

Modélisation d'un système pile à combustible pour l'estimation de ses performances dans un contexte automobile

Antony PLAÏT¹, Pierre SAENGER², David BOUQUAIN¹

¹Université de Franche-Comté, FEMTO-ST, FCLAB, CNRS, Belfort, France

²UTBM, FEMTO-ST, FCLAB, CNRS, Belfort, France

RESUME – L'estimation des performances d'un système énergétique est un point clé avant sa commercialisation, son intégration et son utilisation. La modélisation des piles à combustible est très répandue mais la totalité du système est rarement considérée avec précision. Il est ici question de modéliser de manière fine la pile à combustible (stack) mais également ses auxiliaires formant le système pile à combustible. De la pompe de recirculation d'hydrogène, au compresseur d'air, les différents composants sont étudiés et modélisés en fonction des caractéristiques communiquées par les fournisseurs.

Mots-clés—Hydrogène, Pile à combustible, Auxiliaires, Modélisation, Performances, Puissance, Efficacité, Dimensionnement.

1. INTRODUCTION

Un système pile à combustible (PàC) peut être une alternative pertinente aux systèmes existants émettant des gaz à effet de serre et limiter la dépendance vis-à-vis des carburants conventionnels [1], [2].

L'estimation des caractéristiques techniques d'un système énergétique est un point clé avant sa commercialisation, son intégration et son utilisation. Il est donc nécessaire de modéliser celui-ci avec précision. Des états de l'art ont déjà été publiés dans la littérature répertoriant les différentes méthodes existantes afin de modéliser le fonctionnement des PàC [3]-[5].

Parmi les méthodes les plus répandues nous pouvons citer les modèles numériques [6], les modèles analytiques [7], les modèles empiriques [8], ou encore les modèles basés sur les données [9] avec un accent sur l'apprentissage automatique et l'intelligence artificielle [10].

Concernant un système PàC, il est impératif de bien comprendre l'interaction entre la pile et ses sous-systèmes auxiliaires pour mettre au point un système PàC présentant la meilleure efficacité possible sur toute sa plage de fonctionnement [11], [12].

Dans ce sens, l'outil numérique qui a été utilisé pour concevoir la partie étude/contrôle de la PàC présentée, est dérivé de [13]. La modélisation des PàC est très répandue mais la totalité du système est rarement considérée avec minutie tout en

présentant un temps de calcul limité [14]. Il est ici question de modéliser l'ensemble du système PàC comme présenté en Fig. 1.

Différents composants d'un système PàC peuvent largement influencer ses performances et son rendement. Dans cet optique, le choix a été fait de considérer le fonctionnement et le rendement des principaux auxiliaires du système. La pompe de recirculation de l'hydrogène, le compresseur d'air, l'humidificateur et le convertisseur DC/DC seront ainsi étudiés.

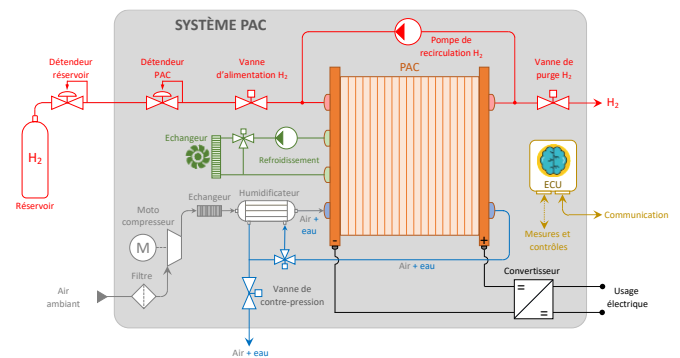


Fig. 1. Schématisation d'un système PàC.

2. MODELISATION

La modélisation développée sous Matlab-Simulink propose une description graphique précise des couplages multiphysiques et permet une conception aisée du schéma de contrôle. Le modèle est organisé autour d'un système complexe tel qu'une PàC, décomposé en sous-systèmes interconnectés, nécessitant donc de prendre en compte les principes de causalité physique.

2.1. Modélisation du stack

Le comportement physique du stack peut être dissocié en plusieurs domaines. Cette modélisation peut être qualifiée de multiphysique traduisant le couplage des phénomènes électrochimique, fluide et électrique. La partie électrochimique consiste en la modélisation du phénomène d'oxydoréduction du stack, la partie fluide représente la prise en compte de l'alimentation en gaz et la production d'eau, et enfin, la partie électrique représente le comportement du stack vu comme une source de tension combinée à une impédance.

2.1.1. Partie électrochimique

La partie électrochimique s'organise autour du calcul d'un potentiel thermodynamique E_0 , qui est approximé par une fonction empirique de la température (1).

$$E_0 = \alpha + \beta T_{pac} + \gamma T_{pac}^2 + \delta T_{pac}^3 + \nu T_{pac} \ln T_{pac} \quad (1)$$

Le potentiel initial est ensuite modifié par une variation de potentiel ΔE , ce qui conduit au potentiel de Nernst E_n (2).

$$E_n = E_0 + \Delta E \quad (2)$$

Comme pour le potentiel de Nernst, le calcul de la chute de tension ΔV (pertes d'activation, de concentration et pertes ohmiques) est effectué (3).

$$\Delta V = \Delta V_{act} + \Delta V_{conc} + \Delta V_{ohm} \quad (3)$$

Les pertes par activation ΔV_{act} sont modélisées par une loi de Tafel (4).

$$\Delta V_{act} = AT_{pac} \ln \left(\frac{I_{fc} + I_n}{I_0} \right) \quad (4)$$

Les pertes de concentration ΔV_{conc} sont modélisées par (5).

$$\Delta V_{conc} = BT_{pac} \ln \left(1 - \frac{I_{fc}}{I_l} \right) \quad (5)$$

Les pertes ohmiques sont représentées par une simple résistance électrique R_m (6).

$$\Delta V_{ohm} = R_m I_{pac} \quad (6)$$

2.1.2. Partie fluide

La partie fluide est le circuit de gaz situé entre le réservoir d'hydrogène, la source d'air et les sites de réaction. Cette partie du modèle est utilisée pour calculer la pression partielle utilisée dans la partie électrochimique. Il existe deux circuits fluidiques : un pour l'hydrogène et un pour l'oxygène.

Concernant le circuit d'air fournissant l'oxygène à la PàC, un compresseur d'air est utilisé. Le compresseur d'air sera dimensionné en fonction du besoin. Afin de modéliser celui-ci, il est dans un premier temps nécessaire de déterminer le débit massique d'air (7) nécessaire au bon fonctionnement d'une PàC.

$$q_{air} = \dot{n}_{O_2} \cdot M_{O_2} + \dot{n}_{N_2} \cdot M_{N_2} = \nu \frac{N \cdot j \cdot S}{4F} \cdot 2 \cdot M_O + k \nu \frac{N \cdot j \cdot S}{4F} \cdot 2 \cdot M_N \quad (7)$$

où q_{air} est le débit d'air (g/s), \dot{n} les débits molaires (mol/s), et M les masses molaires (g/mol), ν le rapport stœchiométrique (-), N le nombre de cellules (-), j la densité de courant (A/cm²), S la surface active (cm²), F la constante de Faraday (C) et $k = 0,79/0,21$ le rapport azote/oxygène de l'air (-).

Le circuit d'hydrogène intègre, une pompe de recirculation de la sortie anodique vers l'entrée anodique. Le débit massique d'hydrogène est dans un premier temps estimé à l'aide de l'équation (8).

$$q_{H_2} = \dot{n}_{H_2} \cdot M_{H_2} = \nu \frac{N \cdot j \cdot S}{2F} \cdot 2 \cdot M_H \quad (8)$$

où q_{H_2} est le débit d'hydrogène (g/s), \dot{n} le débit molaire (mol/s), et M la masse molaire (g/mol), ν le rapport stœchiométrique (-), N le nombre de cellules (-), j la densité de courant (A/cm²), S la surface active (cm²) et F la constante de Faraday (C).

2.1.3. Partie électrique

La partie électrique modélise le phénomène de répartition des charges sur les électrodes en double couche. La prise en compte de ce phénomène fixe les potentiels électriques de la PàC.

Cet effet de double couche est modélisé par un circuit $R_i C_{dl}$ du premier ordre (R_i étant une résistance de transfert de charge et C_{dl} la capacité de double couche équivalente).

La tension globale de la PàC est obtenue avec le nombre de cellules N . Ces opérations sont réalisées dans un couplage monophysique.

2.2. Modélisation des auxiliaires

Plusieurs auxiliaires sont à considérer dans un système PàC. Parmi les plus influents sur le comportement de la PàC et les plus importants économiquement nous pouvons citer : la pompe de recirculation d'hydrogène, l'humidificateur, le compresseur d'air ou encore le convertisseur DC/DC.

Actuellement, la recirculation d'hydrogène est l'un des points clés d'un système PàC moderne. La recirculation (Fig. 2) consiste à envoyer l'hydrogène dans le circuit anodique avec un fort excédent. L'hydrogène non consommé et humide est réinjecté au moyen d'une pompe à l'entrée du circuit ou par un éjecteur (système passif). Dans ce contexte, des purges régulières sont effectuées pour éviter l'accumulation d'impuretés.

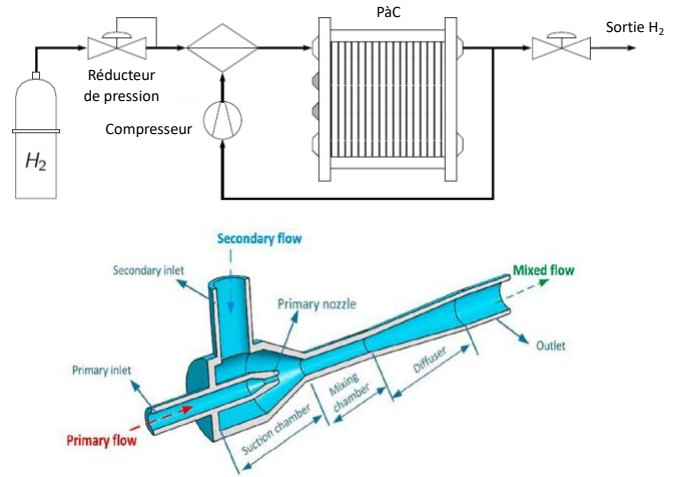


Fig. 2. Principe de la ligne d'hydrogène avec recirculation [15] et de l'éjecteur [16].

Selon le mode de fonctionnement, les équations de débit sont adaptées dans la modélisation. Le rendement de la pompe de recirculation est également pris en compte afin d'en déduire la puissance consommée par cet auxiliaire.

L'intégration de l'humidificateur consiste à estimer la perte de charge en fonction du débit d'air (eq. 7). Cette perte de charge est ajoutée à la pression d'entrée du compresseur d'air. Par

exemple les échangeurs d'humidité FC-Series de PermaPure offrent des performances, une fiabilité et une durée de vie inégalées (jusqu'à 20 000 heures). Ils permettent une humidification cohérente et reproductible de l'air et de l'hydrogène dans la plage de débit spécifiée, pour notamment des applications automobiles [15]. Les échangeurs d'humidité PermaPure se caractérisent par une faible perte de charge et ne nécessitent pas d'alimentation électrique pour fonctionner, c'est pourquoi nous avons décidé de le considérer dans notre étude. Une description du fonctionnement de l'humidificateur par schématisation est donnée en Fig. 3.

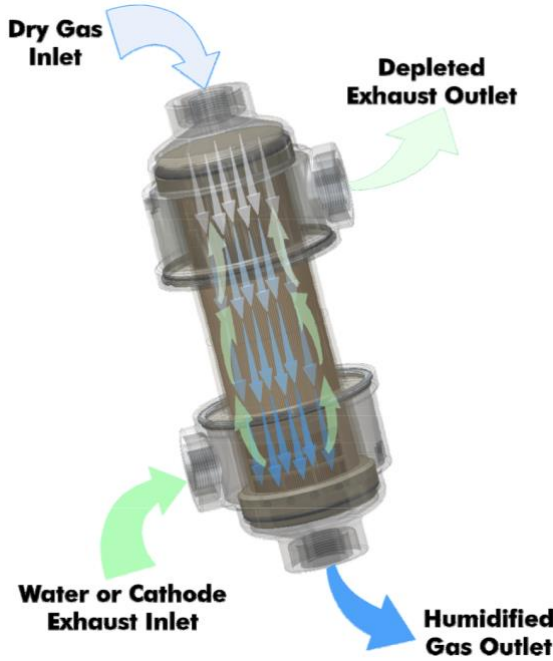


Fig. 3. Fonctionnement de l'humidificateur PermaPure considéré [15].

La production d'eau est également calculée dans ce bloc en utilisant l'équation (9) ci-dessous :

$$q_{H_2O} = \dot{n}_{H_2O} \cdot M_{H_2O} = \frac{N \cdot j \cdot S}{2F} \cdot (2 \cdot M_H + M_O) \quad (9)$$

où q_{H_2O} est le débit massique d'eau produite (g/s), \dot{n} le débit molaire (mol/s), M la masse molaire (g/mol), N le nombre de cellules (-), j la densité de courant (A/cm²), S la surface active (cm²) et F la constante de Faraday (C).

Il a déjà été rapporté dans la littérature que le compresseur d'air peut être très énergivore. Afin de modéliser celui-ci, il est dans un premier temps nécessaire de déterminer le débit d'air (exprimé en eq.7) nécessaire au bon fonctionnement d'une PàC.

Par la suite, une cartographie des performances du compresseur utilisé est nécessaire. Dans notre étude, un compresseur Rotrex EK10AA est considéré [18]. Celui présentant de nombreux avantages (vitesse élevée : 140 000 tr/min, haute efficacité, installation compacte et flexible, faible inertie et donc réponse instantanée), est en adéquation avec les besoins d'un système PàC. Le débit d'air du compresseur est compris entre 5 et 85 g/s, ce qui en fait un parfait auxiliaire pour l'application automobile étudiée. La cartographie des performances du compresseur est composée de trois éléments, à savoir, le débit d'air, le rapport de pression et le rendement de celui-ci comme exposé en Fig. 4.

Il est vérifié que le débit d'air se situe dans les limites acceptables du compresseur (débit supérieur à la limite de la ligne de pompage). Si ce n'est pas le cas, le débit d'air est adapté pour se situer dans les limites, la pile fonctionnerait alors en sur-stœchiométrie. Ensuite, en fonction du débit d'air et du rapport de pression, l'efficacité (ou rendement) du compresseur d'air est alors interpolée. De plus, un dernier calcul permet de déterminer la puissance consommée par le compresseur. A noter que les données sont adaptées au système étudié, notamment à la puissance de fonctionnement du système.

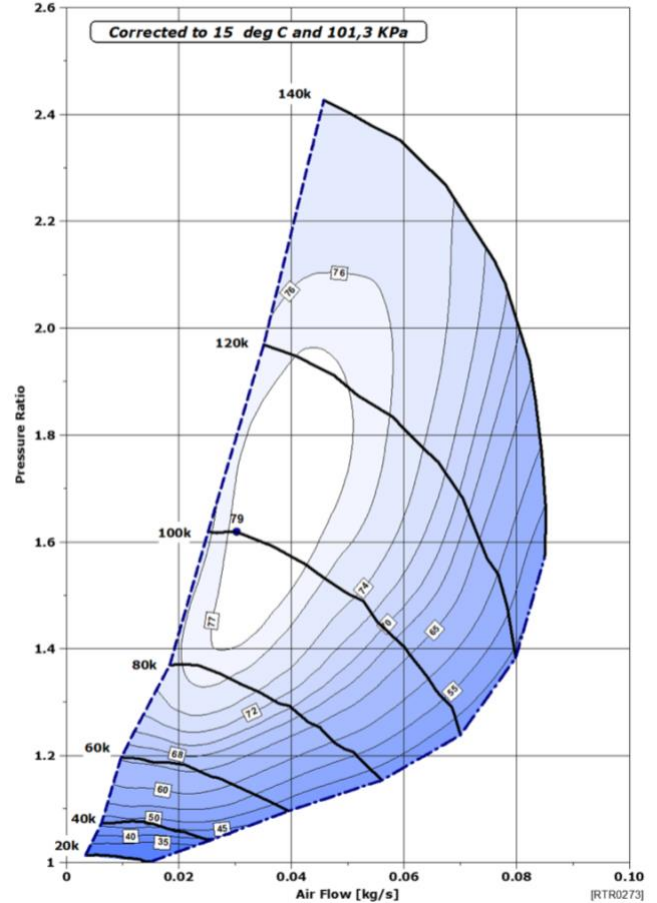


Fig. 4. Carte de performances du compresseur Rotrex EK10AA [18].

Le convertisseur DC/DC doit être un élément important à prendre en compte dans un système PàC car il présente un inconvénient majeur en termes de durée de vie, en plus de son coût. En effet, ce composant a en général une durée de vie inférieure à 5 000 h. Il y a un bon équilibre à trouver entre les performances, le coût et la durée de vie.

L'un des fabricants les plus réputés dans le domaine est Brusa [18]. Un exemple d'une chaîne de fonctionnement de cette entreprise est exposé en Fig. 5. Ces outils présentent de nombreux avantages tel qu'un contrôle de la tension, du courant ou de la puissance, une régulation de l'entrée ou de la sortie, un refroidissement liquide ou encore un très haut rendement (>95%).

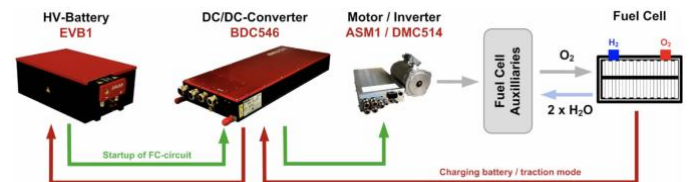


Fig. 5. Chaîne de fonctionnement Brusa [18].

Concernant la modélisation, celle-ci est inspirée de [20]. En supposant que la constante de temps de l'inductance est bien supérieure à la période de commutation du convertisseur DC/DC, sa modélisation peut être définie par :

$$i_{P\grave{a}C} = \frac{1}{L_{conv}} \int (V_{P\grave{a}C} - V_{ch} - r_L i_{ch}) dt \quad (10)$$

avec

$$V_{ch} = m_{P\grave{a}C} V_{bat} \quad (11)$$

$$i_{ch} = m_{P\grave{a}C} i_{P\grave{a}C} \eta^k \text{ avec } k = \begin{cases} 1 & \text{si } P > 0 \\ -1 & \text{si } P < 0 \end{cases} \quad (12)$$

où $i_{P\grave{a}C}$ est le courant traversant l'inductance, L_{conv} est la valeur de l'inductance, r_L est la résistance de l'inductance de lissage, V_{ch} est la tension de sortie du convertisseur, $m_{P\grave{a}C}$ est le rapport de modulation de hachage du convertisseur DC/DC, V_{bat} est la tension du bus DC et η est le rendement du convertisseur.

3. RESULTATS ET ANALYSES

Afin d'observer les résultats donnés par le modèle, différentes validations sont possibles. Dans un premier temps, il s'agira d'observer la réponse à un tracé de courbe de polarisation puis de modifier les paramètres d'utilisation pour observer leurs influences. Dans un second temps, en considérera une charge électrique dynamique, par exemple sous la forme d'un cycle routier WLTP (Worldwide harmonised Light vehicle Test Procedure).

3.1. Courbes de polarisation

A partir d'une courbe de polarisation de référence communiquée par un fournisseur de PàC, un algorithme d'optimisation détermine les paramètres de l'équation de Nernst afin d'obtenir un comportement identique du modèle à cette courbe de référence. Afin d'étudier le bon comportement du modèle, nous allons étudier le fonctionnement d'une PàC de marque PowerCell dont la courbe de polarisation de référence a été communiqué par le fournisseur et celle-ci est exposée en Fig. 6.

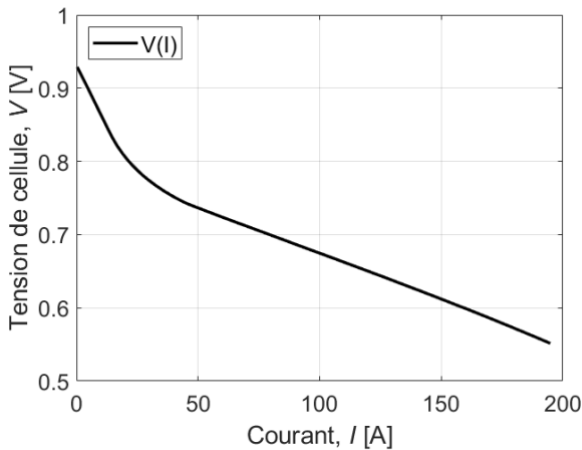


Fig. 6. Courbe de polarisation communiquée par PowerCell.

Une fois les paramètres déterminés, il est possible de modifier les paramètres d'entrée du modèle tels que la charge

électrique (courant ou puissance), les pressions/débits/rapport stœchiométriques et d'observer ainsi la réaction du modèle à ces modifications.

Dans cette section, les résultats expérimentaux sont comparés aux prédictions du modèle. En fonction des paramètres d'entrée (stœchiométries et pressions), les résultats sont comparés et, à cette fin, les courbes de polarisation et les flux de fluides sont tracés sur les mêmes graphiques.

Pour l'ensemble des essais, la pression à l'anode est fixée à 2 bar avec un rapport stœchiométrique également maintenu à 2. Les expériences montrent que le rapport stœchiométrique cathodique (2 et 2,5) et l'humidité relative n'ont pratiquement aucune influence sur les résultats de la courbe de polarisation, comme le montre la Fig. 7. En effet, lors de cette première étude comportementale, la pression à la cathode est de 1,75 bar, le rapport stœchiométrique varie entre 2 et 2,5 et l'humidité relative varie entre 30 et 50%. On observe que les résultats sont très similaires, les variations sur les courbes de polarisation sont minimales. Concernant la modélisation, on peut observer que les prédictions sont cohérentes avec les mesures expérimentales.

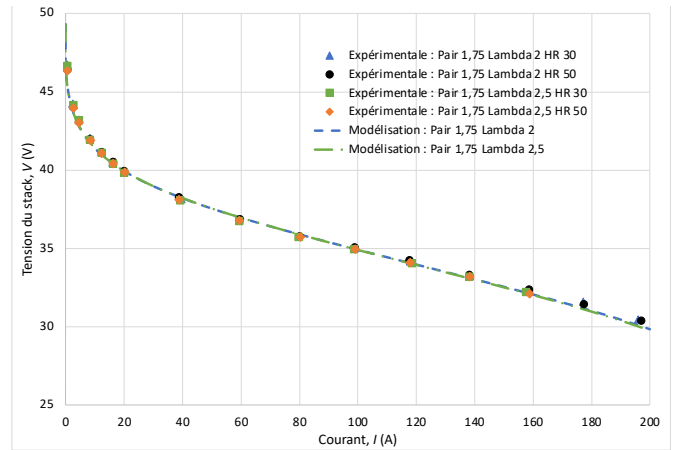


Fig. 7. Etude de l'influence du rapport de stœchiométrie et de l'humidité relative par courbes de polarisation.

Les pressions ont un impact sur les résultats, comme le montrent la Fig. 8, la comparaison est faite pour différentes pressions à la cathode et la stœchiométrie est constante et égale à 2 à la cathode. Avec la diminution de la pression, une diminution de la tension pour le même courant est observée. Il est clair que le modèle prédit avec précision le fonctionnement de système PàC puisque les mesures expérimentales se superposent quasi parfaitement avec les résultats du modèle.

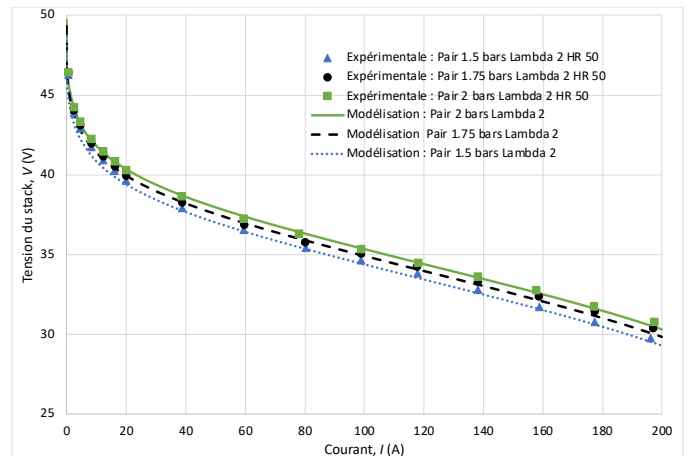


Fig. 8. Etude de l'influence de la pression cathodique.

Même si l'influence du rapport de stœchiométrie (2 et 2,5) est ici minime sur la courbe de polarisation, ce paramètre exerce évidemment une influence importante sur les flux de gaz. Une comparaison entre les résultats expérimentaux et analytiques des flux d'air et d'hydrogène est effectuée (Fig. 9) pour les différents rapports de stœchiométrie (1,5 à l'anode / 2 ou 2,5 à la cathode). On peut observer que le modèle reproduit correctement les flux de gaz nécessaires au bon fonctionnement de la PàC.

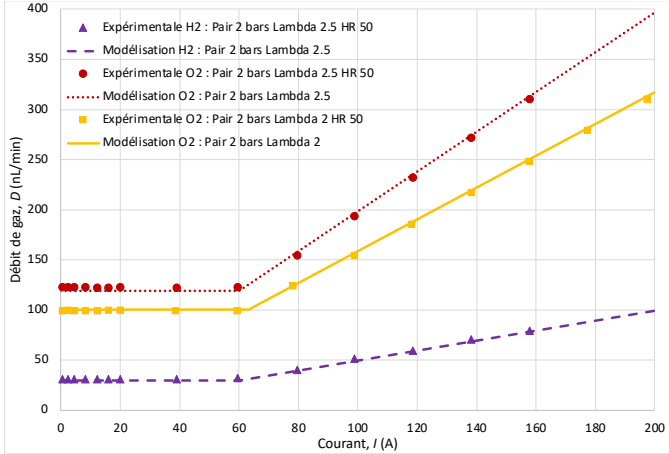


Fig. 9. Comparaison des débits de gaz.

Globalement, le modèle permet une prédiction précise des capacités de la PàC étudiée puisque la comparaison des données (Mesures vs. Modélisation) met en évidence la similarité des résultats lors d'analyses par courbes de polarisation.

3.2. Cycle WLTP

Dans cette section, il est question d'observer la réponse du système PàC à une demande de cycle WLTP lissé et avec un talon de courant minimum (Fig. 10), afin de répondre aux exigences internationales.

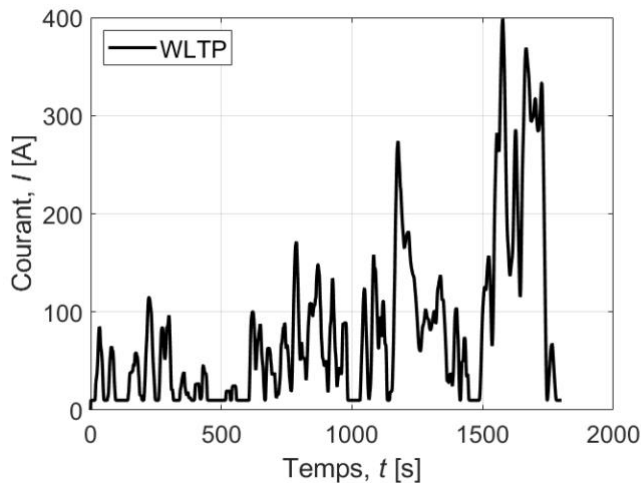


Fig. 10. Cycle WLTP adapté pour la PàC considéré.

Afin de comprendre le principe du système, une vue schématique de la distribution des puissances est présentée en Fig. 11. La commande du système fonctionne avec un courant de référence, les puissances électriques et des gaz sont intégrés selon la prise en compte des rendements des différents auxiliaires.

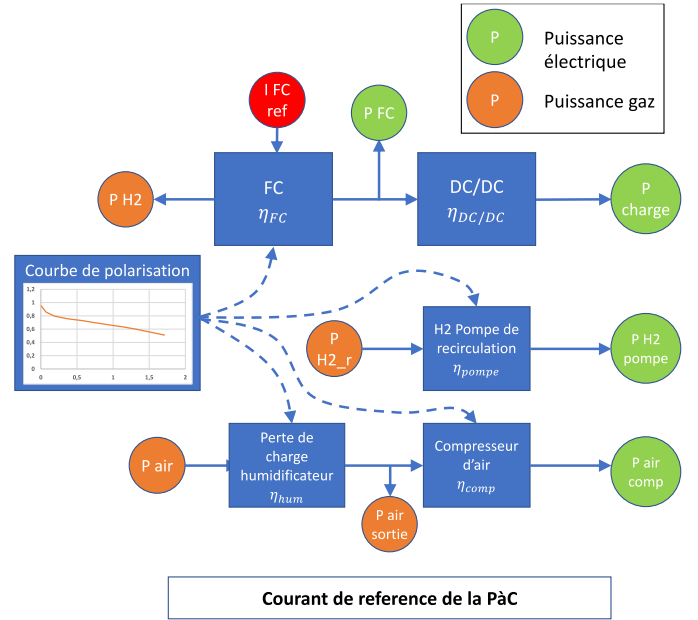


Fig. 11. Référence en courant de la PàC.

Il est donc possible d'observer différents résultats et d'explorer ainsi les possibilités de la PàC. Dans cette section, les résultats les plus constants sont présentés (puissances et efficacités).

L'évolution des différentes puissances est présentée dans la Fig. 12, avec la puissance théorique de l'hydrogène (eq. 13), la puissance générée par la PàC et les différentes puissances consommées par les auxiliaires (compresseur d'air, pompe de recirculation et convertisseur DC/DC).

$$P_{H_2 \text{ théorique}} = q_{H_2} \cdot E_{m H_2} \quad (13)$$

où q_{H_2} est le débit d'hydrogène (g/s) exprimé en équation (8), et $E_{m H_2}$ est l'énergie massique de l'hydrogène (J/g).

La puissance théorique sur ce cycle atteint 100 kW, tandis que la puissance de la PàC atteint seulement 45 kW. L'auxiliaire le plus énergivore, à savoir le compresseur d'air, peut consommer jusqu'à 7 kW.

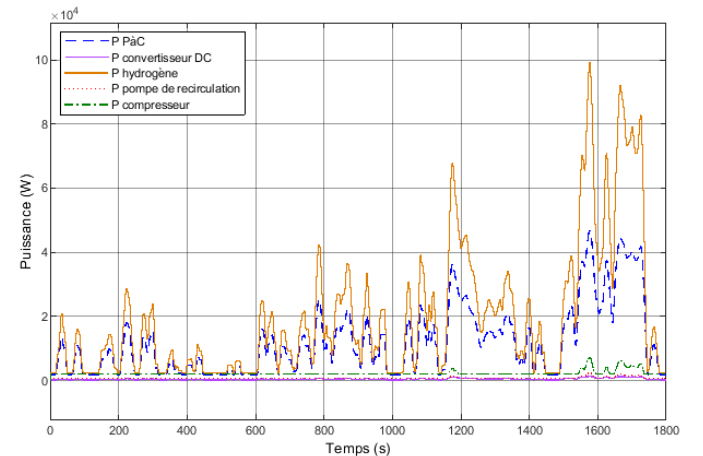


Fig. 12. Evolution des puissances suivant le cycle WLTP.

Les rendements sont également étudiés (Fig. 13) avec : le rendement de la pile (P_{stack}/P_{H_2}), les rendements des auxiliaires et le rendement du système (lorsque les auxiliaires sont extraits).

L'efficacité du stack est comprise entre 0,77 (lorsque la charge en courant est minimale) et 46 % lorsque la demande en courant est maximale, soit 400 A. Concernant le système, l'efficacité est bien entendue inférieure à celle du stack. Le rendement maximal est de 69% (charge minimale), et quelque peu inférieur à celui du stack en haut régime.

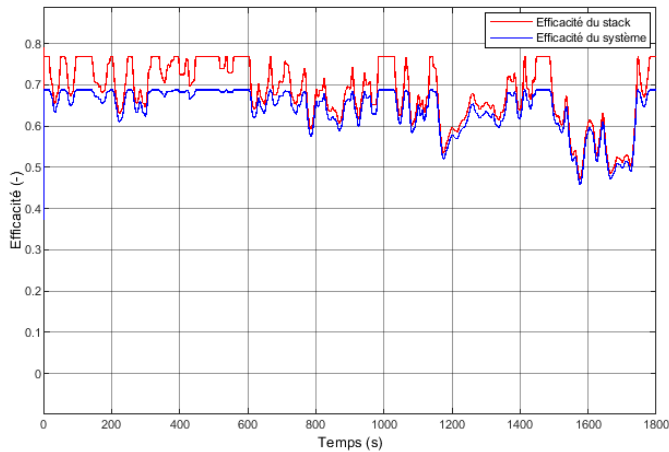


Fig. 13. Efficacités du stack et du système durant le cycle WLTP appliqué.

De manière générale, la réponse en puissance selon le courant de référence appliquée au système PàC est adéquate. Les fortes sollicitations en courant pourraient être absorbées par la PàC même si le couplage avec une batterie est indispensable afin de minimiser les contraintes dynamiques (variations de courant) sur la PàC.

4. CONCLUSIONS

Dans cet article, un modèle de système PàC a été développé sous Matlab Simulink. Ce modèle permet d'estimer avec précision les capacités du système PàC en question. Il a été question d'observer l'influence des auxiliaires sur l'efficacité du système avec notamment une consommation de puissance non négligeable du compresseur d'air. Les perspectives de ce travail sont multiples, il peut être par exemple question d'identifier quel élément doit être optimisé afin de réduire sa consommation d'énergie. Nous pouvons également étudier quel couplage PàC – batterie sera le plus judicieux sur l'application finale en se focalisant sur la durée de vie de chaque composant en fonction de son utilisation.

5. REMERCIEMENTS

This work has been supported by the EIPHI Graduate School (contract ANR-17-EURE-0002) and the Region Bourgogne Franche-Comté.

6. REFERENCES

- [1] H.W. Wu, "A review of recent development: transport and performance modeling of PEM fuel cells", *Appl. Energy*, 165, 2016, 81-106.
- [2] E. Pahon, D. Bouquain, D. Hissel, . Rouet, C. Vaquier, "Performance analysis of proton exchange membrane fuel cell in automotive applications », *Journal of Power Sources* , vol. 510, no. 7, 230385, Oct. 2021.
- [3] C.-Y. Wang, "Fundamental Models for Fuel Cell Engineering", *Chem. Rev.*, Sep. 2004, 104, 10, 4727-4766.
- [4] M. Arif, S. C. P. Cheung, J. Andrews, "Different Approaches Used for Modeling and Simulation of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells: A Review", *Energy Fuels* 2020, 34, 10, 11897–11915.
- [5] J. Zhao, X. Li, C. Shum, J. McPhee, "A Review of physics-based and data-driven models for real-time control of polymer electrolyte membrane fuel cells", *Energy and AI*, 6, Sep. 2021, 100114.
- [6] A. Goshtasbi, B.L. Pence, T. Ersal, "Computationally efficient pseudo-2D non isothermal modeling of polymer electrolyte membrane fuel cells with two-phase phenomena", *J. Electrochem. Soc.* 2016, 163, F1412-32.
- [7] L. Hong, J. Chen, Z. Liu, L. Huang, Z. Wu, "A nonlinear control strategy for fuel delivery in PEM fuel cells considering nitrogen permeation", *Int. J. Hydrog. Energy*, 2017, 42, 1565–76.
- [8] X. Zhang, D. Yang, M. Luo, Z. Dong, "Load profile based empirical model for the lifetime prediction of an automotive PEM fuel cell", *Int. J. Hydrog. Energy*, 2017, 42, 11868–78.
- [9] SS. Khan, H. Shareef, A.H. Mutlag, "Dynamic temperature model for proton exchange membrane fuel cell using online variations in load current and ambient temperature", *Int. J. Green Energy*, 2019,16, 361–70.
- [10] L. Vichard, F. Harel, A. Ravey, P. Venet, D. Hissel, "Degradation prediction of PEM fuel cell based on artificial intelligence", *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 45, Issue 29, May 2020, 14953-14963.
- [11] C. Spiegel, "PEM fuel cell modeling and simulation using MATLAB", Elsevier, 2011.
- [12] A. Dicks, D.A.J. Rand, "Fuel cell systems explained", Wiley, 2018.
- [13] L. Boulon, D. Hissel, A. Bouscayrol, M.C. Péra, "From Modeling to Control of a PEM Fuel Cell Using Energetic Macroscopic Representation", *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, vol. 57, no. 6, Jun. 2010.
- [14] Z. Yang, Q. Du; Z. Jia, C. Yang, J. Xuan, K. Jiao, "A comprehensive proton exchange membrane fuel cell system model integrating various auxiliary subsystems", *Applied Energy*, vol. 256, Dec. 2019, 113959.
- [15] B. Blunier, A. Miraoui, "Piles à combustible – Principes, modélisation, applications avec exercices et problèmes corrigés", Ellipses, Feb. 2007.
- [16] J. Han, J. Feng, P. Chen, Y. Liu, and X. Peng, "A review of key components of hydrogen recirculation subsystem for fuel cell vehicles", *Energy Conversion and Management*, vol. 15, Aug. 2022, 100265.
- [17] PermaPure®, Moisture Control Experts, <https://www.permapure.com/environmental-scientific/products/gas-humidification/fc-series-humidifiers/>
- [18] A. Kolstrup, Project Rotrex, Rotrex communication, "Development of the Rotrex Supercharger to compression of water vapor".
- [19] Brusa, Datasheet BDC546 - Bidirectional 750 V DC/DC-Converter, The global benchmark in high power FC applications.
- [20] A.M. Fernandez, M. Kandidayeni, L. Boulon, H. Chaoui, "An adaptive state machine based energy management strategy for a multi-stack fuel cell hybrid electric vehicle", *IEEE Transactions on Vehicular Technology*, vol. 69, no. 1, Jan. 2020.