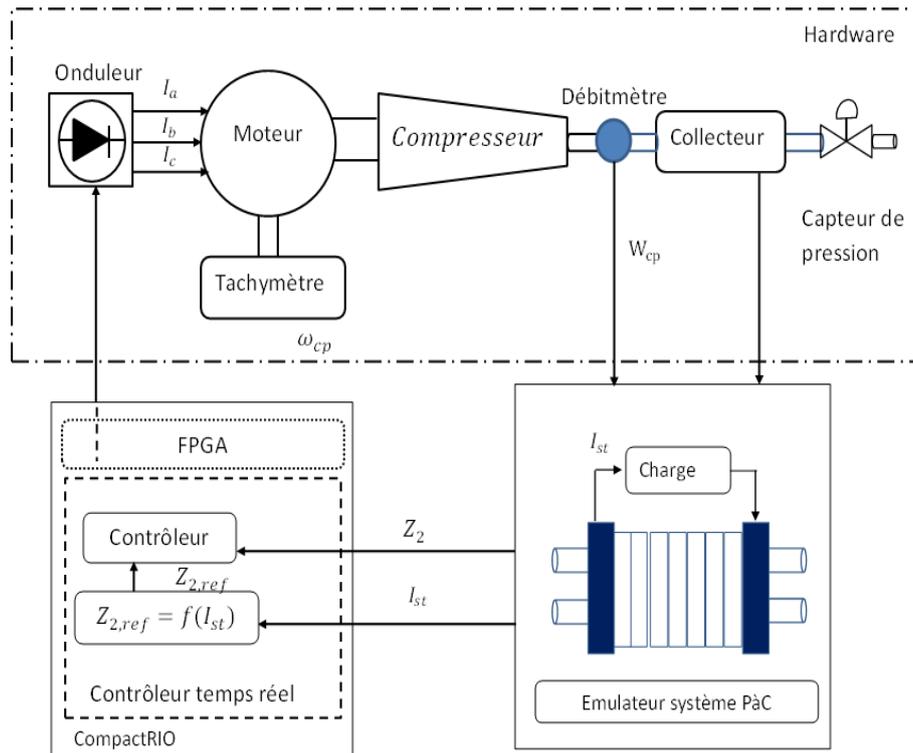


FIGURE 4.9 – La structure de simulation Hardware-in-Loop

Les premiers essais effectués sur le compresseur ont été des essais nécessaires de caractérisation. Ils ont été réalisés en mode ouvert d'où la vitesse est variée avec le courant de moteur. La réalisation de ces essais statiques va nous permettre d'étudier le comportement et les performances du compresseur à double vis sur des plages de fonctionnement à pression variable. Le débit massique d'air du compresseur, en fonction de sa vitesse d'entraînement, est représenté en figure 4.10 Le débit que l'on a pu atteindre a été plus que 0.025 kg/s pour une pression d'air plus que 1,02 bars. Cette valeur du débit correspond, à un courant quadratique de moteur environ de 2 A . La figure présente aussi la puissance électrique consommée par le groupe moto-

compresseur, en fonction de sa vitesse de rotation. Nous pouvons noter que, pour ces valeurs élevées de débit et de pression fournies par le compresseur, la puissance consommée s'élève à plus de 800 W.

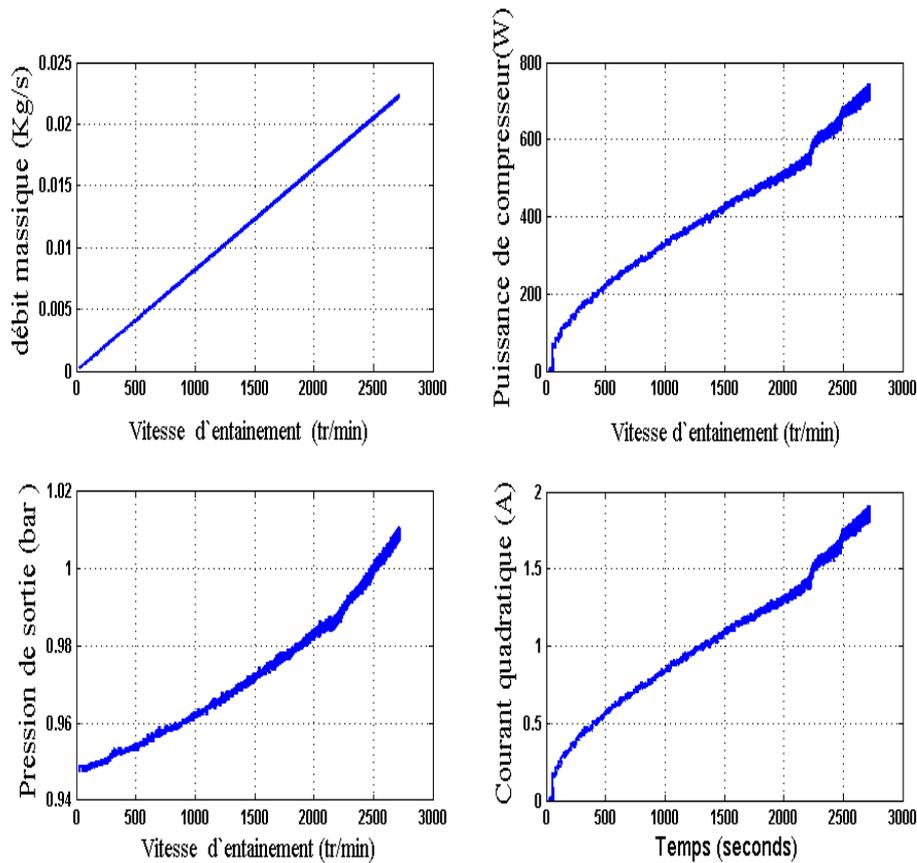


FIGURE 4.10 – Caractéristiques, débit, pression, puissance et courant quadratique de groupe moto-compresseur

Une campagne d'essais pour différents niveaux de pressions de sortie du compresseur a été effectuée, en variant la fermeture et l'ouverture de la vanne de 20 (%) jusqu'à 70 (%). L'essai effectué à vitesse fixe de valeurs 1000 tr/min un bas régime de fonctionnement et une fermeture de la vanne de 20(%) jusqu'à 70(%). Nous pouvons remarquer que sur la figure 4.11, l'influence sur la température du sortie de l'air et la pression de sortie de compresseur. La température augmente et ceci est dû en particulier à l'augmentation du taux de compression, car la pression de sortie atteindre environ 1.03 bar. Comme nous pouvons le constater en figure 4.12, les essais effectués

à vitesse et vanne variables ont montré une variation considérable de la pression de sortie ainsi que la température. Afin d'étudier le régime statique du groupe

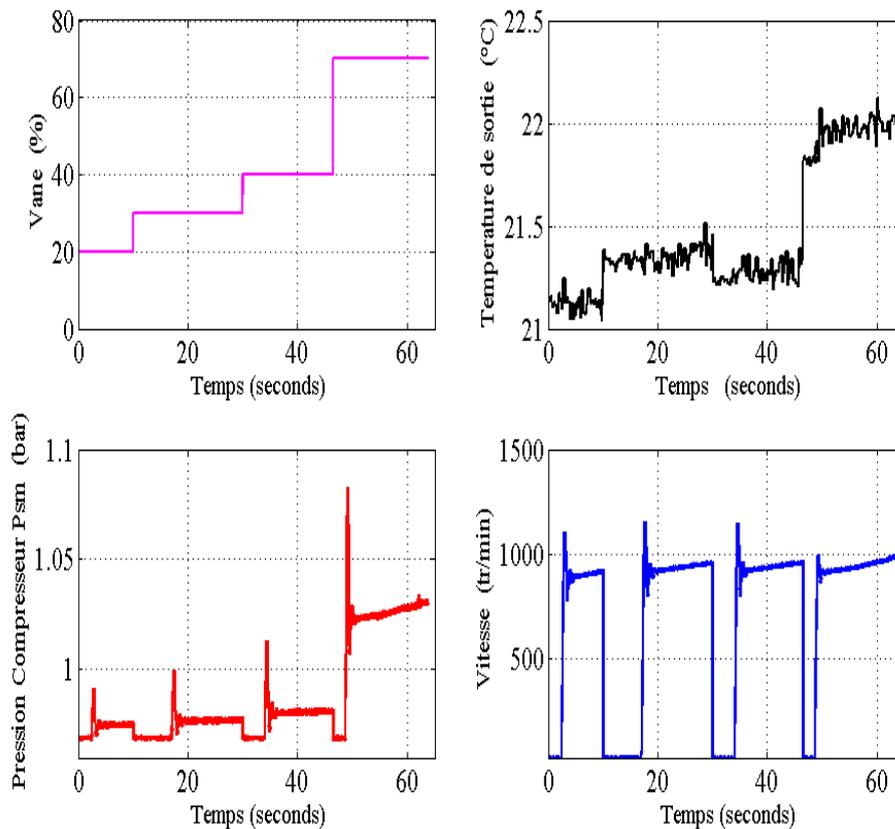


FIGURE 4.11 – Essai statique en bas régime pour différent niveaux de vanne

moto-compresseur, plusieurs essais dynamiques avec des applications d'échelons de consignes de vitesse, ont été effectués. L'un de ces essais, pour lequel on a appliqué tout d'abord un échelon de consigne de (500, 1000, 2000, 2500 et 1500 tr/min) est exposé en figure 4.13. La PàC émulée fournit l'alimentation du compresseur v_{cm} la commande en cascade est implémentée dans le processeur temps réel, pour générer successivement, la vitesse et le courant quadratique de référence. Ce courant quadratique est converti en 3 phases et il est appliqué sur le moteur du compresseur à travers l'onduleur. La PàC alimente une charge variable qui consomme un courant varie entre 40 et 200 A et assure une tension électrique varie entre 240 et 320 V, comme le montre la figure 4.14 . Le débit d'air fourni par le compresseur a le même comportement que la vitesse et il est représenté sur la figure 4.15 dont 0.0205 kg/s

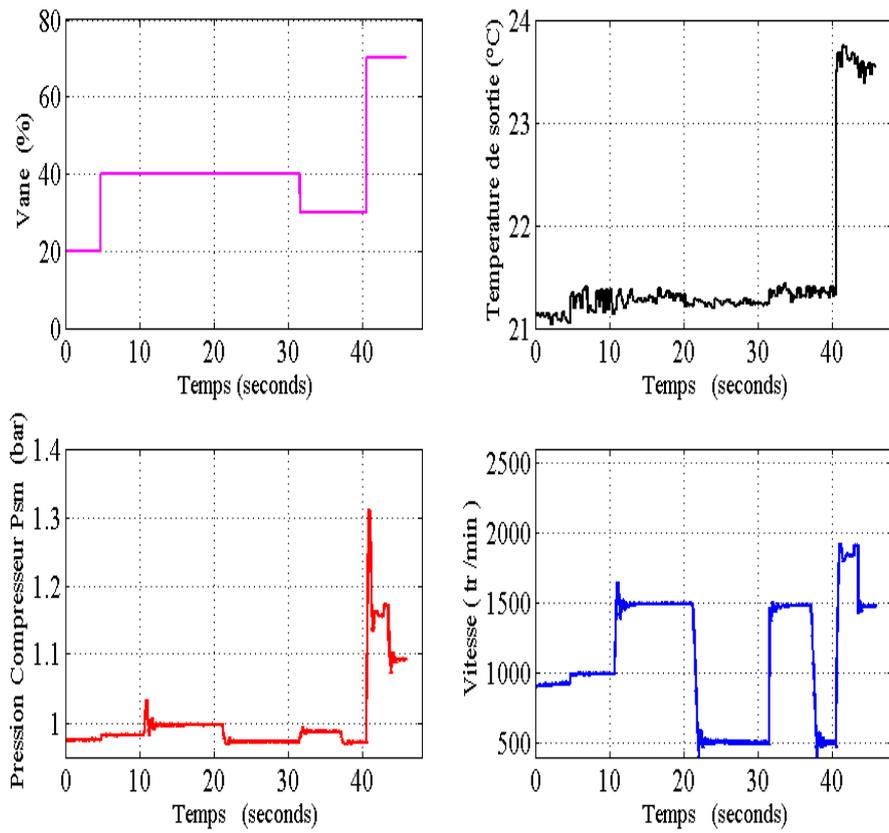


FIGURE 4.12 – Essai statique pour différents niveaux de vanne et vitesse

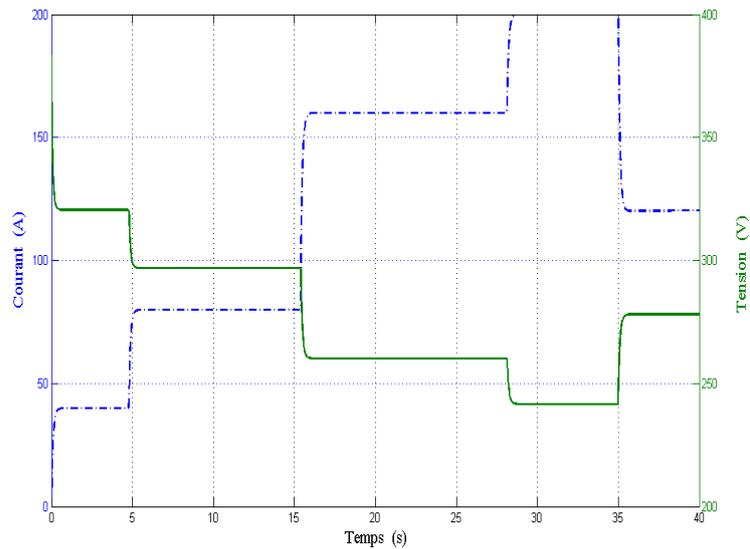


FIGURE 4.13 – Variation du courant et du tension de la Pile à combustible

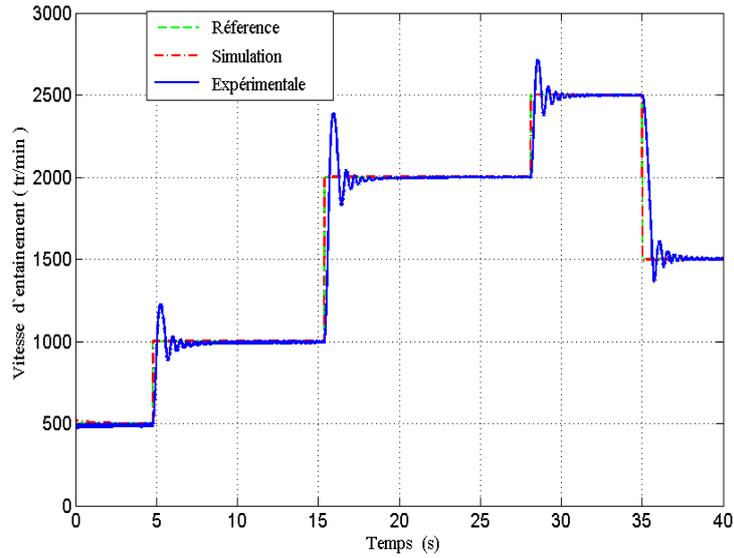


FIGURE 4.14 – Variation de la vitesse angulaire du compresseur

une valeur correspond à une vitesse de rotation 2500 tr/min. La commande du système (courant quadratique du moteur) varie entre 0 et 5 A, comme indiqué dans la figure 4.16.

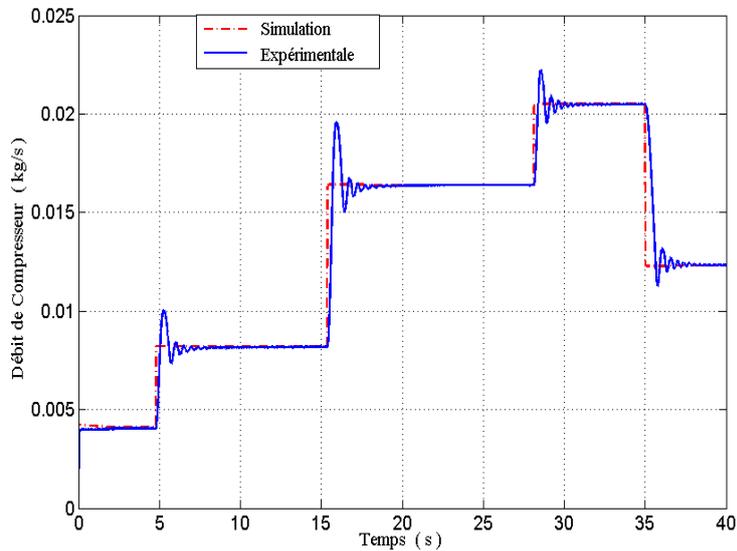


FIGURE 4.15 – Variation du débit d'air du compresseur

En premier temps, des essais pratiques ont été exécutés avec un simple contrôleur proportionnel (P), l'erreur est multipliée par un gain K_p pour atteindre la stabilité

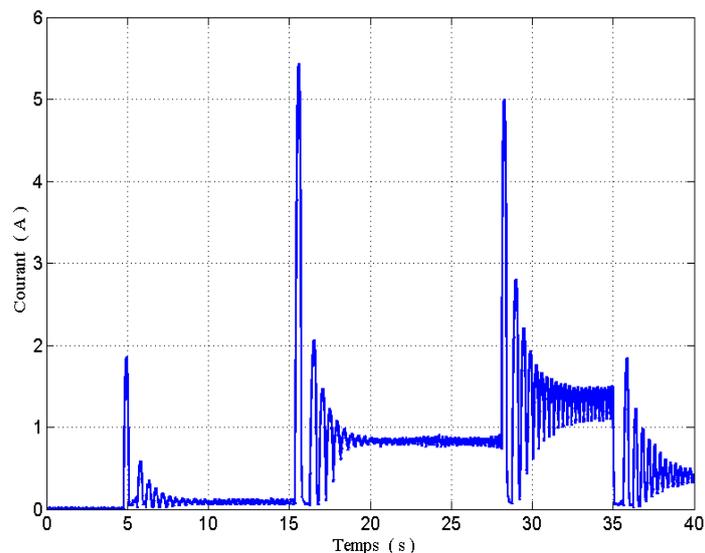


FIGURE 4.16 – Variation du courant quadratique du moteur

de système et minimisé l'erreur statique. L'asservissement de vitesse du moteur est réalisé grâce à un contrôleur linéaire classique de type Proportionnel - Intégral (P.I). Pour ce réglage, le temps de réponse du système est bien amélioré. Mais nous avons bien remarqué que le réglage pour les mêmes propriétés de contrôleur, les résultats ne sont pas en parfaite adéquation avec ceux obtenus expérimentalement sauf avec une petite rectification.

D'après la courbe de vitesse nous pouvons constater que la vitesse du compresseur suit sa référence et qu'elle converge rapidement. Mais un simple régulateur PI pose une difficulté à assurer des bonnes performances en transitoire. Ces mêmes difficultés sont importées sur le débit ; d'où la réduction des performances transitoires remarquées. Cela accentue le compromis entre rapidité et stabilité. Pour éviter les oscillations dans la réponse du débit d'air, on doit augmenter le temps de réponse et par suite perdre en rapidité.

Sachant que le compresseur est utilisé pour alimenter la cathode de la pile à combustible avec de l'air, alors un débit d'air oscillant va entraîner des oscillations au niveau du coefficient stœchiométrique, et peut dégrader les performances globales de la pile, précisément la puissance nette délivrée à la charge qui dépend fortement du coefficient stœchiométrique. D'autre part, ces fluctuations peuvent générer des contraintes physiques sur la membrane entre l'anode et la cathode, sachant que la

différence de pression autour de la membrane doit être maintenue très faible (inférieure à 500 mbars). Il est montré dans la figure 4.17 que le bon choix de gain et le taux d'intégrale ($K_p = 30$ et $K_i = 20$) peut améliorer les performances en transitoire essentiellement le dépassement, et en général, le courant de la pile à combustible (reflétant la demande de la charge) ne change pas en échelons, Il était préférable de changer l'échelon de la vitesse progressivement doux ou bien en pente. D'après la figure 4.18, nous pouvons constater que malgré les performances relativement bonnes obtenues avec ces valeurs. Cependant, comme nous l'avons déjà évoqué,

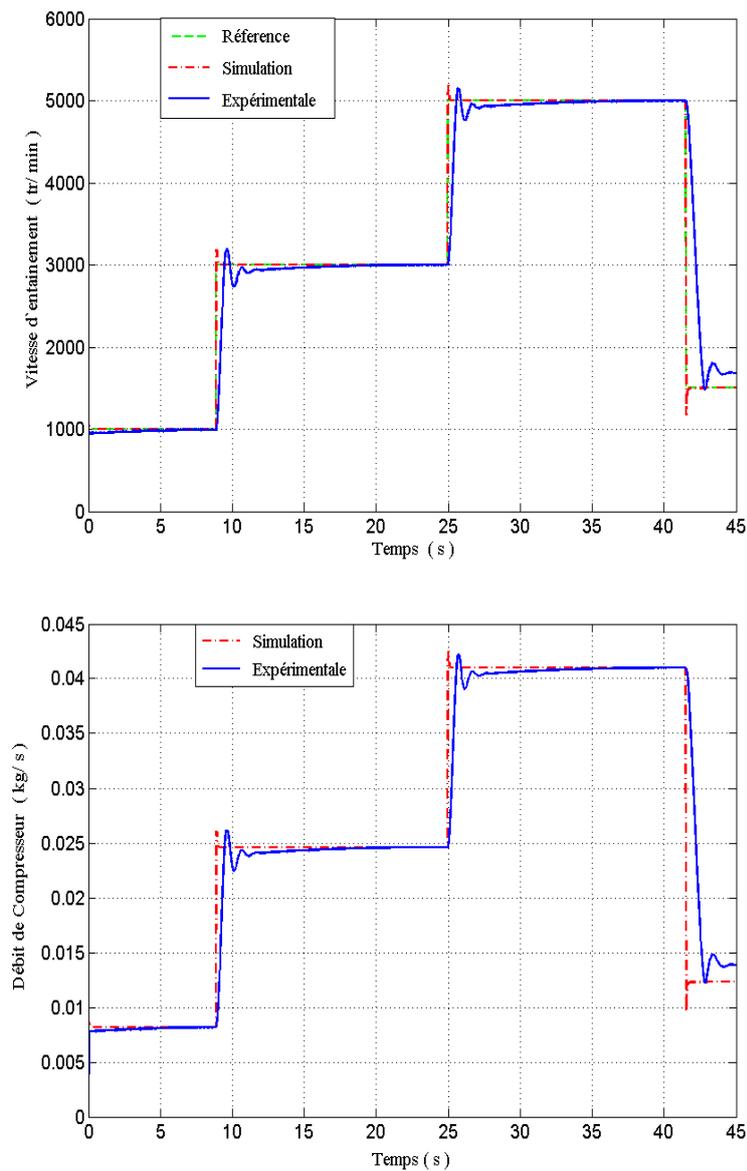


FIGURE 4.17 – Vitesse et débit améliorés

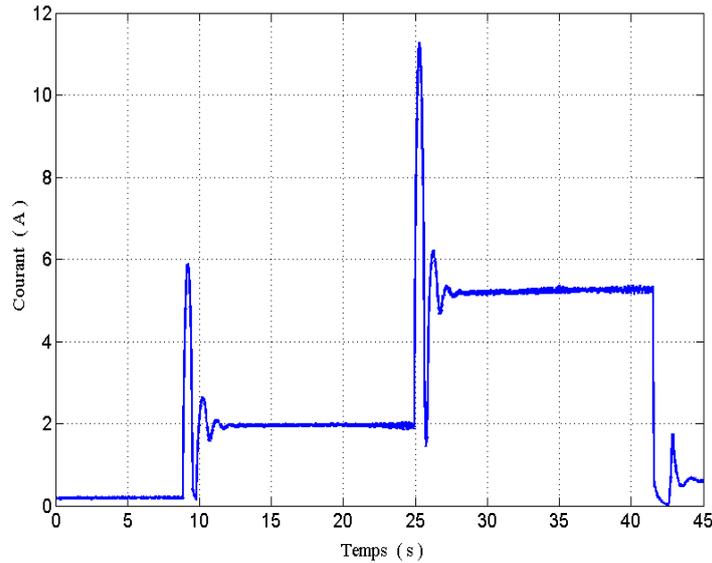


FIGURE 4.18 – Courant quadratique du moteur amélioré

la réponse dynamique d'une PàC alimenté en air par un groupe moto-compresseur est limitée par la dynamique de ce dernier. cette valeur de temps de réponse, et plus encore de temps de montée du circuit d'air, obtenue avec un régulateur (P.I), reste insuffisante. Ainsi, afin de ne pas limiter ces performances, il pourrait être intéressant de développer une autre stratégie de contrôle/commande, pour ce groupe moto-compresseur.

4.7.4 Commande fondée sur la logique floue

Comme toute commande classique, les contrôleurs fondés sur la logique floue consistent à réguler le comportement des systèmes afin d'assurer les performances désirées. Par contre, ils se fondent sur des techniques heuristiques et des théories de la logique floue (Zadeh, 1965), et non pas sur des équations différentielles (Nguyen en 2002). Ainsi, la dynamique des contrôleurs flous peut être, dans un certain sens, vue comme une imitation du comportement humain. Les opérations floues se réalisent en se fondant sur des règles logiques et l'état actuel du système. Cette nature des contrôleurs flous les rend très utiles à la commande des systèmes complexes et difficile à modéliser, non linéaires ou inconnus. il existe plusieurs façons de définir un contrôleur flou [Keba13]. En effet, il est possible de modifier le régulateur flou en

agissant sur le choix de la forme, du nombre et de la position des fonctions d'appartenance en entrée et en sortie. Il est également possible d'agir sur le jeu de règles et sur le processus de défuzzification. Parmi ces multiples choix de systèmes flous possibles, nous avons retenu pour notre étude un contrôleur flou de type "Mamdani". Nous avons observé que lorsqu'on essayait de rendre le régulateur plus rapide, on aboutissait à des dépassement plus important expérimentalement qu'en simulation. Alors nous nous sommes intéressés au remplacement du régulateur classique de vitesse par un régulateur flou. La réalisation d'un régulateur flou pose un problème lié aux nombreuses manières de réaliser les opérateurs et l'implication. Bien qu'il existe une liste des méthodes, on se retrouve déjà avec un grand nombre de variantes. Nous allons présenter que les principales propriétés du régulateur développé en Matlab/Simulink. Nous utilisons la structure du régulateur flou, montrée sur la figure 4.19 et la matrice d'inférence utilisée est décrite par le tableau 4.1. Nous avons utilisé une répartition uniforme des fonctions d'appartenance sur l'univers de discours des entrées ainsi pour celles de la sortie, donné par la figure 4.20.

Le régulateur flou à deux entrées est représenté par sa surface caractéristique (voir

TABLE 4.1 – Matrice d'inférence du régulateur flou à cinq fonctions d'appartenance par variable

e \ de	BN	N	ZE	P	BP
BN	BN	BN	N	N	ZE
N	BN	N	N	ZE	P
ZE	N	N	ZE	P	P
P	N	ZE	P	P	BP
BP	ZE	P	P	BP	BP

figure 4.21).

Cette dernière exprime les variations de la valeur réelle de la sortie du régulateur en fonction des entrées quand ces dernières parcourent l'univers de discours. Comme on peut le voir en figure 4.22, ce réglage a engendré une nouvelle réponse de la vi-

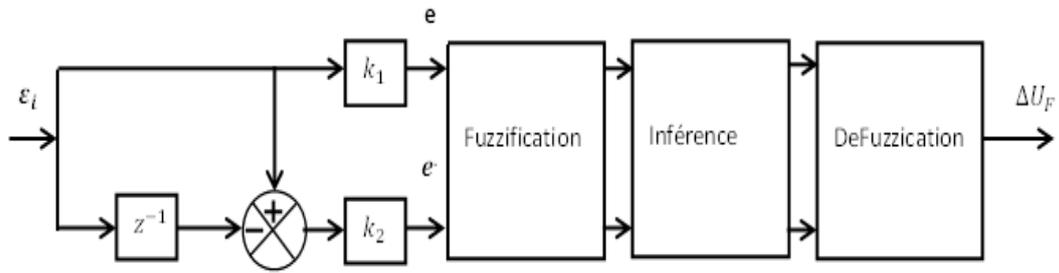


FIGURE 4.19 – Structure du régulateur flou

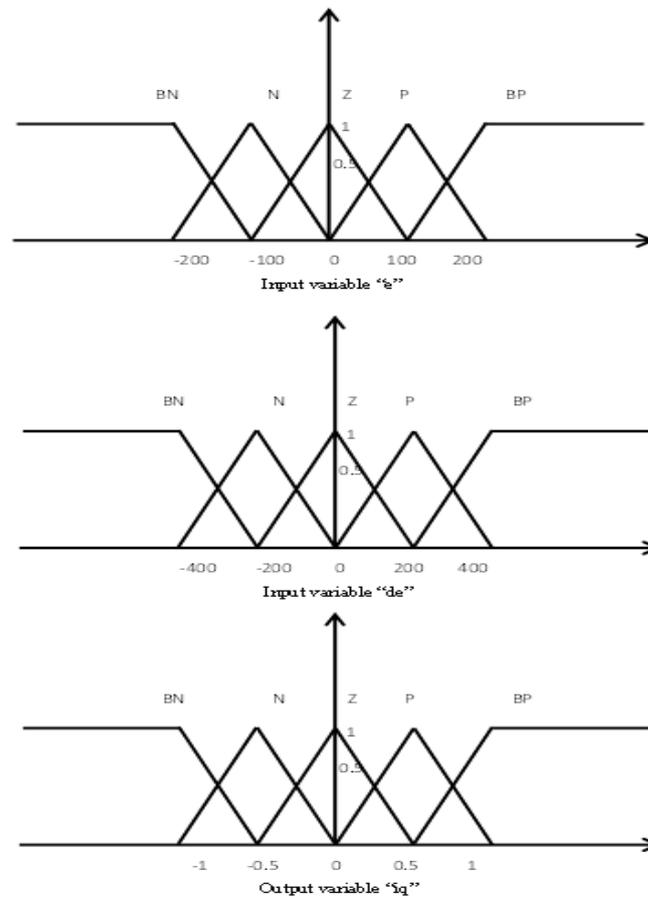


FIGURE 4.20 – Forme des fonctions d'appartenance

tesse présentant un dépassement nul. Cette simulation effectuée sur la régulation de vitesse (de débit) nous a permis de constater que l'utilisation d'un contrôleur flou peut être intéressante.

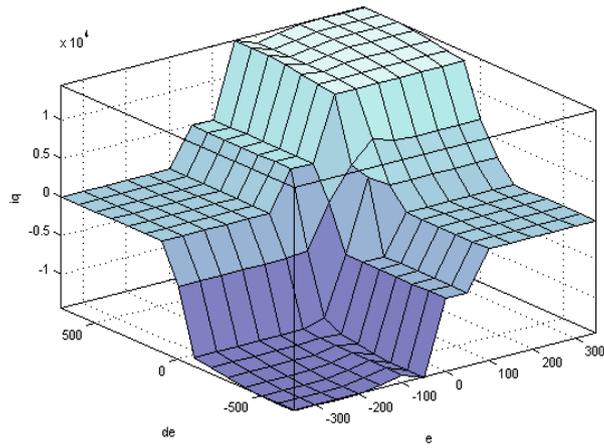


FIGURE 4.21 – Surface caractéristique du régulateur flu

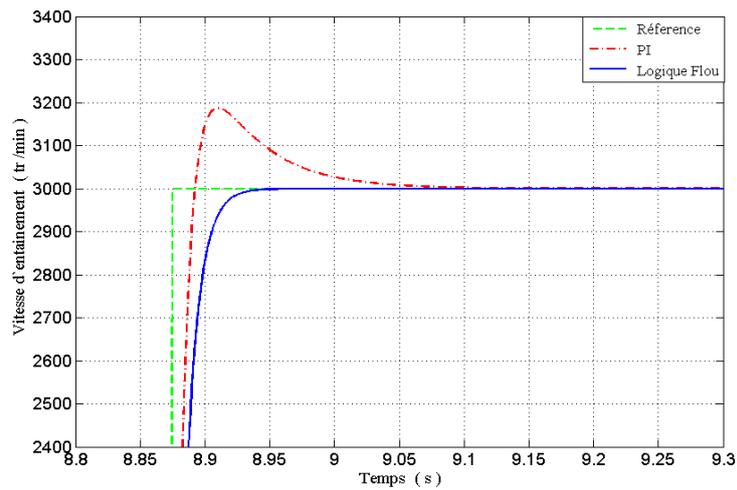
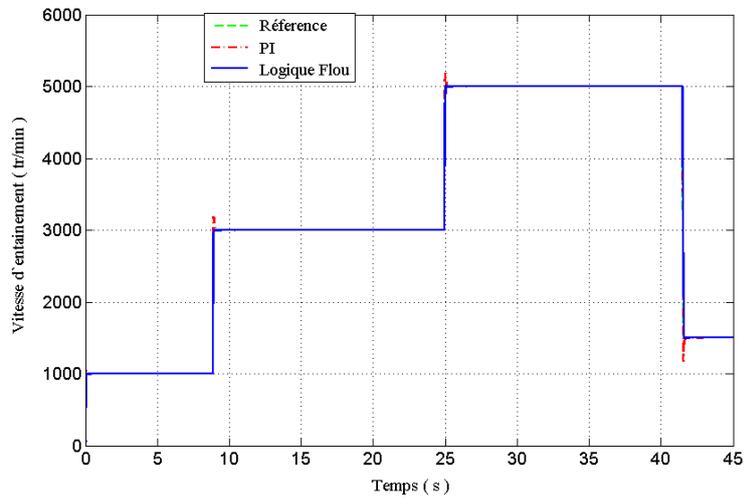


FIGURE 4.22 – Vitesse angulaire du compresseur obtenue par contrôleur PI et flu

4.8 Conclusion

Dans ce chapitre, une modélisation complète de notre système (PàC et groupe moto-compresseur) a été réalisée, et une décomposée en une structure de boucle interne et boucle externe. Une structure de contrôle en cascade a été aussi proposée. Pour la boucle interne, deux contrôleurs mentionnés pour montrer les performances de cette méthode, la logique floue et un régulateur (PI) ont été appliqués ; où la plupart des méthodes de réglage de contrôleurs sont basées sur des considérations pratiques. Plus particulièrement, pour les PàC. Les résultats pratiques obtenus ouvrent ainsi l'horizon pour la conception de nouvelles lois de commande appliquées au système d'alimentation en air des PàC de type PEMFC.

Conclusion générale

Bilan et contributions

Les travaux de recherche présentés dans cette thèse apportent une contribution au développement des systèmes PàC. Dans la première partie, nous avons modélisés les différentes parties de système ; pile à combustible de type PEMFC, un groupe moto-compresseur constitué d'un compresseur soit centrifuge ou à double vis, entraîné par un moteur synchrone à aimants permanents.

Une présentation comparative des principaux modèles statiques et dynamiques a été proposée, cela permet de définir la tension de la pile. Le modèle statique donne des résultats stables et importants à travers le régime permanent. Le modèle d'Amphlett peut être considéré comme le modèle le plus complexe, mais préférable car plus précis. la tension en circuit ouvert obtenue par ce modèle est identique aux résultats expérimentaux. Le modèle de Chamberlin-Kim est le plus simple, le modèle de Larminie-Dicks statique donne des résultats acceptables.

Les modèles dynamiques notamment des circuits électriques sont conçus habituellement pour définir un système. Dans cette thèse trois modèles dynamiques des PEMFC sont étudiés. Le modèle de Larminie-Dicks est le modèle le plus simple, en ce qui concerne le modèle d'impédance et le modèle par circuit électrique équivalent (Becherif), ce dernier offre une précision quatre fois supérieure au modèle Larminie-Dicks et trois fois supérieure au modèle d'impédance, car il est moins sensible aux fluctuations de puissances et aux variations relatives aux conditions de charge.

Parmi les modèles dynamiques, nous avons choisi le modèle de circuit électrique équivalent pour simplifier le modèle de 4 variable d'états, et prendre en compte au même temps la dynamique de la pile et le compresseur. Notre premier but est de protéger

le cœur de la pile et le compresseur, en utilisant l'application de deux méthodologies de commandes, il s'agit des commande par régulateur (PI) et logique floue. L'étude théorique a été validée expérimentalement et exécutée sur un banc d'essai au FC Lab (moteur synchrone à aimant permanent entraînant un compresseur double-vis).

Perspectives de recherche

Les problèmes évoqués dans cette thèse ouvert à la recherche sont nombreux, nous évoquons ici les plus importantes :

Les résultats théoriques et expérimentaux n'excluent pas des approfondissements. Les compléments qui peuvent être apportées à notre travail sont de plusieurs types. Le modèle dynamique de PàC utilisé dans ce travail est basé sur plusieurs hypothèses comme la régulation de la température, de l'humidité et de la gestion de l'eau. Il serait intéressant de travailler encore sur ce type de modèle, et de tenir en compte la dynamique de tous ces paramètres, pour que le système deviendrait plus proche de la réalité.

Compléter le travail de commande et proposer de nouvelles stratégies robustes et performantes comme la rapidité, oscillations, et chattering...). Il serait intéressant de valider expérimentalement les performances du système bouclé en envisageant toutes les combinaisons possibles pour les deux boucles, interne et externe. D'une façon générale, un retour au système initial d'ordre 4 et au système complet d'ordre 9 est intéressant.

Annexe A

Constantes des systèmes

$$c_1 = \frac{\bar{R}T_{st}k_{ca,in}}{M_{O_2}V_{ca}} \left(\frac{x_{O_2,atm}}{1+\omega_{atm}} \right),$$

$$c_2 = p_{sat},$$

$$c_3 = \frac{\bar{R}T_{st}}{V_{ca}},$$

$$c_5 = M_{N_2},$$

$$c_7 = \frac{\bar{R}T_{st}n}{4V_{ca}F},$$

$$c_9 = \frac{\eta_{cm}k_tk_v}{J_{cp}R_{cm}},$$

$$c_{11} = p_{atm},$$

$$c_{13} = \frac{\eta_{cm}k_t}{J_{cp}R_{CM}},$$

$$c_{15} = \frac{1}{\eta_{cp}},$$

$$c_{17} = \frac{C_{DAT}}{\sqrt{\bar{R}T_{st}}} \sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma-1}},$$

$$c_{19} = \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}},$$

$$c_{21} = \frac{1}{R_{cm}},$$

$$c_{23} = k_{ca,in} \frac{x_{O_2,atm}}{1+\omega_{atm}},$$

$$c_4 = M_{O_2},$$

$$c_6 = M_v p_{sat},$$

$$c_8 = \frac{\bar{R}T_{st}k_{ca,in}}{M_{N_2}V_{ca}} \left(\frac{1-x_{O_2,in}}{1+\omega_{atm}} \right),$$

$$c_{10} = \frac{C_{PTATM}}{J_{cp}\eta_{cp}},$$

$$c_{12} = \frac{\gamma-1}{\gamma},$$

$$c_{14} = \frac{\bar{R}T_{atm}}{M_{a,atm}V_{sm}},$$

$$c_{16} = k_{ca,in},$$

$$c_{18} = \frac{1}{\gamma},$$

$$c_{20} = \frac{C_{DAT}}{\sqrt{\bar{R}T_{st}}} \gamma^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}},$$

$$c_{22} = k_v,$$

$$c_{24} = \frac{nM_{O_2}}{4F},$$

Coefficients de regressions de la cartographie du compresseur

$$\begin{aligned} a_0 &= 0.21195 * 10^{(-3)}, & a_1 &= -0.63685 * 10^{(-5)}, \\ a_2 &= -5.36235 * 10^{(-4)}, & a_3 &= 2.70399 * 10^{(-4)}, \\ a_4 &= -3.69906 * 10^{(-5)}, & b_0 &= 0.44419, \\ b_1 &= -1.34837, & b_2 &= 1.76567, \\ c_0 &= 0.43331, & c_1 &= -0.68344, \\ c_2 &= 0.80121, & c_3 &= -0.42937, \\ c_4 &= 0.10581, & c_5 &= -9.78755 * 10^{(-3)}, \end{aligned}$$

Annexe B

Index des notations et valeur nominale des paramètres du système.

Symbole	Paramètre	Valeur
A_s	Surface active des cellules	(m^2)
A_{fc}	Surface active de la pile à combustible	$100(cm^2)$
A_t	Surface de sortie de la cathode	$0.002(m^2)$
C_p	Coefficient calorifique spécifique de l'air	$1004(J/Kg.K)$
C_e	couple électromagnétique	$(N.m)$
C	Capacité	(F)
C_f	capacité de fluide	(F)
E_{th}	la force électromotrice théorique d'une cellule	(V)
F	Constante de Faraday	$96485.3415(A.s/mol)$
f	frottement visqueux du moteur	$(Nm/rad.s - 1)$
ΔG°	Variation d'enthalpie libre	
J	Densité de courant	(A/m^2)
J_{cp}	Inertie du moteur et du compresseur	$5 * 10^{(-5)}$
I_{st}	courant de la PàC	(A)
I_q	courant quadratique de moteur	(A)
I	courant de pile	(A)
$k_{ca,in}$	constante de débit de l'orifice des tuyaux d'air	$3629 * 10^{(-5)}Kg/(s.Pa)$
M_{O_2}	masses molaires de l'oxygène	$32 * 10^{(-3)}Kg/mol$
M_{N_2}	masses molaires de l'azote	$32 * 10^{(-3)}Kg/mol$

N	Nombre de cellules de l'empilement	
n	nombre d'électrons échangés	
p	nombre de paire de pôles	5
P_{an}	Pression de la anode	(Pa)
p_{atm}	Pression atmosphérique	$1.01325 * 10^{(-5)}(Pa)$
P_{ca}	Pression de la cathode	(Pa)
P_{H_2}	Pression d'hydrogène	(Pa)
p_{rm}	volume des tuyaux de retour cathodique	(pa)
p_{sat}	Pression de saturation	(Pa)
P_{st}	Puissance électrique brute du stack	(W)
r_{cp}	Rendement du compresseur	$0.8(kg.m^2)$
r_{cm}	Rendement mécanique du moteur du compresseur	0.98
R_{cm}	Résistance du moteur	(Ohm)
R	Constant universelle des gas	(J/(mol.K))
R_s	Résistance de cellule (Modèle Kim)	Ωcm^2
R_a	Résistance anodique	Ω
R_c	Résistance cathodique	Ω
R_{oa}	Densité de l'air	$1.23(Kg/(m^3))$
S_i	grandeurs logiques	
T_{atm}	Température atmosphérique	K
T_{st}	Température de stack	K
T_m	épaisseur de la membrane	$1.275 * 10^{(-4)}(m)$

V	Tension par cellule	(V)
V_{an}	tension simple d'onduleur	(V)
V_{st}	Tension de stack	(V)
V_{ca}	volume de la cathode	$0.01(m^3)$
V_{sm}	volume de ce tuyau	$0.02(m^3)$
U_o	tension d'entrée d'onduleur	(V)
W	débit	(g/s)ouNm/mol
$W_{O_2,rect}$	débit d'oxygène réagi	(g/s)
$W_{ca,in}$	débit à l'entrée de cathode	(g/s)
W_{cp}	débit sortant du tuyau	(g/s)
$x_{O_2,atm}$	fraction de masse d'oxygène	
$Z_{Cc,CPE}$	Impédance de Warberg	
τ_{cm}	couple du moteur	(N.m)
τ_{cp}	couple de charge du compresseur	(N.m)
τ_f	couple de frottement	(N.m)
ϕ_{atm}	humidité relative aux conditions ambiantes	0.5
γ	Rapport calorifique spécifique de l'air	1.4

Annexe C

Description du banc d'essai

Un banc d'essai a été réalisé figure 4.23, il se compose des éléments suivants conformément aux figures au-dessous :

- le groupe moto-compresseur composé d'un compresseur,
- un onduleur avec son système de commande manuelle de vitesse,
- une vanne de régulation de débit,
- un système d'acquisition avec logiciels de visualisation des grandeurs enregistrées,
- des alimentations 400 Vdc, 24 Vdc, 12 Vdc et 230 Vac,
- des tuyaux flexibles en PTFE ,
- un système de lubrification,
- des capteurs de mesure mentionnés ci-dessous.

Liste des appareils utilisés pour les tests :

- capteurs de courant DC,
- capteurs de pression,
- thermocouples de type K,
- un tachymètre.

Le groupe moto-compresseur, provenant de la société Opcon Autorotor, est composé d'un compresseur à double vis (type OA 1050/1,44) couplé mécaniquement à un moteur "brushless" de marque Fisher Technology (type M3/3AF). Le compresseur, utilisé dans ce système, est un compresseur double vis. Il comporte deux vis qui permettent de comprimer l'air. Comme pour le compresseur à piston, on joue ici sur la diminution du volume pour augmenter la pression. D'un côté, le compresseur

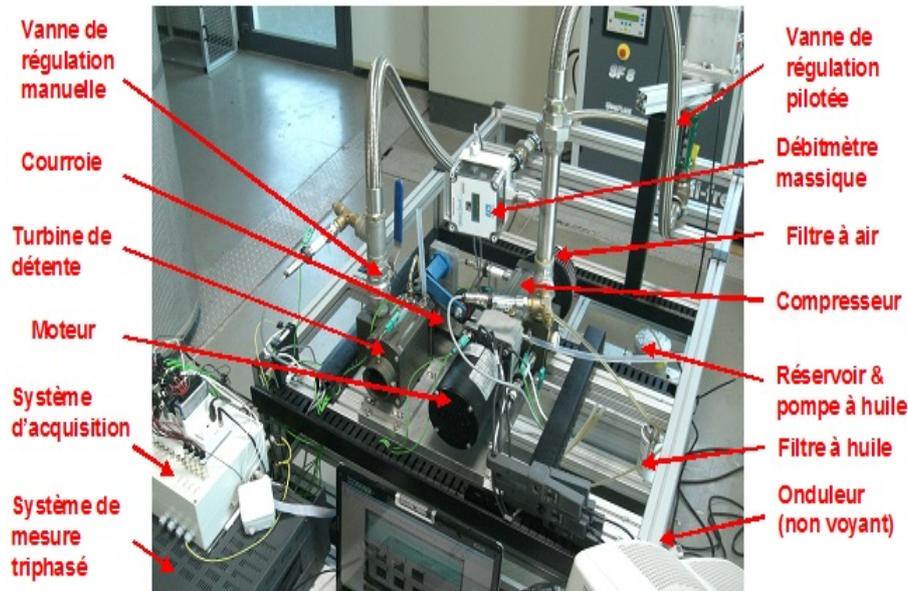


FIGURE 4.23 – Banc de test moto-compresseur

aspire de l'air ambiant, de l'autre, il refoule de l'air comprimé. La compression est effectuée par l'engrenage de deux rotors hélicoïdaux enfermés dans un carter prévu à cet effet (figure 4.24).

En général, on utilise de l'huile dans ces compresseurs pour lubrifier la chambre de compression afin d'étanchéifier les vis. Cette huile doit être refroidie, car le fait de compresser l'air crée un échauffement auquel s'ajoute l'échauffement mécanique dû aux frottements, et si l'huile est trop chaude, elle n'est plus assez visqueuse pour garantir l'étanchéité [Gran08].

La température de circulation de l'huile ne doit pas dépasser $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ dans le circuit d'huile. Les raccords d'entrée huile côté compresseur et turbine sont de diamètre 6 alors que les raccords de sortie huile sont de diamètre 9,7. Les flexibles utilisés pour la lubrification du circuit en huile sont en PTFE et résiste à une température de $200\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Le moteur est muni de deux sondes de température thermocouple type K situées dans les bobinages du stator. En effet, nous ne devons pas dépasser la température de $180\text{ }^{\circ}\text{C}$ à l'intérieur de celui-ci. Un tachymètre a été monté sur l'arbre du moteur afin d'en déterminer la vitesse de rotation.

Un convertisseur DC/AC , fourni par la société Opcon Autorotor, est utilisé pour cette application. C'est un onduleur de tension de marque Advanced Motion Controls

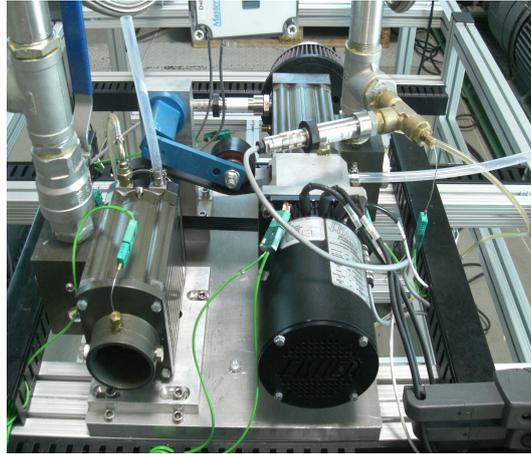


FIGURE 4.24 – Photo moto-compresseur

(type AMC B100A40P) (Figure 4.25). Cet onduleur pilote le moteur grâce à une régulation de courant par *MLI* (Modulation de Largeur d'Impulsions) avec une porteuse fixée à 15 kHz . Il est également doté d'une limitation en courant de 40 A afin de ne pas endommager le moteur. Il contient aussi une régulation de vitesse de type Proportionnel-Intégrale piloté manuellement grâce à un panneau de contrôle. L'onduleur est doté d'un radiateur et d'un ventilateur fixé sur celui-ci pour son refroidissement.

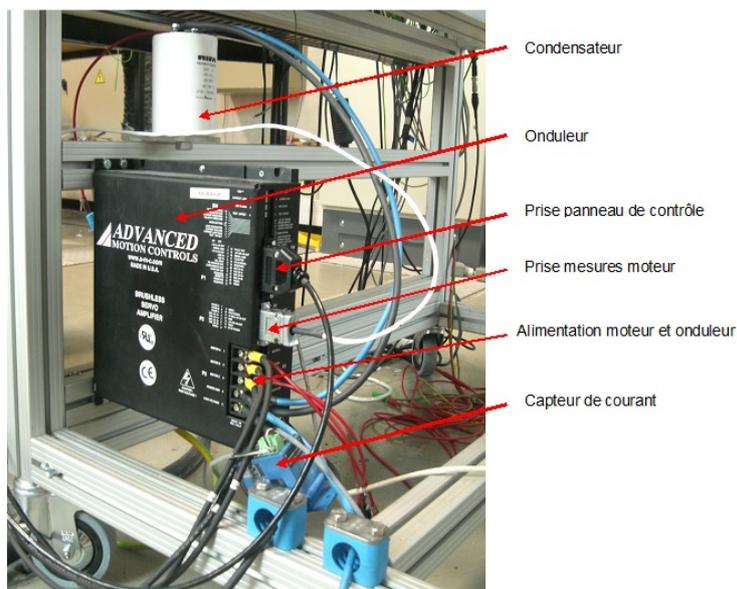


FIGURE 4.25 – Photo onduleur (vue de face)

L'onduleur a besoin d'une source de tension continue de 400 Vdc pouvant fournir un courant DC jusqu'à 50 A. L'alimentation utilisée requiert une source électrique triphasée $3 \times 400V_{ac} - 63A$. Un capteur de courant de marque LEM (type DK-100-B10), pouvant mesurer des courants DC jusqu'à 50 A, a été intégré entre l'alimentation et l'onduleur. Il permettra de mesurer le courant consommé par l'onduleur.

Un condensateur de marque EVORIFA (type PEH200 – 450V/2200 μF) (valeurs conseillées par la société Opcon Autorator) a été également connecté en parallèle avec l'entrée d'alimentation onduleur de façon à stabiliser la tension d'entrée de l'onduleur (Figure 4.26). Cela permet de réduire les parasites et les perturbations lors de nos mesures. Ces parasites sont dus aux phénomènes électromagnétiques liés aux forts courants qui circulent dans les câbles [Gran08].

Une vanne de régulation de débit de marque Baumann (type MV 1020) a été ins-

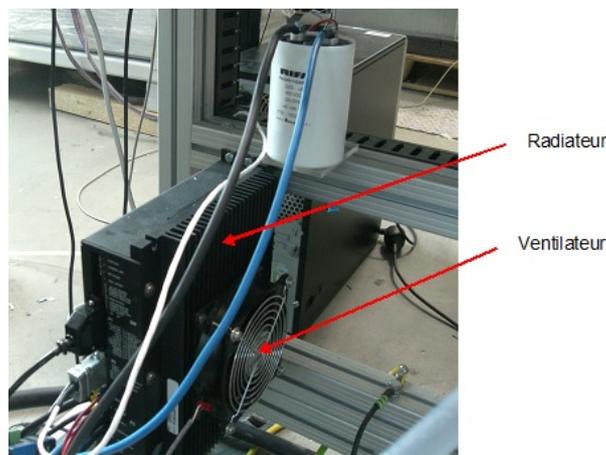


FIGURE 4.26 – Photo onduleur (vue arriere)

tallée. Elle permet de réguler la pression et le débit en sortie de compresseur, grâce à un pilotage électrique. Une tension de référence 0-10 Vdc permet l'ouverture ou la fermeture de 0 à 100 % de la vanne. Ainsi, il sera possible d'imposer la pression d'air souhaitée et de simuler les pertes de charge dues au transit de l'air comprimé à travers le compartiment cathodique de la PAC (Figure 4.27). Cette vanne requiert une alimentation en 230 Vac. Un signal de sortie 4-20 mA est également câblé pour nous indiquer l'état actuel de la vanne (position d'ouverture/fermeture) sur l'écran de l'ordinateur.

Un boîtier d'acquisition, de marque National Instruments CompactDAQ, a été uti-

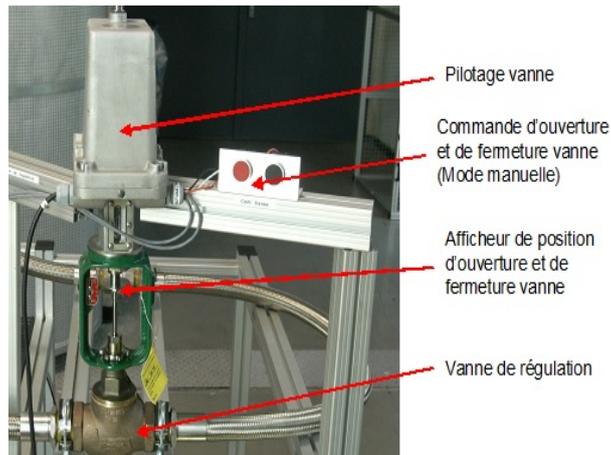


FIGURE 4.27 – Photo vanne de régulation

lisé pour faire l'interface entre tous les capteurs de mesure et l'écran de contrôle sur l'ordinateur (Figure 4.28). En effet, ce système récupère toutes les mesures avec un signal en 0-10 Vdc, 0-5 Vdc ou encore 4-20 mA provenant des capteurs. Pour chaque signal, il existe une mise à l'échelle qui sert à retranscrire la vraie grandeur mesurée (en bars, en °C, etc.). Toutes ces mesures mises à l'échelle sont envoyées directement à un ordinateur via un câble USB. Toutes les mesures effectuées (essais statiques et dynamiques) ont été traitées grâce au logiciel Labview (version année 2012 figure 4.29). Un boîtier d'interface permet le raccordement de tous les appareils de mesure ou de contrôle utilisés sur le banc de test (capteurs de pression, capteurs de température, débitmètre, vanne, etc.) et l'alimentation en 24 Vdc de tous ces appareils et pour finir le raccordement de tous les signaux d'entrée/sortie en 0-10 Vdc, 0-5 Vdc ou 4-20 mA qui sont câblés sur le boîtier d'acquisition CompactDAQ.

Caractéristiques du compresseur :

- débit maximal : 100g/s,
- débit minimal : 5g/s,
- gamme de pression : 200kPa(abs),
- vitesse : 12500tr/min(100g/s),
- déplacement : 0,5litre/tr,
- rapport de pression :1,44,
- température maximale : 130°C(à ne pas dépasser pour raison de sécurité),

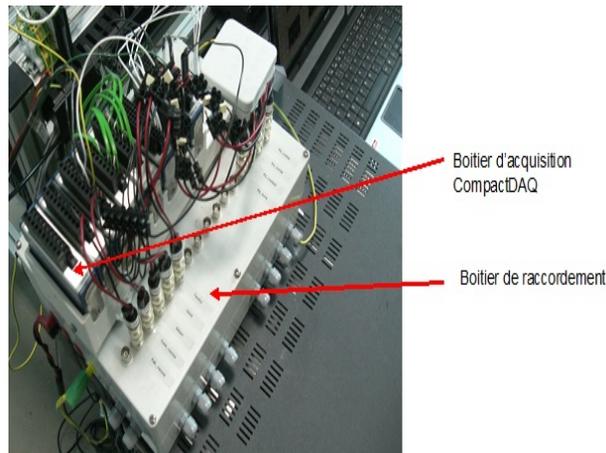


FIGURE 4.28 – Photo boîtier d'acquisition

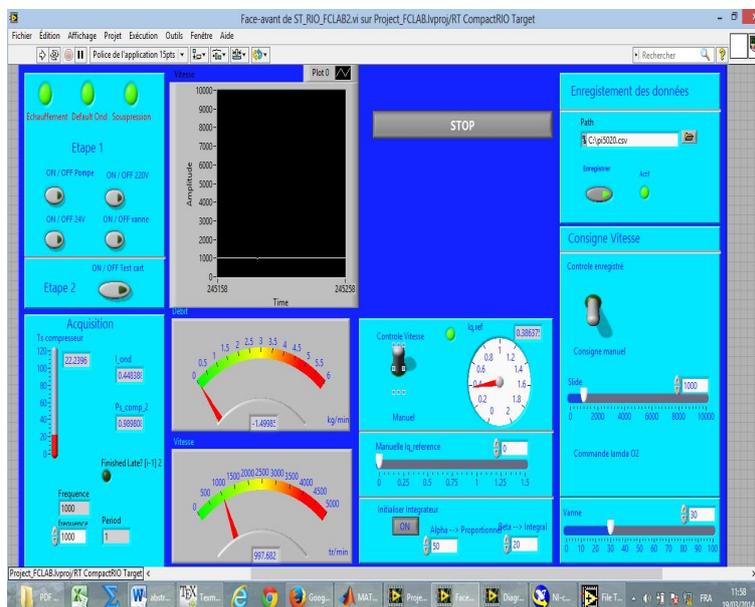


FIGURE 4.29 – : Ecran de visualisation

caractéristiques de moteur MSAP :

- puissance : 13,5 kW,
- vitesse nominale : 12000 tr/min,
- fréquence : 1000 Hz (Fondamental),
- nombre de phases : 3,
- température ambiante maximale : 40 °C,
- température maximale collecteur : 180 °C (Thermocouple type K),
- rendement : 93 %,

- courant/ phase : 40 A (RMS),
- constante de couple : 0,31 Nm/A (RMS),
- constante de tension : 25 Vdc, kRPM (RMS, 25 °C),
- résistance par phase : 0,074 Ohms,
- inductance par phase : 92 μH ,
- tension : 340-400 Vdc,
- nombre de pôles : 10.

Bibliographie

- [Ahme08] N. A. Ahmed, M. Miyatake, and A. Al-Othman. “Power fluctuations suppression of stand-alone hybrid generation combining solar photovoltaic/wind turbine and fuel cell systems”. *Energy Conversion and Management*, Vol. 49, No. 10, pp. 2711 – 2719, 2008.
- [AlBa05] M. S. AlBaghdadi. “Modelling of proton exchange membrane fuel cell performance based on semi-empirical equations”. *Renewable Energy*, Vol. 30, No. 10, pp. 1587–1599, 2005.
- [Amph94] J. Amphlett, R. Baumert, R. Mann, B. Peppley, P. Roberge, and A. Rodrigues. “Parametric modelling of the performance of a 5-kW proton-exchange membrane fuel cell stack”. *Journal of Power Sources*, Vol. 49, No. 1-3, pp. 349–356, 1994. Proceedings of the Third Grove Fuel Cell Symposium The Science, Engineering and Practice of Fuel Cells.
- [Amph95] J. Amphlett, R. Baumert, R. Mann, B. Peppley, and P. Roberge. “Performance modeling of the Ballard-Mark-IV solid polymer electrolyte fuel cell, I. Mechanistic model development”. *Electrochemical Society*, Vol. 142, No. 1, pp. 1–8, 1995.
- [Amph96] J. Amphlett, R. Mann, B. Peppley, P. Roberge, and A. Rodrigues. “A model predicting transient responses of proton exchange membrane fuel cells”. *Journal of Power Sources*, Vol. 61, No. 1-2, pp. 183–188, 1996.
- [Andr09] S. Andreasen, J. Jespersen, E. Schaltz, and S. Kjør. “Characterisation and Modelling of a High Temperature PEM Fuel Cell Stack using Electrochemical Impedance Spectroscopy, Fuel Cells”. *WILEY-VCH Verlag GmbH Co. KGaA, Weinheim FUEL CELLS*, Vol. 4, pp. 463–473, 2009.

- [Baba01] N. M. Babak. “Commande vectorielle sans capteur mécanique des machines synchrones a aimants, Methodes, convergence, robustesse, Identification en ligne des paramètres”. *Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France*, 2001.
- [Badr01] E. A. Badrinarayanan P, Ramaswamy S and M. R. “Fuel Cell Stack Water and Thermal Management : Impact of Variable System Power Operation”. *SAE Technical*, 2001.
- [Barb05] F. Barbir. “PEM Fuel Cells : Theory and Practice”. *Elsevier Academic Press, New York*, 2005.
- [Bchi97] F. N. Büchia and S. Srinivasan. “Operating Proton Exchange Membrane Fuel Cells Without External Humidification of the Reactant Gases Fundamental Aspects”. *Journal of Electrochemical Society*, Vol. 144, No. 8, pp. 2767–2772, 1997.
- [Bech10a] M. Becherif and D. Hissel. “MPPT of a PEMFC based on air supply control of the motocompressor group”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, No. 22, pp. 12521–12530, 2010.
- [Bech10b] M. Becherif, D. Hissel, S. Gaagat, and M. Wack. “Three order state space modeling of proton exchange membrane fuel cell with energy function definition”. *Journal of Power Sources*, Vol. 195, No. 19, pp. 6645–6651, 2010.
- [Bech10c] M. Becherif, A. Saadi, D. Hissel, A. Aboubou, and M. Ayad. “Summary of the PEM Fuel Cell modeling”. *International Symposium on Environment Friendly Energies in Electrical Applications, November 2010, Ghardaïa, Algeria*, 2010.
- [Bech11a] M. Becherif, D. Hissel, S. Gaagat, and M. Wack. “Electrical equivalent model of a proton exchange membrane fuel cell with experimental validation”. *Renewable Energy*, Vol. 36, No. 10, pp. 2582–2588, 2011.
- [Bech11b] M. Becherif, A. Saadi, D. Hissel, A. Aboubou, and Y. Ayad. “Static and dynamic proton exchange membrane Fuel Cell models”. *Journal of Hydrocarbons Mines and Environmental Research*, Vol. 2, No. 1, pp. 19–26, 2011.

- [Blun07a] B. Blunier. “Modélisation de moto-compresseurs en vue de la gestion de l’air dans les systèmes pile à combustible-simulation et validation expérimentale”. *These de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2007.
- [Blun07b] B. Blunier and A. Miraoui. “Piles à combustible, principes, modélisation, applications avec exercices et problèmes corrigés”. *Editions Ellipses-Technosup*, 2007.
- [Brun04] C. Brunetto, G. Tina, G. Squadrito, and A. Moschetto. “PEMFC diagnostics and modelling by electrochemical impedance spectroscopy”. In : *Electrotechnical Conference, 2004. MELECON 2004. Proceedings of the 12th IEEE Mediterranean*, pp. 1045–1050, 2004.
- [Buhl97] H. Buhler. “Réglage de systèmes d’électronique de puissance”. *Volume 1 et 2, presse polytechnique romande*, 1997.
- [Bult02] Y. Bultel, L. Genies, O. Antoine, P. Ozil, and R. Durand. “Modeling impedance diagrams of active layers in gas diffusion electrodes : diffusion, ohmic drop effects and multistep reactions”. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, Vol. 527, No. 1-2, pp. 143 – 155, 2002.
- [Cand07] D. Candusso and R. Glises. “Piles à combustible pemfc et SOFC”. *Technique de l’ingénieur*, 2007.
- [Chan09a] K. Y. Chang, H. J. Lin, and P. C. Chen. “The optimal performance estimation for an unknown PEMFC based on the Taguchi method and a generic numerical PEMFC model”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 34, No. 4, pp. 1990–1998, 2009.
- [Chan09b] Y. A. Chang and S. J. Moura. “Air flow control in fuel cell systems : An extremum seeking approach”. pp. 1052–1059, 2009.
- [Chen11] Y.-S. Chen and H. Peng. “Predicting current density distribution of proton exchange membrane fuel cells with different flow field designs”. *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No. 4, pp. 1992 – 2004, 2011.
- [Chia05] J. Chiasson. “Modeling and High-Performance Control of Electrical Machines”. *Wiley-Interscience a John wiley and sons, inc., publication*, 2005.

- [Cunn00] J. M. Cunningham, M. A. Hofman, R. M. Moore, and F. D. J. “Requirements for a exible and realistic air supply model for incorporation into a fuel cell vehicle (FCV) system simulation”. *SAE transactions*, Vol. 108, No. 6, Part 2, pp. 3191–3196, 2000.
- [Daro95] K. Darowicki. “Theoretical description of fundamental-harmonic impedance of a twostep electrode reaction”. *Electrochim. Acta*, Vol. 40, pp. 767–774, 1995.
- [Diar98] J. Diard, B. L. Gorrec, C. Montella, C. Poinignon, and G. Vitter. “Impedance measurements of polymer electrolyte membrane fuel cells running on constant load”. *Journal of Power Sources*, Vol. 74, No. 2, pp. 244 – 245, 1998.
- [Didi09] M. Didier. “Contribution à l’étude de la stabilité des systèmes électrotechniques”. *These de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine*, 2009.
- [Duba06] F. Dubas. “Conception d’un moteur rapide à aimants permanents pour l’entraînement de compresseurs de piles à combustible”. *Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte*, 2006.
- [Dunc59] U. Duncombe. “Infrared navigation- Part I : An assessment of feasibility (Periodical style)”. *IEEE Trans. Electron Devices*, Vol. 11, pp. 34–39, 1959.
- [El S06] T. F. El-Shatter, M. N. Eskander, and M. T. El-Hagry. “Energy flow and management of a hybrid wind/PV/fuel cell generation system”. *Energy Conversion and Management*, Vol. 47, No. 9-10, pp. 1264 – 1280, 2006.
- [Famo03] P. Famouri and R. Gemmen. “Electrochemical circuit model of a PEM fuel cell”. In : *Power Engineering Society General Meeting, 2003, IEEE*, pp. –1440, 2003.
- [Fern07] Y. M. Ferng and A. Su. “A three-dimensional full-cell (CFD) model used to investigate the effects of different flow channel designs on (PEMFC) performance”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 32, No. 17, pp. 4466 – 4476, 2007.

- [Garn03] J. Garnier, M.-C. Pera, D. Hissel, F. Harel, D. Candusso, N. Glandut, J. Diard, A. De Bernardinis, J. Kauffmann, and G. Coquery. “Dynamic PEM fuel cell modeling for automotive applications”. In : *Vehicle Technology Conference, 2003. VTC 2003-Fall. 2003 IEEE 58th*, pp. 3284–3288, 2003.
- [Gidd12] S. Giddey, S. Badwal, A. Kulkarni, and C. Munnings. “A comprehensive review of direct carbon fuel cell technology”. *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 38, No. 3, pp. 360 – 399, 2012.
- [Golb04] J. Golbert and D. R. Lewin. “Model-based control of fuel cells :(1) Regulatory control”. *Journal of Power Sources*, Vol. 135, No. 1 ?2, pp. 135–151, 2004.
- [Gran08] R. G. Grandpierre. “Alimentation en air d’une pile à combustible : Conception du système, Caractérisation, Modélisation”. *Mémoire d’ingénieur, Conservatoire National des Arts et Métiers, Centre Régional Franche-Comté, FEMTOST/ENISYS - FCLAB,*, 2008.
- [Grgn06] H. Görgün, M. Arcak, and F. Barbir. “An algorithm for estimation of membrane water content in PEM fuel cells”. *Journal of Power Sources*, Vol. 157, No. 1, pp. 389–394, 2006.
- [Gruj04] M. Grujicic, K. M. Chittajallu, E. H. Law, and J. T. Pukrushpan. “Model based control strategies in the dynamic interaction of air supply and fuel cell.”. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part A : Journal of Power and Energy*, Vol. 118, No. 7, pp. 487–499, 2004.
- [Guil04] L. Guillaume. “Conception de convertisseurs statiques pour l’utilisation de la pile à combustible”. *These de doctorat, Université Joseph Fourier Grenoble*, 2004.
- [Guil05] F. Guillaume. “Modélisation et caractérisation de la pile PEM pour l’étude des interactions avec les convertisseurs statiques”. *Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Toulouse*, 2005.
- [Hadd08] A. Haddad, R. Bouyekhf, and A. El Moudni. “Dynamic modeling and water management in proton exchange membrane fuel cell”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 33, No. 21, pp. 6239–6252, 2008.

- [Haji11] S. Haji. “Analytical modeling of PEM fuel cell I-V curve”. *Renewable Energy*, Vol. 36, No. 2, pp. 451–458, 2011.
- [Hank08] W. Hankache. “Gestion Optimisée de l’énergie électrique d’un Groupe électrogène hybride à Pile à Combustible”. *These de doctorat, Institut national polytechnique de Toulouse*, 2008.
- [Hann12] A. F. Hannan M.A and M. A. “Multi-sources model and control algorithm of an energy management system for light electric vehicles”. *Energy Conversion and Management*, Vol. 62, pp. 123–130, 2012.
- [Hern05] E. Hernandez and B. Diong. “A small-signal equivalent circuit model for PEM fuel cells”. In : *Applied Power Electronics Conference and Exposition, 2005. APEC 2005. Twentieth Annual IEEE*, pp. 121–126, 2005.
- [Hern06] A. Hernandez. “Diagnostic d’une pile à combustible de type PEFC”. *Thèse de doctorat, Université de Technologie de Belfort Montbéliard Et de L’université de Franche-Comte*, 2006.
- [Heyw98] J. Heywood. “Internal combustion engine fundamentals”. *McGraw-Hill, New York*, 1998.
- [Hina08] M. Hinaje, D. Nguyen, S. Rael, and B. Davat. “Modelling of the proton exchange membrane fuel cell in steady state”. In : *Power Electronics Specialists Conference, 2008. PESC 2008. IEEE*, pp. 3550–3556, June 2008.
- [Hina94] J. T. Hinatsu, M. Mizuhata, and H. Takenaka. “Water Uptake of Perfluorosulfonic Acid Membranes from Liquid Water and Water Vapor”. *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 141, No. 6, pp. 1493–1498, 1994.
- [Hiss05] D. Hissel, M. C. Pïera, D. Candusso, F. Harel, and S. Begot. “Characterization of polymer electrolyte fuel cells for embedded generators, Test bench design and methodology Advances in Fuel Cells”. *Research Signpost*, Vol. 141, No. 6, pp. 127–148, 2005.
- [Homb05] A. Hombrados, L. Gonzalez, M. Rubio, W. Agila, E. Villanueva, D. Guinea, E. Chinarro, B. Moreno, and J. Jurado. “Symmetrical electrode

- mode for PEMFC characterisation using impedance spectroscopy”. *Journal of Power Sources*, Vol. 151, pp. 25–31, 2005.
- [Hsu09] C.-Y. Hsu, F.-B. Weng, A. Su, C.-Y. Wang, I. S. Hussaini, and T.-L. Feng. “Transient phenomenon of step switching for current or voltage in PEMFC”. *Renewable Energy*, Vol. 34, No. 8, pp. 1979–1985, 2009.
- [Huan09] B. Huang. “Convertisseur continu-continu a rapport de transformation élevé pour applications pile à combustible”. *These de doctorat, Institut national polytechnique de Lorraine*, 2009.
- [Ifti06] M. U. Iftikhar, D. Riu, F. Druart, S. Rosini, Y. Bultel, and N. Retiere. “Dynamic modeling of proton exchange membrane fuel cell using non-integer derivatives”. *Journal of Power Sources*, Vol. 160, pp. 1170–1182, 2006.
- [Karn06] A. Y. Karnik, J. Sun, and J. H. Buckland. “Control analysis of an ejector based fuel cell anode recirculation system”. *IEEE, American Control Conference*, 2006.
- [Keba13] A. Kebairi. “Modélisation, identification et commande non linéaire d’actionneurs mécatroniques de la boucle d’air d’un moteur diesel”. *These de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2013.
- [Khun11] Y. Khunatorn and B. Plangklang. “Model and experiment analysis of 1.2 kW PEMFC electrification”. *Procedia Engineering*, Vol. 8, No. 1, pp. 106–114, 2011.
- [Kim10] H. il Kim, C. Y. Cho, J. H. Nam, D. Shin, and T.-Y. Chung. “A simple dynamic model for polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) power modules : Parameter estimation and model prediction”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, No. 8, pp. 3656 – 3663, 2010.
- [Kim13] J. Kim, J. Lee, and B. Cho. “Equivalent Circuit Modeling of PEM Fuel Cell Degradation Combined With a LFRC”. *Industrial Electronics, IEEE Transactions on*, Vol. 60, No. 11, pp. 5086–5094, 2013.
- [Kim95] J. Kim, L. Seong, S. Supramaniam, and C. Chamberlin. “Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cell Performance with an Empi-

- rical Equation”. *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 142, No. 8, pp. 2670–2674, 1995.
- [Kunu09] C. Kunusch, P. F. Puleston, M. A. Mayosky, and J. Riera. “Sliding Mode Strategy for PEM Fuel Cells Stacks Breathing Control Using a Super-Twisting Algorithm”. *Control Systems Technology, IEEE Transactions on*, Vol. 17, No. 1, pp. 167 – 174, 2009.
- [Lach04] J. Lachaiza. “Etude des strategies et des structures de commande pour le pilotage des systèmes énergétiques à Pile à combustible (PAC) destinés à la traction”. *Thèse de doctorat, institut national polytechnique de Toulouse*, 2004.
- [LACH05] A. LACHICHI. “Modélisation et stabilité d’un régulateur hybride de courant - Application aux convertisseurs pour pile à combustible”. *Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte*, 2005.
- [Larm03] J. Larminie and A. Dicks. “Fuel Cell Systems Explained”. *John Wiley Sons*,, 2003.
- [Larm94] J. R. J. Larminie. “Current interrupt techniques for circuit modelling”. In : *Electrochemical Measurement, IEE Colloquium on*, pp. 12/1–12/6, 1994.
- [Li09] Q. Li, W. Chen, Y. Wang, J. Jia, and M. Han. “Nonlinear robust control of proton exchange membrane fuel cell by state feedback exact linearization”. *Journal of Power Sources*, Vol. 194, No. 1, pp. 338–348, 2009.
- [Liu03] F. Liu, B. Yi, D. Xing, J. Yu, Z. Hou, and Y. Fu. “Development of novel self-humidifying composite membranes for fuel cells”. *Journal of Power Sources*, Vol. 124, No. 1, pp. 81 – 89, 2003.
- [Make08] H. Maker. “Optimisation et gestion d’énergie pour un système hybride : association pile à combustible et supercondensateurs”. *These de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2008.
- [Mann00] R. F. Mann, J. C. Amphlett, M. A. I. Hooper, H. M. Jensen, B. A. Peppley, and P. R. Roberge. “Development and application of a generalised steady state electrochemical model for a PEM fuel cell”. *Journal of Power Sources*, Vol. 86, No. 1-2, pp. 173–180, 2000.

- [Marc93] C. Marchand and A. Razek. “Optimal torque operation of digitally controlled permanent magnet synchronous motor drives”. *Electric Power Applications, IEE Proceedings B*, Vol. 140, No. 3, pp. 232–240, 1993.
- [Matr12a] I. Matraji, F. Ahmed, S. Laghrouche, and M. Wack. “Extremum seeking control for net power output maximization of a PEM fuel cell using second order sliding mode”. In : *12th International Workshop on Variable Structure Systems (VSS)*, pp. 331–336, 2012.
- [Matr12b] I. Matraji, S. Laghrouche, and M. Wack. “Pressure control in a PEM fuel cell via second order sliding mode”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 37, No. 21, pp. 16104–16116, 2012.
- [Matr13a] I. Matraji. “Contribution à la commande non-linéaire robuste des systèmes d’alimentation en air des piles à combustible de type PEM”. *Thèse de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2013.
- [Matr13b] I. Matraji, S. Laghrouche, S. Jemei, and M. Wack. “Robust control of the PEM fuel cell air-feed system via sub-optimal second order sliding mode”. *Applied Energy*, Vol. 104, pp. 945–957, 2013.
- [Mbou10] J. M’boua. “Contribution à la modélisation et au contrôle de compresseurs-application à la gestion de l’air dans les systèmes piles à combustible de type PEM”. *These de doctorat, Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2010.
- [McCa08] B. McCain. “Modeling and analysis for control of reactant and water distributions in fuel cells”. *PhD thesis, Department of mechanical engineering, The university of Michigan*, 2008.
- [McKa08] D. A. McKay, J. B. Siegel, W. Ott, and A. G. Stefanopoulou. “Parameterization and prediction of temporal fuel cell voltage behavior during flooding and drying conditions”. *Journal of Power Sources*, Vol. 178, No. 1, pp. 207 – 222, 2008.
- [Mekh12] S. R. Mekhilef S and S. A. “Comparative study of different fuel cell technologies”. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 16, No. 1, pp. 981 – 989, 2012.

- [Momm12] T. Momma, M. Matsunaga, D. Mukoyama, and T. Osaka. “Ac impedance analysis of lithium ion battery under temperature control”. *Journal of Power Sources*, Vol. 216, pp. 304–307, 2012.
- [Momm14] T. Momma, T. Yokoshima, H. Nara, Y. Gima, and T. Osaka. “Distinction of impedance responses of Li-ion batteries for individual electrodes using symmetric cells”. *Electrochimica Acta*, Vol. , pp. –, 2014.
- [More09] M. V. Moreira and G. E. da Silva. “A practical model for evaluating the performance of proton exchange membrane fuel cells”. *Renewable Energy*, Vol. 34, No. 7, pp. 1734–1741, 2009.
- [Mrid06] W. Mérida, D. Harrington, J. M. L. Canut, and G. McLean. “Characterisation of proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) failures via electrochemical impedance spectroscopy”. *Journal of Power Sources*, Vol. 161, No. 1, pp. 264–274, 2006.
- [Nguy93] T. V. Nguyen and R. E. White. “A Water and Heat Management Model for Proton Exchange Membrane Fuel Cells”. *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 140, No. 8, pp. 2178–2186, 1993.
- [Niya13] S. M. R. Niya and M. Hoorfar. “Study of proton exchange membrane fuel cells using electrochemical impedance spectroscopy technique A review”. *Journal of Power Sources*, Vol. 240, pp. 281–293, 2013.
- [Noiy12] P. Noiying, M. Hinaje, P. Thounthong, S. Raiel, and B. Davat. “Using electrical analogy to describe mass and charge transport in PEM fuel cell”. *Renewable Energy*, Vol. 44, pp. 128 – 140, 2012.
- [Noiy13] P. Noiying. “Modélisation locale d’une cellule de pile à combustible pour l’étude de systèmes électriques”. *These de doctorat, Université de Lorraine*, 2013.
- [ORou09] A. M. ORourke Judith and R. Manikandan. “Real-time optimization of net power in a fuel cell system”. *Journal of Power Sources*, Vol. 187, No. 2, pp. 422–430, 2009.
- [Osak03] T. Osaka, S. Nakade, M. Rajamaki, and T. Momma. “Influence of capacity fading on commercial lithium-ion battery impedance”. *Journal of Power Sources*, Vol. 119-121, pp. 929–933, 2003.

- [Page07] S. Page, A. Anbuky, S. Krumdieck, and J. Brouwer. “Test Method and Equivalent Circuit Modeling of a PEM Fuel Cell in a Passive State”. *Energy Conversion, IEEE Transactions on*, Vol. 22, No. 3, pp. 764–773, 2007.
- [Paqu08] M. Paquin and F. L. G. “Understanding cathode flooding and dry-out for water management in air breathing PEM fuel cells”. *Journal of Power Sources*, Vol. 180, No. 1, pp. 440–451, 2008.
- [Path05] P. Pathapati, X. Xue, and J. Tang. “A new dynamic model for predicting transient phenomena in a PEM fuel cell system”. *Renewable Energy*, Vol. 30, No. 1, pp. 1–22, 2005.
- [Pere14] M. Piérez-Page and V. Piérez-Herranz. “Study of the electrochemical behaviour of a 300 W PEM fuel cell stack by Electrochemical Impedance Spectroscopy”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 39, No. 8, pp. 4009 – 4015, 2014.
- [Petr13] R. Petrone, Z. Zheng, D. Hissel, M. Pera, C. Pianese, M. Sorrentino, M. Becherif, and N. Yousfi-Steiner. “A review on model-based diagnosis methodologies for PEMFCs”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 38, No. 17, pp. 7077–7091, 2013.
- [Pukr02a] J. T. Pukrushpan, H. Peng, and A. G. Stefanopoulou. “Simulation and analysis of transient fuel cell system performance based on dynamic reactant model”. *proceedings of ASME International Mechanical Congress*, 2002.
- [Pukr02b] J. T. Pukrushpan and H. Stefanopoulou, Anna Gand Peng. “Modeling and control for PEM fuel cell stack system”. *Proceedings of the American control conference*, pp. 3118–3122, 2002.
- [Pukr04a] J. T. Pukrushpan, A. G. Stefanopoulou, and H. Peng. “Control of fuel cell breathing”. *IEEE, Control Systems*, Vol. 24, No. 2, 2004.
- [Pukr04b] J. T. Pukrushpan, H. Peng, and A. G. Stefanopoulou. “Control-Oriented Modeling and Analysis for Automotive Fuel Cell Systems”. *Journal of Dynamic Systems, Measurement, and Control*, Vol. 126, No. 1, pp. 14–25, 2004.

- [Pukr04c] J. T. Pukrushpan, A. G. Stefanopoulou, and H. Peng. “Control of Fuel Cell Power Systems Principles, Modeling, Analysis and Feedback Design”. *Springer*, 2004.
- [Pukr05] J. Pukrushpan, A. Stefanopoulou, S. Varigonda, L. Pedersen, S. Ghosh, and H. Peng. “Control of natural gas catalytic partial oxidation for hydrogen generation in fuel cell applications”. *IEEE Transactions on Control Systems Technology*, Vol. 13, No. 1, pp. 3–14, 2005.
- [Reus03] P. Reuse. “Production d’hydrogène dans un réacteur microstructure, couplage thermique entre le steam reforming et l’oxydation totale du méthanol”. *Thèse de doctorat, Ecole polytechnique fédérale de lausanne*, 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, Ecole Doctorale, Sciences et Technologies de l’Information des Telecommunications et des Systèmes*, 2007.
- [Ryan06] P. O. Ryan, S.-W. Cha, C. Whitney, and B. Fritz. “Fuel cell fundamentals”. *John Wiley Sons New York*, 2006.
- [Saad13] A. Saadi, M. Becherif, A. Aboubou, and M. Ayad. “Comparison of proton exchange membrane fuel cell static models”. *Renewable Energy*, Vol. 56, pp. 64–71, 2013.
- [Sadl06] I. Sadli. “Modélisation par Impédance d’une pile à combustible PEM pour utilisation en électronique de puissance”. *PhD thesis, institut National Polytechnique de Lorraine, France*, 2006.
- [Samo10] A. Samosir, M. Anwari, and A. Yatim. “A simple PEM fuel cell emulator using electrical circuit model”. In : *IPEC, 2010 Conference Proceedings*, pp. 881–885, 2010.
- [Seye11] R. Seyezhai and B. Mathur. “Modeling and control of a PEM fuel cell based hybrid multilevel inverter”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, No. 22, pp. 15029–15043, 2011.

- [Sier11] J. Sierra, J. Moreira, and P. Sebastian. “Numerical analysis of the effect of different gas feeding modes in a proton exchange membrane fuel cell with serpentine flow-field”. *Journal of Power Sources*, Vol. 196, No. 11, pp. 5070 – 5076, 2011.
- [Spri91] T. Springer, T. Zawodzinski, and S. Gottesfeld. “Polymer electrolyte fuel cell model”. *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. , No. 138, pp. 2334–2342, 1991.
- [Spri96] T. Springer, T. Zawodzinski, M. Wilson, and S. Gottesfeld. “Characterization of Polymer Electrolyte Fuel Cells Using AC Impedance Spectroscopy”. *Journal of Electrochemical Society*, Vol. 143, No. 2, pp. 587–599, 1996.
- [Suh06] K. W. Suh. “Modeling, analysis and control of fuel cell hybrid power systems”. *PhD thesis, University of Michigan*, 2006.
- [Talj09a] R. Talj, M. Hilairet, and R. Ortega. “Second order sliding mode control of the moto-compressor of a PEM fuel cell air feeding system, with experimental validation”. pp. 2790–2795, 2009.
- [Talj09b] R. Talj. “Modelisation et Commandes Non Lineaires du système d’air des Piles à Combustible Type PEM (Proton Exchange Membrane)”. *PhD thesis, Université Paris-Sud 11, L2S, LGEP*, 2009.
- [Talj09c] R. Talj, D. Hissel, R. Ortega, M. Becherif, and M. Hilairet. “A reduced-order model and a higher-order sliding-mode control of the air supply system of a proton-exchange-membrane fuel cell with experimental validation”. In : *8th International Symposium on Advanced Electromechanical Motion Systems Electric Drives Joint Symposium, , ELECTROMOTION*, pp. 1–6, 2009.
- [Talj10] R. Talj, D. Hissel, R. Ortega, M. Becherif, and M. Hilairet. “Experimental Validation of a PEM Fuel-Cell Reduced-Order Model and a Moto-Compressor Higher Order Sliding-Mode Control”. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, Vol. 57, No. 6, pp. 1906–1913, 2010.
- [Talj11] R. Talj, R. Ortega, and A. Astolfi. “Air supply system of a PEM fuel cell model : Passivity and robust PI control”. In : *2011 50th IEEE*

Conference on Decision and Control and European Control Conference (CDC-ECC), pp. 7765–7770, 2011.

- [Tats98] G. X. Tatsuhiro Okada and M. Meeg. “Simulation for water management in membranes for polymer electrolyte fuel cells”. *Electrochimica Acta*, Vol. 43, No. 14-15, pp. 2141–2155, 1998.
- [Tawe03] P. J. Tawee. “Modeling and control of fuel cell systems and fuel processors”. *PHD, University of Michigan*, 2003.
- [Teki04] M. Tekin. “Contribution à l’optimisation énergétique d’un système pile à combustible embarqué”. *Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte*, 2004.
- [Thou05] P. Thounthong. “conception d’une Source Hybride Utilisant Une Pile a Combustible et des Supercondensateurs”. *These de doctorat, l’institut National Polytechnique de Lorraine*, 2005.
- [Um00] S. Um, C. Y. Wang, and K. S. Chenb. “Computational fluid dynamics modeling of proton exchange membrane fuel cells”. *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 147, No. 12, pp. 4485–4493, 2000.
- [Wagn04] N. Wagner and E. Gulzow. “Change of electrochemical impedance spectra (EIS) with time during CO-poisoning of the Pt-anode in a membrane fuel cell”. *Journal of Power Sources*, Vol. 127, No. 1-2, pp. 341–347, 2004.
- [Wahd06] B. Wahdame. “Analyse et optimisation du fonctionnement de piles à combustible par la méthode des plans d’expériences”. *Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte*, 2006.
- [Wahd07] B. Wahdame, D. Candusso, F. Xavier, F. Harel, M. C. Pera, D. Hissel, and J. M. Kauffmann. “Comparison between two PEM fuel cell durability tests performed at constant current and under solicitations linked to transport mission profile”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 32, No. 17, pp. 4523–4536, 2007.
- [Wahd08] B. Wahdame, D. Candusso, F. Harel, X. François, M.-C. Pera, D. Hissel, and J.-M. Kauffmann. “Analysis of a PEMFC durability test under low humidity conditions and stack behaviour modelling using experimental

- design techniques”. *Journal of Power Sources*, Vol. 182, No. 2, pp. 429 – 440, 2008.
- [Wang05a] C. Wang, M. Nehrir, and S. Shaw. “Dynamic models and model validation for PEM fuel cells using electrical circuits”. In : *Power Engineering Society General Meeting, 2005. IEEE*, p. 2115, 2005.
- [Wang05b] Y. Wang and C.-Y. Wang. “Transient analysis of polymer electrolyte fuel cells”. *Electrochimica Acta*, Vol. 50, No. 6, pp. 1307 – 1315, 2005.
- [Wang11] Y. Wang, K. Chen, J. Mishler, S. Cho, and X. Adroher. “A review of polymer electrolyte membrane fuel cells : Technology, applications, and needs on fundamental research”. *Applied Energy*, Vol. 2, No. 1, pp. 19–26, 2011.
- [Wast10] S. Wasterlain. “Approches experimentales et Analyse Probabiliste pour le Diagnostic de Piles a Combustible de Type PEM.”. *Thèse de doctorat, Université de Franche-Comte*, 2010.
- [Will11] Z. Williamson, D. Kim, D.-K. Chun, T. Lee, and C. Squibb. “Experimental evaluation of cell temperature effects on miniature, air-breathing PEM fuel cells”. *Applied Thermal Engineering*, Vol. 31, No. 17-18, pp. 3761–3767, 2011.
- [Wing05] P. J. H. Wingelaar, J. L. Duarte, and M. A. M. Hendrix. “Dynamic Characteristics of PEM Fuel Cells”. In : *Power Electronics Specialists Conference, 2005. PESC '05. IEEE 36th*, pp. 1635–1641, June 2005.
- [Wolf03] F. Wolfgang. “Modélisation et caractérisation d’une pile à combustible du type PEM”. *These de doctorat, Institut national polytechnique de Lorraine*, 2003.
- [Yerr03] S. Yerramalla, A. Davari, A. Feliachi, and T. Biswas. “Modeling and simulation of the dynamic behavior of a polymer electrolyte membrane fuel cell”. *Journal of Power Sources*, Vol. 124, No. 1, pp. 104 – 113, 2003.
- [Yu04] D. Yu and S. Yuvarajan. “A novel circuit model for PEM fuel cells”. In : *Applied Power Electronics Conference and Exposition, APEC '04. Nineteenth Annual IEEE*, pp. 362–366, 2004.

- [Yuan07] X. Yuan, H. Wang, J. C. Sun, and J. Zhang. “AC impedance technique in PEM fuel cell diagnosis A review”. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 32, No. 17, pp. 4365–4380, 2007.
- [Yuan14] X. Yuanyuan, L. Jianyang, and Y. Chris. “Mathematical modeling of the electrochemical impedance spectroscopy in lithium ion battery cycling”. *Electrochimica Acta*, Vol. 127, pp. 266–275, 2014.
- [Zhao14] D. Zhao. “Control of an Ultra-high Speed Centrifugal Compressor for the Air Management of Fuel Cell Systems”. *doctorat thesis, University of Technology of Belfort-Montbéliard*, 2014.
- [Zhon08] Z. D. Zhong, H. B. Huo, X. J. Zhu, G. Y. Cao, and R. Yuan. “Adaptive maximum power point tracking control of fuel cell power plants”. *Journal of Power Sources*, Vol. 176, No. 1, pp. 259–269, 2008.