Zeitschrift: bulletin.ch / Electrosuisse
Herausgeber: Electrosuisse
Band: 95 (2004)
Heft: 24-25

Artikel: Caractéristations locales dans une pile à combustible SOFC
Autor: Ravussin, Frédéric
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-858022

Nutzungsbedingungen
Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation
L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use
The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 15.09.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Caractérisations locales dans une pile à combustible SOFC

Mesures de densité de courant, d'OCV, d'influences et de résistances ohmiques et de polarisation

La complexité et la multitude des phénomènes intervenant dans le fonctionnement des piles à combustible SOFC rendent les expérimentations difficiles et forcent donc à développer des programmes de simulation numérique dans le but de mieux prévoir leur comportement local et global. Ce travail fournit une base de données numériques de caractéristiques locales, telles que les courbes I-V, les OCV (Open Circuit Voltage), les influences entre les zones et les résistances ohmiques et de polarisation, qui contribue à la validation des programmes de simulation grâce à des mesures.

Le domaine des piles à combustible est très actuel. Les enjeux énergétiques de la planète forcent à trouver de nouvelles solutions. La tendance va plutôt vers de multiples sources d'énergie, adaptées à l'utilisation qui en est faite, ainsi que vers une diminution de son gaspillage. Les SOFC (Solid Oxide Fuel Cells – piles à combustible céramique) avec leur rendement élevé et la production de chaleur utile semblent donc pouvoir prendre une place importante dans le gâteau énergétique des prochaines décennies. Elles permettraient une grande production d'électricité et de chaleur centralisée ou décentralisée (cogénération). Leur technologie nécessite encore de nombreux développements. Leur complexité force à développer des programmes de simulation, mais ces derniers ont besoin de validations expérimentales. C'est dans un cadre d'optimisation du design d'un élément de répétition d'une pile à combustible (performance, rendement, fiabilité, alimentation en gaz et gradients de température) et de confrontation avec la simulation numérique (Figure 1) que s'insert le travail de recherche développé ci-dessous. Son originalité tient dans l'innovation de la mesure réalisée. En effet, l'idée de mesures de densités de courant locales dans des piles à combustible n'est pas nouvelle en soi. Cependant, leur réalisation technique dans le cas des SOFC était un défi que ce projet a surmonté. La réussite de ce projet est donc l'obtention d'une réelle base de données numériques de caractéristiques locales exploitables.

Frédéric Ravussin

Le principe des piles à combustible n'est pas nouveau, sa démonstration date de 1839. Les premiers développements de piles à hydrogène n'ont commencé qu'à partir des années 1960 où des programmes spatiaux s'y sont intéressés. Ce n'est que depuis le début des années 1980 que des applications civiles terrestres sont réellement envisagées. L'un des facteurs déterminants de cette évolution est la prise de conscience des problèmes climatiques et de la nécessité de réduire les émissions de CO_2 (à ce jour 110 pays ont ratifié le protocole de Kyoto visant à diminuer de 8% les valeurs de 1990 d'ici à 2010). D'autres facteurs clés tels que la limitation des réserves en énergies fossiles, les incertitudes de leur approvisionnement, la croissance de la consommation par personne (malgré les nombreuses améliorations technologiques) et l'augmentation de la population, favorisent la recherche dans les nouveaux domaines de l'énergie, tels que les piles à combustible.

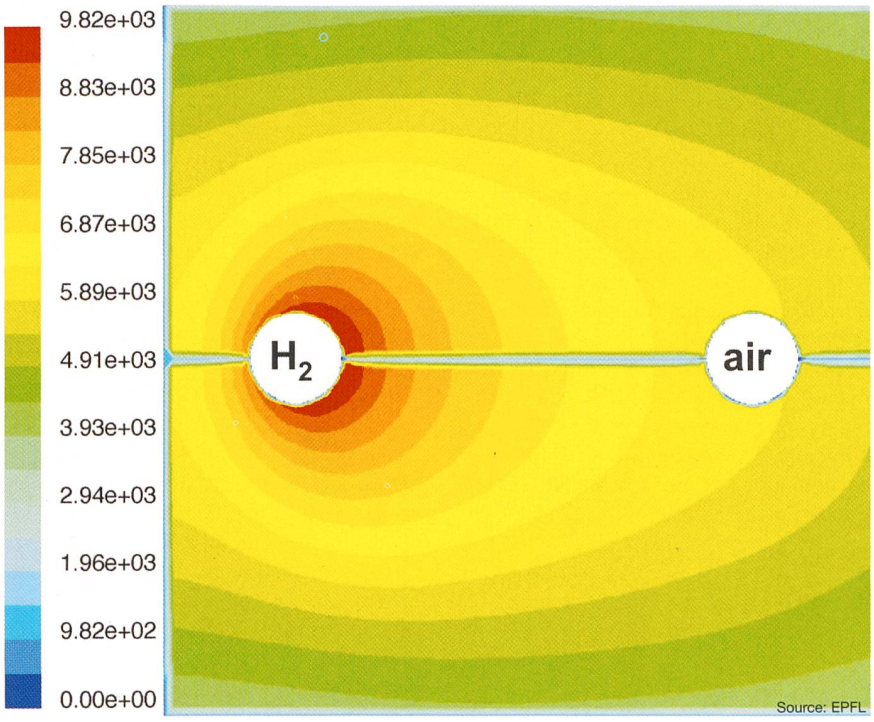

Figure 1 Densité de courant [A/m²] simulée à la surface de la cellule

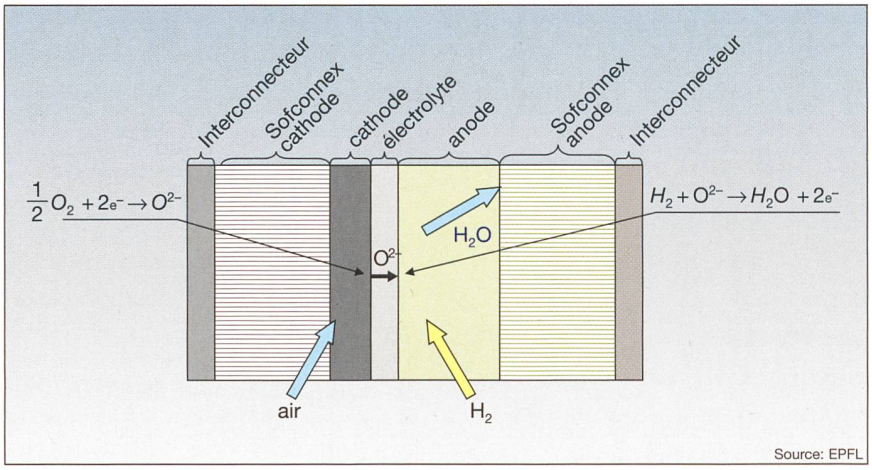

Figure 2 Coupe d'un élément de répétition. Schéma de principe.

Principe de fonctionnement

Les SOFC ont un électrolyte solide conducteur ionique et isolant électronique. La conduction ionique se fait par diffusion (sauts de lacunes) qui est un phénomène activé thermiquement, d'où la nécessité de températures d'opération de l'ordre de 800 °C. Les électrodes sont poreuses, permettant ainsi l'accès des gaz vers l'électrolyte. C'est à l'interface cathode-électrode que l'oxygène est ionisé selon la réaction électrochimique:

$$\frac{1}{2}O_2 + 2e^- \rightarrow O^{2-} \qquad (1)$$

Les ions d'oxygène O^{2-} traversent ensuite l'électrolyte vers l'anode où a lieu la réaction d'oxydation :

$$H_2 + O^{2-} \rightarrow H_2O + 2e^- \qquad (2)$$

Les gaz sont amenés aux électrodes grâce à deux couches de distribution en Sofconnex[1)], propre au développement de l'entreprise suisse HTceramix SA établie à Yverdon. La récolte du courant et son transport vers les fils se fait ensuite par les interconnecteurs (plaques en acier de faible coût).

Un développement théorique thermodynamique permet de prédire la tension induite dans la cellule lorsque celle-ci est alimentée en combustible (à l'anode) et en comburant (l'air, à la cathode). Soit l'équation de Nernst :

$$U_{Nernst} = -\frac{\Delta G_0(T)}{2 \cdot F} + \frac{R \cdot T}{2 \cdot F} \cdot \ln\left(\frac{P_{O_2}^{\frac{1}{2}} \cdot P_{H_2}}{P_{H_2O}}\right) \qquad (3)$$

Où

$\Delta G_0(T)$ = énergie libre standard de GIBBS = 190 000 J · mol^{-1} à 800 °C

F = constante de Faraday (charge équivalente à 1 mole d'électrons) = 96 485 C · mol^{-1}

R = constante des gaz parfaits = 8,3143 J·K^{-1} · mol^{-1}

P_i = pression partielle du gaz i

Sous les hypothèses que P_{O_2} = const = 0,21 (excès d'air), $P_{H_2O} + P_{H_2} = 1$ (conservation) et que T est homogène sur l'élément de répétition (une seule cellule dans un four), il est possible de représenter le potentiel de Nernst en fonction seulement de la pression partielle d'hydrogène ou de vapeur d'eau.

Une segmentation de l'élément de répétition simple en 8 segments est choisie. Elle permet une bonne délimitation des zones principales (alimentation, sortie, coins). La segmentation est réalisée du côté cathode, au niveau de la cathode, du Sofconnex et de l'interconnecteur.

L'alimentation en hydrogène se fait au segment 2 et l'évacuation se fait du côté de l'élément de répétition où se trouvent les segments 6, 7 et 8. L'air entre au niveau du segment 7 et sort du côté de l'élément de répétition où se trouvent les segments 1, 2 et 3. L'écoulement est donc à flux opposés.

Résultats

Les caractéristiques I-V de chaque segment sont réalisées à trois flux d'hydrogène (180, 260 et 400 ml/min, pour 50 cm^2 de surface active) et deux températures (750 et 800 °C). Un appareil procède simultanément à l'acquisition de l'évolution du potentiel des autres segments.

L'analyse des courbes I-V montre une meilleure performance du segment 2, suivi du segment 7. Une dissymétrie de la performance apparaît selon l'axe de symétrie de la cellule (segments gauches 1, 4 et 6 et segments droites 3, 5 et 8). Finalement, une limitation dans l'exploitation du segment 1 est observée (courbure à densité de courant élevée). Ces premières mesures permettent déjà de saisir l'importance de la qualité de l'alimentation.

La représentation de la pente des courbes I-V en fonction du flux d'hydrogène et de la température montre une homogénéisation de la performance des segments avec une augmentation du flux (alimentation plus homogène et plus abondante) ou avec l'augmentation de la température (cinétique des réactions de ionisation, d'oxydation, de saut de lacunes et de diffusion gazeuse, augmentée).

D'autre part, l'analyse de la pente des courbes I-V confirme la dissymétrie des performances selon l'axe de symétrie de la cellule.

La Figure 5 montre une augmentation des OCV (tension à circuit ouvert) avec une augmentation du flux. Cette dépendance qui n'est pas prévue par l'équation de Nernst montre l'existence de fuites. Soit de l'hydrogène peut s'échapper par

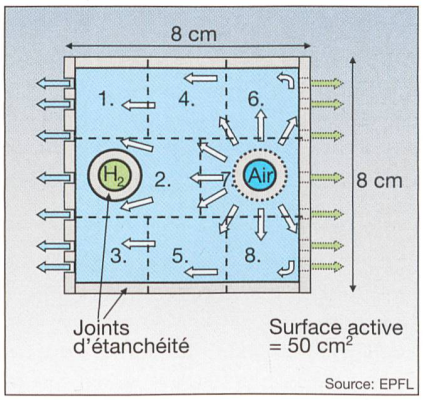

Figure 3 Schéma de la chambre cathodique de l'élément de répétition

La chambre anodique est identique de l'autre côté, mais inversée (hydrogène en vert). La numérotation des segments est également représentée.

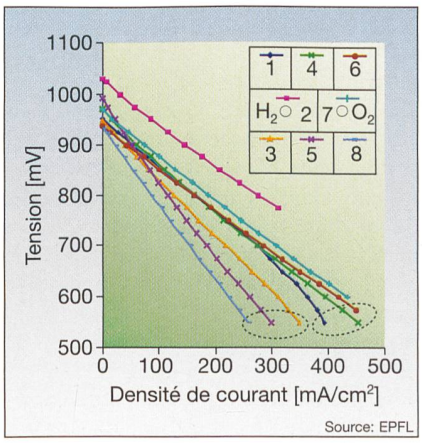

Figure 4 Courbes I-V des huit segments [Flux H_2 = 260 ml/min, T = 800 °C et I_{tot} = 4 A]

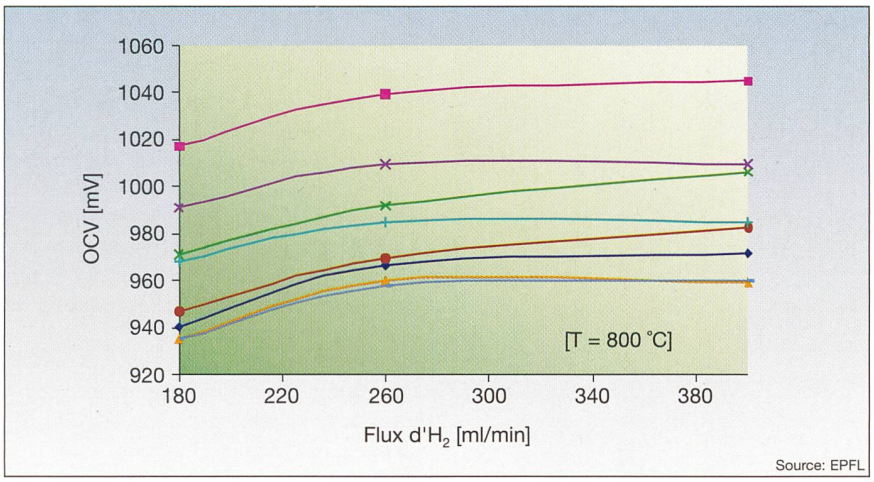

Figure 5 Evolution des OCV (Open Circuit Voltage) avec une augmentation du flux d'hydrogène [T = 800 °C]

les joints, générant ainsi des combustions parasites qui créent de la vapeur d'eau qui va pouvoir diffuser dans la cellule, ou à l'inverse, de l'air peut entrer dans la cellule et directement générer de la vapeur d'eau dans la cellule (ce qui diminue le potentiel de Nernst). Lorsque le flux augmente, ces phénomènes de fuites, inévitables à ces températures élevées, diminuent. Cependant, en augmentant le flux, le rendement électrique diminue, dû à une moindre fraction de combustible convertie en courant (fuel utilisation).

$$f.u. = \frac{I}{\Phi \cdot 2 \cdot F} \qquad (4)$$

Où

ϕ = flux d'hydrogène [mole · s^{-1}]
I = courant total [A]

La représentation de l'évolution des OCV de tous les segments lorsque du courant est tiré dans un segment, montre l'influence qu'a l'exploitation de ce segment sur les autres. Le vecteur de cette influence est principalement le flux qui transporte la vapeur d'eau générée au niveau du segment actif (par exemple, influence du segment 1 sur le segment 4). Il est également possible d'observer des phénomènes de transport de vapeur d'eau par diffusion (par exemple, influence du segment 1 sur le segment 3).

Une mesure de spectrométrie d'impédance permet de séparer les composantes ohmiques et les composantes de polarisation de la résistance de chaque segment de l'élément de répétition. La composante ohmique dépend du matériau et des contacts uniquement. Les mesures montrent une variation importante d'un segment à l'autre, ou plus globalement, la dissymétrie déjà observée. Ces variations viennent certainement de défauts de contact générés lors du montage. Il serait donc possible, pratiquement, d'avoir pour tous les segments la composante ohmique la plus faible. La composante de polarisation dépend elle de la qualité de l'alimentation en gaz. Il est donc logique de retrouver la résistance de polarisation la plus faible au segment 2, qui est le segment où se trouve l'alimentation en hydrogène.

Le fait que deux techniques de mesure totalement différentes (résistances mesurées par la pente des courbes I-V et résistances mesurées par spectrométrie d'impédance) donnent les mêmes résultats confirme que la dissymétrie (qui n'était pas attendue) est bien réelle.

Finalement, la comparaison de la caractéristique I-V globale de l'élément de répétition segmenté avec d'une part son équivalent non segmenté et d'autre part la simulation numérique, présente une bonne correspondance dans les deux cas. Ceci valide et renforce encore tous les résultats obtenus.

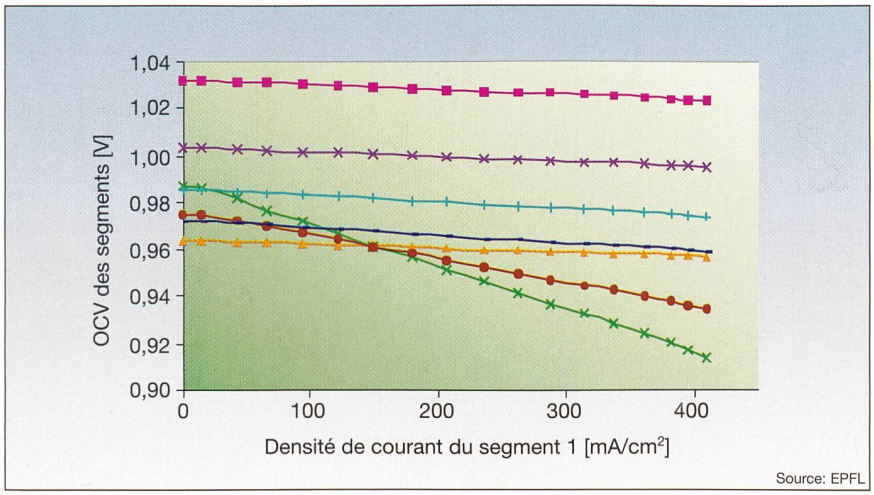

Figure 6 Mesure d'influence du segment 1

Evolution des OCV (Open Circuit Voltage) avec une augmentation de la densité de courant tirée au segment 1 [Flux H_2 = 180 ml/min et T = 800 °C]

Conclusion

La première difficulté de ce travail était sa réalisation expérimentale ainsi que le caractère nouveau d'une telle mesure. La série de choix judicieux qui ont été faits a permis au projet de fonctionner avec succès et de donner une réelle base de données numériques exploitable d'un élément de répétition SOFC segmenté. Deux mois après sa mise en service, l'exploitation de la cellule continuait et a exploré pendant encore un mois des régimes de température (700 et 850 °C) et de flux (150 mlH_2/min) plus critiques.

Grâce à la segmentation, il a été possible de caractériser la performance des différentes régions de la cellule. Le segment 2 montre une meilleure caractéristique (principalement OCV) que les autres et les segments 1 et 3 montrent des limitations dans leur alimentation, particulièrement à bas flux. Il a également été observé une homogénéisation des performances avec l'augmentation du flux ou de la température. Les mesures d'influences entre segments permettent de bien comprendre les phénomènes de transport (par le flux ou la diffusion) de la vapeur d'eau dans la chambre anodique. La spectrométrie d'impédance met en évidence des résistances ohmiques surfaciques différentes d'un segment à l'autre. La résistance ohmique ne dépendant que des matériaux, cette différence est principalement attribuée à des problèmes de contact (planarité). Les mesures des résistances de polarisation confirment la bonne alimentation des segments 2 et 7 et le défaut d'alimentation des segments 1 et 3. Finalement, les mesures de la résistance totale par spectrométrie d'impé-

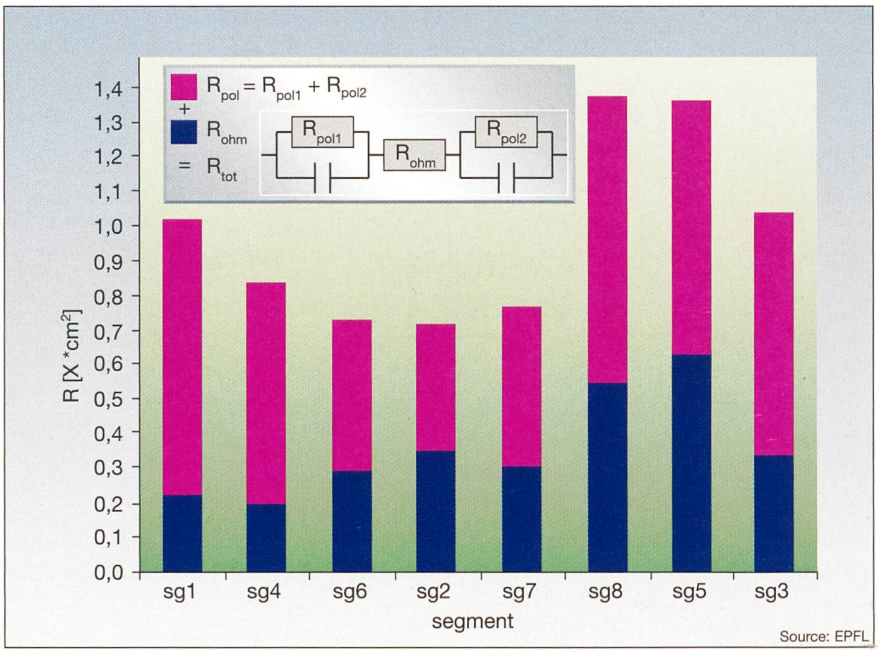

Figure 7 Représentation des résistances ohmiques et de polarisation des huit segments et schéma équivalent de la coupe de l'élément de répétition valable pour chaque segment [Flux H_2 = 260 ml/min et T = 800 °C]

dance montrent une excellente correspondance avec les pentes des courbes I-V, ce qui renforce les résultats.

L'analyse post mortem de l'élément de répétition n'a donné aucune certitude quand à l'origine de la dissymétrie des performances des segments. C'est donc l'hypothèse de défauts dans les contacts (principalement cellule-Sofconnex) qui est conservée.

Perspectives

L'analyse de tous les résultats laisse envisager plusieurs perspectives, pour améliorer soit l'expérience, soit la performance de l'élément de répétition en vue d'une industrialisation:

Il s'agirait d'augmenter le nombre de segments (p.ex. 12, voire 16) pour avoir une meilleure résolution et d'adapter la géométrie à des phénomènes ou effets que l'on désire mesurer ou observer. Par exemple des segments étroits dans les bords pour observer les fuites ou vers la sortie pour mesurer la rétrodiffusion ou encore de petits segments dans les coins pour mieux comprendre les problèmes de sous-alimentation.

Finalement, en vue d'augmenter la performance et le rendement de l'élément de répétition, il serait possible de modifier la géométrie de la couche d'alimentation Sofconnex afin d'optimiser l'acheminement des gaz et d'augmenter le temps de résidence. Le rapport entre la surface d'échange et la surface de contact pourrait être optimisée en fonction de l'éloignement entre le point considéré et l'entrée des gaz. Il serait également important de soigner le montage afin de minimiser les pertes de transport dues à de mauvais contacts et de bien placer l'alimentation des gaz de manière à avoir une répartition des flux symétrique selon l'axe de la cellule.

Informations sur l'auteur

Frédéric Ravussin, Ing. phys. dipl. EPFL (mars 2004), a actuellement un mandat chez B. Braun Medical AG en tant que chargé de projet. Le travail de recherche décrit dans cet article a été réalisé dans le cadre de son travail de diplôme au sein du Laboratoire d'Energétique Industrielle (LENI) à l'EPFL. Le travail a été présenté comme poster au dernier International Symposium of Electrochemistry à Thessaloniki, Grèce (Sep 2004) et comme présentation orale au Annual Solid Oxide Fuel Cell Society Meeting à Tokyo, Japon (Oct 2004). Une publication est en préparation. F. Ravussin est lauréat du Prix de l'Innovation ETG 2004 des Sociétés Spécialisées d'Electrosuisse.
f.ravussin@bluewin.ch

[1] Sofconnex est le nom registré d'un produit

Lokale Untersuchungen an SOFC-Brennstoffzellen

Experimentelle Erprobung der durch Simulationsprogramme erzielten Ergebnisse

Angesichts der Vielfalt und der Komplexität der Vorgänge, die in SOFC (Solid Oxide Fuel Cells)-Brennstoffzellen ablaufen, gestalten sich praktische Experimente schwierig, was die Entwicklung numerischer Simulationsprogramme erfordert, um deren Verhalten im lokalen und im globalen Umfeld besser voraussagen zu können. Diese Arbeit trägt zur experimentellen Erprobung von Simulationsprogrammen durch Messung lokaler Leistungsdaten, wie I/V-Kurven, OCV, gegenseitige Beeinflussung der Zonen, ohmscher Widerstand und Polarisation bei.

alpha A1350.
Der neue Stern am Zählerhimmel.

Elektronischer Drehstromzähler alpha A1350

- für Direkt- oder Messwandleranschluss
- Ausführung gemäss VDEW-Lastenheft V2
- Klasse 2 oder 1 (tws. 0,5)
- integrierbarer Lastgangspeicher
- Logbuch zur Registrierung sämtlicher Ereignisse
- Auslesen der Zählerdaten ohne Netzspannung
- Erfassung der Netzgrössen mit Netzgrössenprofil
- Sicherheitsfunktionen, Manipulationserkennung
- Integrierte Tarifschaltuhr
- bis zu 4 Energie- und Leistungstarife
- Fernauslesbar (CLO, RS485 oder RS232)

Verantwortung heißt, heute die Weichen für morgen zu stellen. Und auch in Zukunft den Anforderungen des Strommarktes gewachsen zu sein.

Der elektronische **Drehstromzähler alpha A1350** wurde für Kleingewerbe und anspruchsvolle Anwendungen im Haushaltsbereich konzipiert. Er ist sowohl für Direkt- als auch Messwandleranschluss lieferbar, entspricht den einschlägigen EN- bzw. IEC-Normen und folgt den Vorgaben des VDEW-Lastenheftes V2 für elektronische Elektrizitätszähler.

ELSTER Messtechnik. Innovativ. Kundenorientiert.
Auf uns können Sie zählen.

- Elektronische Elektrizitätszähler
- Modems zur Zählerfernauslesung
- Rundsteueranlagen
- Rundsteuerempfänger

Wir sind umgezogen

Instromet AG
Verkauf ELSTER Messtechnik
Postfach 6 · Mellingerstrasse 2
CH-5413 Birmenstorf
Telefon +41 (0) 56 210 17 38
Telefax +41 (0) 56 210 17 39
messtechnik@ch.elster.com
www.elstermesstechnik.com

... und haben uns verstärkt

brivus AG
Gewerbestrasse 9
CH-6330 Cham
Telefon +41 (0) 41 741 6586
Telefax +41 (0) 41741 6581
info@brivus.com
www.brivus.com

ELSTER Messtechnik GmbH
Otto-Hahn-Strasse 25
D-68623 Lampertheim
Telefon +49 (0) 62 06 / 9 33-265
Telefax +49 (0) 62 06 / 9 33-292
messtechnik@de.elster.com
www.elstermesstechnik.com

ELSTER

woertz

Hofackerstrasse 47, Postfach 948, CH-4132 Muttenz 1
Tel. 061 466 33 33, Fax 061 461 96 06, www.woertz.ch

KONZEPTE FÜR INNOVATIVE VERBINDUNGS-TECHNIK

mauell
... liefert Lösungen

MAUELL AG
Furtbachstrasse 17
CH-8107 Buchs
Tel. +41 (0)1 847 42 42
Fax +41 (0)1 844 44 56
Internet: www.mauell.ch
E-Mail: info@mauell.ch

Plaut Economics bedankt sich bei allen NeKoV©-Teilnehmern
für die gute Zusammenarbeit und wünscht ein erfolgreiches 2005.

Plaut Economics

Neue Adresse: Plaut Economics · Adlikerstrasse 246 · CH-8105 Regensdorf · Tel. +41 1 871 28 28 · economics@plaut.ch · www.plaut-economics.ch