

Amélioration des performances et de la fiabilité des unités de génération d'hydrogène par électrolyse

Projet ELHySE — Chaire Régionale d'application Pays de la Loire

Thèse CIFRE : Entreprise COMECA, Le Mans — laboratoire IREENA, Saint-Nazaire

Démarrage : 1^{er} Septembre 2022

Contacts :

COMECA, Jérôme Deniaud, directeur de site : j.deniaud@comeca-group.com

IREENA, Jean-Christophe Olivier, maître de conférences HDR, jean-christophe.olivier@univ-nantes.fr

Résumé — Pour répondre à l'échelle mondiale aux prochaines échéances de transition vers une société décarbonée, l'hydrogène s'avère être un vecteur d'avenir prometteur. Les engagements pris par la commission européenne vont d'ailleurs dans ce sens en visant une puissance installée de production d'hydrogène d'au moins 6 GW à l'horizon 2024, pour ensuite atteindre plus de 40 GW à l'horizon 2030 [1]. Cette montée en puissance se veut graduelle, en ciblant dans un premier temps de la production d'hydrogène à partir d'énergie électrique issue du réseau européen, sans distinction quant à la provenance de cette énergie afin de permettre la maturation industrielle de l'écosystème H₂. Une seconde phase consistera ensuite à favoriser la production d'hydrogène totalement décarboné en l'adossant notamment aux solutions de production d'énergies renouvelables, telles que l'éolien, le photovoltaïque ou la production de biogaz.

L'entreprise COMECA, située au Mans, développe depuis plus de 10 ans des solutions de conversion d'énergie électrique de forte puissance. Une grande part des applications visées porte sur la charge et la décharge de batteries électrochimiques stationnaires ou embarquées, les interfaces de puissance allant de quelques dizaines de kW jusqu'au MW. Très récemment, et du fait des nouvelles directives européennes et nationales, le marché autour de la production d'hydrogène est en pleine croissance, et en particulier dans le développement et la mise en œuvre de solutions à base d'électrolyseurs. Il s'avère que l'entreprise COMECA dispose de toutes les compétences nécessaires au développement de solutions opérationnelles pour l'interfaçage de ces Électrolyseurs stationnaires avec le réseau de distribution, sur une large gamme de puissances. Néanmoins, il existe encore aujourd'hui un certain nombre d'inconnues quant au comportement à long terme de ces dispositifs. Il semble donc important pour les fabricants et intégrateurs de telles solutions de disposer de moyens de suivi et de surveillance de l'état de santé et de performances des Électrolyseurs, afin de disposer d'une part d'un réel retour d'expérience, et d'autre part de pouvoir anticiper certains défauts de fonctionnement et ainsi contribuer à la mise en place d'outils de maintenance préventive.

L'objectif visé par le projet de Chaire est de chercher des solutions de surveillance et de suivi d'état de santé des Électrolyseurs de forte puissance, en s'appuyant au maximum sur les degrés de liberté offerts par le convertisseur de puissance lui-même, afin d'être le moins intrusif possible, tout en restant au plus proche du cœur de la réaction électrochimique. L'expertise de l'IREENA dans le domaine de la modélisation et du diagnostic d'organes électrochimiques complexes, associée à la compétence en électronique de puissance et leur intégration système de COMECA, permettront d'aboutir à des solutions nouvelles et originales dans le suivi de l'état de santé de ces dispositifs de forte puissance.

Mots clés : diagnostic ; électronique de puissance ; hydrogène ; électrolyseur ; contrôle-commande

Définition du sujet et de son contexte

L'hydrogène est aujourd'hui inscrit comme une priorité à l'échelle mondiale pour répondre aux prochaines échéances de transition vers une société décarbonée. Les engagements pris par la commission européenne vont d'ailleurs dans ce sens en visant une puissance installée de production d'hydrogène d'au moins 6 GW à l'horizon 2024, pour ensuite atteindre plus de 40 GW à l'horizon 2030 [1]. Cette montée en puissance se veut graduelle, en ciblant dans un premier temps de la production d'hydrogène à partir d'énergie électrique issue du réseau européen, sans distinction quant à la provenance de cette énergie afin de permettre la maturation industrielle de l'écosystème H2. Une seconde phase consistera ensuite à favoriser la production d'hydrogène vert totalement décarboné en l'adossant notamment aux solutions de production d'énergies renouvelables, telles que l'éolien, le photovoltaïque ou la production de biogaz.

Depuis environ une décennie, de grandes avancées ont en effet été réalisées sur les dispositifs de conversion que sont les électrolyseurs et les piles à combustible. Ces dispositifs, associés à des sources d'énergies renouvelables, permettent de répondre à des problématiques de stockage énergétique tampon et de mobilité décarbonée par le biais du vecteur hydrogène (et de ses dérivés). Ces systèmes de conversion ont connu récemment une augmentation remarquable de leur densité de puissance, de leur efficacité, mais aussi de leur durée de vie. Or celle-ci est un levier essentiel au déploiement économiquement viable de la technologie hydrogène. D'un point de vue plus commercial, cela implique de lever encore plusieurs verrous concernant la fiabilité des piles à combustible et électrolyseurs.

L'intégration d'unités de production d'hydrogène de forte puissance reste relativement aisée dans le cas d'un réseau électrique non décarboné car il autorise des utilisations en mode stationnaire et continu, ce qui représente un mode de fonctionnement favorable pour la durabilité et la fiabilité de ce type de dispositif. En revanche, l'utilisation de telles unités dans le cas d'une production totalement décarbonée pose le problème de la nature intermittente d'un certain nombre de sources de production d'énergie renouvelable (solaire, éolien, hydrolien, ...). De telles solutions imposent donc une réflexion poussée sur sa mise en œuvre pratique, en cherchant à faire fonctionner ces électrolyseurs dans des régimes potentiellement instationnaires. En particulier, un certain nombre de travaux récents démontrent la forte influence d'un cyclage en courant sur la dégradation de cellules d'électrolyseurs, qui se traduit par une baisse des performances énergétiques et donc par conséquent une réduction significative du rendement de conversion électrochimique [2,3].

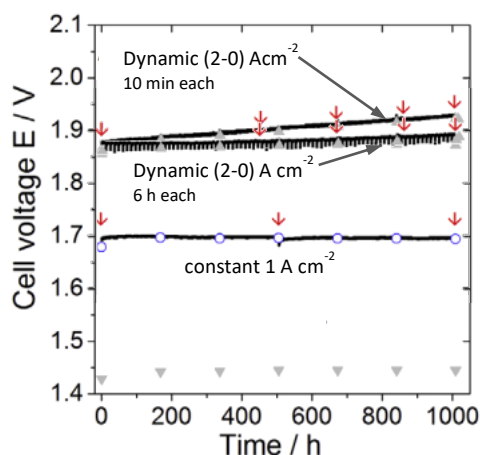


Figure 1 – Illustration de la dégradation de cellules d'électrolyseur PEM soumises à différents modes de fonctionnement [2].

Il s'avère que ces mécanismes de dégradation ne sont pas toujours bien maîtrisés et compris [2], même si un certain nombre d'avancées ont pu être faites du côté des piles à combustible, beaucoup plus étudiées que les électrolyseurs [4-6]. Une réponse possible à la problématique de la fiabilité des électrolyseurs concerne la mise en place de méthodes de diagnostic performantes afin de détecter d'éventuelles chutes

de performances et d'aider à définir des conditions de fonctionnement optimales vis-à-vis de la durabilité du système.

Il est possible de distinguer principalement deux classes de défauts ou dysfonctionnements pouvant survenir dans un système pile à combustible ou électrolyseur. La première concerne ce qu'il est d'usage d'appeler *les dégradations irréversibles*. Elles sont généralement reliées à la détérioration ou à la corrosion des matériaux et apparaissent sur des échelles de temps assez longues (de plusieurs centaines à plusieurs milliers d'heures). Globalement, ces dégradations irréversibles sont associées au concept de vieillissement de l'électrolyseur. Il est donc extrêmement utile d'estimer l'importance de ces dégradations en vue de prévoir le remplacement de tout ou partie du système.

La seconde classe de défauts pouvant survenir regroupe l'ensemble des dégradations dites *réversibles*, principalement liées aux conditions opératoires à court terme du système, et généralement dues à une mauvaise gestion électrique, fluïdique et thermique. La difficulté de la mise œuvre d'un outil de diagnostic performant pour ces défauts repose sur la très grande complexité des phénomènes physiques associés dans les différents composants d'un assemblage.

C'est à ce dernier type de dégradation réversible que nous nous sommes intéressés dans de récents travaux associant les laboratoires IREENA et LTEN [7-8]. Ces travaux qui portaient sur des piles à combustible, se sont orientés vers les problématiques de diagnostic par impédancemétrie, aussi appelée spectroscopie d'impédance. Le principe de cette méthode, illustrée à la Figure 2, est de reconstruire le spectre d'impédance complexe d'une cellule grâce à la superposition en sortie d'un faible courant électrique de fréquence variable. L'originalité de la démarche proposée est de recourir à un modèle multi-physique et semi-analytique rapide, basé sur les équations physiques du transport et du transfert de charges et d'espèces, et qui à partir d'un jeu réduit de paramètres physiques, est capable de reproduire le comportement fréquentiel d'un ensemble de cellules mises en série. Utilisé comme problème direct dans un processus d'inversion, il a été montré dans ce travail qu'il était possible de remonter à des signatures caractéristiques de défauts tels que des noyages, des assèchements et des problèmes d'alimentation en air, à l'échelle de la cellule. De plus, le processus de mesure et d'inversion de modèle est réalisé en un temps suffisamment court pour permettre d'anticiper l'apparition de certaines de ces dégradations. Ce travail a pu être validé expérimentalement sur un banc de test.

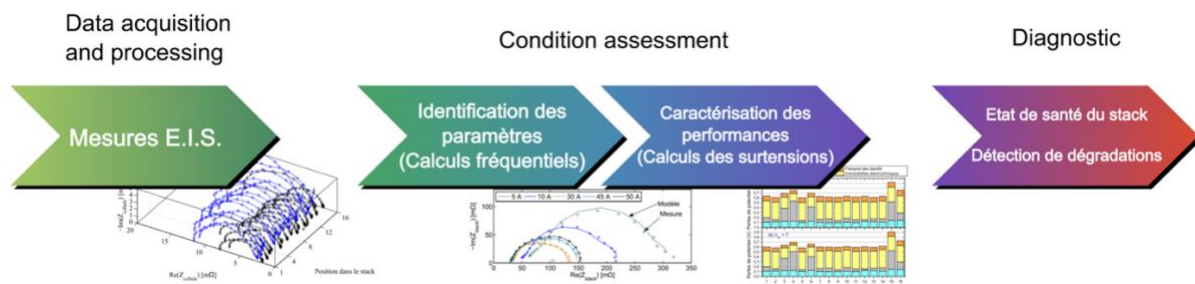


Figure 2 - Étapes du processus de diagnostic par spectroscopie d'impédance (thèse de Stéphane Chevalier).

Mais si la mesure du spectre d'impédance d'une pile à combustible ou d'un électrolyseur est une méthode éprouvée et très riche d'information, elle présente plusieurs inconvénients, et plus particulièrement dans le cadre de son utilisation en ligne. Le premier défaut de cette méthode repose sur la nécessité d'effectuer le balayage en fréquence du spectre en régime stationnaire, c'est à dire à un point de fonctionnement stabilisé de la pile à combustible. Ceci est particulièrement problématique pour des mesures en ligne et *in-situ*, avec des phases de fonctionnement non-stationnaires. De même, un résultat important, issu des travaux réalisés sur ce sujet, est qu'il est impossible d'identifier l'ensemble des paramètres du modèle physique à partir de la mesure du spectre d'un seul point de fonctionnement. En effet, certains paramètres seront sensibilisés à fort potentiel (forte production dans le cas d'un électrolyseur) alors que d'autres nécessiteront de fonctionner à plus faible courant, c'est à dire à faible potentiel, pour pouvoir être estimés.

L'approche multi-spectrale permet de pallier cette problématique mais implique des temps de mesure plus longs et n'est toujours pas compatible avec une implémentation en ligne.

Depuis maintenant plusieurs années, le laboratoire IREENA développe des outils de diagnostic en ligne par une approche à base de modèle d'état dynamiques à temps continu, à multiples entrées et multiples sorties [9]. Le principal intérêt est que leurs paramètres conservent une signification physique exploitable (interprétable) pour le diagnostic et le pronostic du système à surveiller. Les algorithmes à erreur de sortie développés à cette fin permettent par ailleurs l'identification de tout système modélisé par une représentation d'état linéaire ou non par rapport aux entrées et aux paramètres, ce qui est particulièrement intéressant pour les systèmes électrochimiques tels que batterie, supercondensateur et électrolyseurs, qui présentent des comportements entrée/sortie fortement non-linéaires. En contrepartie, leur coût calculatoire est très élevé. Mais l'augmentation de la puissance de calcul des microprocesseurs et microcontrôleurs permet aujourd'hui d'envisager leur utilisation dans des applications d'identification en ligne et en temps réel. Le suivi de l'évolution des paramètres estimés en valeur et en tendance doit donc pouvoir être exploité pour ajuster les algorithmes de contrôle à l'état du système – par exemple pour surveiller les performances d'électrolyseurs. C'est donc dans ce contexte que nous souhaiterions poursuivre ces recherches sur le diagnostic et les appliquer aux systèmes électrolyseurs de forte puissance, en vue de proposer un outil capable de fonctionner en ligne et en régime instationnaire.

L'enjeu est bien ici de proposer une architecture à la fois matérielle et logicielle pouvant s'intégrer aisément à un système électrolyseur commercial, s'appuyant au maximum sur les données mesurées existantes. Une des originalités du projet consisterait alors à s'appuyer sur le convertisseur de puissance, avec ses degrés de liberté mais aussi ses contraintes structurelles, pour faire l'interface de pilotage entre l'électrolyseur et l'outil de diagnostic. En effet, ce convertisseur dispose naturellement un grand nombre de données utiles pour le diagnostic, comme la température, le courant, la tension fournie, etc. Il peut ainsi être envisagé d'utiliser cette interface de puissance comme un élément actif dans le diagnostic, au travers de ses capacités de mesure, de calcul, mais aussi en agissant sur les conditions opératoires de l'électrolyseur pour permettre d'améliorer la capacité de détection de défauts du système. En contrepartie, le convertisseur de puissance, en fonction de son architecture, imposera des contraintes de fonctionnement supplémentaires, telles que l'impossibilité de fonction à trop faible courant (entrée en mode de conduction discontinu de l'étage de puissance), la limitation des dynamiques en tension et courant, en particulier du fait du besoin de filtrage des grandeurs de sortie, et enfin la présence de lignes de raccordement dont les caractéristiques ne seront pas toujours bien maîtrisées ? Le couplage d'une fonction de diagnostic avec l'étage de puissance et sa commande rapprochée est donc aujourd'hui un réel challenge, mais aussi une opportunité et un réel levier pour améliorer la maîtrise des mécanismes de vieillissement et donc la durabilité des électrolyseurs de forte puissance.

Programme scientifique

1) Etude bibliographique (10 mois)

Cette première partie dédiée à l'état de l'art sera décomposée en deux grandes problématiques qui concerneront :

- *Les modèles multi-physiques d'ordre réduit d'électrolyseurs, en vue de leur diagnostic*
- *La synthèse de méthodes de diagnostic de piles à combustible et d'électrolyseurs en ligne*

Dans un premier temps, nous chercherons à identifier les principaux phénomènes physiques en jeu dans le fonctionnement des piles et électrolyseurs. En effet, la littérature est beaucoup plus dense concernant les outils de diagnostic de piles comparé aux électrolyseurs. Ces deux dispositifs étant très similaires dans leur structure et leur fonctionnement, il sera envisagé de s'appuyer dans un premier temps sur les travaux portant sur ces deux organes. Entre autres, nous nous intéresserons au problème de la détection de défauts dus au vieillissement des différents composants formant le cœur des cellules d'électrolyseurs (membrane, catalyseur, collecteurs, ...). Nous essayerons autant que possible de retenir des modèles

suffisamment réduits pour nous permettre d'envisager leur intégration en temps réel sur des systèmes de calcul embarqués standard. Nous pourrions dans cette partie nous appuyer sur le modèle multi-physique développé dans le cadre de précédents travaux du laboratoire IREENA avec le LTEN [7-9]. Dans un second temps, nous regarderons les différentes méthodes de diagnostic des électrolyseurs de type PEM et Alcalin. Nous identifierons dans la littérature les outils existants permettant de faire ce diagnostic dans des conditions de fonctionnement instationnaires. Nous dégagerons ainsi leurs éventuelles limites vis à vis de la capacité de ces outils à être appliqués en ligne et en temps réel. De plus, nous rechercherons des structures d'algorithme compatibles avec la nature de modèle multi-physique, qui sera dynamique en temps et pourra reposer sur une modélisation spatiale 1D ou 2D.

2) Modélisation des électrolyseurs et mise en œuvre de l'outil de diagnostic (12 mois)

Cette deuxième partie traitera de la mise œuvre du modèle multi-physique des électrolyseurs, et de la réduction éventuelle de ce modèle, en vue de l'implanter en temps réel sur un système de calcul embarqué. Nous partirons ainsi des modèles identifiés dans la littérature et déjà développés lors de nos précédents travaux, pour les adapter à l'outil de diagnostic retenu. Compte tenu de la nature multi-physique et fortement nonlinéaire des phénomènes en jeu en cœur de cellule, nous privilégierons un algorithme à erreur de sortie. Il sera également envisagé de comparer cette approche de diagnostic avec un algorithme à erreur d'équation de type filtre de Kalman, qui reposera sur un modèle très simplifié d'électrolyseur. Nous nous référerons cette fois encore aux précédents travaux développés par l'équipe d'encadrement de ce travail [7-9]. Dès cette phase de mise en place de l'outil de diagnostic, nous chercherons à intégrer les spécificités de l'interface d'électronique de puissance, pour que cette dernière puisse être utilisée comme organe de pilotage et de mesure. En particulier, nous chercherons à intégrer la bande passante des différents canaux de mesure, les impédances des filtres passifs et des lignes de raccordement, ainsi que l'influence de l'étage de puissance fonctionnant en commutation sur les capacités de détection de certains des paramètres physiques diagnostiqués.

3) Mise en œuvre et validation expérimentale (8 mois)

Cette troisième partie sera dédiée à la mise en œuvre de l'outil de diagnostic. Cette validation expérimentale s'appuiera sur les ressources matérielles et logicielles de l'IREENA et de COMECA. L'originalité reposera sur l'utilisation de convertisseurs de puissance conçus par la société COMECA et dédiés aux électrolyseurs. Nous chercherons ainsi à être le moins intrusif possible en s'appuyant sur les boucles de régulation et sur les chaînes de mesures existantes. L'outil de diagnostic sera alors intégré directement au cœur de l'unité de calcul de régulation. La validation expérimentale sur un électrolyseur réel de forte puissance sera envisagée, en fonction des moyens disponibles au moment des essais.

4) Rédaction et Valorisation (6 mois)

Un travail de valorisation sera mené en parallèle des trois parties citées précédemment, au travers de la participation à des colloques nationaux et internationaux, à la participation à des GdR et à la publication des travaux dans des revues internationales avec comité de lecture. Les 6 derniers mois seront pleinement consacrés à la rédaction du manuscrit de thèse et à la préparation de la soutenance.

Références

- [1] Powering a climate-neutral economy: Commission sets out plans for the energy system of the future and clean hydrogen, European Commission, Press release, 8 juillet 2020.
- [2] C. Rakousky, U. Reimer, K. Wippermann, S. Kuhri, M. Carmo, W. Lueke, D. Stolten, Polymer electrolyte membrane water electrolysis: Restraining degradation in the presence of fluctuating power, *Journal of Power Sources*, Volume 342, 2017.
- [3] U. Babic, M. Tarik, T. J. Schmidt, L. Gubler, Understanding the effects of material properties and operating conditions on component aging in polymer electrolyte water electrolyzers, *Journal of Power Sources*, Volume 451, 2020.
- [4] L. Vichard, F. Harel, A. Ravey, P. Venet, D. Hissel, Degradation prediction of PEM fuel cell based on artificial intelligence, *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 45, 2020.
- [5] M. Yue, H. Lambert, E. Pahon, R. Roche, S. Jemei, D. Hissel, Hydrogen energy systems: A critical review of technologies, applications, trends and challenges, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Volume 146, 2021.

-
- [6] H. Liu, J. Chen, D. Hissel, J. Lu, M. Hou, Z. Shao, Prognostics methods and degradation indexes of proton exchange membrane fuel cells: A review, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Volume 123, 2020.
- [7] S. Chevalier, B. Auvity, J.C. Olivier, C. Josset, D. Trichet, M. Machmoum, *Detection of Cells State-of-Health in PEM Fuel Cell Stack Using EIS Measurements Coupled with Multiphysics Modeling*. *Fuel Cells*, volume 14, 2014.
- [8] S. Chevalier, J.-C. Olivier, C. Josset, B. Auvity, Polymer electrolyte membrane fuel cell operating in stoichiometric regime, *Journal of Power Sources*, Volume 440, 2019.
- [9] E. Schaeffer, F. Auger, Z. Shi, P. Guillemet, L. Loron. *Comparative Analysis of Some Parametric Model Structures Dedicated to EDLC Diagnosis*. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 63(1), 387-396, 2016.