

Université du Québec

Mémoire présenté à
l'Université du Québec à Trois-Rivières
comme exigence partielle de la
Maîtrise ès sciences (Physique)
par

François Laurencelle
(Baccalauréat en physique)

**ÉTUDE D'UN SYSTÈME D'ÉNERGIES
RENOUVELABLES À BASE D'HYDROGÈNE**

Mars 2001

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier le professeur Richard Chahine qui a accepté de diriger mes travaux. Par son soutien et sa patience, il m'a permis de passer à travers bien des difficultés et m'a guidé dans l'atteinte de mes objectifs. Je veux aussi remercier le professeur Kodjo Agbossou pour l'intérêt particulier qu'il a porté à mon travail en tant que co-directeur et comme responsable du projet des Énergies Renouvelables, pour lequel il s'est montré infatigable.

Je désire aussi souligner l'importante contribution des membres de l'équipe dynamique et stimulante des Énergies Renouvelables qui m'ont apporté l'expertise. En particulier, Alain Tessier, André Dupont et le professeur Jean Hamelin de l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène (IRH), et André Laperrière du LTEE (Laboratoire de Techniques Électrochimiques et des Électrotechnologies) d'Hydro-Québec ont travaillé avec moi dans le volet expérimental de ma recherche. Ayant fait un stage en milieu industriel au LTEE, j'ai eu la chance de travailler avec Michel Dostie et Alain Poulain, que je remercie grandement. Je souhaite aussi remercier les étudiants de l'UQTR qui ont travaillé avec moi sur divers aspects du projet : Adil Anouar, Michael Fournier et Pascal Larouche.

Je remercie également les trois organismes qui m'ont soutenu financièrement durant cette période. Le Centre d'Études Universitaires (CEU) m'a attribué une bourse de deuxième cycle. Le Conseil de Recherche en Sciences Naturelles et en Génie (CRSNG) m'a accordé une bourse d'Études Supérieures à Incidence Industrielle (ÉSI), en partenariat avec la compagnie Hydro-Québec. Cette dernière, par l'intermédiaire de son LTEE, m'a permis de réaliser un stage en industrie et m'a aussi subventionné en contribuant à la bourse du CRSNG.

RÉSUMÉ

La production de l'énergie par les méthodes traditionnelles a des conséquences néfastes sur l'environnement (pollution et épuisement des ressources naturelles). Dans ce contexte, l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène de l'Université du Québec à Trois-Rivières met au point un système à énergies renouvelables basé sur l'hydrogène pour alimenter une résidence, de façon autonome. Un électrolyseur produit de l'hydrogène à partir du surplus d'électricité d'une éolienne et de panneaux solaires. L'hydrogène ainsi produit est stocké et utilisé, lorsque les énergies renouvelables ne sont pas suffisantes, pour alimenter une pile à combustible afin que cette dernière génère l'électricité complémentaire. L'hydrogène remplace donc les batteries pour le stockage à long terme d'électricité. Le système devrait avoir un impact minime sur l'environnement.

La recherche présentée dans ce mémoire a pour objectif d'étudier le fonctionnement et les performances des deux principaux convertisseurs de ce système, soit un électrolyseur de la compagnie Stuart Energy (anciennement Electrolyser) et une pile à combustible de la compagnie Ballard Power Systems. Les principales mesures effectuées concernent les efficacités de conversion de l'électrolyseur et de la pile à combustible. La pureté de l'hydrogène produit par l'électrolyseur et l'effet des variations brusques de charge sur la pile à combustible sont aussi présentés. Les résultats obtenus faciliteront l'intégration de ces appareils dans le système à énergies renouvelables basé sur l'hydrogène, et renseigneront sur l'efficacité de ces convertisseurs.

Les résultats des travaux effectués dans le cadre de ce mémoire ont été présentés dans cinq conférences arbitrées et non arbitrées et dans quatre journaux spécialisés de portée internationale. Ces contributions dont je suis soit l'auteur principal ou co-auteur sont les suivantes :

Articles dans des revues avec comité de lecture :

- 1) F. Laurencelle, R. Chahine, J. Hamelin, K. Agbossou, M. Fournier et T.K. Bose, «*Characterization of a Ballard MK5-E Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stack*», accepté dans *Fuel Cells from Fundamentals to Systems* (Wiley), 2001.
- 2) K. Agbossou, R. Chahine, J. Hamelin, F. Laurencelle, A. Anouar, J.-M. St-Arnaud et T.K. Bose, «*Renewable Energy Systems based on Hydrogen for Remote Applications*», accepté dans *J. Power Sources*, 2001.
- 3) J. Hamelin, K. Agbossou, A. Laperrière, F. Laurencelle et T. K. Bose; «*Dynamic Behavior of a PEM Fuel Cell Stack for Stationary Applications*», accepté dans *Int. J. Hydrogen Energy* 2001.
- 4) K. Agbossou, J. Hamelin, R. Chahine, F. Laurencelle, M. Dostie, A. Laperrière et T.K. Bose, «*Fuel Cells and Hydrogen Storage for Stand Alone Renewable Energy Systems*»; *International Journal of Renewable Energy*, 2(3), 2000, 254.

Communication à des conférences :

- 1) K. Agbossou, R. Chahine, J. Hamelin, F. Laurencelle, A. Anouar, J.M. St-Arnaud et T.K. Bose; «*Renewable Energy Systems Based on Hydrogen for Remote Areas like a Communication Station*»; 22nd International Power Sources Symposium, à venir les 9-11 avril 2001, Manchester, UK.
- 2) J. Hamelin, K. Agbossou, A. Laperrière, F. Laurencelle, T. K. Bose; «*Dynamic Behavior of PEM Fuel Cells for Stationary Applications*»; Gordon Research Conference : Fuel Cells, 9-14 juillet 2000, Bristol, USA.
- 3) F. Laurencelle, K. Agbossou, R. Chahine, J.M. St-Arnaud et T.K. Bose; «*Systèmes d'énergies renouvelables basés sur l'hydrogène pour les sites isolés*»; 10^e Conférence Canadienne sur l'Hydrogène, 28-31 mai 2000, Québec, Canada.
- 4) F. Laurencelle, K. Agbossou, R. Chahine; «*Un système à énergies renouvelables basé sur l'hydrogène*»; 68^e Congrès de l'ACFAS, Université de Montréal, 15-19 mai 2000, Montréal, Canada.

Cette conférence a donné lieu à une interview avec une journaliste et à la publication de cet article :

L. Desautels et C. Dubé, «Hydrogène et éolienne, un mariage électrique», Québec Sciences, juillet-août 2000.

- 5) K. Agbossou, A. Laperrière, F. Laurencelle, and J. Hamelin; «*Load Commutation for Stand Alone Wind and PV Hydrogen Energy System*»; CCECE 2000 IEEE Canadian Conference on Electrical and Computer Engineering, 8-12 mai 2000, Halifax, Canada.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS.....	2
RÉSUMÉ.....	3
TABLE DES MATIÈRES	5
LISTE DES FIGURES.....	6
LISTE DES TABLEAUX.....	6
1. INTRODUCTION.....	7
1.1 Le contexte de la recherche	7
1.2 Les énergies renouvelables	8
1.3 Le système intégré d'énergies renouvelables et hydrogène.....	9
1.4 La structure du mémoire.....	11
1.5 Références	11
2. ÉTUDE DE L'ÉLECTROLYSEUR	13
2.1 Introduction.....	13
2.2 Objectifs.....	14
2.3 Étude bibliographique.....	15
2.4 Expérimentation.....	20
2.4.1 L'électrolyseur alcalin de Stuart Energy	20
2.4.2 Contrôle.....	25
2.4.3 Mesures	26
2.5 Résultats des mesures.....	30
2.5.1 Pureté de l'hydrogène.....	30
2.5.2 Efficacité des cellules.....	32
2.5.3 Efficacité globale.....	37
2.6 Références	40
3. ÉTUDE DE LA PILE À COMBUSTIBLE	42
3.1 Introduction.....	42
3.2 Références de la section 3.1	47
3.3 Objectifs.....	48
3.4 Expérimentation.....	48
3.5 Résultats.....	53
3.5.1 Résumé de l'article	53
3.5.2 Article	56
3.6 Conclusion.....	79
4. DISCUSSION ET CONCLUSION	81

LISTE DES FIGURES

Chapitre 1

Figure 1.1 : Carte du vent au Québec.....	9
Figure 1.2 : Système d'énergies renouvelables et d'hydrogène de l'IRH.....	10

Chapitre 2

Figure 2.1 : Courbe de polarisation d'une cellule de l'électrolyseur de 10 kW HySolar.....	17
Figure 2.2 : L'électrolyseur de Stuart Energy.....	20
Figure 2.3 : Équipements de l'électrolyseur.....	21
Figure 2.4 : Connexion électrique des groupes de cellules.....	22
Figure 2.5 : Le réservoir tampon.....	23
Figure 2.6 : Appareil de mesure de la pureté.....	28
Figure 2.7 : Température des groupes de cellules A à D lors des mesures.....	32
Figure 2.8 : Efficacité des cellules de l'électrolyseur en fonction du courant.....	33
Figure 2.9 : Courbe de polarisation de l'électrolyseur.....	34
Figure 2.10 : Volume d'hydrogène produit en fonction de la puissance.....	35
Figure 2.11 : Évolution de la température et de la tension en fonction du temps.....	36
Figure 2.12 : Efficacité en fonction de la température.....	37

Chapitre 3

Figure 3.1 : Principes de fonctionnement des différentes catégories de piles à combustible.....	43
Figure 3.2 : Le NECar-4 (no emission car 4) de Daimler Chrysler.....	45
Figure 3.3 : Structure d'une pile à combustible dans un empilement ou <i>stack</i>	46
Figure 3.4 : La pile Ballard MK5-E.....	49
Figure 3.5 : Le générateur à pile à combustible Ballard PGS-105B tel qu'installé à l'IRH.....	49
Figure 3.6 : Le système d'acquisition de données.....	50
Figure 3.7 : Schéma de connexions.....	51

LISTE DES TABLEAUX

Chapitre 2

Tableau 2.1 : Hydrogène extrait des hydrocarbures par divers procédés.....	13
Tableau 2.2 : Efficacité des électrolyseurs alcalins.....	19
Tableau 2.3 : Débits de refroidissement.....	25
Tableau 2.4 : Températures et pressions dans l'électrolyseur.....	27
Tableau 2.5 : Pureté et efficacité des groupes de cellules.....	30
Tableau 2.6 : Impuretés de l'hydrogène après filtrage.....	31

Chapitre 3

Tableau 3.1 : Principales catégories de piles à combustible.....	43
Tableau 3.2 : Liste des points de mesure et des instruments.....	52

1. INTRODUCTION

1.1 Le contexte de la recherche

À l'aube du XXI^e siècle, la population mondiale continue de croître et plusieurs facteurs socio-économiques liés à l'industrie, au niveau de vie et au transport entraînent une consommation de plus en plus grande d'énergie : pour l'an 2000, la consommation d'énergie mondiale a été d'environ 400 quadrillions de BTU ($\sim 10^{23}$ kWh) et elle croît d'environ 1.1 %/an [1]. Des problèmes environnementaux tels que la pollution de l'air, l'effet de serre et l'épuisement des carburants fossiles (pétrole) surviennent. Notons que 57 % des gaz à effet de serre sont dus à la production et à la consommation d'énergie [2]. Le besoin de sources d'énergies abondantes, propres, efficaces et d'un coût abordable devient un enjeu social de première importance pour le maintien de la modernité. Les énergies renouvelables pourraient répondre à ce besoin mais leur attrait est limité par leur disponibilité intermittente et par l'absence d'un moyen de stockage adéquat de l'électricité. Les batteries ne sont pas adaptées au stockage à long terme d'énergie : elles ont une durée de vie limitée (de 3 à 5 ans pour les batteries acide-plomb). L'hydrogène pourrait les remplacer partiellement ou totalement comme tampon énergétique [3]. Cela nécessiterait deux convertisseurs : l'électrolyseur servant à produire l'hydrogène à partir de l'électricité et la pile à combustible permettant de générer de l'électricité à partir de l'hydrogène. Avant l'intégration de ces convertisseurs à l'intérieur d'un système à énergies renouvelables, il est nécessaire d'étudier chacun d'eux pour connaître exactement leur fonctionnement dans diverses situations auxquelles ils devront faire face. L'objectif général de cette recherche est de caractériser un électrolyseur et une pile à combustible en vue de leur utilisation dans un système de production autonome d'électricité à partir des énergies renouvelables.

1.2 Les énergies renouvelables

Le qualificatif *renouvelable* est donné aux sources d'énergies inépuisables qui ont un impact minime sur l'environnement. Les énergies éolienne et solaire entrent dans cette catégorie. Par contre, les énergies hydroélectrique et marémotrice sont admises mais avec prudence parmi les énergies renouvelables car elles affectent peu ou prou l'environnement [4]: par exemple, dans le cas des barrages hydroélectriques, la création de grands réservoirs d'eau inonde des régions.

L'électricité des éoliennes peut être produite à un coût compétitif (5 à 15 ¢/kWh) [6] par rapport au coût de production de l'hydroélectricité (~ 3 ¢/kWh) [6] et elle commence à occuper une part significative du marché québécois, avec l'installation de grands parcs éoliens à Matane et Cap-Chat en Gaspésie (Québec). L'énergie solaire, qui est aussi renouvelable, n'entre pas sérieusement en compétition à cause de son coût d'exploitation encore élevé [7, 8].

À la Figure 1.1, nous voyons la carte des puissances de vents du Québec. Selon cette dernière, c'est en Gaspésie que les vents sont les plus forts. La vitesse moyenne des vents y atteint 30 km/h, ce qui représente une puissance moyenne autour de 500 W/m². Par contre, entre Montréal et Québec, la vitesse moyenne des vents s'élève à 18 km/h (soit 5 m/s), fournissant une puissance moyenne autour de 180 W/m². L'Institut de Recherche sur l'Hydrogène (IRH) de l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR) a fait installer une éolienne sur son site. Cette éolienne à axe horizontal Bergey BWC-Excel, située en haut d'un mât de 30 m, fournit une puissance maximale de 10 kW pour des vents d'au moins 13 m/s (selon la courbe de puissance fournie par la compagnie). Avec des vents moyens de 5 m/s, elle devrait produire annuellement environ 15 000 kWh, selon la compagnie. Étant donné que les pales de l'hélice ont une longueur de 3.5 m, l'hélice balaie 38 m² de surface. En considérant un coefficient d'efficacité $C_p = 0.4$ [9], la puissance moyenne qu'elle peut capter avec un vent de 180 W/m² est calculée comme suit :

$$180 \text{ W/m}^2 \cdot 38 \text{ m}^2 \cdot 0.4 \sim 2\,700 \text{ W} . \quad (1.1)$$

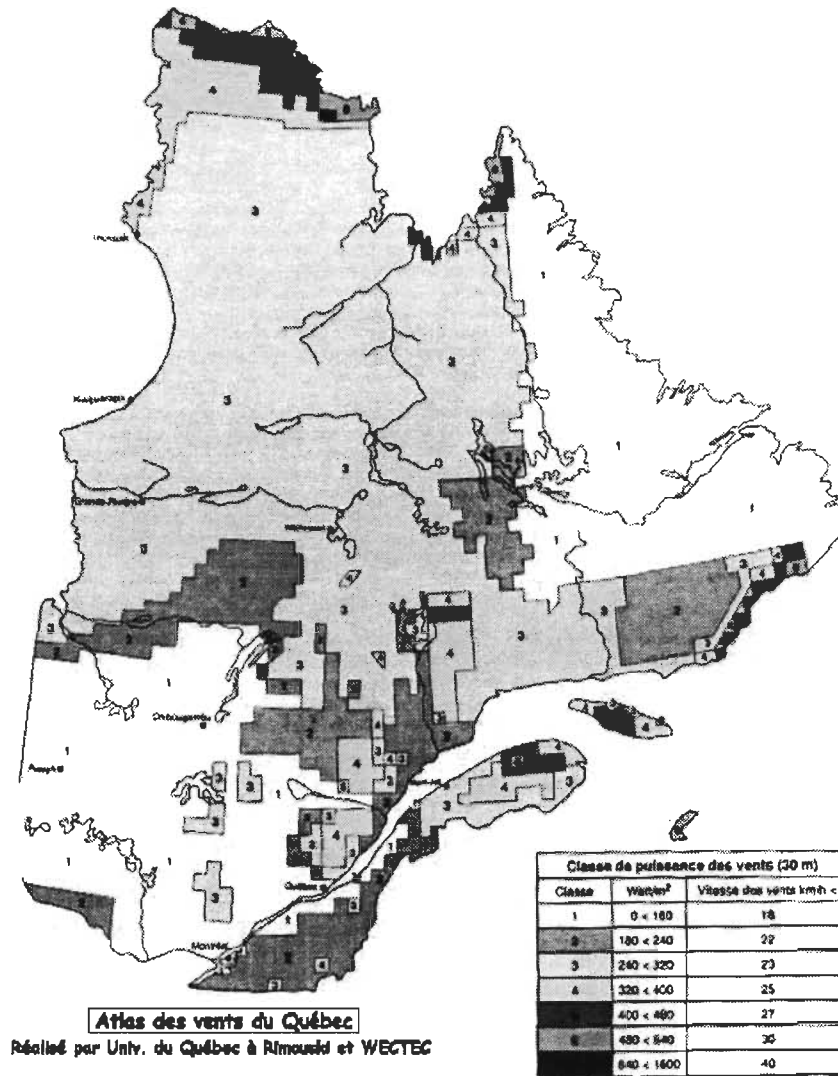


Figure 1.1 : Carte du vent au Québec [5]

1.3 Le système intégré d'énergies renouvelables et hydrogène

Les énergies renouvelables sont disponibles de façon intermittente [10], de sorte que des moyens de stockage ou des sources d'appoint sont nécessaires pour subvenir aux besoins énergétiques en l'absence de vent ou de lumière solaire. À l'IRH, nous effectuons le couplage d'un système de production et stockage d'hydrogène à des sources d'énergie renouvelable (une éolienne de 10 kW et des panneaux solaires de 1 kW). Le système est configuré pour subvenir

aux besoins électriques d'une résidence non reliée au réseau électrique. Lorsque la charge (simulant une résidence) sera convenablement alimentée par l'éolienne et les panneaux solaires et que ces derniers produiront un surplus d'électricité, un électrolyseur utilisera cette électricité excédentaire pour produire et stocker de l'hydrogène. Une pile à combustible générera de l'électricité sur demande à partir de l'hydrogène, pour permettre d'alimenter continuellement la charge en électricité. La Figure 1.2 présente le système en développement à l'IRH.

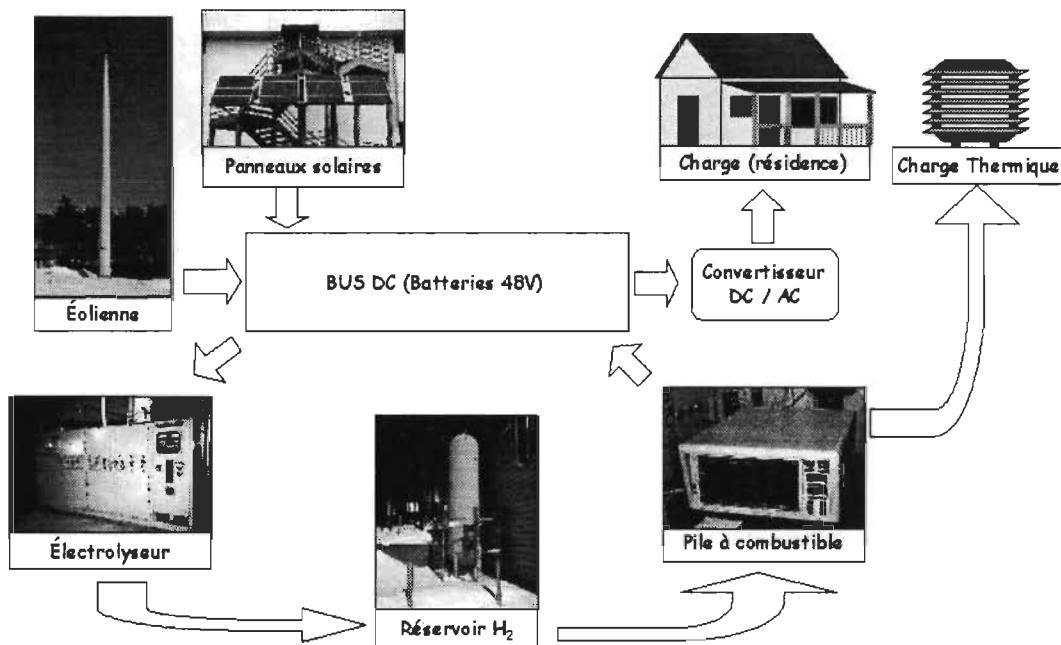


Figure 1.2 : Système d'énergies renouvelables et d'hydrogène de l'IRH

Ce système utilisant l'hydrogène comme moyen de stockage de l'énergie respecte l'environnement : l'électrolyseur rejette de l'oxygène dans l'atmosphère et la pile à combustible produit de l'eau pure. Plusieurs groupes de recherche développent des projets impliquant les énergies renouvelables et l'hydrogène; par exemple : en Allemagne [11, 12, 13, 14], au Canada et aux États-Unis [15], en Égypte [16], en Italie [17], en Suisse [18].

1.4 La structure du mémoire

Le présent mémoire comporte deux sections principales, correspondant aux chapitres 2 et 3. Le chapitre 2 concerne l'étude de l'électrolyseur. Une étude bibliographique, un résumé du fonctionnement de l'électrolyseur utilisé, les techniques de mesure des caractéristiques (pureté de l'hydrogène, bilan énergétique) et les résultats expérimentaux y sont présentés.

Le chapitre 3 a pour objet la pile à combustible. Nous avons fait paraître des résultats fragmentaires de notre étude de la pile à combustible dans plusieurs publications ; cependant, un article regroupe tous les résultats. La présentation de cet article est au cœur de ce chapitre. Une étude bibliographique est présentée ainsi que les bancs d'essais utilisés et l'article lui-même. Ce dernier décrit les observations faites sur l'efficacité énergétique, l'effet de la température, l'effet du taux d'oxygène dans le gaz cathodique. Des mesures de la tension et du courant en mode de production variable et en présence d'un convertisseur DC-AC en font aussi partie.

1.5 Références

- 1- – , *International Energy Outlook 2000* [DOE/EIA-0484(2000)], Energy Information Agency (EIA), U.S.Department of Energy.
- 2- O.E. Soltermann et E.P. Da Silva, «Comparative Study Between the HYSOLAR Project and a Hypothetical International Project in Brasil for Hydrogen Production and Exportation (BHP) from Photovoltaic Energy and Secondary Electricity Combined Supply», *Int. J. Hydrogen Energy*, 23(9), 1998, 735.
- 3- S.R. Vosen and J.O. Keller, «Hybrid Energy Systems for Stand-Alone Electricity Power Systems : Optimization of System Performance and Cost Through Control Strategies», *Int. J. Hydrogen Energy*, 24, 1999, 1139.
- 4- J.P. Drapeau et Y. Guérard, *Réhabiliter l'hydroélectricité et refuser les mensonges*. Mémoire présenté à la Commission parlementaire chargée d'étudier la proposition de Plan de développement 1993 d'Hydro-Québec, Québec, le 1^{er} février 1993.
- 5- – , Carte des vents disponible au site Internet : www.eole.org.
- 6- – , *Le développement de l'énergie éolienne au Québec*. Mémoire daté du 30 avril 1998, publié sur le site Internet : http://www.hydroquebec.com/publications/index_fr.html.

- 7- L. Barra et D. Coiante, «Energy Cost Analysis for Hydrogen-Photovoltaics Stand-Alone Power Stations», *Int. J. Hydrogen Energy*, 18(8), 1993, 685.
- 8- H. Dienhart et A. Siegel, «Hydrogen Storage in Isolated Electrical Energy Systems with Photovoltaics and Wind Energy», *Int. J. Hydrogen Energy*, 19(1), 1994, 61.
- 9- E. Muljadi, K. Pierce et P. Migliore, «Control Strategy for Variable-Speed, Stall-Regulated Wind Turbines» [NREL/CP-500-24311], présenté au congrès American Control Conference, Philadelphia, PA, 24-26 juin 1998.
- 10- J. Kline et M. Milligan, «An Evaluation of Hourly Average Wind-Speed Estimation Techniques», présenté au congrès Windpower '98, Bakersfield, CA, 27 avril au 1^{er} mai 1998.
- 11- H. Steeb et H. Abaoud, *HYSOLAR German-Saudi Joint Program on Solar Hydrogen Production and Utilization, Phase II, 1992-1995*, Stuttgart, 1996.
- 12- H. Barthels, W.A. Brocke, K. Bonhoff, H.G. Groehn, G. Heuts, M. Lennartz, H. Mai, J. Mergel, L. Schmid, P. Ritzenhoff, «PHOEBUS Jülich - An Autonomous Energy Supply System Comprising Photovoltaics, Electrolytic Hydrogen, Fuel Cell», Actes de *Hydrogen Energy Progress XI*, p. 1005, 1996.
- 13- F. Menzl, «An Autonomous Wind-Hydrogen System for Electricity Services to Isolated Locations», Actes de *Hydrogen Energy Progress XII*, p. 777, 1998.
- 14- A. Szyszka, «Ten Years of Solar Hydrogen Demonstration Project at Neunburg Vorm Wald, Germany», *Int. J. Hydrogen Energy*, 23(10), 1998, 849.
- 15- M. Fairlie, B. Stewart, P. Scott et J. Van Camp, «Renewable Hydrogen for Remote Power Applications», Actes du 8th *Canadian Hydrogen Workshop*, p. 256, 1997.
- 16- M.A. M. Shaltout, «Solar Hydrogen Project at Nasser Lake in the South of Egypt», *Hydrogen Energy Progress XII*, p. 45, 1998.
- 17- S. Gally, «The Solar-Hydrogen SAPHYS Project : Operating Results», *Hydrogen Energy Progress XII*, p. 877, 1998.
- 18- P. Hollmuller, J.-M. Joubert, B. Lachal et K. Yvon, «Evaluation of a 5kW_p Photovoltaic Hydrogen Production and Storage Installation for a Residential Home in Switzerland», Actes de *Hydrogen Energy Progress XII*, p.423, 1998.

2. ÉTUDE DE L'ÉLECTROLYSEUR

2.1 Introduction

L'hydrogène est l'élément le plus abondant, représentant 90% des atomes et les $\frac{1}{4}$ de la masse de l'Univers [1]. Par contre, sur la Terre, on le retrouve surtout dans les molécules organiques et dans l'eau. La croûte terrestre renferme seulement 0.14 % d'atomes d'hydrogène [2]. Le reformage du gaz naturel, la gazéification du charbon et l'oxydation partielle des huiles lourdes sont des procédés industriels permettant d'extraire l'hydrogène des hydrocarbures. Ces procédés de reformage sont peu coûteux (moins de 0.20 US\$/m³) et les hydrocarbures demeurent la principale source d'hydrogène exploitée par l'industrie. Pourtant, les hydrocarbures constituent une ressource épuisable et polluante. Notons que de l'hydrogène peut aussi être extrait de la biomasse (éthanol, méthanol et déchets organiques) par des procédés analogues. Le reformage de matières organiques libère des déchets, tel le gaz carbonique (CO₂) qui contribue à l'effet de serre.

Tableau 2.1 : Hydrogène extrait des hydrocarbures par divers procédés [3]

Procédé	Matériel brut	Efficacité (%)	Autre produits	Quantité	Coût US\$/m ³
Réformage à la vapeur	Gaz naturel	78.5	Vapeur	0.58 g/m ³	0.067
Oxydation partielle	Huiles résiduelles	76.8	Soufre	11 g/m ³	0.11
Gazification Texaco	Charbon bitumineux	63.3	Soufre	25 g/m ³	0.16
Koppers-Totzek	Charbon bitumineux	57.7	Soufre	3.3 g/m ³	0.18
Gazification Charbon-Fer	Charbon bitumineux	45.7	Électricité	0.12 kWh/m ³	0.13
Électrolyse	Électricité : centrales thermiques *	27.2	Oxygène	242 g/m ³	0.2

* Efficacité de la production d'électricité : 40 %; efficacité de l'électrolyse : 68 %; le tout : 27.2 %.

L'électrolyse décompose l'eau (H_2O) en hydrogène (H_2) et en oxygène (O_2). Elle convertit directement l'énergie électrique en énergie chimique (de la molécule d'hydrogène). Il existe plusieurs types d'électrolyseurs décrits dans [3]. Les électrolyseurs dits conventionnels ont un électrolyte alcalin en solution aqueuse. Les électrolyseurs à électrolyte solide (SPE pour *solid polymer electrolyte*) peuvent faire l'électrolyse soit d'eau liquide ou de vapeur selon leur température d'opération. Leur électrolyte est une membrane échangeuse de protons (PEM pour *proton exchange membrane*), faite d'un polymère comme le Nafion^{MD}, dans laquelle sont implantés des ions sulfites SO_3^- . Les électrolyseurs à haute température (de 700 à 1000 °C) sont utilisés dans des grandes unités de production. Ce sont les plus efficaces (jusqu'à 93 % [3]) car ils utilisent à la fois l'énergie électrique et thermique.

2.2 Objectifs

But :

Caractériser un électrolyseur en vue de son intégration à l'intérieur d'un système de production autonome d'électricité à partir des énergies renouvelables

Objectifs spécifiques :

1. Connaître l'état actuel du savoir concernant les électrolyseurs, spécialement les électrolyseurs alcalins.
2. Mesurer la pureté de l'hydrogène produit par l'électrolyseur.
3. Mesurer la tension, le courant, le débit et l'efficacité de l'électrolyseur en fonction du courant et de la température.
4. Mesurer l'impact des transitions du courant alimentant les cellules de l'électrolyseur sur les performances de ce dernier.

2.3 Étude bibliographique

Les électrolyseurs alcalins sont les plus répandus, c'est pourquoi on les qualifie de *conventionnels* [3] Leur électrolyte est le plus souvent du potasse caustique (KOH) en solution dans l'eau à 25 ou 30 % [4, 5]. Cette section résume la théorie à la base des électrolyseurs alcalins. L'électrolyse fait la séparation électrochimique de molécules d'eau en hydrogène et en oxygène selon la réaction globale :



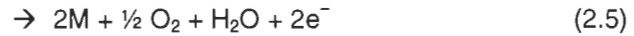
La molécule d'eau est brisée par le potentiel électrique appliqué entre deux électrodes habituellement constituées de métal ou de graphite. Un catalyseur (comme le platine) est généralement appliqué à la surface des électrodes en contact avec l'électrolyte pour accélérer la réaction. Plusieurs mécanismes de réaction sont possibles. Nous expliquerons ici la théorie de Tafel [6] dans laquelle les électrodes (de platine ou de palladium), représentées par la lettre M, jouent un rôle de catalyseur de la réaction cathodique.

La cathode a un surplus d'électrons. Au contact de cette électrode, les molécules d'eau reçoivent un électron excédentaire et se séparent aussitôt en un ion OH^- et un atome d'hydrogène H adsorbé par l'électrode, qui forme temporairement un hydrure. Les atomes d'hydrogène se regroupent rapidement pour former de l'hydrogène gazeux.

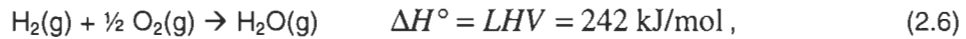


Guidés par la tension électrique, les ions OH^- traversent l'électrolyte et la membrane, puis ils cèdent leur électron en excès à l'anode [7]. Les groupements OH déchargés se

décomposent alors en eau et oxygène gazeux. L'abondance d'ions OH^- provenant du KOH accélère la réaction anodique.



Au cours de l'électrolyse, l'hydrogène produit absorbe de l'énergie d'enthalpie (ΔH). Cette énergie, aussi dénommée *pouvoir calorifique de l'hydrogène*, peut prendre l'une ou l'autre des valeurs suivantes dépendant de la phase de l'eau [1]:



L'exposant ($^\circ$) signifie que le potentiel est évalué à 25 °C et 1 atm. Dans un électrolyseur alcalin, l'eau est liquide et contient un électrolyte en solution aqueuse. L'énergie d'enthalpie correspond alors au pouvoir calorifique supérieur *HHV* [8]. Par définition [9, 10], l'énergie d'enthalpie (ΔH) est la somme de l'énergie libre de Gibbs (ΔG) et d'un terme dépendant du changement d'entropie (ΔS) et de la température (T) :

$$\Delta H = \Delta G + T\Delta S. \quad (2.8)$$

où

$$\Delta G^\circ = 237 \text{ kJ/mol}. \quad (2.9)$$

L'énergie correspondant au changement d'entropie de la réaction, soit $T\Delta S \sim 48 \text{ kJ/mol}$, peut être fournie à la cellule d'électrolyse sous forme de chaleur. Cependant, l'énergie libre (ΔG) est nécessairement fournie par la différence de potentiel de la cellule, nous permettant de calculer la tension électrique nécessaire pour effectuer l'électrolyse à 25 °C:

$$V_{\Delta G}^o = \frac{\Delta G^o}{2F} = 1.23 \text{ V} . \quad (2.10)$$

où $F = 96\,485 \text{ C/mol}$, c'est la charge en Coulombs d'une mole d'électrons.

Les cellules d'électrolyse ont des pertes qui doivent être compensées par une tension plus élevée entre les électrodes. Ainsi, s'ajoutent à $V_{\Delta G}$ les surtensions d'activation de l'anode μ_a et de la cathode μ_c [10]. Toutes deux sont proportionnelles au logarithme du courant. S'ajoute aussi une perte ohmique $R \cdot I_{cellule}$ liée à la diffusion des charges à travers l'électrolyte et la membrane. La tension aux bornes d'une cellule d'électrolyse peut être modélisée à l'aide d'une équation empirique comme celle-ci [5] :

$$V_{cellule}(I_{cellule}, T) = P_1(T) + P_2(T) \cdot I_{cellule} + P_3(T) \ln(I_{cellule}) . \quad (2.11)$$

où les coefficients $P_1(T)$ à $P_3(T)$ doivent être évalués par régression.

La Figure 2.1 représente le comportement Tension-Courant (courbe de polarisation) d'une des cellules de l'électrolyseur alcalin prototype de 10 kW développé par le groupe HySolar [5]. La courbure aux faibles densités de courant (inférieures à 100 mA/cm^2) est caractéristique de la surtension d'activation. D'après ces mesures, la cellule est de 10 à 15 % plus efficace à 80°C qu'à 40°C .

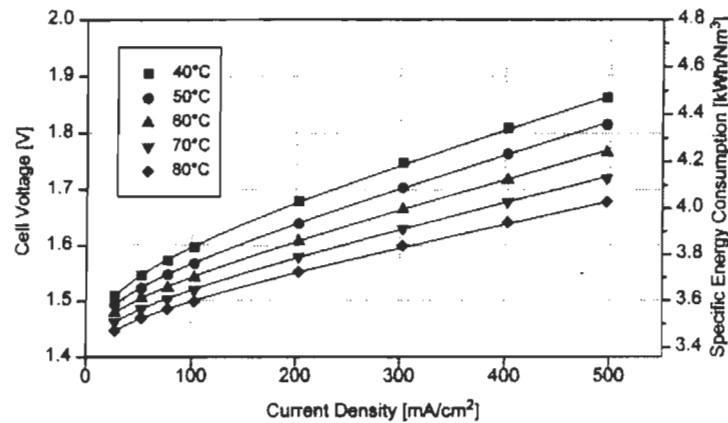


Figure 2.1 : Courbe de polarisation d'une cellule de l'électrolyseur de 10 kW HySolar [5].

L'efficacité d'une cellule électrochimique peut être séparée en deux effets principaux [11] : l'*efficacité de tension* η_V et l'*efficacité de courant* ou *efficacité de Faraday* η_I . L'efficacité de tension compare la potentiel électrique de la cellule à celui d'une cellule idéale fonctionnant à 25 °C et 1 atm, où toute l'énergie $\Delta H = HHV$ serait fournie sous forme d'électricité :

$$V_{HHV}^{\circ} = \frac{HHV}{2F} = 1.482 \text{ V} . \quad (2.12)$$

L'efficacité de tension η_V d'un électrolyseur est calculée en divisant cette tension théorique par la tension développée par une cellule $V_{cellule}$ [11] :

$$\eta_V = \frac{1.482 \text{ V}}{V_{cellule}} . \quad (2.13)$$

L'efficacité de courant tient compte du courant qui traverse l'électrolyte, d'une électrode à l'autre, sans participer à la réaction électrochimique. Ce courant fuyant devient important si l'électrolyte est un bon conducteur électrique et cela réduit l'efficacité de la cellule. L'efficacité de courant η_I est calculée en divisant le nombre de moles d'hydrogène produit \dot{N}_{H_2} par le nombre de moles théorique qui serait obtenu si tous les électrons envoyés à la cellule, représentés par le courant $I_{cellule}$, contribuaient à la production d'hydrogène [11]:

$$\eta_I = 2F \frac{\dot{N}_{H_2}}{I_{cellule}} . \quad (2.14)$$

Enfin, l'efficacité électrique globale de la cellule est le produit des efficacités de tension et de courant :

$$\eta_{HHV} = \eta_v \cdot \eta_I = 285 \text{ kJ/mol} \frac{\dot{N}_{H_2}}{V_{cellule} \cdot I_{cellule}} \quad (2.15)$$

Les efficacités d'électrolyseurs alcalins de différentes compagnies sont indiquées dans le Tableau 2.2.

Tableau 2.2 : Efficacité des électrolyseurs alcalins

Projet de recherche Puissance, Fabricant	Pression (atm)	Température (°C)	η_{HHV} (%)	η_v (%)	η_I (%)
HySolar [5, 8]					
10 kW DLR/Metkon	5	40-90	84-92	--	--
350 kW KFA Jülich	5	60-65	68	72	95
Neuburg worm Wald [12]					
100 kW	Normale	--	78	--	--
111 Kw	2.5	--	78	--	--
100 kW	32	135 *	78	--	--
PHOEBUS [13-14]					
26 kW KFA Jülich	--	60	88	--	--
Saphys [15-16]					
5 kW Metkon-Alyzer	20	80	77.4	83.8	89.6
Schatz Solar H ₂ Project [11]					
6 kW Teledyne Brown Eng.	7.9	--	76.7	83.9	94.2
Electrolyser Corp. (Stuart) [3]	Normale	70	80	--	--
Lurgi [3]	30	90	79	--	--
Norsk Hydro [3]	Normale	80	87	--	--
Hydrogen Systems NV [3]	10	100 *	91	--	--

* À pression élevée, l'eau demeure liquide au delà de 100 °C.

Plusieurs électrolyseurs ont fonctionné très bien en régime variable (alimentés par des panneaux solaires) [11, 14]. Par contre, une défaillance est rapportée par le groupe HySolar [4, 5] en de telles conditions mais elle a pu être corrigée. Une diminution de l'efficacité d'un électrolyseur (de 89 % à 83.6 %) est rapportée par [17], suite à une longue période où celui-ci est demeuré inactif.

2.4 Expérimentation

2.4.1 L'électrolyseur alcalin de Stuart Energy

L'expérimentation se fait à partir d'un prototype d'électrolyseur alcalin de la compagnie Stuart Energy, montré à la Figure 2.2. Cet électrolyseur produit jusqu'à 4 m³ standard d'hydrogène par heure qu'il comprime à 10 atm. La puissance électrique maximale consommée est 22 kW. Au moment où l'électrolyseur a été fabriqué, la compagnie s'appelait Electrolyser.

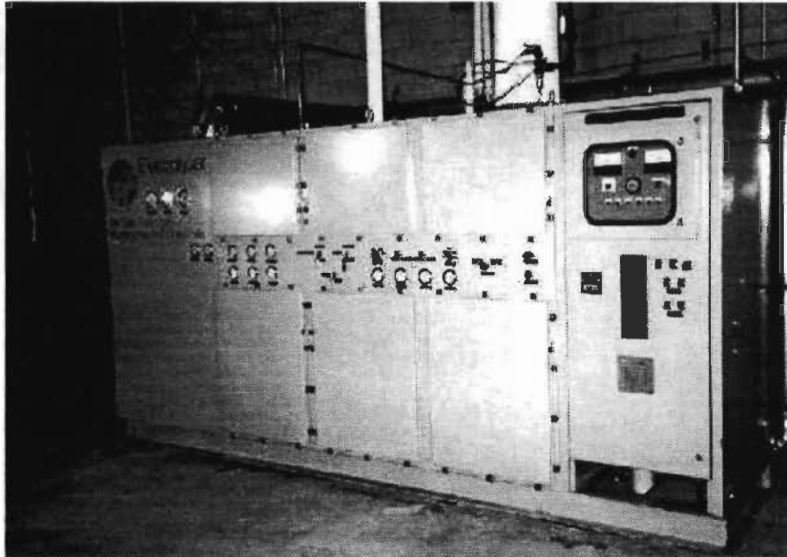


Figure 2.2 : L'électrolyseur de Stuart Energy

L'appareil inclut, en plus des cellules d'électrolyse, l'ensemble des équipements nécessaires à la régulation, au contrôle thermique, à la sécurité, à la purification de l'hydrogène et à sa compression. Un schéma de l'électrolyseur est présenté à la Figure 2.3 (ce schéma n'inclut pas le système de refroidissement à eau).

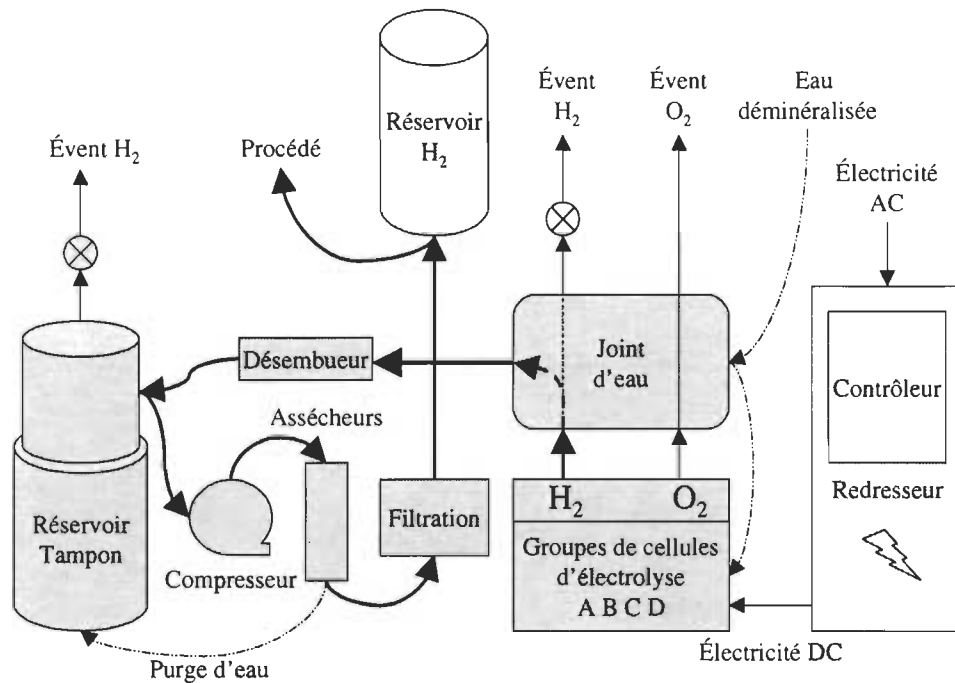


Figure 2.3 : Équipements de l'électrolyseur

Quatre groupes (ou empilements) de cellules d'électrolyse sont à la base de ce système. On identifie ces groupes par les lettres A à D. Les groupes A et D comprennent chacun 26 cellules d'électrolyse et les groupes B et C en contiennent 30. Deux modes de connexion des groupes de cellules sont possibles; ils sont représentés à la Figure 2.4. La configuration (a) utilise les 4 groupes de cellules et permet de produire jusqu'à 4 m³ d'H₂ par heure tandis que la configuration (b) utilise seulement le groupe de cellules A et permet de produire seulement ~1 m³ d'H₂ par heure.

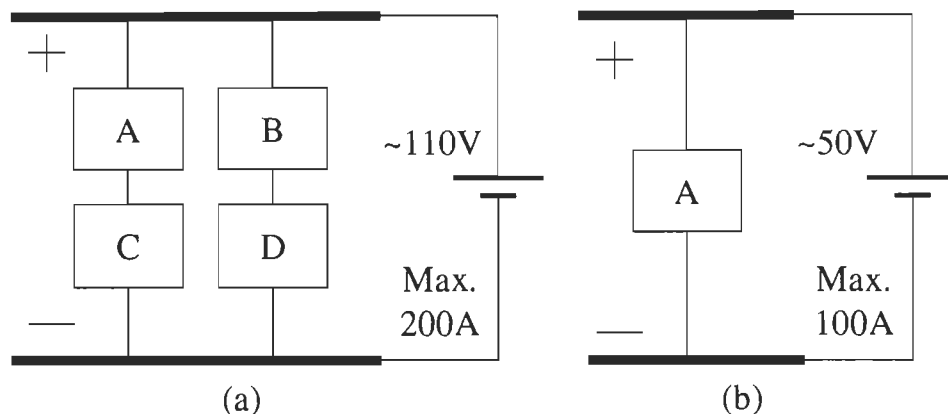


Figure 2.4 : Connexion électrique des groupes de cellules

Une puissance électrique maximale de 22 kW en courant continu est fournie aux cellules par un redresseur de courant alimenté par le réseau (entrée : de 600 V triphasé et sortie : 120 VDC, 220 A). Les groupes de cellules sont isolés de la masse pour réduire les fuites de courant.

Lorsque les cellules sont alimentées en électricité, des bulles d'hydrogène se forment à la surface de la cathode et des bulles d'oxygène se forment à l'anode. Une membrane poreuse empêche l'hydrogène et l'oxygène de se mélanger dans les cellules. Ces gaz sont conduits dans des espaces distincts du joint d'eau, qui sert entre autres à maintenir une pression égale à la sortie des quatre groupes de cellules, ce qui améliore les performances énergétiques et la pureté des gaz produits (d'après le guide d'utilisation fourni par la compagnie Stuart). Le joint d'eau sert aussi à empêcher un reflux d'hydrogène du réservoir tampon vers les cellules.

Après le passage du joint d'eau, l'oxygène est envoyé à l'évent mais l'hydrogène est stocké après plusieurs autres étapes. Tout d'abord l'hydrogène traverse un désembueur qui retire les gouttelettes d'eau en suspension, qui sont chargées d'électrolyte KOH. L'eau et son soluté

sont retournés aux cellules tandis que l'hydrogène est stocké temporairement dans le réservoir tampon, attendant d'être compressé.

Le réservoir tampon peut recevoir un volume variable d'hydrogène allant jusqu'à 1 m^3 mais sa pression interne demeure constante à ~ 7.5 pouces d'eau (103.2 kPa). Cette pression est nécessaire pour pousser l'hydrogène vers le compresseur. Le réservoir tampon comporte deux sections cylindriques emboîtées l'une dans l'autre, comme le montre la Figure 2.5. La section basse est remplie d'eau déminéralisée. Une poche d'hydrogène enfermée entre l'eau et les parois de la section supérieure du réservoir prend de l'expansion à mesure que l'hydrogène y parvient et que la section supérieure du réservoir s'élève. Le compresseur démarre lorsque le réservoir tampon est étiré à son maximum et il s'arrête lorsqu'il ne contient presque plus d'hydrogène. Les niveaux limites sont détectés par des senseurs mécaniques.

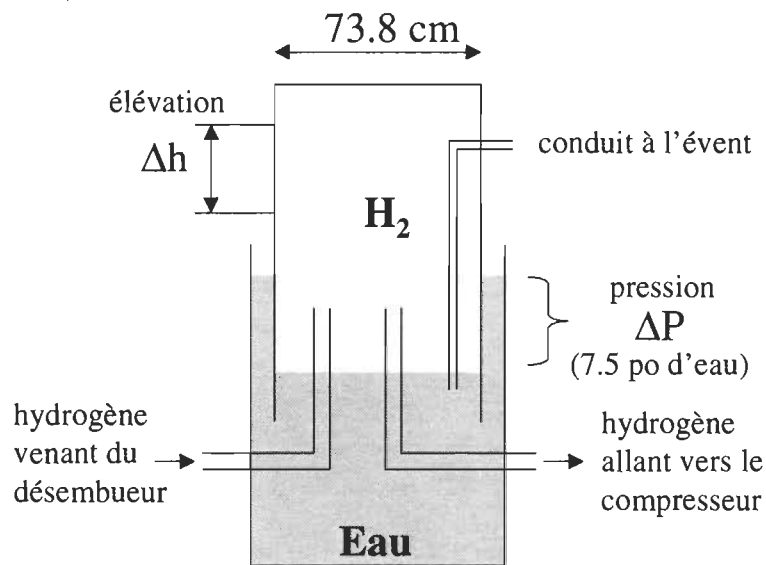


Figure 2.5 : Le réservoir tampon

Le compresseur situé à la sortie du réservoir tampon comprime successivement l'hydrogène en deux étapes correspondant aux pressions de 1.4 atm et 10 atm. Il fonctionne de façon intermittente, comprime à débit fixe et consomme approximativement 3 kW lorsqu'il est en marche.

Après la compression, l'hydrogène passe à travers une série de filtres destinés à éliminer les impuretés qu'il contient. Un filtre coalescent retire d'abord les gouttelettes d'eau et d'huile (venant du compresseur). Ensuite, un filtre catalytique combine l'hydrogène avec l'oxygène qu'il contient pour former de l'eau, éliminant ainsi l'oxygène gazeux. L'hydrogène est ensuite refroidi par la masse froide (< 40°C) du joint d'eau, puis séché par un assécheur comprenant deux colonnes qui sont utilisées alternativement. Les colonnes de séchage réduisent l'humidité transportée par le gaz à moins de 1 ppm d'eau. Lorsque l'une des colonnes est saturée d'eau, cette dernière est purgée : l'eau est expulsée par de l'hydrogène pressurisé à 10 atm provenant de l'autre colonne. L'hydrogène et l'eau évacués par cette purge sont retournés au réservoir tampon.

Enfin, l'hydrogène est emmagasiné dans un réservoir situé à l'extérieur de la bâtisse. Le réservoir extérieur fabriqué par *East Fabricators* a un volume interne de 3.8 m³; il peut donc recevoir 38 m³ standards (1700 moles) d'hydrogène comprimé à 10 atm. L'hydrogène stocké peut être utilisé par la pile à combustible.

La sécurité est un aspect très important dans l'exploitation d'un gaz inflammable, surtout si celui-ci est emmagasiné à haute pression. Aucun détecteur de fuite d'hydrogène n'est installé dans l'électrolyseur. Par contre, l'intérieur de l'électrolyseur est ventilé en permanence, de sorte que, si une fuite d'hydrogène s'y produit, l'hydrogène est rapidement dilué et évacué à l'extérieur de la bâtisse. Des détecteurs d'hydrogène situés au plafond du laboratoire déclenchent l'ouverture de trappes d'évacuation et interrompent l'alimentation en électricité du laboratoire et de l'électrolyseur dès que 2 % d'hydrogène sont détectés (le seuil d'inflammabilité est de 4 %).

2.4.2 Contrôle

Le contrôleur automatique de l'électrolyseur gère le niveau de l'eau dans le joint d'eau et de l'électrolyte dans les cellules. De l'eau est ajoutée dans les cellules pour compenser celle qui est consommée par l'électrolyse. Le contrôleur gère aussi le départ et l'arrêt du compresseur et veille au bon fonctionnement de l'électrolyseur en arrêtant le système lorsqu'une avarie est détectée.

L'électrolyseur est doté d'un système de refroidissement à eau. Il utilise l'eau de l'aqueduc pour refroidir le compresseur, le redresseur de courant, le joint d'eau et les groupes de cellules. Les valves manuelles contrôlant chaque débit sont situées en fin de parcours, juste en amont d'un débitmètre à bille qui indique le débit total. Les flux d'eau de refroidissement nécessaires varient selon la saison en raison de la température de l'eau de l'aqueduc. En hiver, la température de l'eau descend jusqu'à 2.5 °C tandis qu'en été, elle atteint parfois 15 °C. Les débits de refroidissement hivernaux, indiqués au Tableau 2.3, sont ajustés pour permettre le fonctionnement de l'électrolyseur en régime permanent à la puissance maximale. En été, il faut augmenter les débits de refroidissement des groupes de cellules jusqu'au double des valeurs indiquées.

Tableau 2.3 : Débits de refroidissement

Endroit	Débit (Hiver)
Groupe de cellule A	.1 galUS/min
Groupe de cellule B	.25
Groupe de cellule C	.25
Groupe de cellule D	.1
Redresseur	.6
Compresseur	.2 à .5
Joint d'eau	.3
<i>Au total</i>	~ 2.0

Le prototype ne peut pas être utilisé sans l'intervention régulière d'un opérateur. L'opérateur fixe le courant total envoyé aux cellules. Le redresseur maintient le courant à la valeur demandée en ajustant au besoin la tension. Étant donné que la masse des groupes de cellules est grande, les changements de température se font lentement. Il faut environ 90 min pour que les cellules aient atteint 70 °C sans refroidissement (c'est la température optimale de fonctionnement prévue par le manufacturier; la température des cellules doit être maintenue en dessous de 100 °C pour éviter l'ébullition de l'eau). Par la suite, le refroidissement doit être ajusté judicieusement pour assurer une température stable et uniforme entre les quatre groupes de cellules. En somme, le démarrage de l'électrolyseur et la stabilisation de la température nécessitent plus de 2 heures de vigilance. De plus, le contrôle de la température à débit fixe est incertain car les variations de pression et de température de l'eau de refroidissement rendent instable le contrôle thermique.

2.4.3 Mesures

2.4.3.1 Courant et tension des cellules

Nous avons mesuré avec un multimètre la tension aux bornes de la résistance de shunt (~ 0.1 m Ω) qui est en série avec les cellules. Cette tension, reconvertie en courant, diffère d'une vingtaine d'ampères de la valeur affichée par un cadran analogique. Nous soupçonnons un mauvais calibrage du cadran. La tension de l'ensemble des cellules se mesure directement avec un multimètre.

2.4.3.2 Pressions et températures

Plusieurs cadrans indicateurs rapportent la pression et la température en divers endroits de l'électrolyseur. La plupart de ces lectures servent à la régulation et au diagnostic (lorsqu'une panne survient). Il en est de même pour les jauges de niveau d'eau dans les groupes de cellules,

dans le joint d'eau et dans le joint d'étanchéité du réservoir tampon. Les mesures de température et de pression, dans les conditions normales d'opération, sont indiquées dans le Tableau 2.4.

Tableau 2.4 : Températures et pressions dans l'électrolyseur

Type de mesure	Lieu	Valeur
Pression	H ₂ à la sortie des cellules	7 à 11 pouces d'eau
	O ₂ à la sortie des cellules	8 à 12 pouces d'eau
	Entrée du désembueur	< 10 pouces d'eau
	Assécheur : sortie de la colonne 1	10 atm
	Assécheur : sortie de la colonne 2	10 atm
	Sortie de l'assécheur	10 atm
	Réservoir extérieur	≤ 10 atm
	Sortie de procédé	3.3 atm (35 psig)
	Compresseur : sortie du 1e étage	35 psi (2.3 atm)
Compresseur : sortie du 2e étage	10 atm	
Température	Groupes de Cellules A à D	< 75 °C
	Entrée du purificateur catalytique	~ 50 °C
	Sortie du purificateur catalytique	~ 70 °C
	Entrée de l'assécheur	~ 40 °C
	Compresseur : 1e étage	< 140 °C
	Compresseur : entre les étages	< 60 °C
Compresseur : 2e étage	< 100 °C	

2.4.3.3 Pureté de l'hydrogène

Il est primordial de vérifier régulièrement la qualité de la séparation des produits de la réaction pour éviter un risque d'explosion à l'intérieur des canalisations de l'électrolyseur. En effet, il suffit de seulement 4 % d'hydrogène dans l'oxygène ou 5 % d'oxygène dans l'hydrogène pour que le mélange soit inflammable. Par ailleurs, le mélange devient détonnant (explosif) à partir de 15 % d'hydrogène dans l'oxygène ou 10 % d'oxygène dans l'hydrogène. Notre mesure de pureté met donc l'accent sur la détection de l'oxygène dans l'hydrogène et l'inverse.

Pour mesurer la pureté de l'hydrogène échantillonné à la sortie des cellules de l'électrolyseur, nous avons utilisé un montage schématisé à la Figure 2.6. Il fait réagir l'oxygène avec l'hydrogène en présence d'un catalyseur pour produire de l'eau. En mesurant le volume de

gaz perdu au cours du processus, nous pouvons déterminer la quantité d'oxygène. L'usage de cet appareil implique plusieurs manipulations décrites dans le paragraphe suivant.

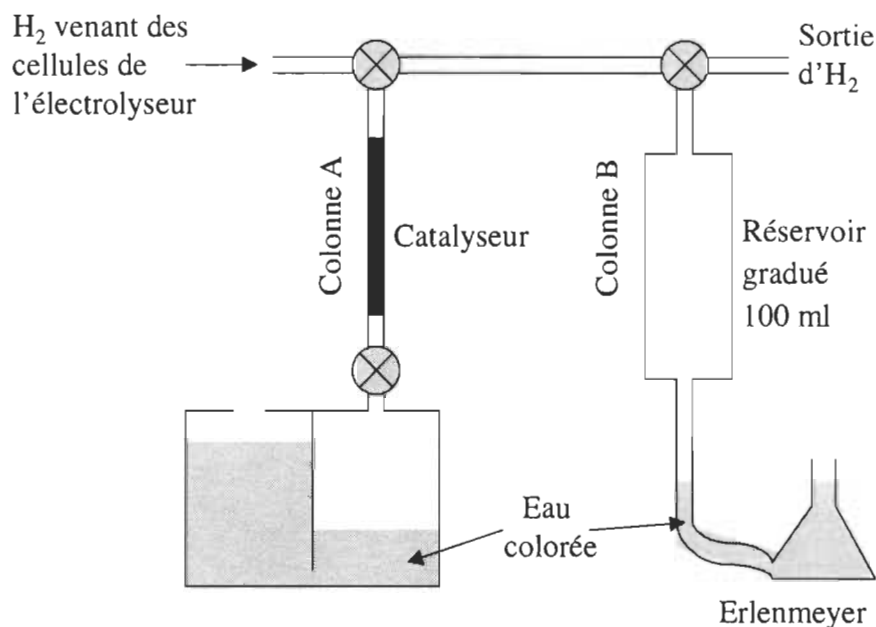


Figure 2.6 : Appareil de mesure de la pureté

L'appareil, de fabrication artisanale, consiste en deux colonnes qui, au départ de la manipulation, sont remplies d'eau. On fait entrer l'hydrogène dans le réservoir gradué de la colonne B. En pénétrant dans ce réservoir, l'hydrogène expulse l'eau vers un erlenmeyer. On mesure la quantité d'hydrogène ainsi stockée dans la colonne B, soit environ 100 ml. Ensuite, on expulse l'hydrogène de la colonne B vers le réservoir en bas de la colonne A en faisant revenir l'eau dans la colonne B (l'eau remonte dans la colonne B par gravité lorsqu'on élève l'erlenmeyer). L'hydrogène traverse alors un catalyseur qui fait réagir les traces d'oxygène et l'hydrogène pour former de l'eau. On fait ensuite parcourir au gaz le trajet inverse (de A à B) puis on mesure de nouveau la quantité de gaz. La différence des deux volumes correspond au volume des réactifs qui ont formé l'eau au contact du catalyseur. L'eau a un volume très minime (18 ml/mol) par rapport à l'hydrogène et l'oxygène gazeux (36600 ml/mol d'eau produite). La

différence de volume gazeux nous permet de calculer le taux d'oxygène qui était dans le gaz avant qu'il n'ait traversé le catalyseur. La réaction consomme deux parts d'hydrogène pour une part d'oxygène de sorte que si, sur 100 ml de gaz, on mesure une différence de 1 ml après le passage au travers du catalyseur, on en déduit que le gaz contenait 0.33 ml d'oxygène, soit 0.33%.

L'hydrogène produit, compressé et purifié par notre électrolyseur, a aussi été analysé par un laboratoire spécialisé avec la méthode de GC/MS : Gas Chromatography/Mass Spectrometry. Cette méthode permet d'identifier des contaminants présents en faible quantité.

2.4.3.4 Débit d'hydrogène produit

Le débit d'hydrogène produit est déduit à partir de l'augmentation de volume du réservoir tampon qui s'étire à mesure qu'il s'emplit d'hydrogène. Cette mesure ne peut pas être réalisée si nous utilisons le système de compression, car de l'hydrogène est retourné au réservoir tampon par les purges du système de séchage, faussant alors le calcul. Afin d'éviter le départ automatique du compresseur lorsque le niveau du réservoir est trop élevé, nous vidons le réservoir tampon à l'évent, puis nous sommes prêt à faire une nouvelle mesure du taux de production. Nous mesurons le temps nécessaire pour que le sommet du réservoir se déplace d'une hauteur Δh grâce à l'hydrogène produit en continu par les cellules. Le volume de la section cylindrique correspondant à cette longueur a été calculé.

Le diamètre interne du réservoir tampon est évalué à 0.7383 m. Le volume interne (τ) est donc de :

$$\tau = \pi r^2 \Delta h = 3.1416 \left(\frac{0.7383 \text{ m}}{2} \right)^2 \Delta h = 0.4281 \text{ m}^2 \Delta h . \quad (2.16)$$

La pression mesurée dans le joint du réservoir tampon est approximativement de 7.5 pouces d'eau, soit 103.2 kPa. La température y est normalement autour de 30 °C, soit 303 K. Le volume standardisé (à 1 atm et 273 K) et le nombre de moles d'hydrogène sont alors calculés :

$$\tau^{\circ} = 0.4281 \text{ m}^2 \left(\frac{273 \text{ K}}{303 \text{ K}} \right) \left(\frac{104.7 \text{ kPa}}{101.3 \text{ kPa}} \right) \Delta h = 0.3987 \text{ m}^2 \Delta h \quad (2.17)$$

$$N_{H_2} = 0.3987 \text{ m}^2 \left(\frac{1 \text{ mol}}{0.0224 \text{ m}^3} \right) \Delta h = 17.80 \text{ mol/m} \Delta h \quad (2.18)$$

Ainsi, une élévation de $\Delta h = 25 \text{ cm}$ du réservoir équivaut à un volume $\tau^{\circ} = 0.0997 \text{ m}^3$ et une quantité d'hydrogène $N_{H_2} = 4.45 \text{ mol}$.

2.5 Résultats des mesures

2.5.1 Pureté de l'hydrogène

Le Tableau 2.5 présente les mesures de l'efficacité des cellules et du taux d'oxygène dans l'hydrogène produit par chacune, avant la compression et la filtration. Ces mesures ont été réalisées à l'IRH par Alain Tessier, professionnel de recherche. Le montage décrit en 2.4.3.3 a été utilisé pour mesurer la pureté.

Tableau 2.5 : Pureté et efficacité des groupes de cellules

Groupe de cellules	Temp. °C	Courant A	Puissance kW	Production m ³ /h	Efficacité %	Pureté de l'H ₂ % d'O ₂
A	71	93.5	4.66	0.923	70	0.16
A	53	22.5	1.04	--	--	0.33
B	66	93.5	5.56	1.058	67	0.10
B	62	27.5	1.44	0.248	61	0.30
C	65	93	5.51	1.037	67	0.30
C	64	27.5	1.42	0.234	58	0.28
D	69	92.5	4.68	0.925	70	0.11
D	59	27	1.26	0.197	55	0.24

Le taux d'oxygène est nettement inférieur à la valeur critique d'inflammabilité de 5 %. Les produits de la réaction sont mieux séparés lorsque les cellules fonctionnent à pleine puissance (~ 93 A). L'hydrogène contient alors ~ 0.17 % d'oxygène plutôt que ~ 0.29 %, au quart de cette puissance (~ 27 A).

Nous avons effectué sept autres mesures de la pureté de l'hydrogène et de l'oxygène produit par l'ensemble des quatre groupes de cellules avec un courant de 200 A. Elles ont donné en moyenne 0.14 % d'O₂ dans l'H₂ et 0.5 % d'H₂ dans l'O₂. Les gaz produits par l'électrolyseur HySolar de 350 kW ont des puretés comparables [8] : de 0.1 à 0.3 % d'O₂ dans l'H₂ et 0.8 % d'H₂ dans l'O₂.

L'hydrogène puisé à la sortie du procédé a aussi été analysé. Malgré la compression et la purification, il contient des impuretés qui ont été détectées par chromatographie et spectrométrie GC/MS. Leur quantité est indiquée au Tableau 2.6.

Tableau 2.6 : Impuretés de l'hydrogène après filtrage

Substance	Quantité
Oxygène	15 ppm
Eau	10 ppm
Hydrocarbures	<1 ppm
Azote	Traces
Argon	Traces

Les principaux contaminants présents sont l'oxygène et l'eau. L'oxygène (15 ppm), provient d'une séparation imparfaite des produits de l'électrolyse ; l'eau (10 ppm) a été transportée sous forme de vapeur mélangée à l'hydrogène. Les traces d'argon et d'azote détectées indiquent que de l'air (seule source possible de ces gaz) s'est infiltré dans le système. Les hydrocarbures (< 1 ppm) proviennent du compresseur. Les impuretés identifiées totalisent moins de 30 ppm, d'où l'on peut calculer que l'hydrogène stocké est pur à 99.997 %. Cette pureté est suffisante pour la pile à combustible qui requiert de l'hydrogène pur à au moins 99.95 % (selon le manuel d'utilisation).

2.5.2 Efficacité des cellules

Nous avons étudié l'efficacité des cellules en fonction du courant et en fonction de la température. L'efficacité est déduite des mesures de la puissance électrique envoyée aux cellules (tension et courant) et du débit d'hydrogène produit (calculé d'après la vitesse de remplissage du réservoir tampon).

Nous avons réalisé une série de mesures de l'efficacité de l'ensemble des quatre groupes de cellules en fonction du courant. Cette configuration à quatre cellules ne permet pas un contrôle rigoureux de la température ; cependant, le débit d'hydrogène produit est alors assez élevé pour être mesuré dans un temps raisonnable (moins de 10 minutes par mesure). Les fluctuations de la température des groupes de cellules A à D au cours de ces mesures, qui ont duré 7 heures, sont représentées dans le graphique de la Figure 2.7 : la température se maintient entre 50 et 70 °C.

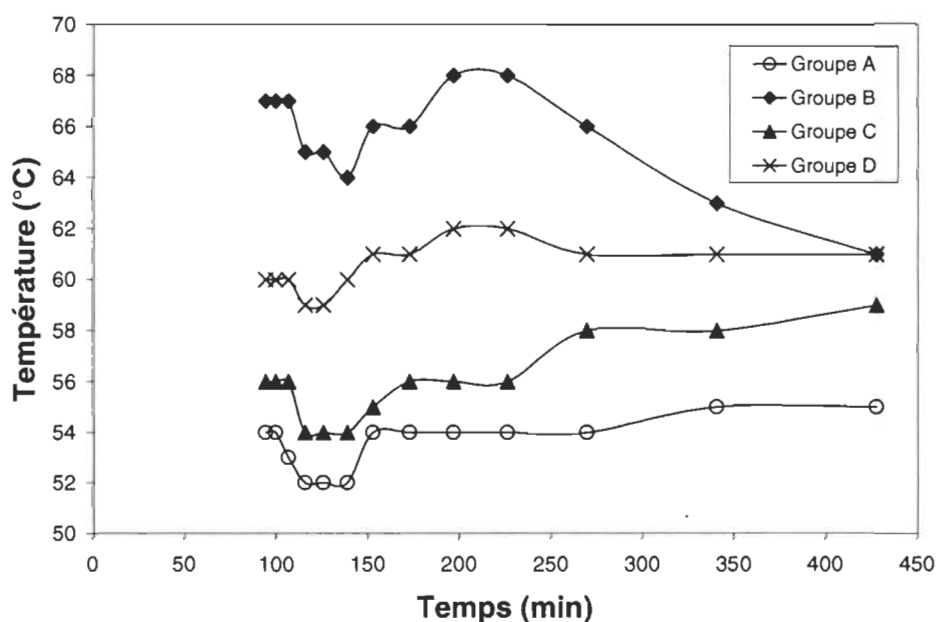


Figure 2.7 : Température des groupes de cellules A à D lors des mesures.

Les trois efficacités η_v , η_I et η_{HHV} sont tracées dans la Figure 2.8 en fonction du courant. La tension nécessaire pour obtenir un courant donné augmente avec la valeur de ce courant à cause de la résistance ohmique des cellules. C'est pourquoi l'efficacité de tension décroît de 87 % à 75 % à mesure que le courant augmente. Par ailleurs, l'efficacité de courant est basse lorsque le courant total est faible (73 %). Cela indique une fuite de courant à travers l'électrolyte qui peut être due à la conductivité de l'eau : celle-ci est augmentée en présence du KOH. L'efficacité de courant se stabilise lorsque la fuite de courant devient négligeable par rapport à l'électrolyse, pour atteindre un maximum de 90 %. L'efficacité des cellules η_{HHV} passe par un maximum de ~ 68 % à 100 A. L'électrolyseur alcalin de 350 kW du groupe HySolar [8] a une efficacité moyenne comparable (68 %) lorsqu'il opère en des conditions semblables mais à 5 atm (voir tableau 2.2). Son efficacité de tension est de ~ 72 % et son efficacité de courant est de ~ 95 %.

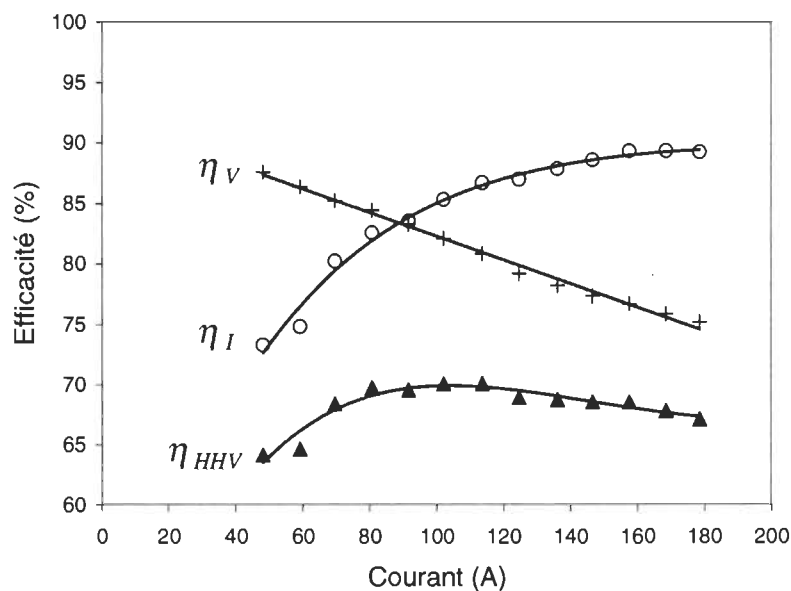


Figure 2.8 : Efficacité des cellules de l'électrolyseur en fonction du courant

La Figure 2.9 montre la courbe de polarisation de l'électrolyseur, elle représente les mesures de tension et courant qui ont servi au calcul de l'efficacité.

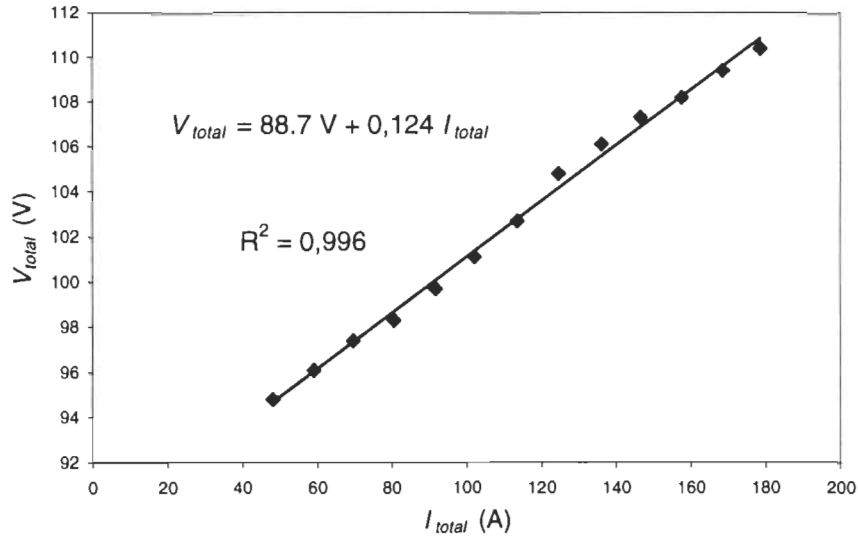


Figure 2.9 : Courbe de polarisation de l'électrolyseur

Celle-ci est adéquatement représentée par une droite croissante. Nous n'avons pas observé la courbure logarithmique due à la surtension d'activation : celle-ci survient à des courants plus faibles qu'à la plage étudiée. L'équation de régression (inscrite dans la Figure 2.9) se ramène au comportement d'une seule cellule, correspondant à l'équation empirique 2.15 tronquée du terme logarithmique :

$$V_{cellule} = P_1(T) + P_2(T) \cdot I_{cellule} \quad (2.19)$$

où
$$P_1(60^\circ\text{C}) = \frac{88.7V}{56 \text{ cellules}} = 1.58 V \quad (2.20)$$

et
$$P_2(60^\circ\text{C}) = \frac{0.124 \Omega}{56 \text{ cellules}} \cdot 2 \text{ embranchements} = 0.00221 \Omega \quad (2.21)$$

La tension moyenne d'une cellule de notre électrolyseur $V_{cellule} = V_{total} / \{56 \text{ cellules}\}$ s'accroît linéairement de 1.69 à 1.97 V, sur l'étendue de courant entre 45 à 180 A. La compagnie Stuart ne nous a pas donné l'information sur la surface des électrodes (secret industriel). Cela nous empêche malheureusement de calculer la densité de courant (en mA/cm²) et rend qualitative la comparaison de la courbe de polarisation de notre électrolyseur avec les résultats d'autres études (comme ceux présentés à la Figure 2.1).

La puissance électrique inclut un terme quadratique du courant :

$$P_{total} = V_{total} \cdot I_{total} = 88.7 \cdot I_{total} + 0.124 \cdot I_{total}^2 \quad (2.22)$$

Dans le contexte d'une modélisation simple du système d'énergies renouvelables, il peut s'avérer utile de connaître la quantité d'hydrogène produit en fonction de la puissance électrique envoyée aux cellules. Cette dépendance est représentée à la Figure 2.10. La pente du graphique, égale à 0.193 m³/kWh, nous permet de déduire une efficacité moyenne η_{HHV} de 68.6 %.

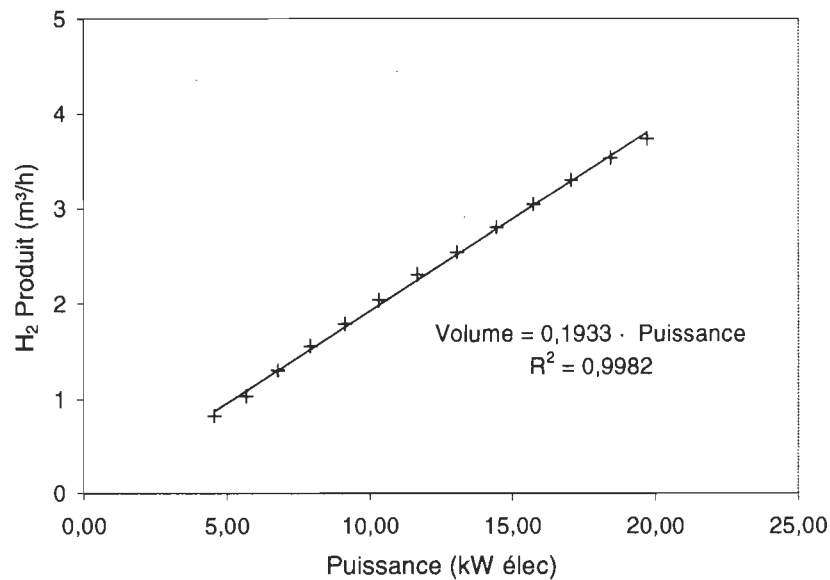


Figure 2.10 : Volume d'hydrogène produit en fonction de la puissance

Dans une ronde de mesures faites avec seulement la cellule A, nous avons fixé le courant à 100 A et laissé la température augmenter jusqu'à 70 °C sans refroidir les cellules. La Figure 2.11 montre l'évolution de la température et de la tension durant cet essai : la tension n'a cessé de diminuer à mesure que la température augmentait.

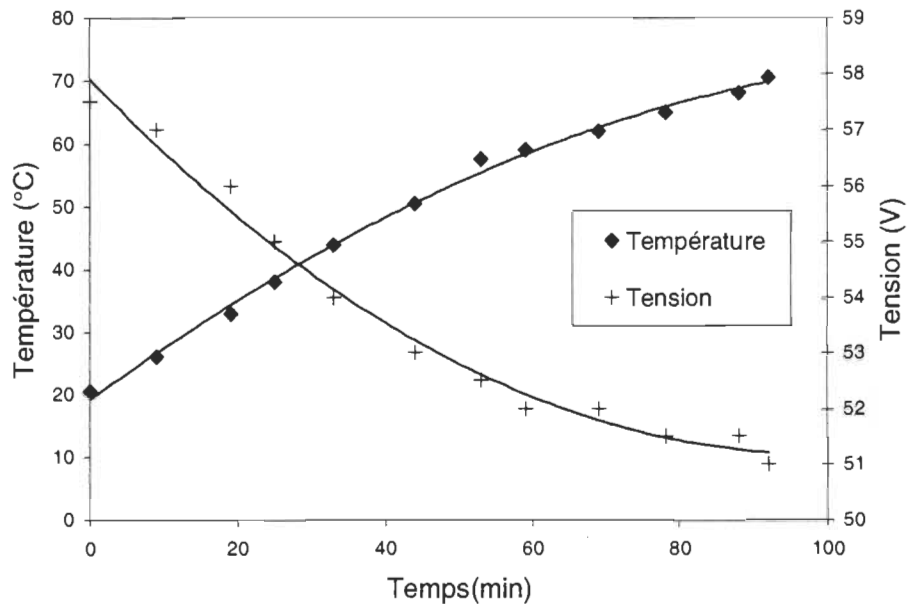


Figure 2.11 : Évolution de la température et de la tension en fonction du temps

D'après la Figure 2.12, l'efficacité de tension augmente de façon linéaire avec la température (de 73 % pour 20 °C à 84 % pour 70 °C). Par ailleurs, l'efficacité de courant est constante à 90 %. L'efficacité globale du groupe de cellules A évolue linéairement de 65 à 75 % sur cette plage de température.

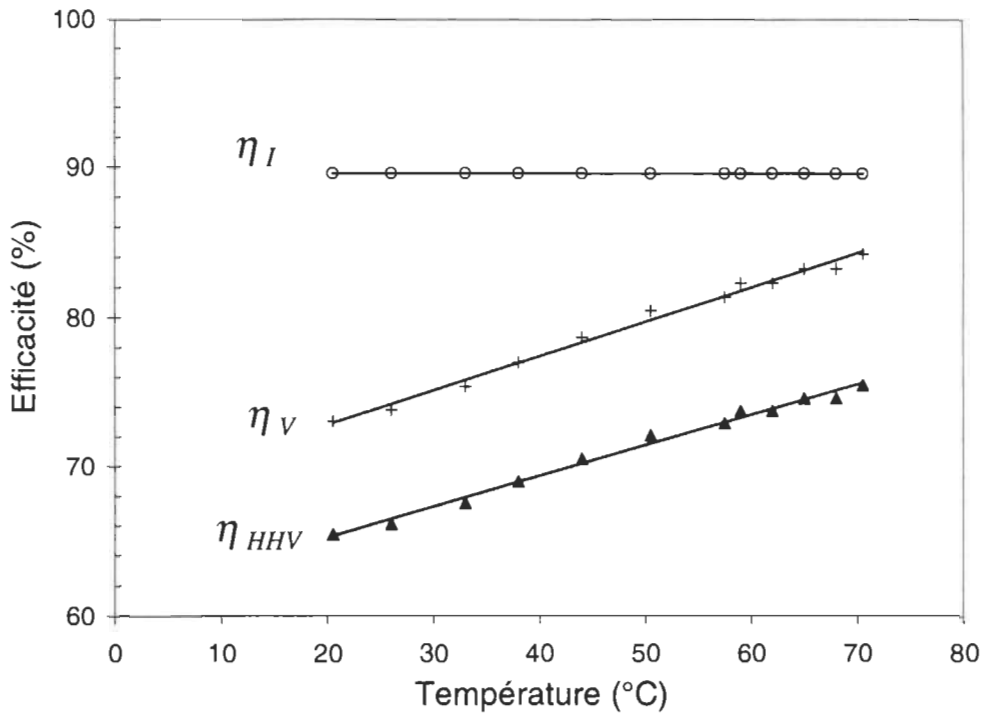


Figure 2.12 : Efficacité en fonction de la température

2.5.3 Efficacité globale

La détermination de l'efficacité globale de l'électrolyseur nécessite de connaître toute l'énergie fournie à ce dernier. Ainsi, l'électricité nécessaire au contrôleur et au compresseur doit être prise en compte. Cette mesure est réalisée par élimination des puissances connues. Ainsi, lorsqu'on applique un courant de 180 A aux quatre groupes de cellules, la tension aux bornes de l'ensemble est de 113 V. La puissance électrique est donc de 20.4 kW. Par ailleurs, sous ces conditions, l'électrolyseur produit 3.72 m³/h d'hydrogène, ce qui correspond à un taux de stockage d'énergie de 13.1 kW (calculé d'après l'énergie d'enthalpie *HHV*).

Pendant ce temps, le compresseur est alternativement en fonction et arrêté. Pendant qu'il fonctionne, soit près de 70 % du temps, la puissance totale consommée par l'électrolyseur, incluant le compresseur et le contrôleur, mesurée sur sa ligne d'alimentation triphasée, est de

27.9 kW. Pendant les 30 % du temps où il est arrêté, l'électrolyseur consomme au total 24.9 kW. Ainsi, la puissance consommée en permanence par le contrôleur est de 4.5 kW (perdue en grande partie dans le redresseur) et la puissance consommée ponctuellement par le compresseur est de 3 kW. La pondération des deux régimes avec et sans compression donne une consommation moyenne de :

$$70 \% \cdot 27.9 \text{ kW} + 30 \% \cdot 24.9 \text{ kW} = 27 \text{ kW}, \quad (2.23)$$

soit une efficacité moyenne de :

$$\eta_{\text{complet}} = 13.1 \text{ kW} / 27 \text{ kW} \cdot 100 \% = 49 \%. \quad (2.24)$$

D'autres formes d'énergie sont discrètement fournies à l'électrolyseur. Notons particulièrement la pression de l'eau de refroidissement de ~ 5.3 atm, fournie par les pompes de la municipalité. Celle-ci n'a pas été comptabilisée mais correspond à un travail de 68 W (perte de 0.5 %) en considérant le débit demandé d'environ 0.13 L/s (1/2 m³/h). Une gestion plus efficace du refroidissement réduirait cette perte d'efficacité mais permettrait surtout de réduire le gaspillage d'eau potable. Un système de refroidissement à air (ventilation) ou un circuit de refroidissement à eau, monté en série plutôt qu'en parallèle, seraient avantageux.

2.5 Conclusion

Les électrolyseurs alcalins utilisent une technologie assez ancienne et bien maîtrisée. Ils sont adaptés à de petits systèmes comme une application résidentielle à cause, notamment, de leur basse température d'opération, généralement inférieure à 100 °C. Par contre, les électrolyseurs qui utilisent de la vapeur (à plus haute température) sont plus efficaces.

L'électrolyseur prototype de Stuart Energy que nous avons testé produit de l'hydrogène d'une pureté de 99.7 % (si nous considérons l'oxygène comme le seul contaminant), mesurée directement à la sortie de ses cellules. La pureté est légèrement plus élevée à haute puissance. Après filtrage, l'hydrogène a atteint une pureté de 99.997 % et les principales impuretés sont de l'oxygène provenant de l'électrolyse (15 ppm) et de la vapeur d'eau transportée par le gaz (10 ppm).

L'efficacité des cellules a été mesurée en fonction du courant sur l'ensemble des groupes de cellules A, B, C et D, tandis que seulement le groupe de cellules A a été utilisé pour les mesures en fonction de la température. L'efficacité de courant (ou *efficacité de Faraday*) des cellules, calculée en comparant le courant fourni au volume d'hydrogène produit, n'est pas influencée par la température. Elle est de 90 % à haute puissance mais diminue jusqu'à 72 % au quart de la puissance nominale, à cause d'un courant parasite à travers l'électrolyte.

Nous pouvons représenter la courbe de polarisation moyenne ($V_{cellule}$ vs $I_{cellule}$) d'une cellule notre électrolyseur à 60 °C par une droite d'ordonnée à l'origine 1.69 V/cellule et de pente 0.00221 Ω /cellule. Il n'a pas été possible de comparer quantitativement cette performance à celles d'autres électrolyseurs à cause d'une donnée manquante (aire des électrodes).

L'efficacité de tension diminue de 87 % à 75 % entre 40 et 180 A. Par contre, elle passe de 73 % à 84 % entre 20 à 70 °C. L'efficacité électrique des cellules (le produit de l'efficacité de tension et de l'efficacité de courant) évolue entre 63 et 75 % en fonction de la température et du courant. C'est à mi-courant (50 A dans chaque cellule) et à haute température (70 °C) que les cellules atteignent leur meilleure efficacité. En tenant compte des pertes d'énergie occasionnées par la compression, le redresseur de courant et le contrôleur de l'appareil, nous obtenons un rendement global de l'électrolyseur de ~ 49 %. Ce rendement serait plus élevé si les cellules de l'électrolyseur produisaient l'hydrogène à la pression de stockage, comme le font plusieurs électrolyseurs alcalins.

En l'absence d'une méthode permettant de mesurer le débit d'hydrogène produit par les cellules directement, sans le délai imposé par le stockage temporaire dans le réservoir tampon, nous avons dû abandonner le 4^e objectif : l'étude de l'effet des courants transitoires sur l'électrolyseur. L'alimentation d'un électrolyseur par des sources intermittente ne semble pas poser de problème majeur [11, 14].

2.6 Références

- 1- – , *Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press, 1999.
- 2- – , «Elements – Geographical Distribution of»; *Encyclopaedia Britannica*, 1977.
- 3- B. Finnström, «Hydrogen – A Study of Efficiencies», dans International Energy Agency : *Program of research and Development on the Production of Hydrogen from Water , Annual Progress Report 1989* (p. A1-A51), STU, Stockholm , 1990.
- 4- H. Abaoud et H. Steeb; «The German-Saudi Hysolar Program», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1998, 23(6), 445.
- 5- G. Schiller, R. Henne, P. Mohr et V. Peinecke; «High Performance Electrodes for an Advanced Intermittently Operated 10-kW Alkaline Water Electrolyzer», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1998, 23(9), 761.
- 6- G. Milazzo, *Électrochimie*, Dunod, Paris, 1969.
- 7- W. Kreuter et H. Hofmann, «Electrolysis : The Important Energy Transformer in a World of Sustainable Energy», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1998, 23(8), 661.
- 8- H. Steeb et H. Abaoud, *HYSOLAR German-Saudi Joint Program on Solar Hydrogen Production and Utilization, Phase II, 1992-1995*, Stuttgart , 1996.
- 9- F.W. Sears et G.L. Salinger, *Thermodynamics, Kinetic Theory, and Statistical Thermodynamics* (3^e édition), Addison-Wesley, Reading (MA), 1975.
- 10- P.W. Atkins, *Physical Chemistry* (5^e édition), Freeman, New-York, 1994.
- 11- P.A. Lehman, C.E. Chamberlin, G.Pauletto and M.-A. Rocheleau, «Operating Experience with a Photovoltaic-Hydrogen Energy System», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1997, 22(5), 465.
- 12- A. Szyszka, «Ten Years of Solar Hydrogen Demonstration Project at Neunburg Vorm Wald, Germany», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1998, 23(10), 849.
- 13- G. Scheible et D. Hackstein, «System Engineering Aspects of Advanced Electrolysers in High Efficient Photovoltaic Hydrogen Systems», *Actes de Hydrogen Energy Progress XI*, tome 1, p. 703, 1996.

- 14- H. Barthels, W.A. Brocke, K. Bonhoff, H.G. Groehn, G. Heuts, M. Lennartz, H. Mai, J. Mergel, L. Schmid, P. Ritzenhoff, «PHOEBUS Jülich – An Autonomous Energy Supply System Comprising Photovoltaics, Electrolytic Hydrogen, Fuel Cell», *Actes de Hydrogen Energy Progress XI*, tome 2, p. 1005, 1996.
- 15- S. Galli, M. Stefanoni, K. Havre, P. Borg, W.A. Brocke et J. Mergel, «SAPHYS : a Joule II E.C. Project for Solar Hydrogen», *Actes de Hydrogen Energy Progress XI*, tome 1, p. 769, 1996.
- 16- S. Galli. «The Solar-Hydrogen SAPHYS Project : Operating Results», *Actes de Hydrogen Energy Progress XII*, tome 2, p. 887, 1998.
- 17- S. Galli et M. Setfanoni, «Development of a Solar Hydrogen Cycle in Italy», *Int. J. Hydrogen Energy*, 1997, 22(5), 435.

3. ÉTUDE DE LA PILE À COMBUSTIBLE

3.1 Introduction

Une pile à combustible (ou pile à hydrogène) transforme l'énergie chimique contenue dans la molécule d'hydrogène en électricité par oxydoréduction selon la réaction :



Son unique produit de réaction est de l'eau pure (H₂O) et ses pertes énergétiques se font sous forme de chaleur. Les piles à combustible, comme les électrolyseurs, transforment l'énergie sans passer par le cycle de Carnot [1]. Elles ont généralement une efficacité de 45 à 65%, qui est supérieure à celle d'un moteur à combustion interne (de 20 à 40 %) [1].

La pile à combustible n'est pas une technologie nouvelle. Le premier prototype de pile à combustible a été imaginé et construit en 1839 par un avocat anglais passionné d'électrochimie, William Grove [2]. Une des premières applications des piles à combustible a commencé avec le programme spatial américain. Ces piles à combustible alcalines (AFC), alimentées en hydrogène et en oxygène, fournissaient l'électricité aux modules Gemini et Apollo lancés dans l'espace dans les années 1960 [3, 4].

À cause de l'abondance et de la facilité d'utilisation de l'essence, les piles à combustible sont demeurées des technologies luxueuses et marginales jusqu'aux vingt dernières années. Une conscience nouvelle de la pollution et de l'épuisement des ressources pétrolières a hâté le développement de la technologie des piles à combustible. Les améliorations ont touché tous les aspects : la membrane, le catalyseur, l'efficacité, la densité de puissance. Il existe différentes

catégories de piles à combustible que l'on classifie par leur électrolyte [3] : les piles à combustible alcaline (AFC pour *Alkaline Fuel Cell*), à membrane polymère (PEMFC pour *Proton Exchange Membrane Fuel Cell*), à acide phosphorique (PAFC pour *Phosphoric Acid Fuel Cell*), au carbonate fondu (MCFC pour *Molten Carbonate Fuel Cell*) et à oxydes solides (SOFC pour *Solid Oxide Fuel Cell*). Les principales caractéristiques de ces piles sont données au Tableau 3.1 et leurs réactions chimiques respectives sont schématisées à la Figure 3.1.

Tableau 3.1 : Principales catégories de piles à combustible [3]

Pile à combustible ...	Température	Efficacité	Domaine d'application
alcaline (AFC)	60-90 °C	50-60%	Application spatiale Transport
à membrane polymère (PEMFC)	50-80 °C	50-60%	Transport Génération d'électricité Application spatiale
à acide phosphorique (PAFC)	160-220 °C	55%	Génération d'électricité
au carbonate fondu (MCFC)	620-660 °C	60-65%	Génération d'électricité
à oxydes solides (SOFC)	800-100 °C	55-65%	Génération d'électricité

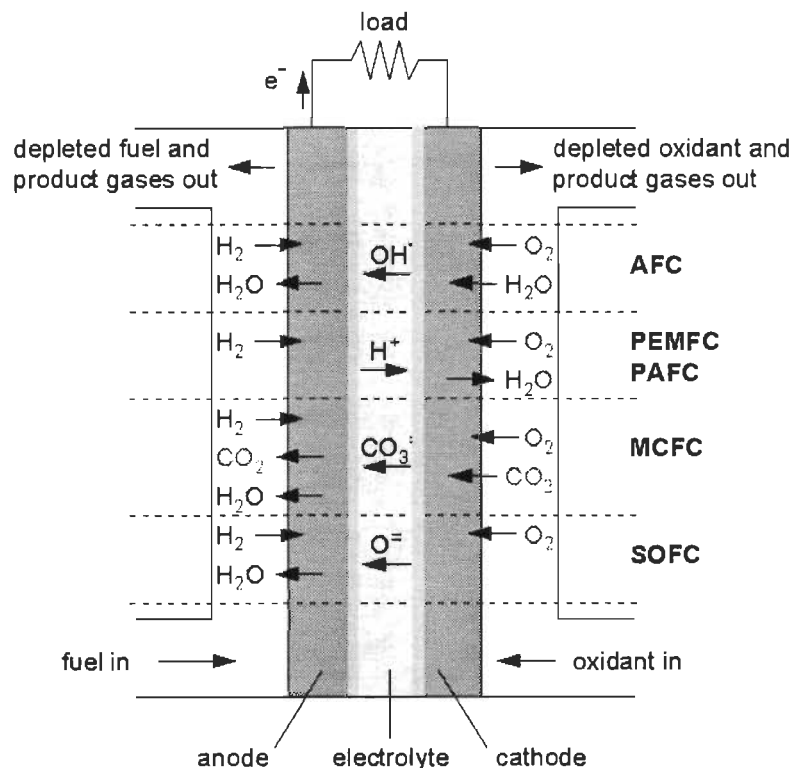


Figure 3.1 : Principes de fonctionnement des différentes catégories de piles à combustible [5]

De nouveaux types de piles à combustible ont été développés plus récemment. Parmi celles-ci, il y a la pile PEMFC réversible développée par la compagnie *Proton Energy Systems* (Rocky Hill, CT, USA). Elle est dénotée URFC (pour *Unitized Reversible Fuel Cell*) et peut opérer soit comme un électrolyseur, lorsqu'elle est alimentée en électricité, ou comme une pile à combustible, lorsqu'elle est connectée à une charge. On retrouve aussi des micro-piles à combustible, basées sur la technologie des circuits intégrés et développées par *Energy Related Devices* (Los Alamos, NM, USA). Un autre type de piles fait directement l'oxydation du méthanol à l'anode, sans nécessiter un reformage préalable (DMFC pour *Direct Methanol Fuel Cell*) [6, 7]. Les DMFC sont en réalité des PEMFC alimentées par un mélange méthanol/eau.

Les piles PEMFC sont les plus polyvalentes. À cause de leur basse température d'opération, de leur grande densité de puissance et de leur potentiel de développement, elles peuvent être utilisées dans une multitude d'applications (de quelques mW à quelques centaines de kW). Ces piles sont utilisées dans le domaine des transports, par exemple dans les autobus modifiés par la compagnie Ballard ou les NECar de Daimler Chrysler (Figure 3.2). Nous les retrouvons aussi dans des applications portables (comme des ordinateurs portables ou téléphones cellulaires) ou dans des applications stationnaires comme le projet HySolar [8], issu d'une collaboration entre l'Allemagne et l'Arabie Saoudite, ou le projet que nous développons à l'IRH.



Figure 3.2 : Le NECar-4 (no emission car 4) de Daimler Chrysler

La structure d'une cellule de pile à combustible PEMFC est représentée aux Figures 3.1 et 3.3. Le rôle de chaque élément est détaillé dans K. Kordesch [3]. L'électrolyte est une membrane conductrice de protons, disposée entre deux électrodes. Cette membrane possède une faible perméabilité aux gaz. Généralement, elle a une épaisseur de $\sim 50 \mu\text{m}$ et est constituée d'un polymère implanté d'ions SO_3^- pour la rendre conductrice aux protons. Un catalyseur, habituellement du platine supporté par une poudre de carbone, est appliqué sur chaque côté de la membrane. Une mince couche de diffusion est appliquée entre chacune des électrodes et la membrane pour faciliter l'accès aux gaz, le retrait de l'eau en excès et le transfert des électrons. Ces couches sont généralement composées de fibres de carbone pour leur conductivité électrique et sont imprégnées d'un matériel hydrophobe (comme le Teflon^{MD}). Les électrodes sont des plaques de graphite sur lesquelles sont machinés des canaux qui servent à acheminer l'hydrogène à l'anode et l'air à la cathode, de façon à distribuer uniformément, et efficacement ces gaz sur les deux surfaces de la membrane. D'autres canaux sont machinés pour le liquide de refroidissement dans certaines piles.

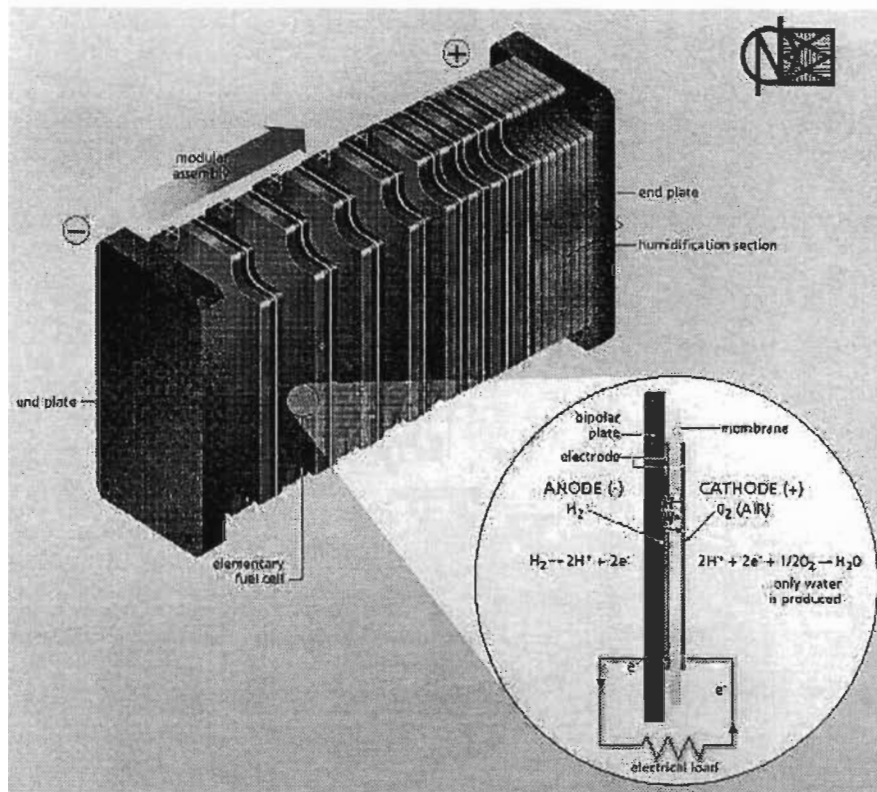


Figure 3.3 : Structure d'une pile à combustible dans un empilement ou *stack* [9].

La séparation de l'hydrogène H_2 en protons H^+ et électrons se fait à l'anode. Les protons traversent la membrane par l'intermédiaire des ions SO_3^- , tandis que les électrons sont acheminés par l'anode vers la plaque collectrice, alimentant le circuit électrique de la charge avant de revenir à la cathode. Les électrons, les protons et l'oxygène forment de l'eau à la cathode. Les réactions sont les suivantes [3] :



À l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène, notre objectif est d'utiliser une pile à combustible comme source d'énergie d'appoint ; nous avons donc envisagé une approche expérimentale permettant d'arriver rapidement à un diagnostic complet du fonctionnement d'une pile à combustible.

Nous avons alors mesuré la courbe de polarisation d'une pile à combustible sous différentes températures. Un étudiant de deuxième cycle en génie électrique, Michaël Fournier, a complété cette étude en mesurant l'effet de différentes concentrations d'oxygène. Nous avons aussi dressé le bilan énergétique de la pile en fonction du courant, en tâchant d'identifier tout ce que la pile reçoit en énergie par les réactifs et toutes ses pertes d'énergie sous forme d'électricité et de chaleur. Dans le système à énergie renouvelable, la pile peut être appelée à alimenter des charges variables ou un onduleur transformant le courant continu de la pile en courant alternatif. Le comportement de la pile face aux changements brusques de charge et en présence d'un onduleur DC-AC a été étudié pour déterminer l'endurance du système vis-à-vis de telles conditions.

3.2 Références de la section 3.1

- 1- L. Oniciu, *Fuel Cells*, Abaccus Press, Tunbridge Wells (Kent), England, 1976.
- 2- W.R. Grove, *Phil. Mag.* 14, 1839, p.127.
- 3- K. Kordesch, G. Simader, *Fuel Cells and Their Applications*, VCH, Weinheim, 1996.
- 4- A.J. Appleby, *Fuel Cell Handbook*, Van Nostrand-Reinhold, New York, 1989.
- 5- F. Barbir, Review of Hydrogen Conversion Technologies, Clean Energy Research Institute, University of Miami (FL), obtenu sur le site Internet «<http://iahe.org/h2convrt.htm>».
- 6- – , «Nissan et Suzuki recherchent une pile à combustible au méthanol», traduction d'un article de *Japan Industrial Journal*, 2 février 1999, 1.
- 7- K. Scott, W. Taama, J. Cruickshank, «Performance and Modelling of a Direct Methanol Solid Polymer Electrolyte Fuel Cell», *J. Power Sources*, 65, 1997, 159.
- 8- H. Steeb et H. Abaoud, *HYSOLAR German-Saudi Joint Program on Solar Hydrogen Production and Utilization, Phase II, 1992-1995*, Stuttgart, 1996.
- 9- Diagramme par la firme DE NORA (Milan, Italie) obtenu sur le site Internet : www.denora.it.

3.3 Objectifs

But :

Caractériser une pile à combustible en vue de son intégration à l'intérieur d'un système de production autonome d'électricité à partir des énergies renouvelables.

Objectifs spécifiques :

1. Connaître l'état actuel du savoir concernant les piles à combustible.
2. Concevoir et réaliser un banc d'essais pour mesurer les paramètres de fonctionnement d'une pile à combustible.
3. Mesurer l'efficacité électrique d'une pile à combustible PEM.
4. Classer les pertes thermiques d'une pile à combustible.
5. Mesurer le temps de réponse d'une pile à combustible à des sauts de charge DC.
6. Mesurer l'effet d'un onduleur DC-AC sur une pile à combustible.
7. Évaluer les forces et les faiblesses des piles à combustible pour la production décentralisée d'électricité.

3.4 Expérimentation

Cette section décrit le banc d'essais qui a été développé pour effectuer les mesures qui sont présentées dans l'article de la section 3.5 de ce mémoire.

Lorsque le projet a été lancé, nous avons déjà en main un prototype de pile à combustible MK5-E de Ballard Power Systems. Cette pile de 36 cellules équipée de membranes Dow Chemical est déjà asservie par un système de contrôle. La pile et son contrôleur constituent le «système de génération de puissance» PGS-105B de Ballard. La pile doit être alimentée en

hydrogène et en oxygène (ou air) et elle produit une puissance maximale d'environ 5 kW d'électricité. Les Figures 3.4 et 3.5 montrent respectivement la pile MK5-E et le système PGS-105B.

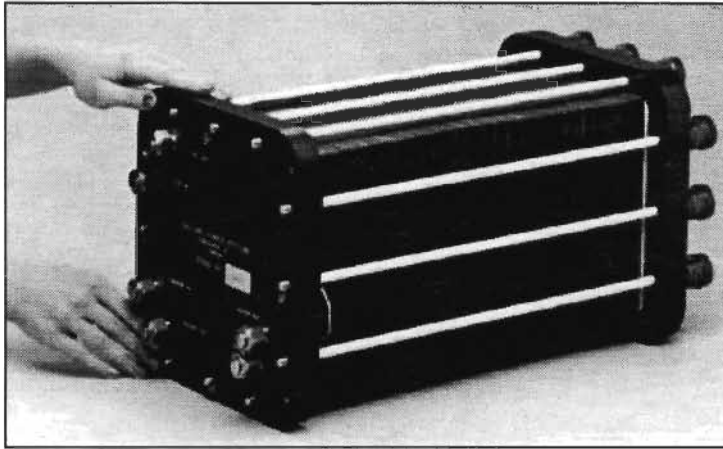


Figure 3.4 : La pile Ballard MK5-E.

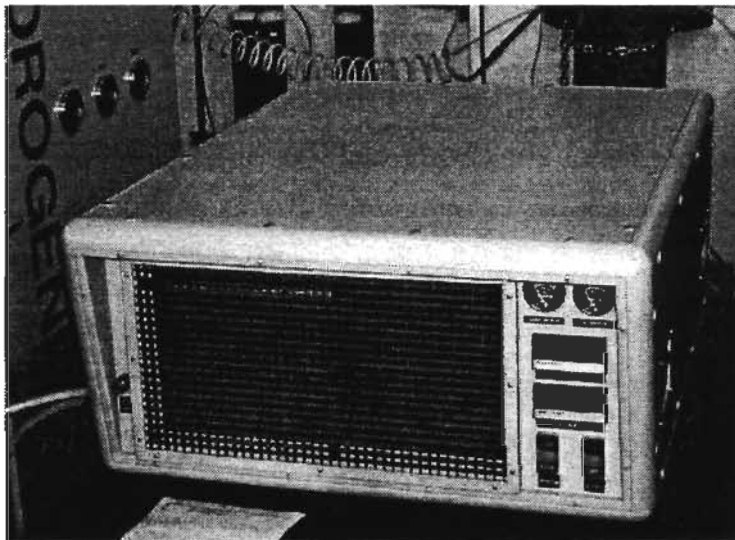


Figure 3.5 : Le générateur à pile à combustible Ballard PGS-105B tel qu'installé à l'IRH.

Avec ce prototype et un système d'acquisition que nous avons développé, nous avons effectué tous les tests jugés utiles pour l'implantation d'une pile à combustible dans le système à énergies renouvelables. Le système d'acquisition permet de mesurer des températures,

pressions, débits, courants et voltages ainsi que de contrôler une charge programmable (Dynaload, modèle WCL-488-12K-1K) et le débit d'oxydant. Des thermocouples et jauges de débit et de pression ont été insérés à l'intérieur du système PGS-105B pour faire les mesures.

La Figure 3.6 montre le système d'acquisition et de contrôle que nous avons développé; la Figure 3.7 montre les principales interconnexions. Le système est basé sur un boîtier HP75000 VXI B dans lequel sont insérées des cartes d'acquisition. Les données mesurées par ces cartes sont enregistrées par un ordinateur COMPAQ par l'intermédiaire d'un port GPIB. La programmation a été effectuée à l'aide du logiciel HP-VEE de la compagnie *Hewlett Packard*. Les signaux sont répartis sur trois cartes différentes : carte thermocouple, carte de compteur d'impulsion et carte de tension DC. Les voltages sont mesurés par un autre ordinateur connecté en réseau au premier. Ce deuxième ordinateur permet un échantillonnage rapide des phénomènes transitoires (5000 mesures de tension et de courant par seconde).



Figure 3.6 : Le système d'acquisition de données.

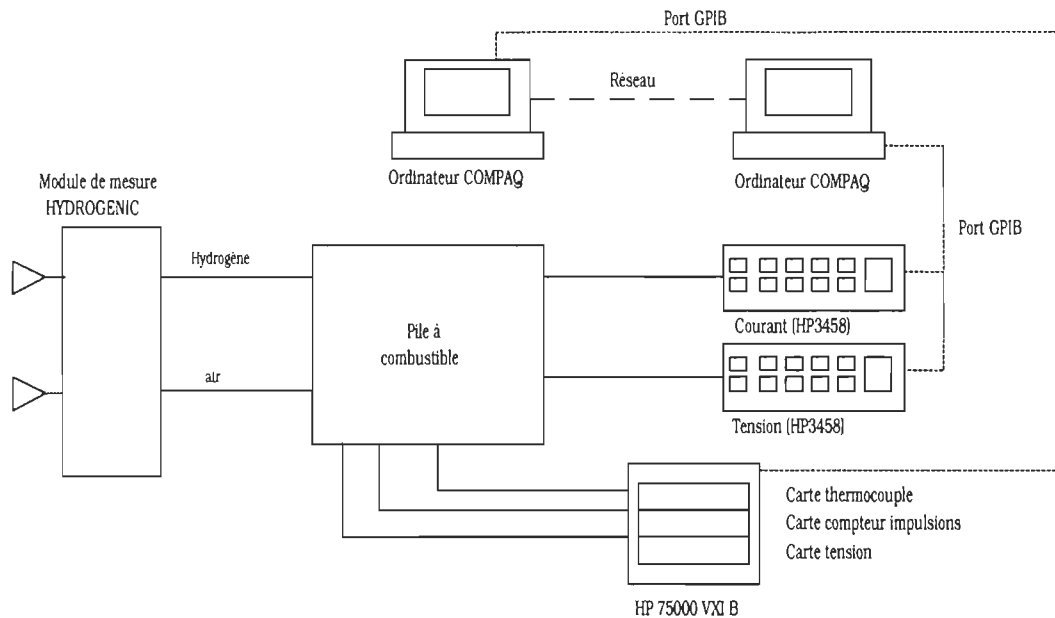


Figure 3.7 : Schéma de connexions

Un débitmètre à turbine a été incorporé à la tuyauterie du circuit de refroidissement à eau de la pile. Il génère des impulsions (12711 impulsions/gallon US) qui sont comptées par la carte compteur d'impulsions et rapportées à une base de temps (signal périodique de 1kHz), de manière à pouvoir calculer le débit.

Deux capteurs de pression de la compagnie Omega mesurent la pression à l'entrée de la pile. Les signaux provenant des capteurs de pression sont mesurés par la carte de tension du châssis HP75000.

Le courant total généré par la pile est calculé à partir de la mesure de la tension entre les bornes du «shunt» interne de la pile par un multimètre HP3458. La tension est mesurée directement aux bornes de la pile par un deuxième multimètre.

Tableau 3.2 : Liste des points de mesure et des instruments

Variable	Point de mesure	Unité	Instrument	Appareil
T _{ambiant}	Température ambiante de la pièce	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{pile}	Température interne de la pile	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{H2}	Température d'alimentation de l'hydrogène de la pile	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{air}	Température d'alimentation de l'air de la pile	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{exhaust}	Température des gaz de sortie de la pile	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau entrée 1}	Température de l'eau à l'entrée de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau entrée 2}	Température de l'eau à l'entrée de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau entrée 3}	Température de l'eau à l'entrée de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau sortie 1}	Température de l'eau à la sortie de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau sortie 2}	Température de l'eau à la sortie de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
T _{eau sortie 3}	Température de l'eau à la sortie de l'échangeur	°Celsius	Thermocouple type T	Carte thermocouple HP75000
Impulsions _{eau}	Débit d'eau du système de refroidissement	Impulsions	Impulsions	Carte compteur d'impulsions
Impulsions _{pacar}	Impulsion de la base de temps à 1 kHz	Impulsions	Impulsions	Carte compteur d'impulsions
Pression _{H2}	Pression d'hydrogène à l'entrée de la pile	psig	Capteur Omega	Carte lecteur de tension
Pression _{air}	Pression de l'air à l'entrée de la pile	psig	Capteur Omega	Carte lecteur de tension
Débit _{air}	Débit d'air à l'entrée de la pile	slpm	Contrôleur de débit MKS	Carte lecteur de tension
Débit _{H2}	Débit d'hydrogène à l'entrée de la pile	slpm	Contrôleur de débit MKS	Carte lecteur de tension
Courant	Courant total de la pile	Amps dc	Shunt	HP3458
Tension	Tension de sortie de pile	Volts dc	Tension	HP3458

Le contrôle du fonctionnement de la pile est assez simple puisque le système PGS-105B comporte déjà plusieurs fonctions automatiques telles que le système de refroidissement, l'humidification des gaz, la re-circulation de l'hydrogène et les purges d'air et d'hydrogène.

La pression d'entrée de l'hydrogène est maintenue par un régulateur ajusté à 3 atm. Lorsque le débit est important, la pression diminue légèrement (de 0.2 atm). Le débit d'hydrogène n'est pas contrôlé et le contrôleur de débit d'hydrogène MKS, ouvert au maximum, ne sert qu'à lire le débit. En fait, l'hydrogène pénètre dans la pile à mesure que celle-ci en consomme. Par ailleurs, le débit d'air doit être régulé car un excès d'air (non consommé par la réaction) est envoyé à la pile pour faire sortir l'eau produite. Pour contrôler ce débit, nous avons placé en aval du système un régulateur qui assure une pression constante de 3 atm dans la pile. Le contrôleur

de débit d'air peut utiliser son gradient de pression pour fournir le débit souhaité. Le débit peut être fixé manuellement ou calculé automatiquement en fonction de la lecture du courant. Ces options de contrôle ont été implantées dans le système d'acquisition HP-VEE.

3.5 Résultats

Plusieurs articles déjà publiés par les chercheurs de l'IRH présentent des résultats fragmentaires de notre étude. Un article décrivant l'ensemble des résultats a été accepté pour publication au périodique *Fuel Cells – From Fundamentals to Systems* et constitue le corps de ce chapitre. Il décrit brièvement la théorie de la courbe de polarisation, le banc d'essais et les mesures effectuées avec la pile à combustible concernant la courbe de polarisation, le bilan énergétique, l'effet des variations de la charge et du taux d'oxygène. Un résumé français de l'article et l'article lui-même sont présentés dans les pages qui suivent.

3.5.1 Résumé de l'article

L'article est divisé en six sections, en plus de la partie *Discussion et conclusion*. Dans ce résumé, les renvois aux figures, tableaux et équations désignent les objets correspondants de l'article présenté au bloc suivant.

La première section est une introduction aux piles à combustible PEMFC. Celles-ci ont des efficacités entre 40 % et 65 %, elles opèrent à basse température et elles ne détériorent pas l'environnement. Elles produisent de l'électricité et de la chaleur à partir de l'hydrogène par le processus inverse de l'électrolyse : la combustion électrochimique de l'hydrogène.

La deuxième section de l'article présente le prototype PGS-105B de Ballard et son principal élément : la pile MK5-E. Cette pile PEMFC est constituée de 36 cellules d'une surface active de 232 cm². Elle utilise des membranes de la compagnie Dow Chemical. Le combustible

est l'hydrogène pur à plus de 99.995 % produit par l'électrolyseur ou l'hydrogène acheté dans des cylindres. Le comburant (ou oxydant) est l'air venant de la ligne d'air comprimé du laboratoire et qui est filtré. L'hydrogène alimente la pile par une boucle fermée. Cependant, l'air traverse les canaux de la pile et la partie non consommée est rejetée dans l'environnement à la sortie de la pile. Les pressions d'air et d'hydrogène au niveau de la pile sont maintenues à 3 atm et le débit d'oxydant est contrôlé par un contrôleur de débit massique, de manière à ce que le débit d'oxygène fourni à la pile soit deux fois plus élevé que le débit d'oxygène consommé par celle-ci (Fig. 1). Un système de mesures et de contrôle a été développé pour mesurer les paramètres électriques (tension et courant), les pressions des gaz, différentes températures, les débits des gaz et de l'eau de refroidissement (Tableau 1).

La troisième section décrit le paramétrage de la courbe de polarisation (graphique de la tension d'une cellule V_{cell} en fonction de la densité de courant i). L'équation utilisée vient de Kim *et al.* [9].

$$V_{cell} = E_0 - b \ln(i) - R i - m \exp(n i) \quad (3)$$

Les termes de droite de l'Eq. (3) représentent respectivement le potentiel de cellule ouverte (à courant nul) et les surtensions d'activation électrochimique, de résistance ohmique de la membrane et de transport (lenteur d'écoulement des gaz, de l'eau ou des ions).

Au cours des mesures de la courbe de polarisation, nous avons remarqué la présence d'une hystérésis (Fig. 2) qui fait que, lorsque le courant de la pile est en train d'augmenter, la tension est plus basse que si le courant diminuait. Nous avons ajusté les paramètres de l'Eq. (3) aux mesures de la tension et du courant effectuées lorsque la pile était à différentes températures réparties entre 24 et 72 °C (Fig. 3). Les valeurs des paramètres, pour chaque température, sont listées au Tableau 2. À la Fig. 4, nous voyons l'évolution des paramètres en fonction de la température. Les équations des droites ajustées à ce graphique sont données au

Tableau 3. Le paramètre m , correspondant à la surtension de transport, diminue d'un facteur de 20 entre 24 et 39 °C.

La quatrième section donne les résultats du bilan énergétique de la pile. Nous avons séparé la puissance totale libérée par la réaction chimique P_{tot} , calculée d'après le pouvoir calorifique supérieur HHV , en ses parties électrique P_{elec} et thermiques \dot{Q}_w , \dot{Q}_a et \dot{Q}_{oth} . La chaleur \dot{Q}_w est évacuée par le système de refroidissement à eau, \dot{Q}_a est la chaleur perdue dans le flux d'oxydant et $\dot{Q}_{oth} = P_{tot} - P_{elec} - \dot{Q}_w - \dot{Q}_a$ combine la chaleur perdue par convection dans l'air environnant et celle qui est absorbée par la pile elle-même. Ces puissances et leur valeur relative à P_{tot} sont tracées en fonction du courant aux Fig. 5 et 6. Au courant maximal (170 A), la puissance électrique $P_{elec} = 4$ kW représente ~ 45 % de P_{tot} , la chaleur récupérée par l'eau de refroidissement est de $Q_w = 3$ kW (~ 35 % de P_{tot}); l'air environnant récolte $Q_{oth} = 1.5$ kW de chaleur (~ 18 % de P_{tot}) et le flux d'oxydant absorbe 200 W (~ 2 % de P_{tot}). La chaleur récupérée par le système de refroidissement et la chaleur perdue dans l'air environnant pourraient être utiles dans plusieurs applications, tel le chauffage d'une résidence.

En laissant la température de la pile T_{stack} monter de la température de la pièce ($T_{amb} = 24$ °C) à la température où s'active le système de refroidissement (~ 72 °C), nous avons pu décomposer la puissance Q_{oth} en deux principales contributions, correspondant aux termes de droite de l'Eq. (8).

$$Q_{oth} = MC \frac{dT_{stack}}{dt} + hA(T_{stack} - T_{amb}) \quad (8)$$

La chaleur massique de la pile MC en kJ/K et la perte de chaleur par la surface de la pile hA en W/K ont été évaluées (Tableau 4) et sont comparables aux valeurs obtenues par Amphlet *et al.* [4] avec une pile semblable.

La section 5 décrit l'effet des variations brusques (commutations) de la charge connectée à la pile. La Fig. 7 montre une série de commutations successives. Nous observons un délai d'ajustement du voltage lors des commutations (~1 s). La comparaison de ces mesures avec la courbe de polarisation, à la Fig. 8, montre la marge de variation de la tension de ± 2 V autour de la courbe de polarisation normale. Nous avons connecté à la pile une charge de courant alternatif (AC) par l'intermédiaire d'un onduleur. Le démarrage d'une charge résistive AC produit une pointe de très grande amplitude comme celle que nous voyons à la Fig. 9. Du bruit AC (60 Hz) demeure présent tant que la charge AC est alimentée. Lorsqu'elle est coupée, aucun phénomène transitoire n'est observé.

À la section 6, les mesures en fonction de la concentration d'oxygène dans l'oxydant sont présentées (Fig. 10). On y voit presque un doublement de la puissance électrique accessible à la pile entre les concentrations d'oxygène 21 % (~4 kW) et 100 % (~7 kW). Aussi, les surtensions diminuent d'amplitude. En particulier, la surtension de transport disparaît complètement à des concentrations élevées d'oxygène. Ces mesures montrent que l'oxygène produit par l'électrolyseur, s'il n'était pas envoyé à l'évent, permettrait d'augmenter les performances de la pile.

3.5.2 Article

L'article, qui a été accepté pour publication, est présenté dans les pages suivantes.

Characterization of a Ballard MK5-E Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stack

F. Laurencelle, R. Chahine[†], J. Hamelin, K. Agbossou, M. Fournier, and T. K. Bose
*Institut de recherche sur l'hydrogène, Université du Québec à Trois-Rivières, PO Box 500,
Trois-Rivières, (QC) Canada G9A 5H7.*

A. Laperrière
*LTEE, Hydro-Québec, 600, avenue de la Montagne
Shawinigan, (QC) Canada G9N 7N5.*

Keywords: Fuel Cell, Heat, Model, Polarization, Transient

Abstract

We present the results of an experimental investigation of the energy balance of a Ballard MK5-E proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) stack. We have investigated the transient phenomena that occur during PEMFC stack warm-up, under load switching, and when the PEMFC stack is connected to a DC/AC inverter. A simple and convenient model describing the polarization curve as a function of the temperature is presented and validated by our experimental data. We also present experimental results on the increase PEMFC stack performance as a function of the current density for different oxygen concentrations of the oxidant gas.

[†] Corresponding author: Richard.Chahine@uqtr.quebec.ca

1. Introduction

Recent development in proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) technology has made them the best candidate for mobile and stationary applications (0-200 kW) [1-4]. They are highly efficient (40 to 65 %), reliable, and they operate at a lower temperature ($< 100^{\circ}\text{C}$). They are environmentally friendly [5] and have an excellent development potential. Fuel cells convert the energy contained in a fuel and an oxidant, such as hydrogen and oxygen, directly to electricity and heat with only water as a byproduct of the reaction. Several papers have been published on the fuel cells efficiency [4-11] but only few of them addressed the useful heat produced by a fuel cell stack [6-7]. This heat could be used for space or water heating, thus greatly increasing the overall efficiency of the fuel cell power system.

This paper presents a parametric model and experimental results on the performance of a Ballard MK5-E PEMFC stack. In Section 2 we describe our experimental test bench. In Section 3 we present the polarization curve model used and our experimental results. In Section 4 we present the energy balance sheet and the stack warm-up measurement. In Section 5 we discuss on the transient response of the fuel cells system under load commutations. In Section 6 we present the results of the experimental investigation on the performance of a PEMFC stack as a function of current density, for different oxygen concentrations in the oxidant gas. This investigation covers most of the technical requirements of a stack used for stationary application.

2. Experimental setup

We have performed our experiments with a PGS-105B prototype from Ballard Power Systems. It is based on a Ballard 5 kW PEMFC fuel cell stack model MK5-E composed of 36 cells; each cell has a 232 cm^2 active area, graphite electrodes, and a Dow membrane. The electronic controller of the PGS-105B unit monitors the operating conditions such as pressures, temperature, voltage, and current. It operates valves, pumps and ventilators.

Hydrogen is produced from an electrolyzer and stored in a pressurized tank at 10 atm. This tank has a water capacity of 3.8 m^3 . The hydrogen produced by the electrolyzer has been analyzed by gas chromatography mass spectroscopy (GCMS) and yielded purity better than 99.995 %. The air supply comes from a filtered laboratory line at 6 atm. Hydrogen pressure is regulated to 3 atm at the stack's hydrogen inlet port. A backpressure regulator located at the air outlet port of the stack also maintains a pressure of 3 atm across the stack. Reactant gases are humidified inside the stack. Hydrogen is recirculated and purged periodically while the air used as oxidant is kept flowing through the stack with a stoichiometric ratio of 2 (*i.e.* ratio of oxygen flow over consumption rate). For the measurements with different concentration of oxygen and nitrogen in the oxidant gas, we kept the oxidant flow rate at a constant value of 4.5 L s^{-1} to ensure sufficient water removal at the cathode. Hydrogen is replaced at the same rate as it is consumed. A simplified diagram of the PEMFC stack system is depicted in Fig. 1.

The PGS-105B system monitors and controls its own operating conditions, it consumes 8 A. Temperature measured at the air outlet is used to control the cooling system. When the stack temperature is higher than $73 \text{ }^\circ\text{C}$, the cooling water circulating across the stack is directed to a

radiator that is refreshed by an array of ventilators. The stack voltage is limited to values above 19V (0.53 V cell⁻¹) and the current is limited to values below 300 A (1300 mA cm⁻²).

In order to measure the heat losses of the fuel cell stack, we developed an automated data acquisition and control system (DAQC). In addition to current and voltage, it monitors pressures, flow rates and temperatures at different locations in the fuel cell system. The measured parameters are listed in Table 1. A 12 kW water-cooled programmable load from TDI-Dynaload, model WCL-488-12K-1K, was used to drive the fuel cell system described above. It is controlled by the DAQC system via a GPIB port.

3. Polarization curve model and fitting

The polarization curve expressing the relation between cell voltage, V_{cell} , and current density, i , is a good indicator of the performance of a fuel cell stack. A high cell voltage corresponds to a high efficiency. Many polarization curve-fitting equations are available in the literature [5, 8]. The one we used in our work and briefly describe here was discussed in great details by Kim *et al.* [9]. It is given by:

$$V_{cell} = E_0 - \eta_{act} - \eta_{ohm} - \eta_{trans} , \quad (1)$$

where E_0 represents the open cell voltage and the η 's represent the losses that occur when a load drives a current from the fuel cell. These losses are usually called overpotentials. The theoretical value of E_0 , derived from the free energy of hydrogen combustion, is 1.229 V. In practice

however, this value is reduced to about 1.05 V mainly because of the formation of hydrogen peroxide as an intermediate stage of the cathode's oxygen reduction [2].

The activation overpotential η_{act} which is more pronounced at low current, is caused by the limited rate of charge transfer and other activated processes [2] among which oxygen reduction is the slowest. The activation overpotential can be expressed as:

$$\eta_{act} = b \ln(i) ; b = RT / \alpha z F, \quad (2)$$

where i is the current density (in mA cm⁻²), R is the universal gas constant 8.3143 J mol⁻¹ K⁻¹, T is the stack temperature (in K), α is the exchange coefficient ($\sim 1/2$), $z = 2$ electrons per hydrogen molecule (H₂) and $F = 96485$ C mol⁻¹ is the Faraday constant. Thus at 25 °C, $b = 0.0257$ V.

The ohmic overpotential $\eta_{ohm} = R i$, with R (in kΩ cm²) being the membrane resistance, is related to the proton conductivity across the membrane. It is strongly dependent on the humidification level of the membrane, which itself depends on many factors such as temperature, reactant gases humidity, flow rates, and flow field architecture [10, 11, 12]. Membrane humidification is partly done by the water produced at the cathode, by the electrochemical reaction, and which diffuses through the membrane from the cathode to the anode (also referred to as back diffusion). In order to ensure good humidification of the whole membrane, reactant gases have to be humidified before entering the fuel cells.

The mass transport overpotential $\eta_{trans} = m \exp(n i)$ is directly related to the concentration drop of reactant gases, and thus inversely to the growth rate n of byproducts of the electrochemical reaction (*i.e.* nitrogen when air is used as an oxidant and water), in the catalyst layers, flow fields, and across the electrode.

Finally, replacing the η 's in Eq. (1) by their detailed expressions, we get:

$$V_{cell} = E_0 - b \ln(i) - R i - m \exp(n i). \quad (3)$$

This model does not account explicitly for all PEMFC mechanisms and for water transport effects, like blocked channels or water in the diffusion gas medium. Those effects might lead to poor performance at low temperature. However, by separating the above contributing overpotentials, Eq. (3) gives a good indication of the behavior of the fuel cells. In our study, we have operated the PEMFC stack at constant pressure and assumed that the concentrations of reactant gases depended only on current and temperature. The temperature is an important parameter since the fuel cell nominal temperature is not attained at start up or when it is running at a low power level.

Successive measurements of the isothermal polarization curve (IPC) were carried out as a function of the stack temperature which varied from room temperature up to 72 °C. The stack's temperature was assumed to be equal to that of the cooling water measured at the exit. The open cell voltage was measured at start up before activating the control system. It gave a value of 35.7 V for the 36 cells stack or an average of 0.99 V per individual cell. In a typical IPC

measurement run the load current was increased from 8 A to 170 A by steps of 5 A occurring at intervals of 100 ms. Then the load current was scaled back to 8 A with the same current steps and time intervals. Thus a complete measurement of the polarization curve took about 7 s and the corresponding temperature change of the stack was less than 0.1 °C. In spite of these isothermal conditions, we have seen a hysteretic effect. As shown in Fig. 2, the stack voltage is lower for increasing current. One plausible source of this effect is a variation in the hydration level of the membrane on the anode side. As mentioned above, membrane humidification has a direct impact on proton conductivity. When the current increases, the water is drained from the anode to the cathode side of the membrane by electro-osmotic drag [10, 11, 12], lowering the humidification level of the membrane thus showing a lower performance. Inversely, as the water production at the cathode increases with current, the membrane humidity increases due to back diffusion of water from the cathode to the anode side of the membrane, until equilibrium is reached. When the current decreases, the membrane is saturated with water thus having a better performance. Another contributing factor to the hysteresis could be the load sweep rate, which is faster than the response time of the mass flow controller.

The experimentally measured IPC were fitted to Eq. (3) after averaging the hysteretic data. All the coefficients in Eq. (3) were left free, and the growth rate factor, n , in the exponential term was adjusted manually. The best fits were obtained for n values between 7.0×10^{-3} and $9.0 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ A}^{-1}$. The results of the fits have correlation coefficients better than 0.99 thus showing excellent discrimination of the overpotentials and the correctness of the polarization curve model as it can be seen in Fig. 3. The coefficient values of the measured isotherms are listed in Table 2, and their temperature dependence is shown in Fig. 4. The activation coefficient,

b , and the ohmic resistance coefficient, R , decrease linearly with T over the entire range with respective slopes of $-1.40 \times 10^{-4} \text{ V } ^\circ\text{C}^{-1}$ and $-3.32 \times 10^{-6} \text{ k}\Omega \text{ cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. The mass transport coefficient m also decreases linearly with T but it has two dramatically different slopes (see Table 3). Above $39 \text{ } ^\circ\text{C}$ the drop rate is $-1.2 \times 10^{-6} \text{ V}$, while below $39 \text{ } ^\circ\text{C}$ the drop rate is $-8.2 \times 10^{-5} \text{ V}$ that is about 20 times steeper. This performance loss is probably due to a drop in the mobility of oxygen at lower temperature [13], or to liquid water transport effects, as mentioned above.

4. Energy balance and efficiency

The total power converted by the fuel cells into electricity and heat is given by:

$$P_{tot} = \dot{m}_{H_2} \cdot \Delta H , \quad (4)$$

where \dot{m}_{H_2} represents the mass flow rate of hydrogen feeding the fuel cells and ΔH is the total H_2 enthalpy of combustion (143 kJ g^{-1}). The electrical power generated by the PEMFC stack is $P_{elec} = V i$, and its electrical efficiency is $\eta_{stack} = P_{elec} / P_{tot}$. The remainder of the energy is converted into heat some of which may be useful in certain FC applications especially in the case of stationary power applications. We separate the heat losses of the stack in three categories:

$$\dot{Q}_w = \dot{m}_w c_{pw} (T_{wi} - T_{wo}) , \quad (5)$$

$$\dot{Q}_a = \dot{m}_a c_{pa} (T_a - T_{amb}) , \quad (6)$$

$$\dot{Q}_{oth} = P_{tot} - P_{elec} - \dot{Q}_w - \dot{Q}_a, \quad (7)$$

where \dot{m}_w is the mass flow rate of cooling water and \dot{m}_a is the air flow at the stack air outlet. c_{pw} and c_{pa} are the respective heat capacities of water and air; T_{wi} and T_{wo} are respectively the temperature of the water at the inlet and the outlet ports of the cooling system radiator; T_a is the stack outlet air temperature and T_{amb} is the ambient temperature; \dot{Q}_w is the rate of heat removal by the water-cooling system, \dot{Q}_a is the rate of heat loss in the air flowing out of the stack, and the balance \dot{Q}_{oth} represents the other losses, mainly stacks heating, and surface heat exchange with the surroundings. However, we did not account for the possible contribution of water evaporation to the thermal balance of the fuel cell system.

We measured P_{elec} , \dot{Q}_w and \dot{Q}_a as a function of the steady state current. The measurements were taken after the stack temperature reached equilibrium for the set current. As we will show later, under this equilibrium condition only surface heat exchange contributes to \dot{Q}_{oth} . The results are plotted in Fig. 5 and their ratios to P_{tot} determined by Eq. (4) are plotted in Fig. 6. At a current of 50 A, the stack reaches its desired steady state temperature and water cooling starts. Below this current level, the electrical efficiency of the stack lies between 55 and 60 %, and almost all of the heat is lost to the surrounding (\dot{Q}_{oth}). The maximum electrical power that the stack can produce continuously is 4 kW (or 45 % of P_{tot}). At this level the water cooling system removes 3 kW of heat (or 35 % of P_{tot}), \dot{Q}_{oth} amounts to 1.5kW (or 18 % of P_{tot}). \dot{Q}_a is only about 2 % of P_{tot} for almost all currents. It should be mentioned at this point that our

calculation does not take account of the electrical energy used by the controller (2.5 % of P_{tot}), and of the compression energy needed to provide the feed gases for the fuel cell. Taken this into consideration would further reduce the system efficiency by 6 to 12 % [14].

Following the approach of Amphlett *et al.* [6], the \dot{Q}_{oth} results could also be used to determine some of the thermal properties of the FC stacks. As mentioned above \dot{Q}_{oth} losses are mainly due to heat dissipation in the stack and to surface heat exchange between the stack and the surrounding air. These two contributions can be expressed as:

$$\dot{Q}_{oth} = MC \frac{dT_{stack}}{dt} + hA(T_{stack} - T_{amb}), \quad (8)$$

where the product MC (in $J K^{-1}$) represents the average heat capacity of the whole stack, and the product hA (in $W K^{-1}$) is the surface heat exchange coefficient of the stack. Given that our measurements of \dot{Q}_{oth} were done at equilibrium, the first term of the right hand equation is zero and hA is easily determined. To determine MC , we measured \dot{Q}_{oth} and the slope of the temperature curve at the load start up when $T_{stack} = T_{wi} = T_{amb}$, at this point the second term of the equation is zero and the measurement yield MC directly. Our values of hA and MC listed in Table 4 are in good agreement with the ones obtained by Amphlett *et al.* for a Ballard MK5 stack like ours with NafionTM 117 membranes instead of Dow membranes.

5. Load commutations

In general applications, the PEMFCs would have to supply various DC or AC devices. Extreme and rapid variations of the load could have an adverse effect on system operation or cause the degradation of electrodes or membranes. We have measured the effect of abrupt load transitions (or switching) on the stack. A load profile with rapid variations between 0 and 150 A, was imposed on the PGS-105B system. The corresponding stack current and voltage transients are plotted as a function of time in Fig. 7, and one against the other on the normal polarization curve of the stack in Fig. 8. According to specifications, the PEMFCs delay to adjust to the load current is less than one μs . That is shorter than the time resolution of our experimental setup, which is 50 μs . However, the voltage reaction time of the PEMFC stack is slower and has been measured. Following a positive switch in the load current, the stack voltage drops below its normal value and then, after about 1 s, it stabilizes as it can be clearly seen in Fig. 7. This phenomenon could be caused by the hysteretic effects described above. The maximal deviation of the voltage that we observed in transient load conditions was 2 V above or below the polarization curve.

In a second set of measurements, we connected to the stack a 24 V inverter, Enerwatt model EW-1500-24, in parallel with a 100 A DC load as a background current. A 1 kW AC load was used to drive the fuel cell through the inverter. The purpose of this type of measurement was to observe the transients and noises caused by the inverter and the load. The behavior of the system is shown in Fig. 9. When the AC load is switched on, the current goes through a sharp peak of about 220 A (~ 4.2 kW) with less than 0.2 s half-width duration. However, there is no peak at shut off. In the steady state region, we observe 60 Hz AC-rippling of about 2 V. The peak

and ripples do not cause a system shut down except when the stack voltage drops below the threshold limit of 19 V.

6. Stack performances with oxygen enrichment

In Fig. 10 we have plotted the results of an experimental investigation of the PEMFC stack increase power performance as a function of the current density for different oxygen concentrations of the oxidant gas (oxygen/nitrogen mixture). Measurements have been made for oxygen concentrations of 21 % (air), 40 %, 60 %, 80 %, and 100 %. One can see that the power increases proportionally to the oxygen concentration.

7. Discussion and conclusion

Even though our experimental investigations were done on a single and early PEMFC stack prototype, the phenomena studied here are general and do exist to a certain degree in every PEMFC stacks. Our modeling of the polarization curve produced good results and well characterizes the behavior of the fuel cell system as a function of the temperature. Best performances are achieved at temperatures above 70 °C. A lower operation temperature causes an increase in the overpotentials (losses), mainly the mass transport overpotential which increases by a factor of 20, thus resulting in a lower efficiency. At room temperature the stack current is limited to below 120 A. Our energy balance measurements show that above 100 A, 45 % of the input hydrogen energy is converted into electricity and 55 % into heat, the major portion of which (35 %) is recoverable from the cooling system, the remainder (20 %) being lost

to the surroundings (20 %). The stack is able to generate 4 kW in a continuous mode, powers of up to 5 kW could be achieved but only for peak loads of short duration. It was able to properly supply various DC and AC loads regardless of the rapidity of the current changes. Fast load commutation could cause a 6 % voltage drop.

Results of an experimental investigation on the increase performance of the PEMFC stack for different oxygen concentrations of the oxidant gas are also reported. The conclusion is that oxygen enrichment of the oxidant gas increases considerably the power output of the stack. Therefore, it is worth considering means to achieve higher oxygen concentration of the oxidant gas on stack systems.

Acknowledgments

This work has been supported by Ministère de la Recherche, de la Science et de la Technologie du Québec, Canada Foundation for Innovation, LTEE Hydro-Québec, Stuart Energy Systems and the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC). We thank Ballard Power Systems for lending us the fuel cell.

References

- [1] K.S. Dhathathreyan, P. Sridhar, G. Sasikumar, K.K. Ghosh, G. Velayutham. N. Rajalakshmi, C.K. Subramaniam, M. Raja, K. Ramya, *Int. J. Hydrogen Energy* **1999**, *24*, 1107-1115.
- [2] K. Kordesch, G. Simader. *Fuel Cells and Their Applications*, WILEY-VCH, Weinheim, **1996**
- [3] K. Agbossou, J. Hamelin, R. Chahine, F. Laurencelle, J.-M. St-Arnaud, M. Dostie, A. Laperrière, T.K. Bose, *Int. J. Renewable Energy Engineering* **2000**, *in press*.
- [4] J. Hamelin, K. Agbossou, A. Laperrière, F. Laurencelle, T.B. Bose, *Int. J. Hydrogen Energy* **2000**, *in press*.
- [5] F. Barbir, T. Gomez, *Int. J. Hydrogen Energy* **1997**, *22*, 1027-1037.
- [6] J.C. Amphlett, R.F. Mann, B.A. Peppley, P.R. Roberge, A. Rodrigues *J. Power Sources* **1996**, *61*, 183-188.
- [7] T.F. Fuller, J. Newman, *J. Electrochem. Soc.* **1993**, *142*, 1218-1225.
- [8] J.C. Amphlett, R.M. Baumert, R.F. Mann, B.A. Peppley, P.R. Roberge, T.J. Harris, *J. Electrochem. Soc.* **1995**, *142*, 1-15
- [9] J. Kim, S.M. Lee, S. Srinivasan, C.E. Chamberlin, *J. Electrochem. Soc.* **1995**, *142*, 2670-2674.
- [10] T. V. Nguyen, R. E. White. *J. Electrochem. Soc.* **1993**, *140*, 2178-2186.
- [11] T.E. Springer, T.A. Zawodzinski, S. Gottesfeld, *J. Electrochem. Soc.* **1991**, *132*, 2334-2342
- [12] M. Eikerling, Y.I. Kharkat, A.A. Kornyshev, Y.M. Volkovich, *J. Electrochem. Soc.* **1998**, *145*, 2684-2699.
- [13] *Fuel Cell Handbook 5th ed.*, U.S. Department of Energy, National Energy Laboratory, **2000**
- [14] D. Staschewski, *Int. J. Hydrogen Energy* **1996**, *21*, 381-385.

Figure captions

Fig. 1: Diagram of the PEMFC stack system.

Fig. 2: Hysteresis of the polarization curve measurements.

Fig. 3: Polarization curves for different temperatures.

Fig. 4: Polarization curve coefficients vs. temperature.

Fig. 5: Electrical power and thermal losses vs. current.

Fig. 6: Efficiency and power loss ratios.

Fig. 7: Current & voltage under a series of load switching.

Fig. 8: Polarization curve corresponding to the load switching of Fig. 7.

Fig. 9: Current & voltage transients and noise under a DC + AC load.

Fig. 10: Stack power vs. current density for different oxygen concentrations in the oxidant.

Table 1: Physical parameters and device listing.

Electrical Parameters	Temperature
Stack voltage (HP3458)	(Omega Thermocouples, type T)
Stack current (HP3458)	Air inlet
Load current (Dynaload reading)	Hydrogen inlet
Pressure	Air outlet
(Omega transducers)	Cooling water entering the heat exchanger
Air inlet	Cooling water exiting the heat exchanger
Hydrogen inlet	Room temperature
Flow	PGS-105B cabinet temperature
Air flow (MKS MFC)	
Hydrogen flow (Omega MFC)	
Cooling water flow (ASV turbine flow meter)	

Table 2: Polarization curve fitting parameters, for $n = 8.0 \times 10^{-3} \text{ (cm}^2 \text{ mA}^{-1}\text{)}$.

Temperature (°C)	E_0 (V)	b (V)	R (k Ω cm ²)	m (V)
24	1.059	0.0479	3.14×10^{-4}	1.29×10^{-3}
31	1.038	0.0348	3.86×10^{-4}	6.98×10^{-4}
39	1.039	0.0354	3.46×10^{-4}	6.03×10^{-5}
48	1.035	0.0333	3.16×10^{-4}	4.64×10^{-5}
56	1.033	0.0315	2.93×10^{-4}	3.94×10^{-5}
65	1.031	0.0302	2.65×10^{-4}	2.46×10^{-5}
68	1.031	0.0300	2.64×10^{-4}	1.74×10^{-5}
70	1.031	0.0300	2.45×10^{-4}	2.11×10^{-5}
72	1.034	0.0320	2.25×10^{-4}	2.74×10^{-5}
Std. deviation	0.3 %	2.6 %	2.4 %	T \geq 39 °C \rightarrow 53 % T < 39 °C \rightarrow 14 %

Table 3: Polarization curve-fitting parameters

Parameter	Value
E_0 (V)	1.05
b (V)	$4.01 \times 10^{-2} - 1.40 \times 10^{-4} T$
R (k Ω cm ²)	$4.77 \times 10^{-4} - 3.32 \times 10^{-6} T$
m (V): $T \geq 39$ °C	$1.1 \times 10^{-4} - 1.2 \times 10^{-6} T$
m (V): $T < 39$ °C	$3.3 \times 10^{-3} - 8.2 \times 10^{-5} T$
n (cm ² mA ⁻¹)	8.0×10^{-3}

Table 4: Heating characteristics of the fuel cell stack.

Current (A)	44	50	100	172	Ref. [4]
hA (W K ⁻¹)	19	22	27	35	5–50
MC (kJ K ⁻¹)	—	35	39	—	35

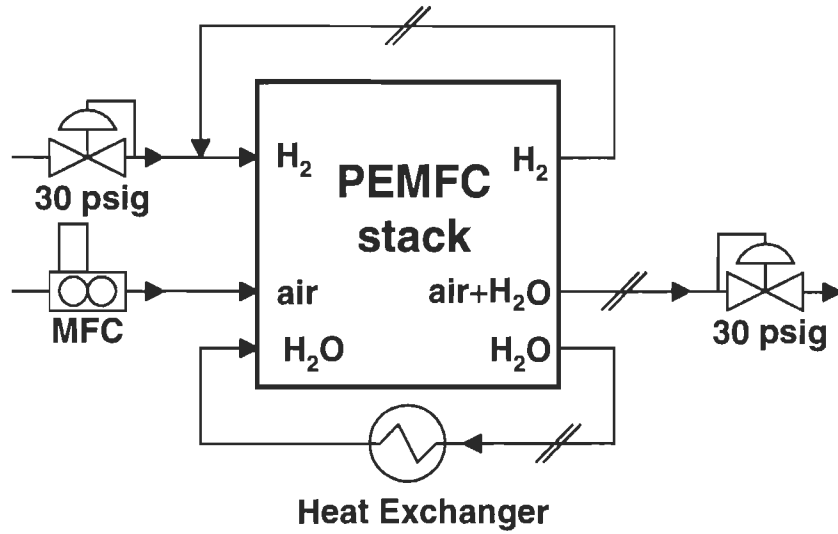


Fig. 1: Diagram of the PEMFC stack system.

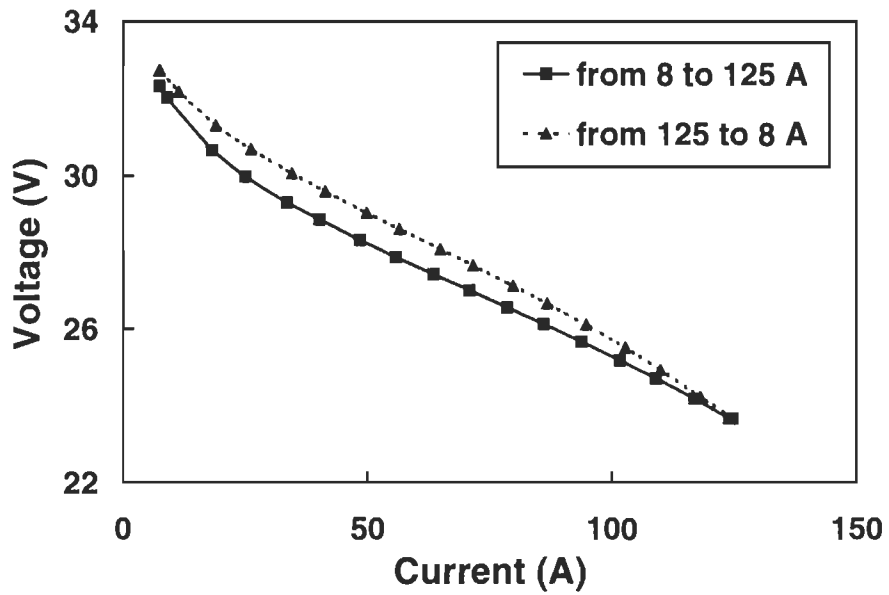


Fig. 2: Hysteresis of the polarization curve measurements.

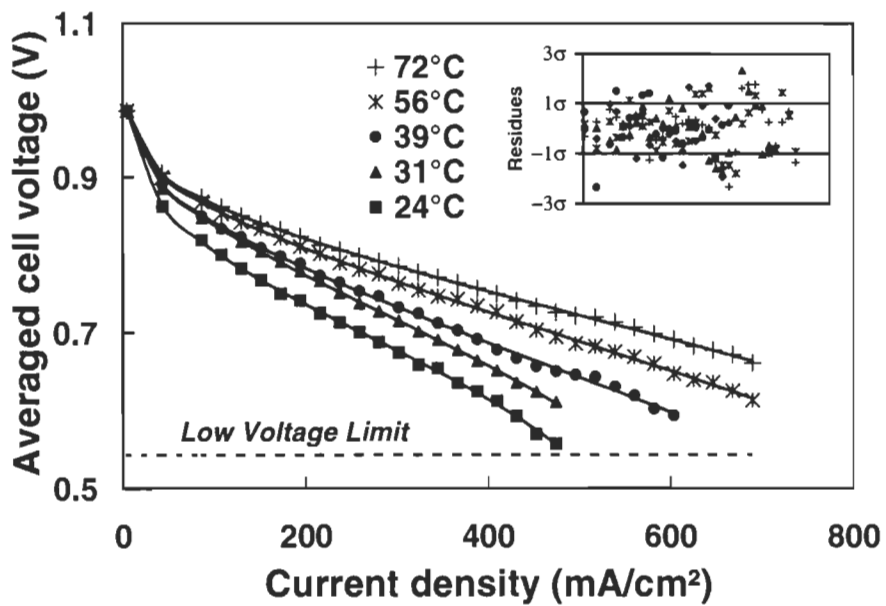


Fig. 3: Polarization curves for different temperatures.

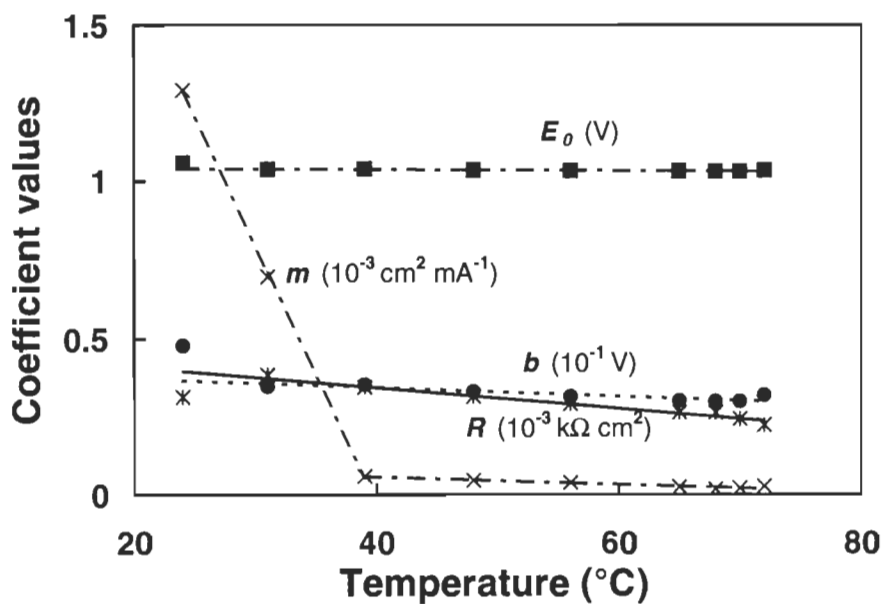


Fig. 4: Polarization curve coefficients vs. temperature.

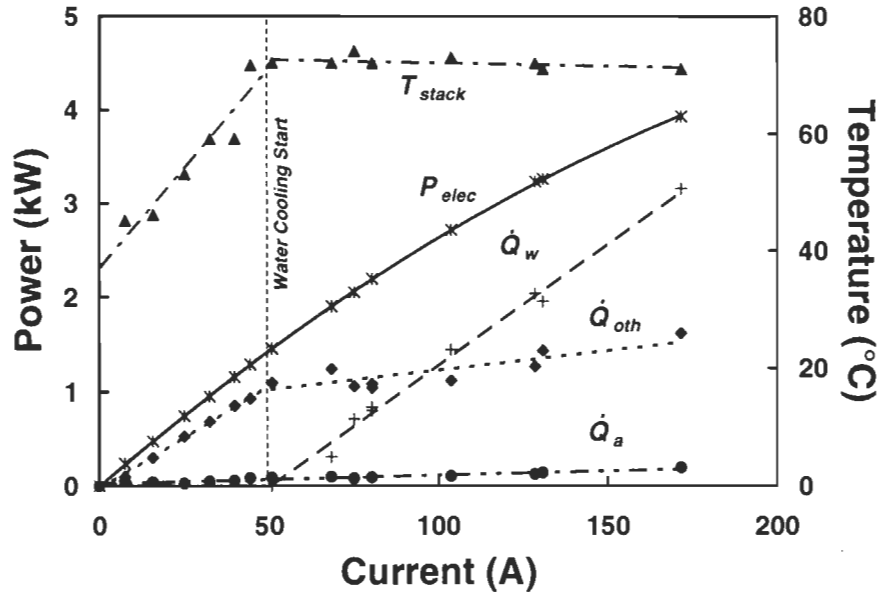


Fig. 5: Electrical power and thermal losses vs. current.

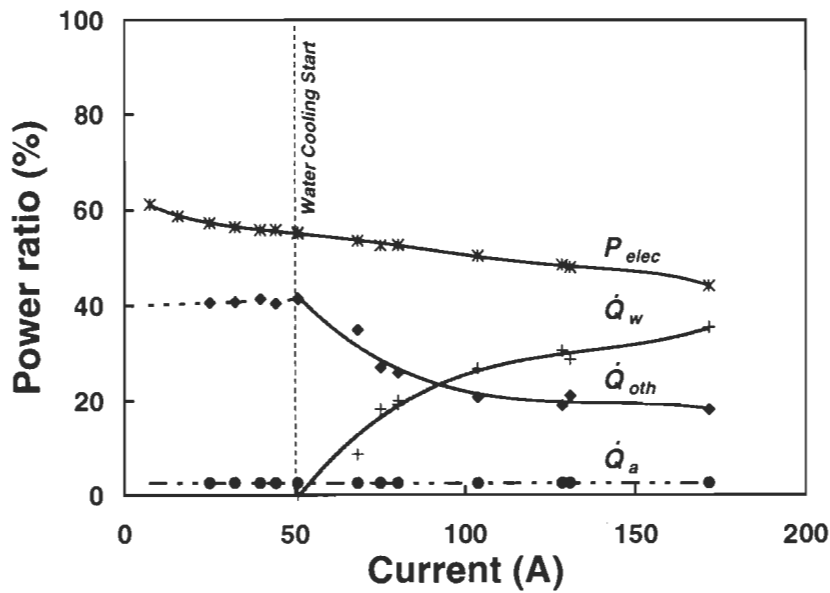


Fig. 6: Efficiency and power loss ratios.

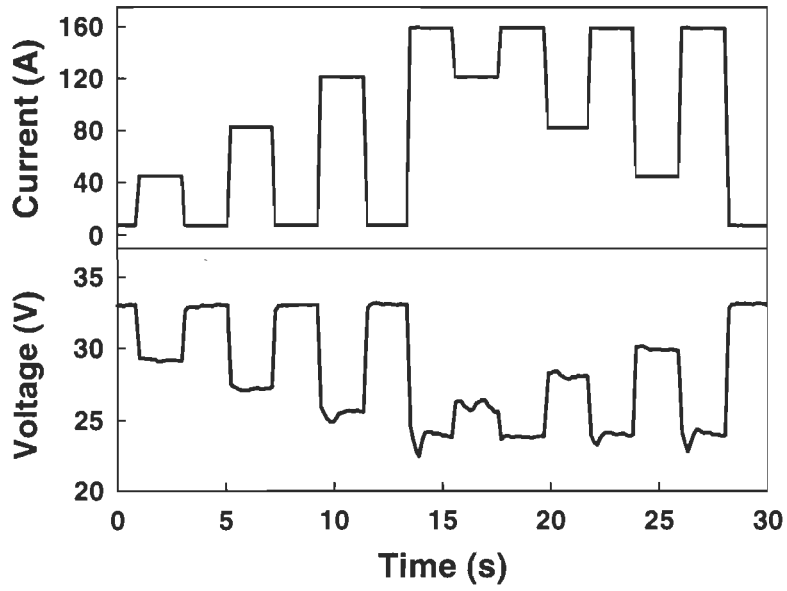


Fig. 8: Polarization curve corresponding to the load switching of Fig. 7.

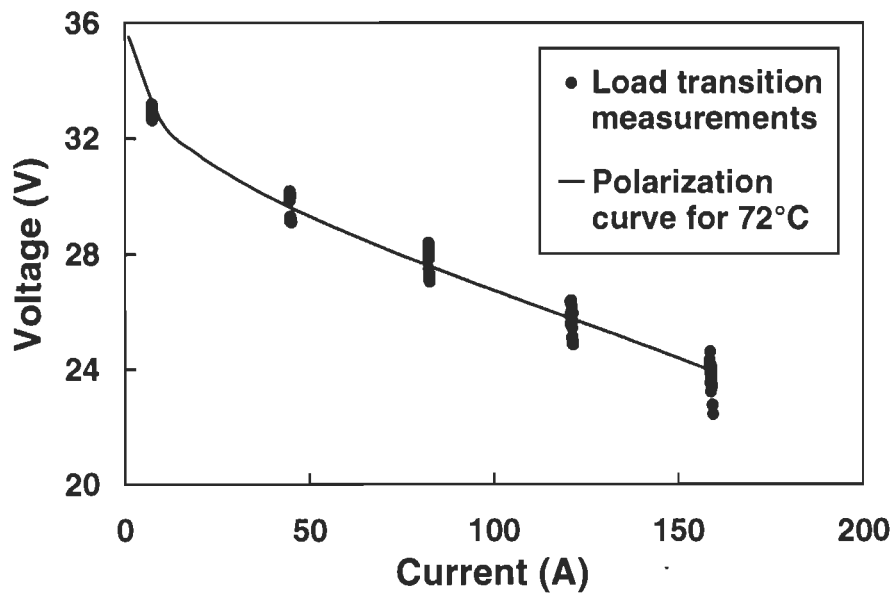


Fig. 7: Current & voltage under a series of load switching.

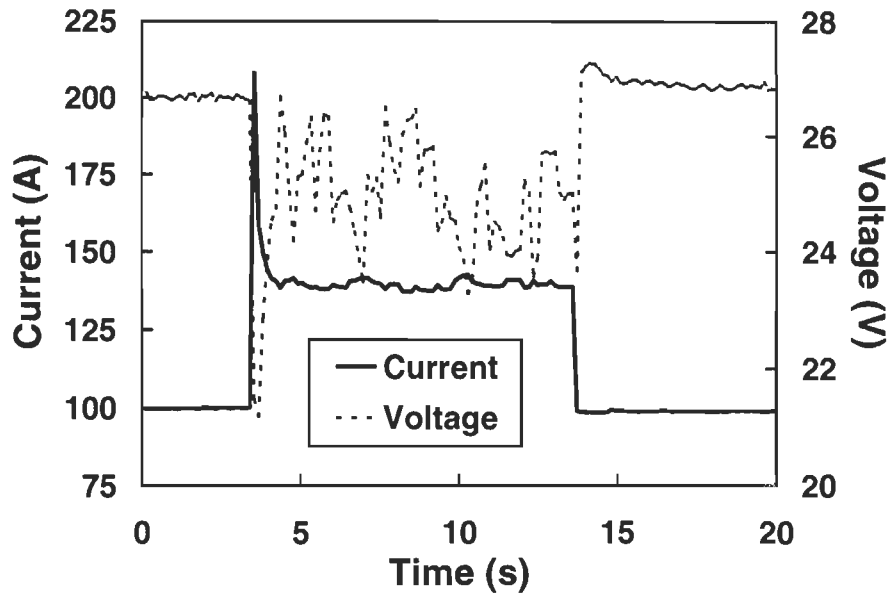


Fig. 9: Current & voltage transients and noise under a DC + AC load.

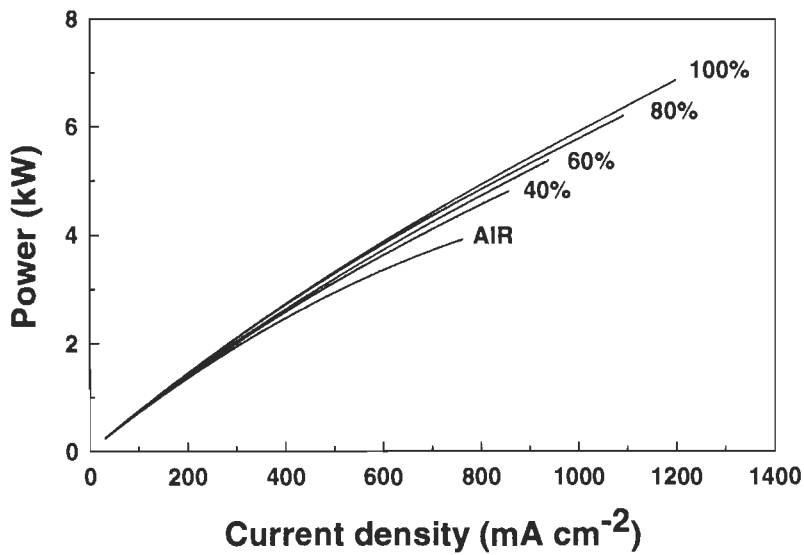


Fig. 10: Stack power vs. current density for different oxygen concentrations in the oxidant.

3.6 Conclusion

Nous avons validé nos mesures de la courbe de polarisation avec un modèle basé sur les principales pertes des piles à combustible, à savoir la surtension d'activation, la perte ohmique et la limite du transport de masse. Pour chaque température, l'équation du modèle représente bien le comportement tension-courant de la pile (coefficient de détermination $R^2 > 0.99$). Nous avons constaté que toutes les pertes sont amplifiées lorsque la température est basse (~ 24 °C) par rapport à la température nominale de fonctionnement qui est entre 60 et 80 °C. Un surprenant accroissement de limite du transport de masse à des températures inférieures à 39 °C a été observé. Effectivement, dans cette région, le coefficient associé à cette perte augmente d'un facteur 20. Un ralentissement de la cinétique de réaction de l'oxygène à la cathode à basse température en est partiellement responsable. La chute de tension de la pile à basse température empêche de produire des courants plus hauts que 120A.

Le bilan énergétique nous a permis de délimiter la plage de courant où la pile a une bonne efficacité sur les plans thermique et électrique dans des conditions stables, en régime permanent. Il faut un courant de près de 50A pour permettre à cette pile d'atteindre sa température optimale de fonctionnement de ~ 72 °C. Avec un courant supérieur, la température élevée rend nécessaire l'usage du système de refroidissement à eau.

À très bas courant (8 A), la pile a une efficacité de 60 %. À 100 A et plus, l'efficacité est environ de 45 %; les 55 % restants sont convertis en chaleur qui est soit absorbée par le système de refroidissement (35 %), rejetée dans l'environnement par convection (18 %) ou évacuée à même le flot d'oxydant (2 %). À la puissance nominale, correspondant à un courant de 175A, 4 kW d'électricité sont produits, 3 kW de chaleur sont récupérés par le système de refroidissement et plus de 1.5 kW s'échappe par convection.

La puissance nécessaire au contrôleur de la pile pour pomper l'eau de refroidissement, faire circuler l'hydrogène, ouvrir des valves et activer des ventilateurs est de ~200 W. Cette puissance représente une perte d'efficacité de 3 % à la puissance nominale mais de 15 % lorsque la pile produit seulement 1500 W (courant de 50 A). Ainsi, entre 50 et 170 A et en considérant la puissance consommée par le contrôleur, la pile a une efficacité de conversion en électricité utile à la charge d'environ 40%, comparable à celle d'un moteur à combustion interne connecté à un générateur de courant. Une autre perte est due à la compression de l'air. Ce dernier est comprimé à 3 atm et constitue une dépense supplémentaire d'énergie.

Même si la pile supporte mal une puissance supérieure à 4 kW, elle peut quand même atteindre de pics de puissance de 5 kW. Elle supporte bien le bruit produit par un onduleur mais elle présente un délai de stabilisation de ~ 1 s après un saut brusque de courant, durant lequel sa tension baisse d'environ 6 % de sa valeur en condition stable.

4. DISCUSSION ET CONCLUSION

Ce mémoire fait la synthèse de la caractérisation de deux appareils qui semblent bien différents mais possèdent pourtant plusieurs caractéristiques communes. On pourrait dire que ces appareils sont complémentaires : la décomposition électrochimique de l'eau dans l'électrolyseur est en effet la réaction inverse de la synthèse de l'eau dans la pile à combustible. L'électrolyte alcalin de l'électrolyseur sert de «pont» pour transporter les ions à travers l'eau. Dans la pile à combustible PEM, ce sont les ions SO_3^- implantés dans la membrane qui jouent ce rôle.

Le taux d'hydrogène dans l'oxygène produit par l'électrolyseur est de 0.5 % et le taux d'oxygène dans l'hydrogène produit est de 0.3 %. Ces deux taux sont inférieurs aux limites d'inflammabilité, soit respectivement 4 % et 5 %. Par ailleurs, l'hydrogène filtré est d'une qualité semblable à l'hydrogène standard UHP (Ultra High Purity) produit par l'industrie : il a une pureté de 99.997%, ce qui est suffisant pour faire fonctionner la pile à combustible.

L'efficacité de l'électrolyseur a été décomposée en efficacité de tension et en efficacité de courant (de Faraday). Dans un électrolyseur alcalin fonctionnant à basse température (< 100 °C), très peu de chaleur participe à la réaction et elle ne parvient pas à compenser le changement d'entropie. Ainsi, nous avons mesuré des efficacités de tension entre 70 et 87 %. L'efficacité de tension augmente en fonction de la température mais diminue en fonction du courant. L'efficacité de courant mesurée (de 90 %) est comparable à celle d'autres électrolyseurs alcalins. Il nous est difficile de comparer la courbe de polarisation de notre électrolyseur à celles d'autres électrolyseurs, car la compagnie *Stuart Energy* ne nous a pas informé sur la superficie des électrodes. L'efficacité des cellules d'électrolyse (le produit des efficacités de tension et de

courant), de 63 à 75 %, est décevante comparativement aux valeurs citées dans les références, certaines atteignant 92 %. L'énergie nécessaire pour comprimer le gaz est élevée (3 kW). Cette dépense d'énergie serait évitée avec un électrolyseur à haute pression (pouvant aller jusqu'à 30 atm). Aussi, la perte d'énergie dans le système de contrôle et dans le redresseur représentant 4.5 % pourrait être considérablement réduite si l'électrolyseur était alimenté directement en courant continu, sans passer par un redresseur.

Le comportement de l'électrolyseur peut être modélisé par des fonctions simples du courant et de la température. D'après nos mesures, le débit d'hydrogène produit par l'électrolyseur à 60 °C est directement proportionnel à la puissance électrique fournie aux cellules (0.193 m³/kWh). Par ailleurs, pour un courant fixe de 100 A, l'efficacité d'un groupe de cellule est une fonction linéaire de la température. D'autres mesures seraient souhaitables pour couvrir tout le domaine des courants et des températures.

En 1993, la pile à combustible que nous avons testée représentait la fine pointe de la technologie. Ses courbes de polarisation, que nous avons modélisées par une équation simple, sont représentatives des piles à combustible PEM. Des générations plus récentes de piles produisent la même puissance avec des électrodes contenant moins de platine. Ces piles occupent un espace plus restreint et font une meilleure gestion de l'eau (humidification de la membrane et évacuation de l'eau produite). C'est pourquoi les pertes ohmiques et de transport sont donc plus faibles dans les piles plus récentes.

Dans une pile à combustible, l'énergie convertie en électricité est limitée à l'énergie libre, soit à une efficacité théorique de 83 %. Notre pile à combustible a une efficacité de conversion en électricité de 67 % à courant faible et de 45 % à courant élevé. Cependant, toute cette électricité ne peut être envoyée à la charge car 200 W sont nécessaires au contrôleur. Cela représente 3 % de l'électricité produite à haute puissance mais la totalité de la production à 8 A. L'efficacité électrique, si l'on considère seulement l'électricité qui alimente la charge, est d'environ 40 % sur

une grande plage de courant entre 50 et 170 A. Le contrôleur consomme plus d'énergie que nécessaire lorsque le courant est bas. En effet, l'eau de refroidissement circule à grand débit (11.3 L/min) même lorsque la température ne justifie pas de refroidissement. Il en est de même pour le débit de la boucle de circulation de l'hydrogène car celui-ci est aussi constant à 35 L/min.

La chaleur récupérée par le système de refroidissement, qui augmente proportionnellement au courant à partir de 50 A, atteint 4 kW à 170 A. Par ailleurs, la chaleur perdue par convection par la pile augmente entre 0 et 50 A, mais demeure autour de 1.5 kW entre 50 et 170 A. Considérant qu'environ la moitié de l'énergie contenue dans l'hydrogène est convertie en chaleur, il est important de trouver des applications à cette chaleur générée.

Deux applications thermiques pourraient être envisagées dans le contexte de l'usage résidentiel d'une pile à combustible. La bâtisse pourrait être chauffée par la chaleur perdue par convection par la pile à combustible. Par ailleurs, la chaleur récupérée par le système de refroidissement de la pile pourrait contribuer au chauffage de l'eau domestique jusqu'à environ 60 °C. La quantité de chaleur produite par la pile dépend de son régime de fonctionnement. À bas régime, la pile produit peu de chaleur. Il serait avantageux d'isoler la pile pour qu'elle conserve mieux sa chaleur et puisse alors atteindre une plus grande efficacité. Plus de chaleur devrait alors être récupérée par le système de refroidissement.

La pile répond bien aux changements brusques de charge malgré une chute de tension temporaire durant moins d'une seconde. Connecter des batteries à la sortie de la pile comporte plusieurs avantages en plus d'absorber les transitions de charge. D'abord, les charges nécessitent habituellement une tension DC fixe. Par exemple, notre onduleur (convertisseur DC-AC) accepte une tension située entre 22 et 30 V. Lorsque la tension de la pile déborde cet intervalle, l'onduleur cesse de fonctionner et la charge AC est donc déconnectée. Un autre avantage est de pouvoir utiliser la pile seulement dans un régime de haute puissance, où

l'énergie dépensée par le contrôleur est moins significative et où la chaleur récupérée par le système de refroidissement devient plus importante et utilisable.

L'utilisation d'un électrolyseur et d'une pile à combustible dans le contexte d'un stockage temporaire de l'énergie est coûteuse au point de vue de l'efficacité. L'efficacité combinée de notre électrolyseur et de notre pile à combustible du point de vue électrique est de :

$$\eta = \eta_{\text{electrolyseur}} \cdot \eta_{\text{pile à combustible}} = \sim 49 \% \cdot \sim 40 \% = \sim 20 \% , \quad (4.1)$$

de sorte que environ 80 % de l'énergie est perdue, surtout en chaleur, par ce moyen de stockage. Calculons l'efficacité d'un tel système dont les composantes ont un rendement supérieur et où l'hydrogène serait stocké sans compression. L'efficacité pourrait atteindre, dans les meilleures conditions :

$$\eta = 89 \% \cdot \frac{1 \text{ V}}{1.482 \text{ V}} = 60 \% . \quad (4.2)$$

Un système qui utilise l'hydrogène comme moyen de stockage de l'électricité pourrait utiliser une pile à combustible réversible (URFC) qui peut fonctionner alternativement à la manière d'un électrolyseur ou d'une pile à combustible. Il existe quelques prototypes dont celui développé par la compagnie *Proton Energy Systems*. Les électrolyseurs à membrane PEM produisent de l'hydrogène pur et à haute pression dès la sortie des cellules.

Le système à énergies renouvelables est encore en voie de développement à l'IRH. Un nouvel électrolyseur alcalin *Stuart Energy* de plus petite taille (5 kW), alimenté en courant continu, a été acquis par l'IRH pour la suite des travaux. Il est alimenté en courant continu. Selon les mesures exécutées à l'IRH par un étudiant de deuxième cycle en génie électrique, Adil Anouar, cet électrolyseur a une efficacité d'électrolyse de 70 % et une efficacité totale de 65 %,

en filtrant et comprimant l'hydrogène à 7 atm. Cet électrolyseur est alimenté en courant continu. Pour permettre à la pile à combustible de recharger les batteries (qui servent surtout à réguler la tension de l'éolienne et des panneaux solaires), un élévateur de tension a été fabriqué. Celui-ci rehausse la tension à 48 V DC. L'ensemble du système sera bientôt opérationnel.

Dans un avenir rapproché, nous pouvons nous attendre à ce que les technologies des énergies renouvelables et de l'hydrogène deviennent de plus en plus présentes là où se trouvaient des technologies polluantes comme les centrales nucléaires ou thermiques et les véhicules à essence, surtout si le prix de ces nouvelles technologies devient attrayant. Des électrolyseurs alimentés par les énergies renouvelables seront de plus en plus fréquemment utilisés dans des applications stationnaires. Les piles à combustible, par contre, peuvent alimenter des applications mobiles. Elles peuvent servir au transport routier, maritime, aérien et spatial. Des mini-piles à combustible au méthanol sont déjà utilisées pour alimenter des téléphones ou des ordinateurs portables. Dans certaines régions qui ne sont pas encore desservies par un réseau d'électricité, l'aspect rébarbatif des énergies traditionnelles polluantes pourrait favoriser l'implantation de systèmes à énergies renouvelables et hydrogène comme celui que nous développons. Notons que le Danemark et la Finlande ont fait un grand pas vers une utilisation rationnelle des ressources naturelles en produisant une partie importante de leur énergie à partir de sources renouvelables (éolienne et géothermique).