

Influence des débits  
et pressions sur  
la puissance maximale  
d'une PàC

# Chapitre III

---

## Influence des débits et pressions sur la puissance maximale d'une PàC

### III.1 INTRODUCTION

---

Les générateurs piles à combustibles (PàC), comme nous avons pu le voir au chapitre I, ont des performances qui dépendent fortement des conditions de fonctionnement liées à l'environnement dans lequel ils se trouvent. De plus, le pilotage de ces systèmes demeure délicat en raison du grand nombre de paramètres physiques mis en jeu. De ce fait, il n'est pas simple d'établir des relations entre les causes susceptibles d'avoir de l'influence sur le système (facteurs) et les effets mesurables (réponses), ni de découvrir s'il existe des interactions entre les facteurs.

Dans ce contexte, la théorie des plans d'expériences permet d'atteindre une meilleure connaissance du comportement du système PàC, face aux différents facteurs qui sont susceptibles de le modifier et cela, par un minimum d'essais et avec un maximum de précision.

Nous présentons dans ce chapitre, en guise de première application de la méthodologie décrite dans le chapitre précédent à la PàC, un premier plan d'expériences destiné à étudier l'influence des débits et des pressions des gaz réactifs, hydrogène et air, sur la puissance et le rendement maximaux d'une pile PEM utilisée en mode régulation de pression.

#### III.1.1 PRESENTATION DE LA PILE

Les études présentées dans ce chapitre ont été réalisées sur une pile PEM, de puissance nominale 500W, fournie par le constructeur allemand ZSW. Cette pile est équipée de 20 cellules de 100cm<sup>2</sup>, à membranes Gore (Gore MESGA Primea, série 5510). Le stack fonctionne à pression atmosphérique avec des surpressions dans les compartiments anode et cathode autorisées jusqu'à 500mbar. La pile est alimentée en hydrogène sec et en air humidifié (Tableau III- 1).

Tableau III- 1 : Principales caractéristiques de la pile étudiée

Type	Pile PEM
Puissance nominale de sortie	500W
Plage de puissance	0 à 800W
Courant nominal	50A
Nombre de cellules	20
Surface active par cellule	100cm <sup>2</sup>
Température de fonctionnement	20 à 65°C
Température nominale	55°C
Plage de pression	Max. 1,5bar <sub>absolu</sub> (0.5bar <sub>relatif</sub> )
Alimentation cathode	Air humide (température nominale de rosée de 45°C)
Alimentation anode	Hydrogène pur (sec)
Refroidissement	Eau déminéralisée

### III.1.2 DESCRIPTION SIMPLIFIÉE DES CIRCUITS HYDROGENE ET AIR DU BANC DE TEST

Le banc de test pour PàC 1kW type PEM a été entièrement conçu et réalisé par le Laboratoire de recherche en Electronique Electrotechnique et Systèmes (L2ES) et l'Institut National de Recherche sur les Transports et leur Sécurité (INRETS). Des éléments d'information détaillée du banc d'essai et de ses possibilités peuvent être trouvés dans un certain nombre de rapports et de communications, parmi lesquels : [Har01] [His05]. Nous nous contenterons ici d'une description relativement succincte des circuits hydrogène et air, qui nous intéressent au premier chef dans l'étude de l'impact des débits et pressions des réactifs sur la puissance et le rendement de la pile.

L'hydrogène est détendu et régulé en débit en amont de la pile, à la sortie du circuit de distribution de la plateforme. La pression et la température sont alors mesurées au plus proche avant son admission dans le stack. A la sortie de pile, la température et la pression sont à nouveau mesurées. Une vanne de contre-pression située en aval de la pile (déverseur) permet la régulation de la pression mesurée en amont du stack. Enfin, le débit de sortie est mesuré après le passage du gaz dans un condenseur refroidi avec de l'eau de ville.

Le synoptique du circuit de gestion de l'air est assez similaire à celui de l'hydrogène, sauf en ce qui concerne le système d'humidification et de contrôle de l'hygrométrie (Figure III- 1). Dans le cas où de l'air sec est utilisé, le circuit côté cathode est identique à celui de l'hydrogène.

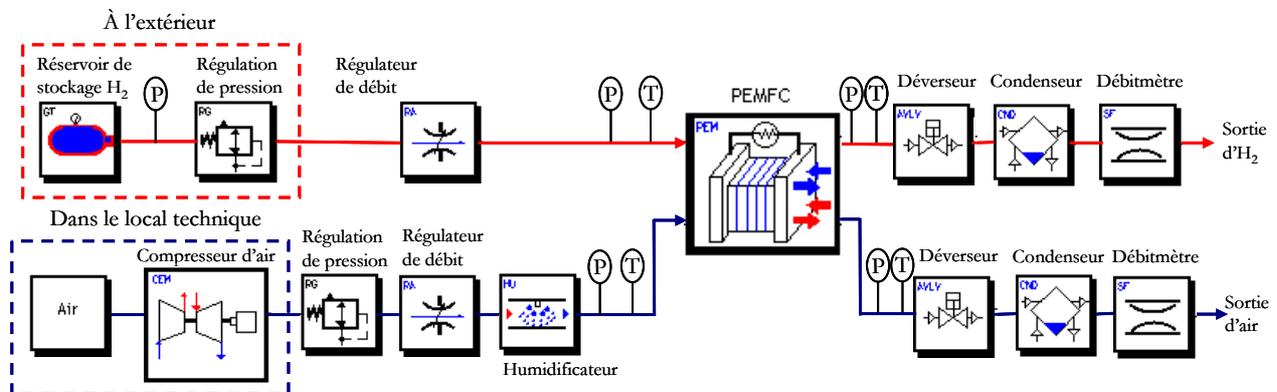


Figure III- 1: Schéma simplifié du banc de test 1kW

## III.2 PLAN FACTORIEL COMPLET

Nous rappelons que l'étude d'un plan factoriel complet consiste à étudier toutes les combinaisons possibles des facteurs pris en considération dans l'expérience. Autrement dit, toutes les combinaisons de toutes les modalités des différents facteurs sont examinées. Le principal inconvénient d'une telle étude réside dans le nombre d'expériences, vite dissuasif lorsque le nombre de facteurs devient important. Cependant, son grand avantage est qu'aucun facteur n'introduit de biais dans le calcul des effets des autres facteurs.

### III.2.1 ETAPE A : DEFINITION DES REPONSES CARACTERISANT LES OBJECTIFS

On souhaite mesurer l'influence des facteurs suivants :

A :  $P_{H_2}$ , pression de l'hydrogène mesurée en amont du stack,

B :  $P_{air}$ , pression de l'air mesurée en amont de la pile,

C :  $D_{H_2}$ , débit massique d'hydrogène mesuré en amont,

D :  $D_{air}$ , débit massique d'air mesuré en amont,

d'une part sur la puissance électrique maximale délivrée par la pile, et d'autre part sur le rendement électrique de la pile pour cette puissance.

#### → La puissance électrique

Pour chaque conversion d'énergie, il est nécessaire de quantifier l'énergie apportée à un système et l'énergie fournie par ce dernier. Dans le cas de la PàC, l'énergie apportée peut être considérée, pour simplifier, comme étant l'énergie chimique contenue dans le gaz hydrogène entrant dans la pile (dans ce cas, l'énergie apportée lors du pré conditionnement des gaz réactifs ou pour le circuit de maintien en température de la pile n'est, par exemple, pas pris en compte). L'énergie fournie par la pile est la somme des énergies thermique et électrique délivrées. L'énergie électrique est facile à quantifier. Le produit du courant de pile ( $I_{stack}$ ) par la tension mesurée aux bornes du stack ( $U_{stack}$ ) permet en effet de calculer la puissance électrique ( $P_{el}$ ).

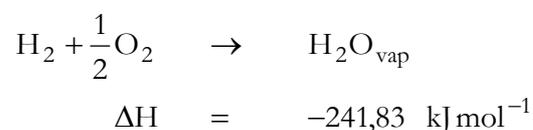
$$P_{el} = U_{stack} \times I_{stack} \quad (III. 1)$$

#### → Le rendement

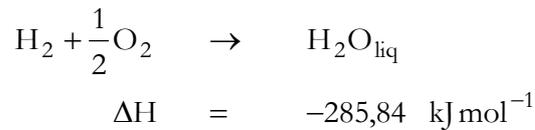
Le rendement d'un processus de transformation d'énergie est défini comme suit :

$$\eta = \frac{\text{énergie récupérée}}{\text{énergie fournie}} \quad (III. 2)$$

Pour un processus chimique comme la PàC, il est relativement difficile de quantifier l'énergie fournie sous la forme de réactants chimiques. Le repère généralement utilisé est l'énergie libérée lors de la combustion des réactants. Cette énergie est appelée enthalpie (H). Elle dépend de l'état des réactants avant et après la réaction. Pour la combustion de l'hydrogène créant de l'eau, on considère deux possibilités. La première est la création d'eau sous forme de vapeur :



Si l'eau est condensée après la combustion, la valeur de la variation d'enthalpie change :



La différence entre les deux valeurs correspond à l'enthalpie d'évaporation de l'eau, ou chaleur latente. Le rendement électrique de la pile est quant à lui déterminé à l'aide de l'équation suivante [Fue03] :

$$\eta_{\text{el}} = \frac{U_{\text{stack}} \times I_{\text{stack}}}{\frac{V_{\text{splm,H}_2}}{1000 \times 60} \times \frac{p}{R \times T_{273}} \times \Delta H^{\circ f}(\text{H}_2\text{O}(\text{g}))} \quad (\text{III. 3})$$

avec :

- $p$  la pression (en Pa),  $p = 101325 \text{ Pa}$ ;
- $R$  la constante des gaz parfaits  $R = 8,314 472 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$ . Cette constante est le produit du nombre d'Avogadro et de la constante de Boltzmann ;
- $T$  la température absolue (en Kelvin)
- $V_{\text{H}_2,\text{in}}$  le débit massique d'hydrogène en  $\text{Nl}/\text{min}$ .
- $\Delta H_f^{\circ}(\text{H}_2\text{O}(\text{g})) = 241.83 \times 10^3 \text{ J/mol}$  (aux conditions normales : température de 298K et pression d'1 atm.).

### III.2.2 ETAPE B : CHOIX DES FACTEURS ET DU DOMAINE EXPERIMENTAL

La détermination du domaine d'étude est étroitement liée aux connaissances initiales détenues sur le phénomène physique étudié mais également aux objectifs visés par l'expérimentation. Le choix du domaine d'étude est également contraint par des combinaisons de niveaux impossibles. De plus, il faut veiller à minimiser le coût de l'étude, exprimé en nombre d'essais.

Nous définissons le domaine d'étude et de validité de l'expérience menée en considérant les limites possibles pour la variation des facteurs, sur le banc et au niveau de la PàC. Pour cela, nous nous sommes référés à la documentation technique de la pile utilisée (Tableau III- 2). Nous rappelons dès maintenant que les résultats de l'étude ne seront valables que sur le domaine de variation des facteurs considérés. Celui-ci est le suivant :

Tableau III- 2 : Domaine de variation des facteurs ou domaine d'étude

Facteurs	Mini	Maxi
A : Pression d'hydrogène	-1 : 1.3bar	+1 : 1.4 bar
B : Pression d'air	-1 : 1.3bar	+1 : 1.4 bar
C : Débit d'hydrogène	-1 : 5.5 $\text{Nl}/\text{min}$	+1 : 8.5 $\text{Nl}/\text{min}$
D : Débit d'air	-1 : 26.3 $\text{Nl}/\text{min}$	+1 : 39.6 $\text{Nl}/\text{min}$

On a choisi ici les limites de ce domaine de telle sorte qu'il soit le plus large possible, tout en espérant que le fonctionnement du système demeure relativement homogène dans ce domaine. Le choix consistant à prendre deux niveaux d'étude pour chaque facteur sous-entend

bien sûr que l'on suppose une linéarité ou au moins une monotonie de l'évolution de la réponse entre ces deux niveaux. Les niveaux bas et haut sont l'objet de compromis entre deux risques :

- Si les niveaux sont trop proches l'un de l'autre, on risque de ne pas mettre en évidence l'effet des facteurs. Ici, le domaine expérimental lié à la pression est restreint à cause de la plage de variation limitée spécifiée par la fiche technique de la pile.
- Si les niveaux sont trop éloignés les uns des autres, l'hypothèse de linéarité est moins réaliste et on risque en plus d'aboutir à des combinaisons entre facteurs irréalisables dans la pratique. Le choix des niveaux de débits d'air et d'hydrogène est également conditionné par la pression maximale à respecter au niveau des surfaces de membranes. De plus, en mode ouvert (c'est-à-dire sans l'utilisation des vannes de contre-pression en aval de la pile), la présence d'un débit de gaz fixé en amont de la pile se traduit par une élévation de la pression en entrée de stack, du fait des pertes de charge dans et en aval de la pile. Pour le débit considéré, seuls des niveaux de pressions supérieurs à ce minimum atteint en mode ouvert peuvent être contrôlés au moyen du déverseur.

### III.2.3 ETAPE C : DEROULEMENT DES EXPERIENCES

Les facteurs principaux considérés dans ce plan d'expériences sont donc :

- A, la pression d'hydrogène ( $P_{H_2}$ )
- B, la pression d'air ( $P_{air}$ )
- C, le débit d'hydrogène ( $D_{H_2}$ )
- D, le débit d'air ( $D_{air}$ )

Les facteurs fixés ou régulés dans ce plan d'expérience, sont :

- la température de la pile qui vaut 40°C (température mesurée et régulée en sortie de pile sur le circuit d'eau)
- l'hygrométrie relative en entrée de pile qui a été fixée à 75% côté air ; (pas d'humidification côté hydrogène)
- la température dite de rosée de l'air à 25°C en amont du stack
- la tension minimale de cellule avec un seuil à 380mV, donné par le constructeur. Lorsqu'une tension de cellule passe en dessous de ce seuil, on cesse de faire délivrer du courant à la pile.

Dans chacun des essais du plan d'expériences, les pressions d'entrées hydrogène et air sont asservies au fur et à mesure que le courant augmente par incréments de 5 ou 2A. Ainsi, la puissance électrique délivrée par la pile croît et la tension de pile chute petit à petit. Quand une cellule atteint le seuil de 380 mV, la puissance maximale atteinte au cours de l'essai est relevée et fait figure de réponse. Il est à noter que la puissance électrique maximale peut être obtenue pour des valeurs de courants différentes.

Dans les essais, nous avons recours au mode régulation de pression. Des débits de gaz côtés hydrogène et air sont alors fixés à l'aide des régulateurs de débit massique qui permettent de maîtriser le débit de gaz dans la pile à partir d'une consigne générée par le programme de gestion du processus (développé sous Labview). Les consignes de débits de gaz sont calculées par le programme à partir des relations liant ces débits de fluides gazeux au courant de pile (en tenant compte des coefficients de surstoéchiométrie). Quant à la régulation des pressions mesurées en amont du stack, elle est assurée par les déverseurs qui sont associés sur le banc à des systèmes de régulation type PID.

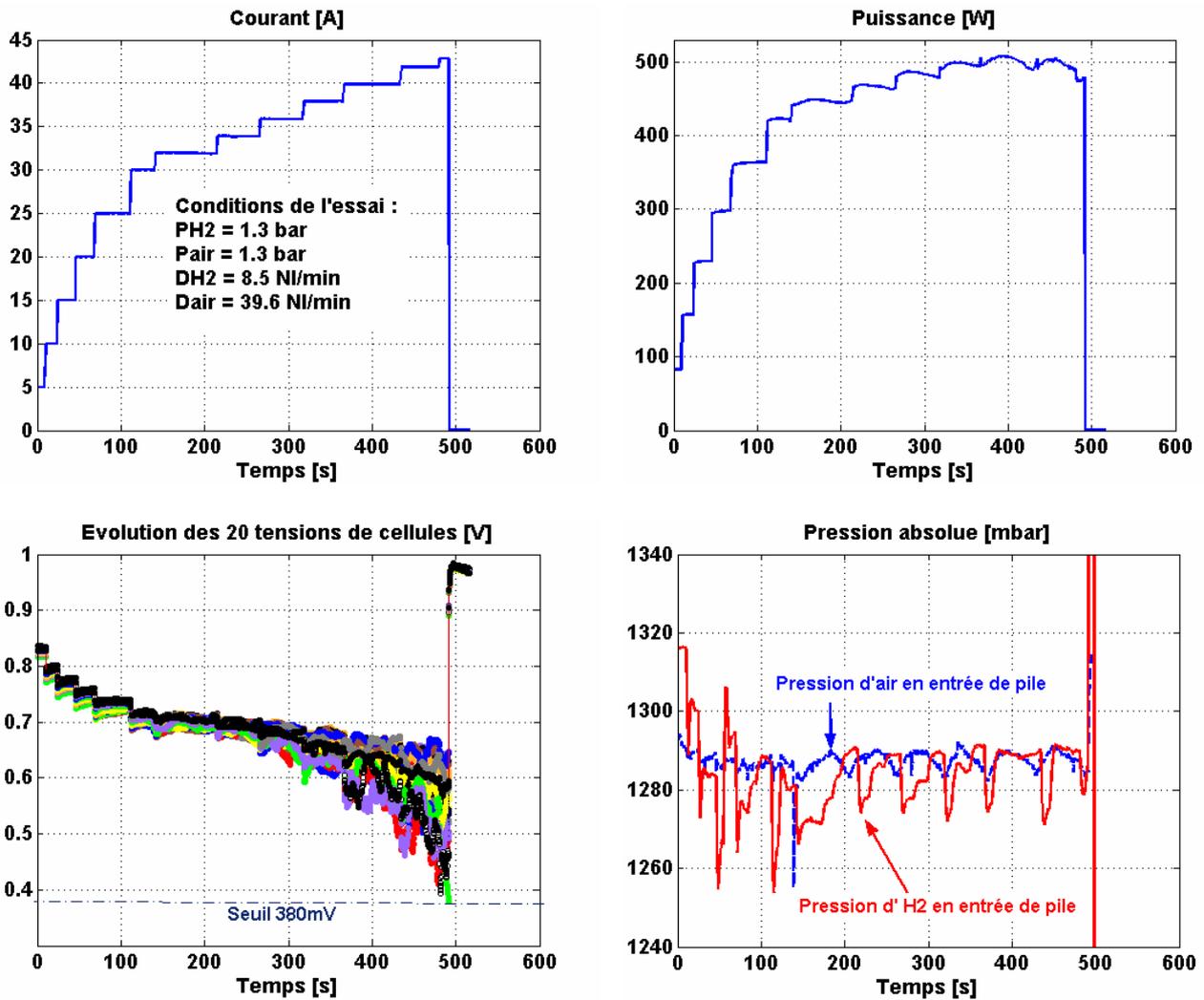


Figure III- 2 : Evolution des différents paramètres au cours de l'essai

Le dispositif expérimental adopté ici est le dispositif complètement aléatoire (ou Randomisation), qui consiste à réaliser les différents essais dans un ordre quelconque.

#### III.2.4 ETAPE D : PROPOSITION D'UN MODELE

La construction d'un plan complet est plutôt simple. Il suffit de faire varier le premier facteur sur tous ses niveaux pendant que le second reste à un, et de recopier le bloc obtenu sur tous les niveaux du second facteur. On obtient ainsi un second bloc que l'on recopie sur tous les niveaux du troisième facteur et ainsi de suite. Nous récapitulons dans le tableau ci-dessous les seize essais ( $16 = 2^4$ ) du plan complet, si on s'intéresse à la puissance électrique maximale délivrée par la pile.

Tableau III- 3 : Plan factoriel complet 2<sup>4</sup>

N	D <sub>air</sub>	D <sub>H2</sub>	P <sub>air</sub>	P <sub>H2</sub>	Réponse	P <sub>el,max</sub>	A×P <sub>el,max</sub>	B×P <sub>el,max</sub>	C×P <sub>el,max</sub>	D×P <sub>el,max</sub>
	D	C	B	A	P <sub>el,max</sub>					
1	-1	-1	-1	-1	P <sub>el,max 1</sub>	317,5	-317,5	-317,5	-317,5	-317,5
2	-1	-1	-1	1	P <sub>el,max 2</sub>	336	336	-336	-336	-336
3	-1	-1	1	-1	P <sub>el,max 3</sub>	290	-290	290	-290	-290
4	-1	-1	1	1	P <sub>el,max 4</sub>	335	335	335	-335	-335
5	-1	1	-1	-1	P <sub>el,max 5</sub>	338	-338	-338	338	-338
6	-1	1	-1	1	P <sub>el,max 6</sub>	340	340	-340	340	-340
7	-1	1	1	-1	P <sub>el,max 7</sub>	327	-327	327	327	-327
8	-1	1	1	1	P <sub>el,max 8</sub>	322	322	322	322	-322
9	1	-1	-1	-1	P <sub>el,max 9</sub>	425	-425	-425	-425	425
10	1	-1	-1	1	P <sub>el,max 10</sub>	445	445	-445	-445	445
11	1	-1	1	-1	P <sub>el,max 11</sub>	446	-446	446	-446	446
12	1	-1	1	1	P <sub>el,max 12</sub>	435	435	435	-435	435
13	1	1	-1	-1	P <sub>el,max 13</sub>	500	-500	-500	500	500
14	1	1	-1	1	P <sub>el,max 14</sub>	505	505	-505	505	505
15	1	1	1	-1	P <sub>el,max 15</sub>	480	-480	480	480	480
16	1	1	1	1	P <sub>el,max 16</sub>	515	515	515	515	515
<b>Moyenne</b>						397,281	6,844	-3,531	18,594	71,594

### III.2.4.1 Analyse graphique des résultats

La méthode de Yates a été utilisée ici pour le calcul des effets [Pil97]. L'originalité de cette méthode réside dans le fait qu'elle permet de trouver directement les formules générales des effets moyens. Les effets moyens se calculent de la façon suivante : on effectue pour tous les essais la somme des réponses affectées du signe du facteur correspondant à chaque essai (colonne A×Y par exemple). Le total est divisé par le nombre d'essais et affiché dans la ligne Moyenne. La méthode de Yates correspond à une notation très pratique qui n'est applicable que dans le cas où les facteurs étudiés ont deux niveaux.

#### Remarque

Dans le cas d'un facteur  $x$  à deux niveaux, il est inutile de calculer les deux effets moyens d'un facteur car si l'effet du facteur au niveau  $-1$   $E_{x(-1)}$  est connu, l'effet du facteur au niveau  $+1$   $E_{x(+1)}$  peut être déduit par la relation :

$$E_{x(-1)} = -E_{x(+1)} \tag{III. 4}$$

Ainsi, dans notre cas, nous avons :

➔ pour les effets liés à la puissance prise en tant que réponse :

Facteur	PH <sub>2</sub>	Pair	DH <sub>2</sub>	Dair
Niveau -1	-6.844 W	3.531 W	-18.594 W	-71.594 W
Niveau 1	6.844 W	-3.531 W	18.594 W	71.594 W

→ pour les effets liés au rendement :

Facteur	PH <sub>2</sub>	Pair	DH <sub>2</sub>	Dair
Niveau -1	-0.619	0.256	5.519	-5.744
Niveau 1	0.619	-0.256	-5.519	5.744

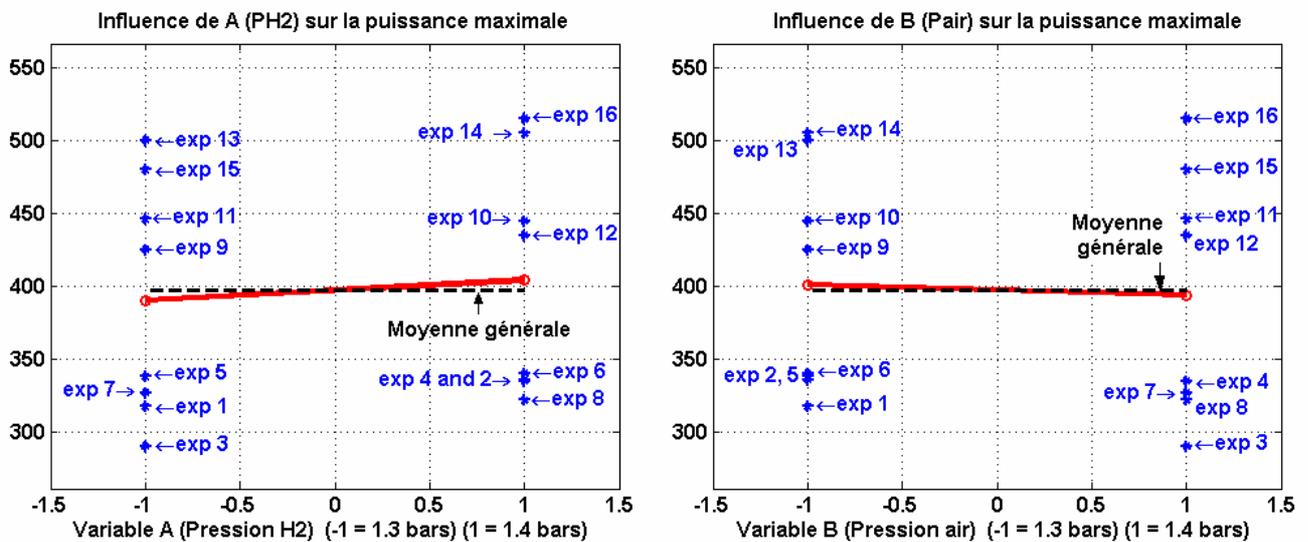
Nous pouvons remarquer l'importance des effets des facteurs débit d'air et débit d'hydrogène sur la puissance de sortie et sur le rendement de la pile.

**a) Etude de l'influence des paramètres sur la puissance délivrée par la pile :**

Une communication des résultats sous forme graphique et visuelle favorise les échanges et facilite souvent l'interprétation des informations obtenues. Il existe différents types de graphiques permettant d'illustrer les effets moyens des facteurs. Les plus courants sont les tracés des effets moyens et le diagramme de Pareto.

**→ Tracé des effets moyens des facteurs**

Afin de comparer les impacts des différents facteurs sur la puissance maximale délivrée par la pile, nous représentons les effets des facteurs sous forme de graphes des effets moyens (cf. II.6.1.4). Il est alors immédiatement possible de constater que des changements réalisés entre les niveaux bas et haut affectent de manière plus ou moins importante la variation de la réponse suivant les facteurs considérés.



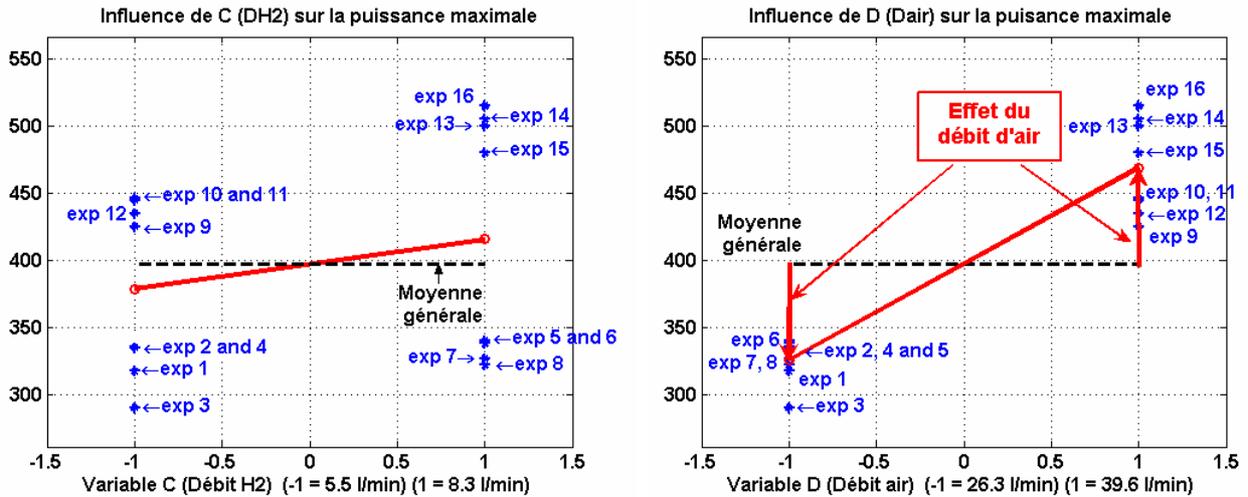
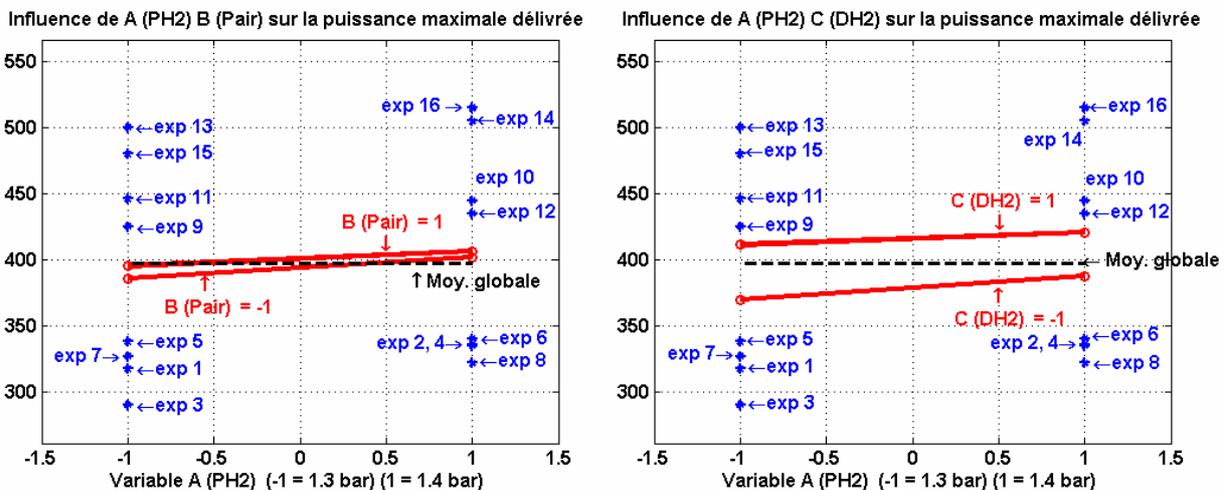


Figure III- 3 : Graphes des effets moyens pour les quatre facteurs étudiés

Pour interpréter les résultats suggérés par ce type de graphique, il suffit de comparer entre elles les pentes de chacun des segments de droite dont les extrémités correspondent aux effets moyens calculés aux niveaux -1 et +1. L'effet moyen d'un facteur est en effet défini par la variation observée ou modélisée de la réponse caractérisant le phénomène à étudier, entre deux états distincts correspondant aux modalités du facteur. Plus la pente de la droite caractérisant l'effet est grande, plus le poids du facteur est important (Figure III- 3). Pour la réponse traduisant la puissance électrique maximale délivrée par la pile, le tracé des effets moyens (Figure III- 3) fait ressortir immédiatement les facteurs importants : la variable Dair liée au débit d'air a le plus grand effet (positif quand le débit augmente) sur la variation de la puissance maximale. Le débit d'hydrogène ( $DH_2$ ), la pression d'air ( $Pair$ ) et la pression d'hydrogène ( $PH_2$ ) apparaissent comme des facteurs ayant une action beaucoup moins importante sur la réponse.

### ➔ Représentation des couplages entre les effets des facteurs

Les interactions sont appelées des couplages lorsqu'elles ne concernent que l'étude de l'effet d'un facteur en fonction des modalités d'un second et seul autre facteur. D'un point de vue mathématique, il s'agit d'une interaction du premier ordre. Comme pour les effets, nous pouvons représenter les interactions sur un graphique afin de faciliter l'interprétation des résultats du plan d'expériences (Figure III- 5).



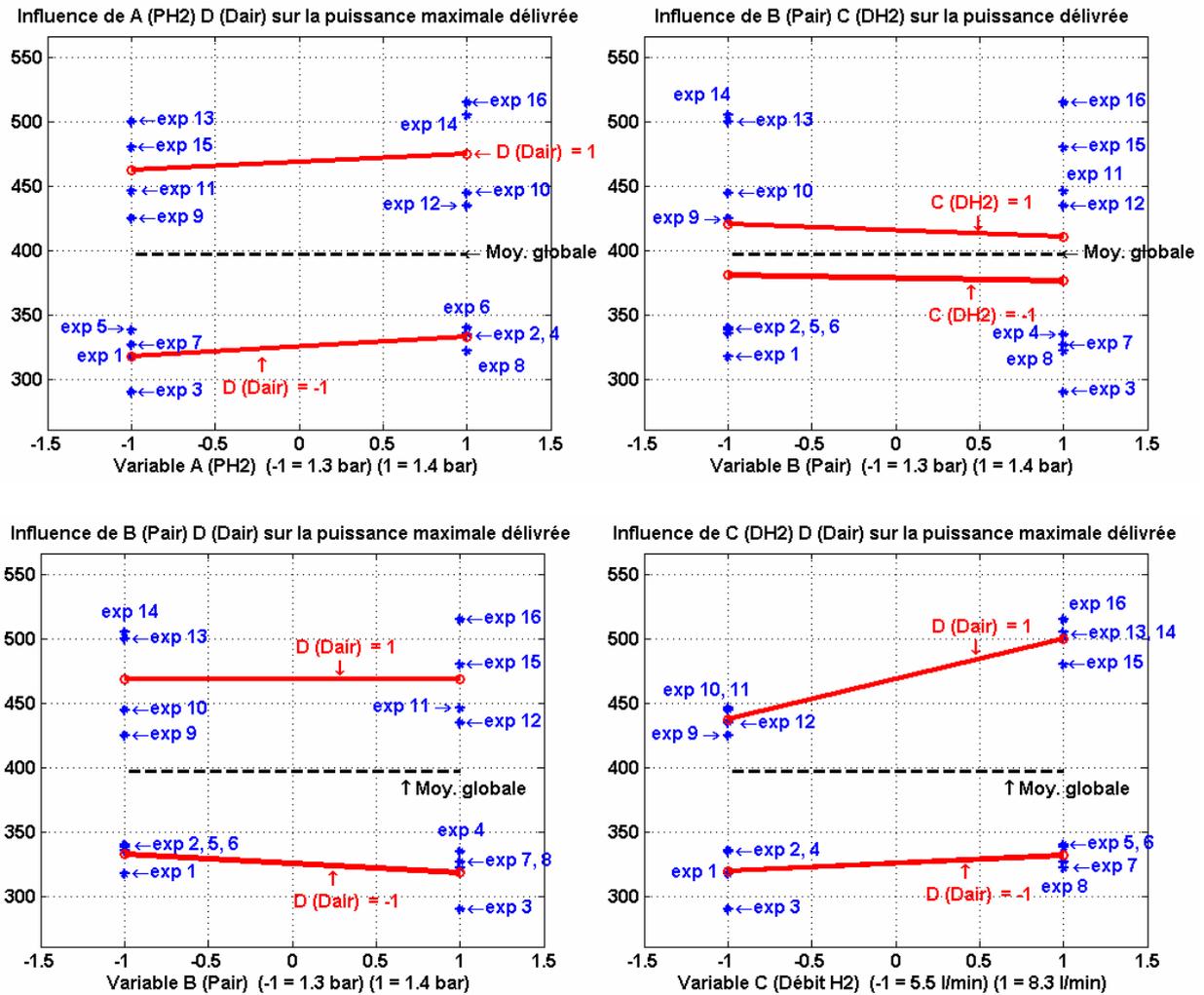


Figure III- 4 : Graphes des interactions de premier ordre entre les quatre facteurs étudiés

**Remarque :** La représentation adoptée pour les graphes des interactions est identique à celle adoptée dans [Pil97, 2<sup>ème</sup> tirage 1999, p48]

Calculer l'interaction consiste à calculer la modification apportée à la réponse (ici la puissance maximale délivrée) du fait de la configuration particulière entre deux facteurs A et B par exemple (cf : II.6.1.4). Il existe 4 interactions possibles résultant des configurations suivantes :

Tableau III- 4 : Configurations possibles des interactions

		B	
		-1	+1
A	-1	$I_{A(-1)B(-1)}$	$I_{A(-1)B(+1)}$
	+1	$I_{A(+1)B(-1)}$	$I_{A(+1)B(+1)}$

Sur chacun des graphes, la présence d'une interaction est décelée lorsque les deux droites ( $[I_{A(-1)B(-1)} \ I_{A(+1)B(-1)}]$  et  $[I_{A(-1)B(+1)} \ I_{A(+1)B(+1)}]$ ) ne sont pas parallèles. Ici, les interactions sont relativement peu prononcées. Une faible interaction entre le facteur débit d'hydrogène (DH<sub>2</sub>) et le facteur débit d'air (Dair) peut éventuellement être distinguée : plus le débit d'air est important, plus le débit d'hydrogène permet d'augmenter la puissance maximale délivrée par la pile.

→ **Diagramme de Pareto**

En présence d'un nombre important de facteurs à deux modalités, la construction du diagramme de Pareto peut offrir une alternative intéressante au tracé des effets moyens des facteurs. Il est en effet possible de décomposer la variation d'une réponse à partir des contributions apportées par chacun des facteurs dans un modèle. L'écriture polynomiale du type (III. 5) facilite la définition des contributions d'un facteur  $j$  à partir de la relation suivante :

$$CTR_j = \frac{\beta_j^2}{\sum_{j=1}^k \beta_j^2} \quad (III. 5)$$

Les contributions des facteurs sont alors ordonnées par ordre croissant puis représentées sous forme d'un diagramme en bâtons associé à une représentation cumulative.

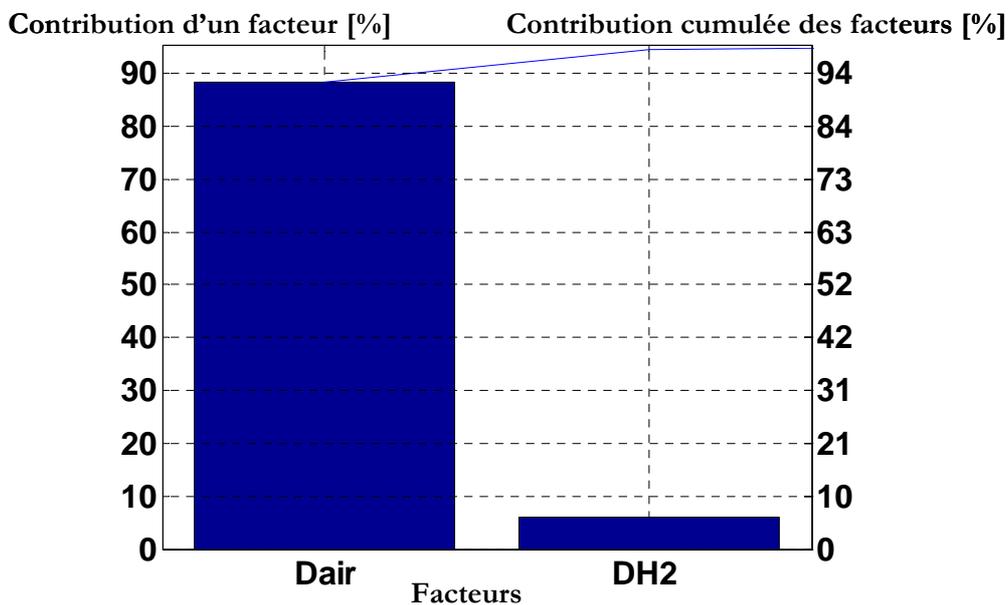


Figure III- 5 : Diagramme de Pareto des quatre facteurs et fonction cumulée des contributions.

Le diagramme de Pareto est complémentaire au tracé des effets moyens. Il permet de déterminer les facteurs influents par ordre de contribution décroissante. La construction et la lecture du diagramme de Pareto relatif à l'obtention d'une puissance maximale (Figure III- 8) mettent en évidence la prédominance du rôle du facteur débit d'air (Dair) qui apparaît le premier avec un bâton plus grand que les autres. Il est également possible de tracer la fonction cumulée des contributions des différents facteurs. Ainsi, nous pouvons voir qu'à eux seuls les deux facteurs Dair et DH<sub>2</sub> expliquent plus de 90% de la variation de la réponse. Les contributions des facteurs pression d'air (Pair) et pression d'hydrogène (PH<sub>2</sub>) sont dissimulées vue la petitesse de leurs valeurs, respectivement égales à 0.21% et 0.8%.

**b) Etude de l'influence des paramètres sur le rendement électrique de la pile :**

L'étude de l'influence des paramètres sélectionnés sur le rendement de la pile permet de déterminer la combinaison des facteurs qui permettraient d'améliorer le rendement du système

PàC. Le rendement étudié correspond à celui décrit par la relation (III. 3). Dans chacun des 16 essais, la valeur du rendement est déterminée à partir du point de courant pour lequel la puissance maximale a été atteinte.

➔ **Tracé des effets moyens des facteurs**

Un des objectifs incontestables des plans d'expériences est de permettre une restitution de l'expérimentation réalisée sous une forme facilement interprétable par l'utilisateur.

Comme pour la réponse traduisant la puissance maximale délivrée par la pile, le tracé des effets moyens (Figure III- 4) du rendement électrique fait ressortir immédiatement les facteurs importants, à savoir, le débit d'air ( $D_{air}$ ) et le débit d'hydrogène ( $DH_2$ ). Une augmentation du débit d'air, de 26.3 l/min à 39.6 l/min, permet d'obtenir un meilleur rendement de la pile, (augmentation de près de 10%) mais la consommation des auxiliaires assurant la compression de l'air n'est pas prise en compte dans la relation choisie ici pour exprimer le rendement, tandis qu'une augmentation du débit d'hydrogène fait baisser le rendement étudié. Les variables pression d'air ( $P_{air}$ ) et pression d'hydrogène ( $PH_2$ ) apparaissent comme des facteurs ayant une action beaucoup moins importante sur la réponse.

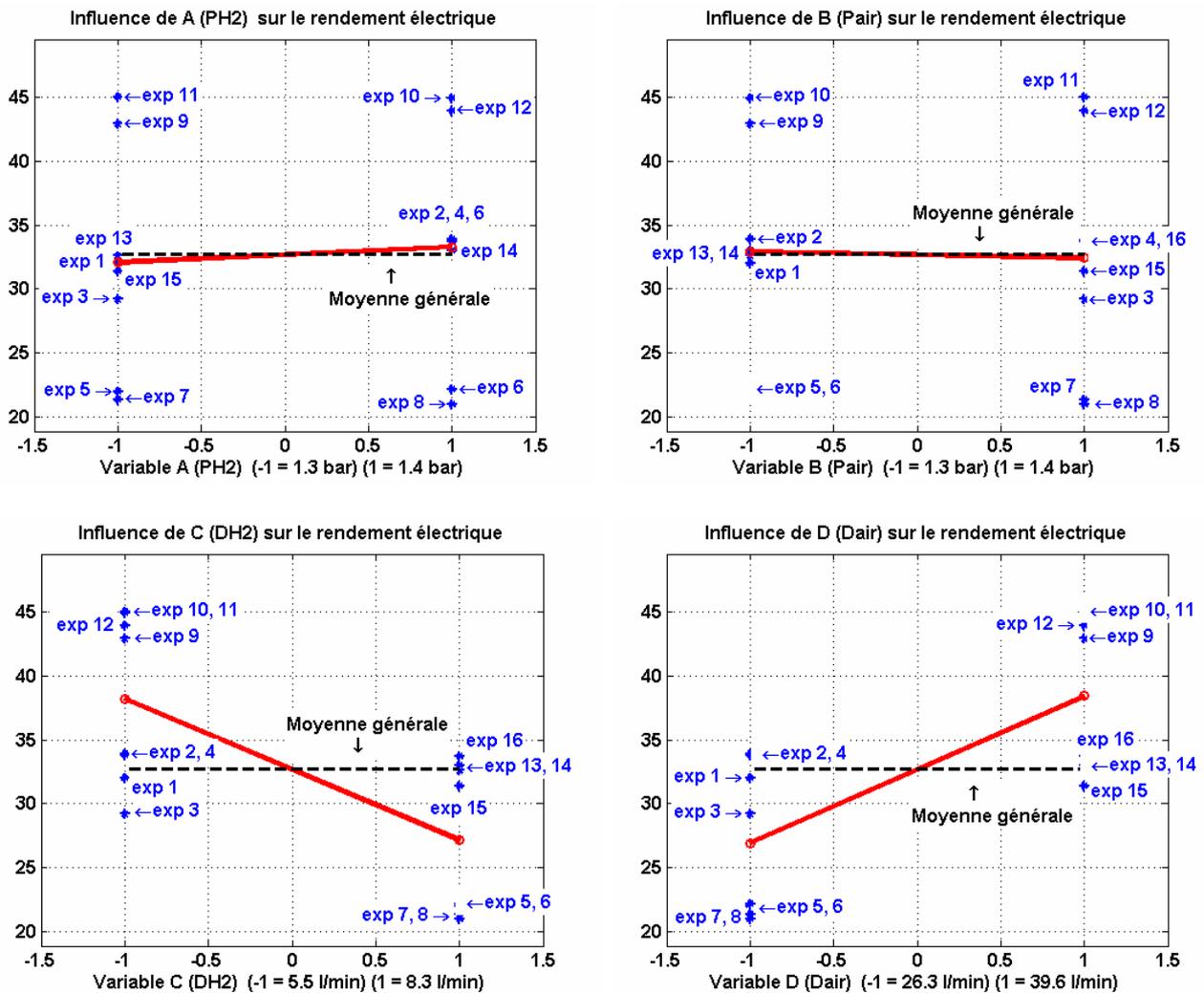


Figure III- 6 : Graphes des effets moyens pour les quatre facteurs étudiés

→ Représentation des couplages entre les effets des facteurs

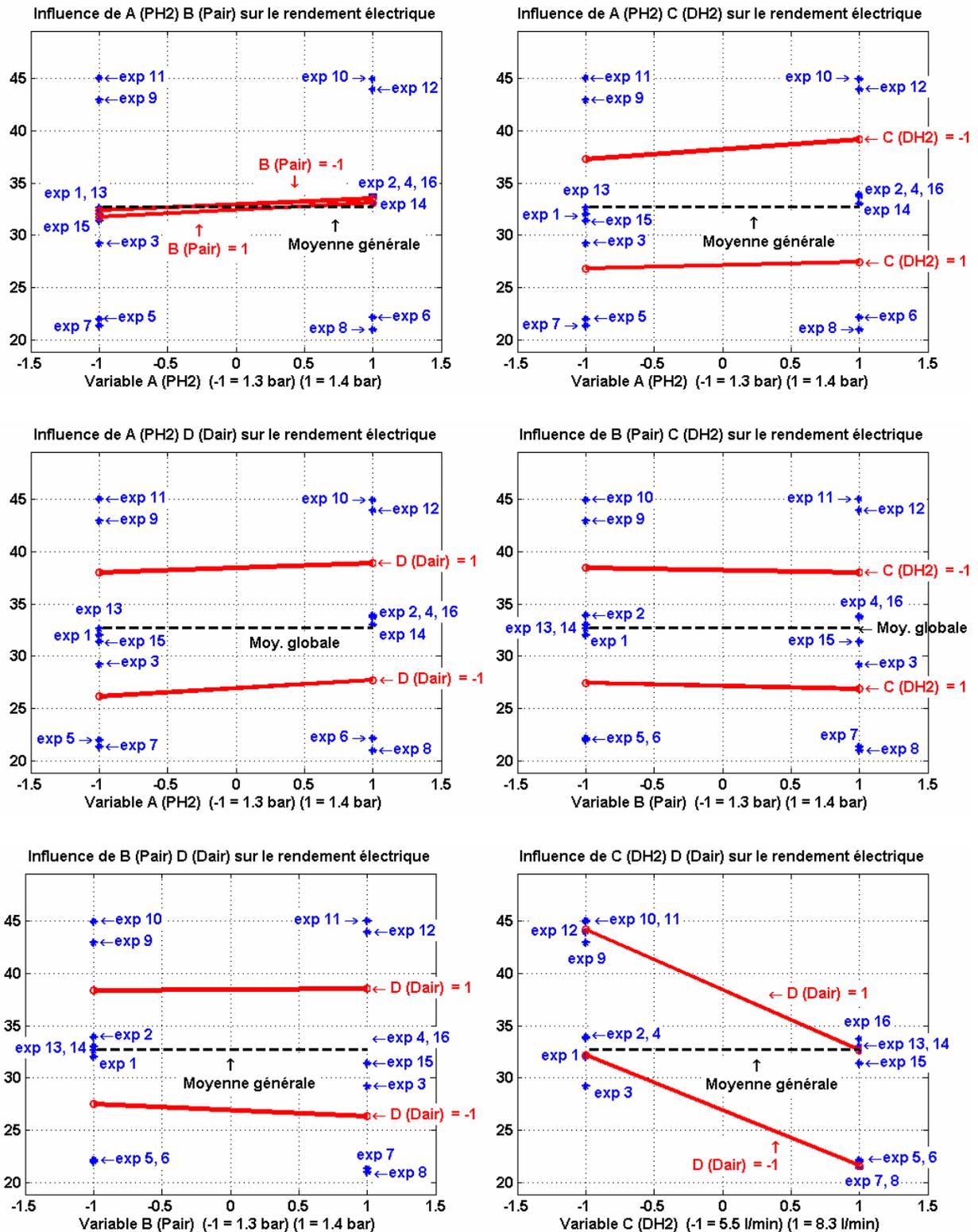


Figure III- 7 : Graphes des interactions de premier degré entre les quatre facteurs étudiés

Aucune interaction importante n'a d'influence sur le rendement électrique de la pile.

→ **Diagramme de Pareto**

Comme dans le cas de l'étude réalisée pour la puissance maximale, les contributions des différents facteurs sont ordonnées par ordre croissant puis représentées sous forme de diagramme en bâtons. C'est ainsi que les facteurs débits d'air et d'hydrogène ( $D_{air}$  et  $D_{H_2}$ ) apparaissent comme étant les facteurs à contrôler pour améliorer les performances de notre système pile à combustible (Figure III- 8). Les pressions côtés anode et cathode n'ont pas d'impact sensible sur le rendement de la pile étudiée, du moins dans le domaine d'étude considéré et pour les 16 points de courant correspondant aux puissances maximales atteintes.

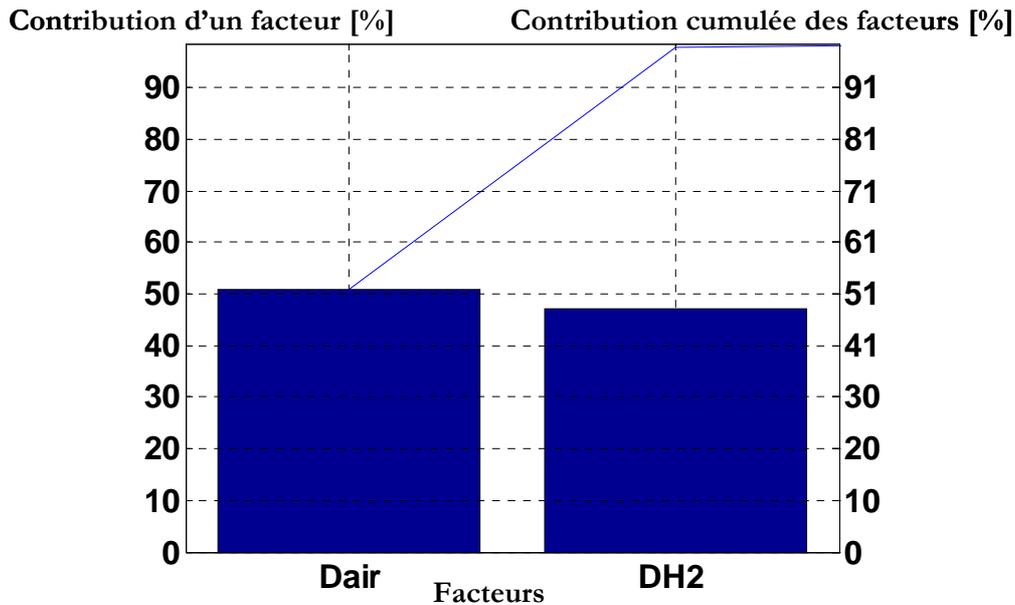


Figure III- 8 : Diagramme de Pareto et fonction cumulée des contributions

III.2.4.2 Analyse de la variance des résultats

L'analyse de variance (*ANOVA*) permet maintenant de comparer les variances des valeurs cumulées relatives au modèle avec celles des résidus. Cette analyse constitue un test statistique (Test de Fisher-Snedecor) et elle fournit les réponses aux deux questions suivantes :

- Le modèle nous apporte-t-il quelque chose ? La régression est-elle significative ? Explique-t-elle en grande partie les variations observées sur la réponse ?
- Le modèle représente-t-il bien le phénomène ? Si oui, le modèle introduit un biais acceptable. Sinon, il convient de chercher un autre modèle.

**c) L'ANOVA appliquée à la puissance maximale délivrée par la pile :**

L'analyse de variance se fait selon un modèle sous-jacent (chapitre II équation (II- 3)) qui exprime la réponse comme somme de différents effets. L'influence de chaque effet de facteur et de chaque interaction entre facteurs peut être testée de manière absolue sur les variations de la réponse étudiée.

Tableau III- 5 : L'analyse de la variance appliquée à la puissance maximale

Source de variation	ddl.	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	749.4	0.8	749.4	2.99	0.144
Pair	1	199.5	0.21	199.5	0.8	0.413
DH <sub>2</sub>	1	5531.6	6	5531.6	22.1	0.005
Dair	1	82010	88.5	82010	327	0
PH <sub>2</sub> × Pair	1	21.4	2e-3	21.4	0.09	0.781
PH <sub>2</sub> × DH <sub>2</sub>	1	78.8	5e-3	78.8	0.31	0.599
PH <sub>2</sub> × Dair	1	8.3	≈0	8.3	0.03	0.863
Pair × DH <sub>2</sub>	1	28.9	0.03	28.9	0.12	0.747
Pair × Dair	1	213.9	0.23	213.9	0.85	0.397
DH <sub>2</sub> × Dair	1	2512.5	2.71	2512.5	10	0.024
Erreur	5	1252.1	1.35	250.4		
Total	15	92607				

Les résultats de l'analyse sont récapitulés dans le tableau présenté ci-dessus.

- La première colonne désigne la source de la variation.
- La deuxième colonne représente le degré de liberté de chaque facteur et interaction.
- La troisième colonne est la somme des carrés des écarts ; elle fait apparaître l'amplitude de la variation aléatoire affectant les observations concernant les effets et interactions. Par exemple, le calcul de la somme des carrés des écarts du facteur A (PH<sub>2</sub>) est effectué de la manière suivante :

$$\begin{aligned}
 SCE_A &= \frac{N}{Nn_A} \cdot \sum_{i=1}^{Nn_A} (\bar{y}_i - \bar{y})^2 = \frac{N}{Nn_A} \cdot \sum_{i=1}^{Nn_A} (E_A |_{Nn_A})^2 \\
 &= \frac{16}{2} * 2(6.844)^2 = 749.4 \quad \text{car} \quad E_{A(-1)}^2 = E_{A(+1)}^2 = (6.844)^2
 \end{aligned}
 \tag{III. 6}$$

La somme des carrés des écarts de l'interaction A (PH<sub>2</sub>) × B (Pair) est calculée comme suit :

$$\begin{aligned}
 SCE_{AB} &= \frac{N}{Nn_A \cdot Nn_B} \cdot \sum_{i=1}^{Nn_A} \sum_{j=1}^{Nn_B} (\bar{y}_{ij} - \bar{y}_i - \bar{y}_j - \bar{y})^2 \\
 &= \frac{16}{2 \cdot 2} \cdot (I_{A(-1)B(-1)}^2 + I_{A(+1)B(-1)}^2 + I_{A(-1)B(+1)}^2 + I_{A(+1)B(+1)}^2)
 \end{aligned}
 \tag{III. 7}$$

avec :  $I_{A(-1)B(-1)} = 395.125 - 397.28125 + 6.84375 - 3.53125 = 1.15625$

$$SCE_{AB} = \frac{16}{4} \times ((1.15625)^2 + (-1.15625)^2 + (-1.15625)^2 + (1.15625)^2) = 21.4$$

- La quatrième colonne présente le pourcentage de contribution de chaque facteur x<sub>i</sub> en décomposant la variation d'une réponse à partir des contributions apportées par chacun des facteurs et interactions dans le modèle. La contribution exprimée en % est calculée à partir de la relation suivante :

$$CTR\%_{x_i} = \frac{SCE_{x_i}}{SCE_T}
 \tag{III. 8}$$

Par exemple, pour le calcul de la contribution du facteur A (PH<sub>2</sub>), nous avons :

$$CTR\%_A = \frac{SCE_A}{SCE_T} = \frac{749.4}{92607} = 0.8\% \quad (\text{III. 9})$$

- La cinquième colonne concerne le calcul des carrés moyens des facteurs, des interactions et des erreurs afin de vérifier la significativité des différences espèces. Par exemple, pour le calcul des carrés moyens du facteur A (PH<sub>2</sub>), on trouve :

$$CM_A = \frac{SCE_A}{ddl_A} = \frac{749.4}{1} = 749.4 \quad (\text{III. 10})$$

- La sixième colonne représente la valeur du test de significativité Snedecor "F<sub>obs</sub>". A titre d'exemple, le calcul de F<sub>obsA</sub> du facteur A (PH<sub>2</sub>) se présente ainsi :

$$F_{obsA} = \frac{CM_A}{CM_r} = \frac{749.4}{250.4} = 2.99 \quad (\text{III. 11})$$

- La septième colonne permet de déterminer à partir du seuil  $\alpha$  choisi (relatif au test de Snedecor, cf chapitre II) l'importance de l'effet du facteur ou de l'interaction sur la réponse. Ainsi, le facteur A (PH<sub>2</sub>) ne possède pas une influence très significative.

#### Remarques :

- *L'importance d'un effet peut être déterminée de la manière habituelle en se reportant à la table de F [Pi97] [Exp05]. Si la valeur calculée de F est supérieure à la valeur indiquée par la table, l'hypothèse est rejetée.*
- *En général, les interactions du 3<sup>ème</sup> ordre sont supposées a priori négligeables. De plus, dans l'ANOVA du Tableau III- 5, presque toutes les interactions de second ordre sont non significatives. Cela nous a incités à nous arrêter au 2<sup>ème</sup> ordre. Une ANOVA faite avec le 3<sup>ème</sup> ordre (non présentée ici) ne révèle aucune interaction significative, ce qui confirme ici l'hypothèse généralement faite sur les interactions du 3<sup>ème</sup> ordre.*

#### ➔ Conclusion de l'ANOVA

Les résultats de l'analyse de variance présentés dans le Tableau III- 6 montrent notamment l'importance prépondérante sur la puissance maximale des effets du débit d'air, avec une contribution de 88.5%, et du débit d'hydrogène, avec une contribution de 6%. Les effets de ces facteurs sont par ailleurs beaucoup plus significatifs que les effets des deux pressions. De plus, le caractère significatif de l'interaction CD (débit d'air × débit d'hydrogène) est mis en évidence par le tableau de l'ANOVA.

Dans cet exemple applicatif, relatif à la puissance maximale délivrée par la pile, la construction et l'interprétation des graphes des effets, des graphes d'interactions et des tableaux d'analyse de la variance, sont à la fois possibles et très utiles.

#### d) L'ANOVA appliquée au rendement de la pile :

Intéressons nous maintenant au rendement de la pile, tel qu'il a été défini plus haut (III. 1), en adoptant une démarche similaire à celle retenue pour l'étude de la puissance maximale prise comme réponse et en proposant une nouvelle analyse de la variance.

Tableau III- 7 : L'analyse de la variance appliquée au rendement de la pile

Source de variation	ddl.	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	6.13	0.6	6.126	3.02	0.142
Pair	1	1.05	0.1	1.051	0.52	0.503
DH <sub>2</sub>	1	487.31	47	487.306	240.3	0
Dair	1	527.85	50.9	527.851	260.3	0
PH <sub>2</sub> × Pair	1	0.05	0	0.051	0.02	0.880
PH <sub>2</sub> × DH <sub>2</sub>	1	1.5	0.14	1.501	0.74	0.428
PH <sub>2</sub> × Dair	1	0.46	0.04	0.456	0.22	0.655
Pair × DH <sub>2</sub>	1	0.02	0	0.016	0.01	0.933
Pair × Dair	1	1.76	0.17	1.756	0.87	0.394
DH <sub>2</sub> × Dair	1	0.86	0.08	0.856	0.42	0.544
Erreur	5	10.14	0.97	2.028		
Total	15	1037.1				

Les effets des facteurs débit d'air et débit d'hydrogène, avec des contributions respectives de 50.9% et 47%, sont beaucoup plus importants que les effets des pressions d'hydrogène et d'air. En outre, on note l'absence de toute interaction.

### III.2.5 ETAPE E : MODELE MATRICIEL DU SYSTEME ETUDIE

Tous les problèmes de criblage et donc de classement des effets moyens des facteurs utilisent le recours à une forme particulière de modélisation, appelée modèle additif, qu'il est important de distinguer des modèles polynomiaux dont l'usage est généralement dédié à des problèmes d'optimisation.

Dans le cas présent, nous allons utiliser un modèle additif avec couplage dont la finalité est d'estimer et de comparer les effets des facteurs et des interactions. La forme générale du modèle, exprimant la réponse Y (puissance maximale ou rendement de la PàC) en fonction des paramètres x étudiés, s'écrit alors de la manière suivante :

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i \cdot x_i + \sum_{i=1}^k \sum_{j=i+1}^k \beta_{ij} \cdot x_i \cdot x_j + \varepsilon \quad (\text{III. 12})$$

La forme générale du modèle traduit encore une fois les objectifs de l'étude, à savoir ici l'apport d'une précision sur les effets moyens notés  $\beta_i x_i$ , par des couplages notés  $\beta_{ij} x_i x_j$ .

#### ➔ Notations :

- La réponse théorique (calculée à partir du modèle) est notée  $\hat{y}$ .
- Les facteurs seront représentés par des vecteurs que nous noterons [A] par exemple pour le facteur A. Ce vecteur est nommé indicateur de niveau. Les effets et les interactions seront modélisés par des matrices [Pil99].

Si le facteur A est au niveau (-1) :

$$[A] = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Si le facteur A est au niveau (+1) :

$$[A] = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$$

➔ **Application de cette modélisation :**

Dans notre exemple applicatif comportant quatre facteurs, le modèle recherché est du type suivant :

$$\hat{y} = M + A + B + C + D + AB + AC + AD + BC + BD + CD \quad (\text{III. 13})$$

Nous chercherons donc à modéliser les effets des facteurs A, B, C, et D ainsi que les interactions AB, AC, AD, BC, BD et CD. La modélisation matricielle s'écrit :

$$\begin{aligned} \hat{y} = & M + \begin{bmatrix} E_{PH2(-)} & E_{PH2(+)} \end{bmatrix} [PH_2] + \begin{bmatrix} E_{Pair(-)} & E_{Pair(+)} \end{bmatrix} [Pair] \\ & + \begin{bmatrix} E_{DH2(-)} & E_{DH2(+)} \end{bmatrix} [DH_2] + \begin{bmatrix} E_{Dair(-)} & E_{Dair(+)} \end{bmatrix} [Dair] \\ & + [PH_2]^t \begin{bmatrix} I_{PH2(-)Pair(-)} & I_{PH2(-)Pair(+)} \\ I_{PH2(+ )Pair(-)} & I_{PH2(+ )Pair(+)} \end{bmatrix} [Pair] + [PH_2]^t \begin{bmatrix} I_{PH2(-)DH2(-)} & I_{PH2(-)DH2(+)} \\ I_{PH2(+ )DH2(-)} & I_{PH2(+ )DH2(+)} \end{bmatrix} [DH_2] \\ & + [PH_2]^t \begin{bmatrix} I_{PH2(-)Dair(-)} & I_{PH2(-)Dair(+)} \\ I_{PH2(+ )Dair(-)} & I_{PH2(+ )Dair(+)} \end{bmatrix} [Dair] + [Pair]^t \begin{bmatrix} I_{Pair(-)DH2(-)} & I_{Pair(-)DH2(+)} \\ I_{Pair(+ )DH2(-)} & I_{Pair(+ )DH2(+)} \end{bmatrix} [DH_2] \\ & + [Pair]^t \begin{bmatrix} I_{Pair(-)Dair(-)} & I_{Pair(-)Dair(+)} \\ I_{Pair(+ )Dair(-)} & I_{Pair(+ )Dair(+)} \end{bmatrix} [Dair] + [DH_2]^t \begin{bmatrix} I_{DH2(-)Dair(-)} & I_{DH2(-)Dair(+)} \\ I_{DH2(+ )Dair(-)} & I_{DH2(+ )Dair(+)} \end{bmatrix} [Dair] \end{aligned} \quad (\text{III. 14})$$

avec :

M : la moyenne générale des réponses,

$\begin{bmatrix} E_{PH2(-)} & E_{PH2(+)} \end{bmatrix} [PH_2]$  : l'effet du facteur  $PH_2$ ,

et :

$[PH_2]^t \begin{bmatrix} I_{PH2(-)Pair(-)} & I_{PH2(-)Pair(+)} \\ I_{PH2(+ )Pair(-)} & I_{PH2(+ )Pair(+)} \end{bmatrix} [Pair]$  qui correspond à l'interaction  $PH_2 \times Pair$ .

### III.2.6 ETAPE F : ESTIMATION DES COEFFICIENTS DU MODELE

Si nous souhaitons calculer la réponse fournie par le modèle dans une configuration donnée, il suffit de faire les multiplications matricielles. Ainsi en ne retenant que les effets principaux et l'interaction  $DH_2 \times Dair$ , le modèle de la puissance maximale s'écrit :

$$\begin{aligned} \hat{P}_{el\max} = & 397.28 + \begin{bmatrix} -6.84 & 6.84 \end{bmatrix} [PH_2] + \begin{bmatrix} 3.531 & -3.531 \end{bmatrix} [Pair] \\ & + \begin{bmatrix} -18.6 & 18.6 \end{bmatrix} [DH_2] + \begin{bmatrix} -71.6 & 71.6 \end{bmatrix} [Dair] \\ & + [DH_2]^t \begin{bmatrix} 11.545 & -13.53 \\ -11.545 & 13.53 \end{bmatrix} [Dair] \end{aligned} \quad (\text{III. 15})$$

De la même manière, l'équation liée au modèle du rendement sans interaction peut être établie :

$$\hat{\eta}_{el\max} = 32.681 + [-0.619 \quad 0.619][PH2] + [0.256 \quad -0.2561][Pair] + [5.519 \quad -5.519][DH2] + [-5.744 \quad 5.744][Dair] \quad (III. 16)$$

➔ **Exemple d'application numérique :**

Expérience avec  $A = -1$ ,  $B = -1$ ,  $C = -1$ ,  $D = -1$

$$\begin{aligned} \hat{P}_{el\max} = 397.28 &+ [-6.84 \quad 6.84] \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} + [3.531 \quad -3.531] \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \\ &+ [-18.6 \quad 18.6] \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} + [-71.6 \quad 71.6] \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}^t \begin{bmatrix} 11.545 & -13.53 \\ -11.545 & 13.53 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

$$\hat{P}_{el\max} = 397.28 - 6.84 + 3.531 - 18.6 - 71.6 + 11.545 = 315.32 \text{ W}$$

avec  $P_{el\max} = 317.5 \text{ W}$

$$\varepsilon = P_{el\max} - \hat{P}_{el\max} = 2.18 \text{ W}$$

Puisque les facteurs C et D sont supposés linéaires à l'intérieur de l'intervalle [-1 1], leurs évolutions peuvent être représentées sous la forme de fonctions affines.

Pour le facteur C, on trouve :

$$Yc = 0.6666 \times c - 4.6666$$

avec c : valeur du débit d'air variant entre 5.5 et 8.5 (Nl/min)

Pour le facteur D :

$$Yd = 0.1504 \times d - 4.95552$$

avec d : valeur du débit d'hydrogène variant entre 26.3 et 39.6 (Nl/min)

Ainsi, on obtient pour les modèles de la puissance maximale et du rendement :

$$\hat{P}_{el\max} = 397.28 + 18.6 \times (0.666 \times c - 4.666) + 71.6 \times (0.15 \times d - 4.955)$$

$$\hat{P}_{el\max} = 486.3 \text{ W pour } c = 8.5 \text{ Nl/min et } d = 39.6 \text{ Nl/min}$$

$$\hat{\eta}_{el\max} = 32.68 - 5.518 \times (0.666 \times c - 4.666) + 5.74 \times (0.15 \times d - 4.955)$$

$$\hat{\eta}_{el\max} = 43.95\% \text{ pour } c = 8.5 \text{ Nl/min et } d = 39.6 \text{ Nl/min}$$

### III.2.7 ETAPE G : VALIDATION DU MODELE

La validation des résultats donnés par le modèle consiste à vérifier si les hypothèses retenues au départ du plan d'expériences sont bien vérifiées. La validation peut être réalisée en effectuant un essai complémentaire en dehors des essais du plan d'expériences pour valider le modèle de comportement obtenu par le plan d'expériences.

Dans le cas d'un plan complet, tous les nœuds du maillage sont bien testés. Nous avons donc pu calculer toutes les interactions. Il reste cependant l'hypothèse de linéarité de la réponse à vérifier. Pour cela, un essai au centre du domaine d'étude peut par exemple être fait. Si le résultat de cet essai est égal à la moyenne des essais du plan d'expériences, la linéarité des facteurs est vérifiée. Dans notre cas d'étude, trois essais complémentaires ont été réalisés en dehors des essais du plan d'expériences. Les résultats de ces essais sont indiqués dans le Tableau III- 8.

Tableau III- 8 : Essais complémentaires

		Essai intermédiaire1	Essai intermédiaire2	Essai intermédiaire3
A	PH <sub>2</sub>	0	-1	-1
		1.35bar	1.3bar	1.3bar
B	Pair	0	-1	-1
		1.35bar	1.3bar	1.3bar
C	DH <sub>2</sub>	-1	0	-1
		5.5NI/min	7NI/min	5.5NI/min
D	Dair	-1	0	0
		26.3NI/min	32.95NI/min	32.95NI/min
Puissance max en W		308	420	410
Rendement max en %		31.1	33.3	41.4

Pour analyser ces résultats, nous avons eu recours à la vérification par intervalle de confiance. Cette nouvelle approche est souvent préconisée dans la pratique car elle introduit la notion d'incertitude. On cherche en fait à déterminer l'intervalle [a, b] centré sur la valeur numérique estimée du paramètre inconnu Y et contenant la valeur vraie avec une probabilité  $\alpha$  fixée a priori. Cette probabilité permet de s'adapter aux exigences de l'application.

L'intervalle [a, b] est appelé intervalle de confiance (ou zone de confiance relative à la droite théorique de régression) et  $\alpha$  est le coefficient de confiance. Une estimation par intervalle de confiance sera d'autant meilleure que l'intervalle sera petit pour un coefficient de confiance grand.

Nous pouvons à titre d'exemple tracer l'intervalle de confiance de la réponse théorique du rendement pour un débit d'hydrogène de 5.5NI/min et un débit d'air évolutif. Le coefficient de confiance  $\alpha$  est fixé à 0.05.

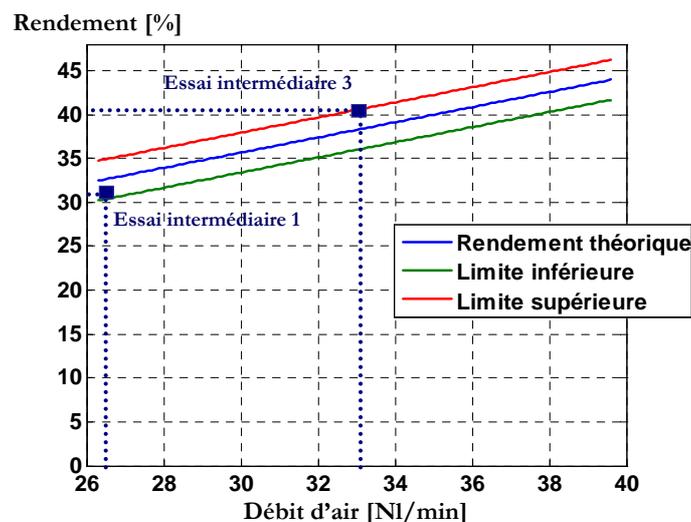


Figure III- 9 : Détermination de l'intervalle de confiance appliqué au rendement ( $\alpha$  fixé à 0.05 et débit d'hydrogène à 5,5NL/min)

Avec 5% de risque d'erreur, toute valeur de l'échantillon comprise entre les bornes de l'intervalle de confiance peut être considérée comme analogue à la moyenne de l'échantillon. Si une valeur n'est pas comprise dans l'intervalle de confiance, cette valeur est significativement différente de la moyenne de l'échantillon. De ce fait, les deux essais intermédiaires 1 et 3 réalisés pour un débit de 5.5Nl/min sont bien compris dans l'intervalle de confiance à 5% d'erreur.

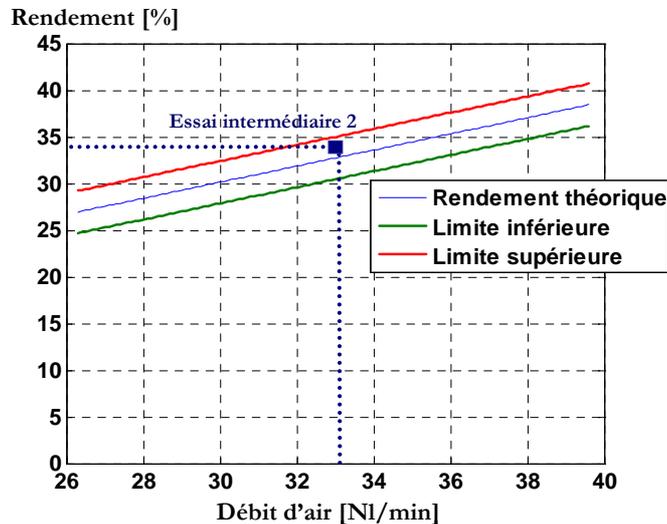


Figure III- 10 : Détermination de l'intervalle de confiance appliqué au rendement ( $\alpha$  fixé à 0.05 et débit d'hydrogène à 7NL/min)

### III.2.8 ETAPE H : MISE EN ŒUVRE ET SUIVI

Comme cela a déjà été mentionné, le principal inconvénient des plans factoriels complets est le nombre important d'essais à réaliser lorsque le nombre de facteurs devient important. De ce fait, est-il possible d'estimer les coefficients du modèle avec une précision acceptable sans pour autant réaliser tous les essais du plan factoriel ? C'est là l'intérêt des plans fractionnaires. Pour illustrer ce propos, en reprenant le plan complet de 16 essais du paragraphe III-2, nous pouvons obtenir un plan orthogonal en coupant ce plan en deux parties par rapport à une action (interaction) (cf. II.6.2.1).

## III.3 PLAN FACTORIEL FRACTIONNAIRE

Nous avons vu dans le chapitre II que le plan fractionnaire permet de réduire le nombre d'essais d'une manière intelligente pour pouvoir exploiter les expériences tout en se laissant la possibilité de les compléter par une autre série d'essais bien choisis pour confirmer ou mettre en évidence d'autres résultats. L'idée clef de la méthode est que les effets principaux ont plus de chance d'être plus importants que les interactions doubles, que les interactions doubles ont plus de chance d'être plus importantes que les interactions triples, etc.

Le plan factoriel complet qui nous intéresse comporte 16 essais. Le plan factoriel fractionnaire à construire doit quant à lui vérifier un certain nombre de propriétés dont la première est le nombre de degrés de liberté. Une autre condition à remplir est l'orthogonalité. Nous allons donc chercher un des 15 demi-plans orthogonaux qui peuvent être extraits du plan complet et qui ne comportent pas de confusion entre les actions supposées non nulles du modèle.

Si nous négligeons les interactions du quatrième ordre, nous pouvons couper le plan complet à l'aide du générateur d'alias  $I = ABCD$ , et obtenir ainsi le plan fractionnaire suivant :

Tableau III- 9 : Plan factoriel complet  $2^4$

	Facteurs				Interactions 2 <sup>ème</sup> ordre						Interactions 3 <sup>ème</sup> ordre				ABCD	
	A	B	C	D	AB	AC	AD	BC	BD	CD	ABC	ABD	ACD	BCD		
1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	
2	+1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1
3	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	-1	-1
4	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	+1
5	-1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	+1	+1	-1
6	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	+1	+1
7	-1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1
8	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	-1
9	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	-1
10	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	+1	+1
11	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	+1
12	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	-1	-1	-1	-1
13	-1	-1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1
14	+1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	-1
15	-1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	-1
16	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1

Tableau III- 10 : plan fractionnaire  $2^{4-1}$

	N° d'essai	Facteurs				Réponse
		x <sub>1</sub>	x <sub>2</sub>	x <sub>3</sub>	x <sub>4</sub>	
	1	-1	-1	-1	-1	y <sub>1</sub>
	4	+1	+1	-1	-1	y <sub>4</sub>
	6	+1	-1	+1	-1	y <sub>6</sub>
	7	-1	+1	+1	-1	y <sub>7</sub>
	10	+1	-1	-1	+1	y <sub>10</sub>
	11	-1	+1	-1	+1	y <sub>11</sub>
	13	-1	-1	+1	+1	y <sub>13</sub>
	16	+1	+1	+1	+1	y <sub>16</sub>

Le plan retenu est de résolution IV (les facteurs d'ordre I sont alias avec des actions d'ordre III, par contre, les actions d'ordre II seront alias avec d'autres actions d'ordre II. Ces plans sont très intéressants dans la mesure où les actions d'ordre III sont souvent insignifiantes) [Sou94] [Pil99]. Ce plan d'expériences correspond aux colonnes 1, 2, 4 et 7 de la table  $L_8(2^7)$  de Taguchi.

Une analyse de la variance, sans interactions, de la puissance maximale délivrée par la pile a été effectuée par la suite à partir du plan fractionnaire.

Tableau III- 11 : Analyse de la variance de la puissance maximale délivrée par la pile réalisée à partir du plan fractionnaire

Source de variation	ddl.	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	247.5	0.52	247.5	0.48	0.538
Pair	1	52.5	0.11	52.5	0.1	0.770
DH <sub>2</sub>	1	2397.8	5	2397.8	4.64	0.120
Dair	1	42997.8	91	42997.8	83.26	0.003

Les résultats obtenus viennent confirmer ceux de l'étude du plan factoriel complet, à savoir en particulier le degré d'importance du débit d'air pour obtenir une puissance maximale, avec une contribution de 91%. De la même façon, l'étude des résultats du plan fractionnaire ayant pour réponse le rendement électrique de la pile à combustible révèle, comme attendu, les grandes influences des débits d'air et d'hydrogène avec des contributions respectives de 50.8% et 48.7%.

Tableau III- 12 : Analyse de la variance du rendement de la pile réalisée à partir du plan fractionnaire

Source de variation	ddl.	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	1.62	0.3	1.62	8.53	0.061
Pair	1	0.605	0.1	0.605	3.18	0.172
DH <sub>2</sub>	1	262.205	48.7	262.205	1380	0
Dair	1	273.78	50.8	273.78	1440.9	0

L'utilisation du plan factoriel fractionnaire conduit donc aux mêmes types de conclusions que celles obtenues dans le cas du plan complet, mais avec seulement 8 expériences au lieu de 16.

### III.3.1 ANALYSE DES RESULTATS

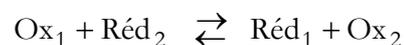
Nous cherchons à montrer dans cette partie comment le plan d'expériences réalisé permet d'aider à accéder à une meilleure compréhension physique de l'influence des paramètres pressions et débits sur les performances de la pile.

#### III.3.1.1 Effets de la pression

Le faible effet des pressions observé sur la puissance maximale atteinte et sur le rendement de la PàC déterminé pour la puissance maximale peut sembler surprenant. Il peut même nous mener à nous poser la question de la justesse des résultats présentés, même si nous gardons à l'esprit que la gamme de pressions explorée est demeurée faible (0.1bar).

Ce sont des considérations physiques assez simples qui peuvent faire naître le doute évoqué. En effet, l'équation de Nernst mais, également l'expression des surtensions d'activation, montrent clairement qu'une augmentation des pressions mène à une tension plus élevée de la PàC.

Une réaction électrochimique d'oxydo-réduction s'écrit ainsi sous la forme :



Le potentiel de réaction est donné par l'équation de Nernst :

$$E = E_0 - \frac{RT}{nF} \ln \left[ \frac{\text{produits}}{\text{réactifs}} \right] \quad (\text{III. 17})$$

avec :

E : potentiel thermodynamique réversible de la réaction

E<sub>0</sub> : force électromotrice à conditions normales de pression et de température

T : température

F : constante de Faraday

L'équation de Nernst peut s'écrire dans le cas d'une pile PEM H<sub>2</sub> / air :

$$E = E_0 + \frac{RT}{nF} \ln \left[ \frac{P_{\text{H}_2} \times P_{\text{O}_2}^{\frac{1}{2}}}{P_{\text{H}_2\text{O}}} \right] \quad (\text{III. 18})$$

où P<sub>H<sub>2</sub></sub> est la pression partielle de l'hydrogène et P<sub>O<sub>2</sub></sub> la pression partielle de l'oxygène.

La loi de Nernst indique que la différence de potentiel dépend à la fois de la pression des gaz et de la température. Les pressions interviennent également dans les expressions des surtensions, calculées à partir de l'équation de Butler-Volmer.

$$\eta_{\text{act}} = \beta_1 + \beta_2 T + \beta_3 T \ln \left( \frac{P_{\text{O}_2}}{P_0} \right) + \beta_4 T \ln(i) + \beta_5 \ln \left( \frac{P_{\text{H}_2}}{P_0} \right) \quad (\text{III. 19})$$

Quand la cellule débite un courant, la tension à ses bornes U (I) est inférieure à E du fait des différentes pertes (activation, diffusion, chutes ohmiques...). L'influence de la pression sur le niveau de tension peut être expliquée par la disponibilité des molécules de gaz au niveau des sites réactionnels. Quand la pression est plus élevée, il y a plus de molécules dans un volume donné. On s'attend donc à une amélioration des performances de la pile quand la pression monte. L'augmentation de la pression des réactifs doit alors permettre d'améliorer de façon significative les performances de la pile. On peut d'ailleurs le constater sur les courbes de polarisation de la Figure III- 11, réalisées à débits constants. Les courbes de polarisation relevées pour différentes pressions et superposées sur un même graphe montrent bien l'effet de la pression.

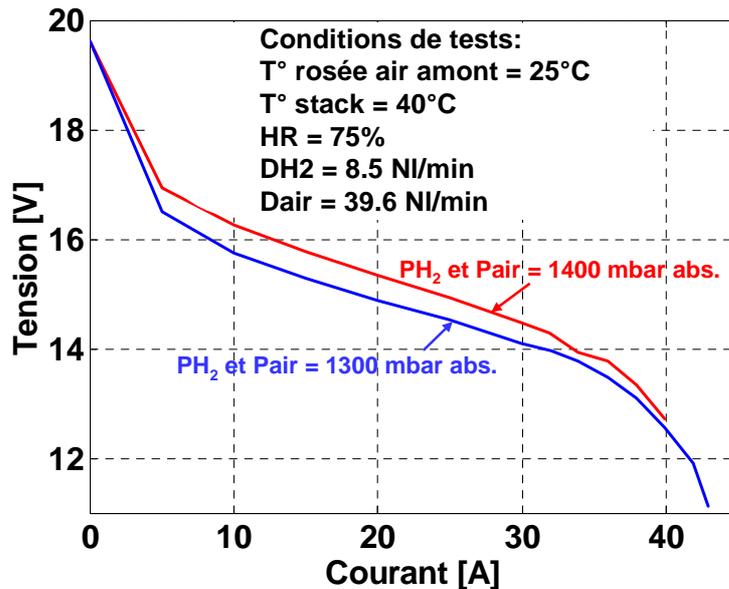


Figure III- 11 : Superposition de courbes de polarisation mesurées pour deux pressions d'air

Cette contribution des pressions au rendement de tension (et donc à la puissance atteinte) n'apparaît pas dans les résultats du premier plan d'expériences où la réponse étudiée est la puissance maximale atteinte. Dans ce cas, pour les différents courants de pile correspondant aux seize puissances maximales, seuls les facteurs débit d'hydrogène et débit d'air ont une influence sur la réponse étudiée.

Une nouvelle étude, effectuée pour un point de fonctionnement bien défini sur la courbe de polarisation (courant de pile I de 20A), a pour objectif de mettre en évidence l'incidence des pressions sur la puissance délivrée par la pile. Nous procédons à une nouvelle analyse de la variance pour un courant fixe de 20A. Les résultats suivants sont alors obtenus.

Tableau III- 13 : Analyse de la variance pour la puissance à I=20A

Source de variation	ddl	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	30.526	8.94	30.526	2.14	0.203
Pair	1	51.481	15.089	51.481	3.61	0.116
DH <sub>2</sub>	1	3.516	1.03	3.516	0.25	0.639
Dair	1	165.766	48.58	165.766	11.64	0.019
PH <sub>2</sub> × Pair	1	5.406	1.58	5.406	0.38	0.564
PH <sub>2</sub> × DH <sub>2</sub>	1	5.406	1.58	5.406	0.38	0.565
PH <sub>2</sub> × Dair	1	2.806	0.82	2.806	0.2	0.675
Pair × DH <sub>2</sub>	1	0.951	0.27	0.951	0.07	0.805
Pair × Dair	1	0.001	0	0.001	0	0.996
DH <sub>2</sub> × Dair	1	4.101	1.2	4.101	0.29	0.613
Erreur	5	71.223	20.87	14.245		
Total	15	341.179				

Pour un courant de pile déterminé (de 20A, correspondant à une puissance moyenne), il est possible de conclure sur l'effet bien visible du facteur débit d'air mais aussi sur les effets de la pression d'air et de la pression d'hydrogène.

Le facteur débit d'air est le plus influent et il contribue à 48.6% sur la puissance prise comme réponse. Il est suivi du facteur pression d'air, avec une contribution à hauteur de 15%. Le facteur pression d'hydrogène contribue à hauteur de 8.95% et en dernier lieu, nous trouvons le facteur débit d'hydrogène avec 1% de contribution.

En ce qui concerne le rendement de la pile, l'analyse de la variance met en avant l'effet très important du débit d'hydrogène, comme dans les études précédentes.

Tableau III- 14 : Analyse de la variance pour le rendement à I=20A

Source de variation	ddl	SCE	CTR %	Carrés Moyens	F <sub>obs</sub>	Probabilité
PH <sub>2</sub>	1	0.176	0.039	0.176	1.51	0.274
Pair	1	0.336	0.075	0.336	2.87	0.150
DH <sub>2</sub>	1	444.577	99.42	444.577	3795.5	0
Dair	1	1.221	0.273	1.221	10.42	0.023
PH <sub>2</sub> × Pair	1	0.062	0.014	0.062	0.53	0.497
PH <sub>2</sub> × DH <sub>2</sub>	1	0.009	0.002	0.009	0.08	0.792
PH <sub>2</sub> × Dair	1	0.027	0.006	0.027	0.23	0.65
Pair × DH <sub>2</sub>	1	0.002	≈0	0.002	0.02	0.900
Pair × Dair	1	0.006	≈0	0.006	0.05	0.835
DH <sub>2</sub> × Dair	1	0.16	0.036	0.16	1.37	0.295
Erreur	5	0.586	0.001	0.117		
Total	15	447.163				

L'analyse des résultats pour un courant de 20A révèle l'effet très largement prépondérant du débit d'hydrogène par rapport aux effets des autres variables. Il contribue ainsi à lui seul à 99.42% du total des contributions. Le résultat n'est pas surprenant compte tenu de la définition du rendement de pile adoptée pour cette étude.

### III.3.1.2 Effets des débits

Les débits des gaz ont une grande influence sur l'humidité dans la pile. Ils jouent notamment un rôle important dans l'évacuation de l'eau au sein des canaux et des couches de diffusion. Du côté anode, comme les gaz entrant dans la pile ne sont pas humidifiés, le seul moyen pratiquement envisageable pour modifier l'humidité dans le stack consiste à faire varier le débit d'hydrogène sec. Néanmoins le choix des débits ne peut pas se faire librement. D'une part, un débit trop faible ne suffit pas à établir une alimentation suffisamment homogène des cellules, pour chacune des vingt cellules de la pile et sur la surface de chacune d'entre elles. D'autre part, un fort débit et une surstoéchiométrie élevée impliquent ici une perte de gaz importante, ce qui entraîne une baisse du rendement du système car aucune autre utilisation de ce gaz n'est mise en oeuvre ici en aval du stack (pas de re-circulation ou de combustion de l'hydrogène par exemple).

Pour aboutir à un bon fonctionnement de la pile, l'humidification des réactifs doit être contrôlée de manière relativement précise. Les membranes ont besoin d'une certaine teneur en eau pour atteindre une bonne conductivité et les électrodes ont des performances qui dépendent de la couverture d'eau présente sur leurs surfaces. Dans le cas d'un noyage de cellule, les sites catalytiques ne peuvent pas être alimentés en oxygène (cas « trop humide »). A contrario, quand les pores deviennent trop secs, l'alimentation en protons n'est plus aussi bien assurée non plus (cas « trop sec »). Les deux cas conduisent à une diminution du nombre de sites actifs et donc à une réduction des performances.

Les valeurs des débits d'hydrogène et d'air ont été choisies d'abord en fonction du courant de charge, mais aussi de façon à avoir une évacuation de l'eau satisfaisante dans les cellules, pour éviter un éventuel problème de noyage, et pour ne pas assécher les membranes.

### III.3.2 RESULTATS ADDITIONNELS

Les outils développés dans le cadre de l'étude menée pour le courant particulier de 20A sont employés afin de comprendre la contribution et l'influence de chaque paramètre pour d'autres valeurs de courant, "le long" de la courbe de la polarisation. Des analyses de variance sont ainsi exécutées pour six courants différents entre 10 et 20A.

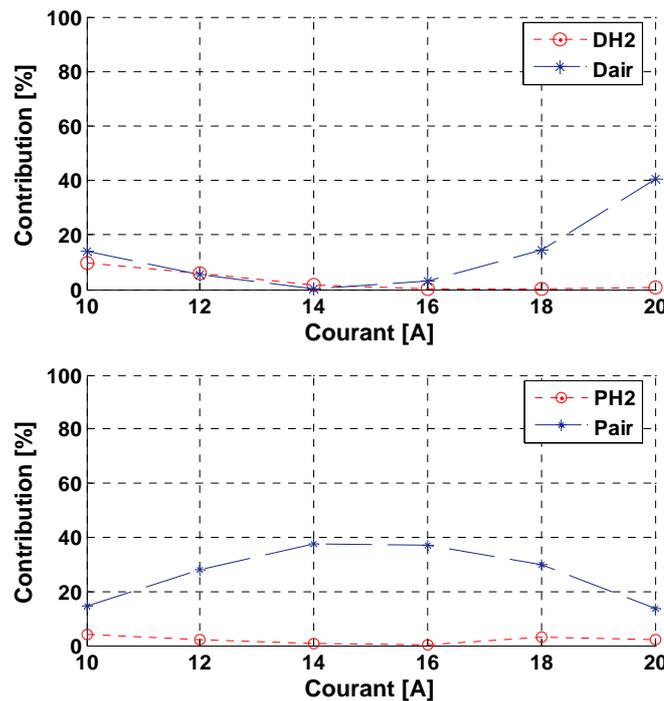


Figure III- 12 : Contributions des facteurs à la tension de pile pour différents courants

Les courbes de contribution à la tension de pile, tracées pour les quatre facteurs et pour différents courants, montrent d'abord que les deux paramètres relatifs à la cathode ont des contributions plus grandes que ceux liés à l'anode. Les deux courbes de la figure III- 12 mettent ainsi principalement en avant l'importance de la gestion de l'air sur la pile étudiée. Les courbes de contribution du débit d'air et de la pression d'air présentent des évolutions « géométriques » presque complémentaires, avec des formes respectives en cuvette et en dôme, avec des minima et maxima observés pour des courants de 14 – 15A. La figure III- 12 montre aussi que l'augmentation de la pression d'air conduit bien à une élévation notable de la tension de pile. Le fait que le total des contributions n'excède pas 60% est dû à la présence d'interactions significatives (non représentées ici) qui ont pu être décelées lors des analyses de la variance.

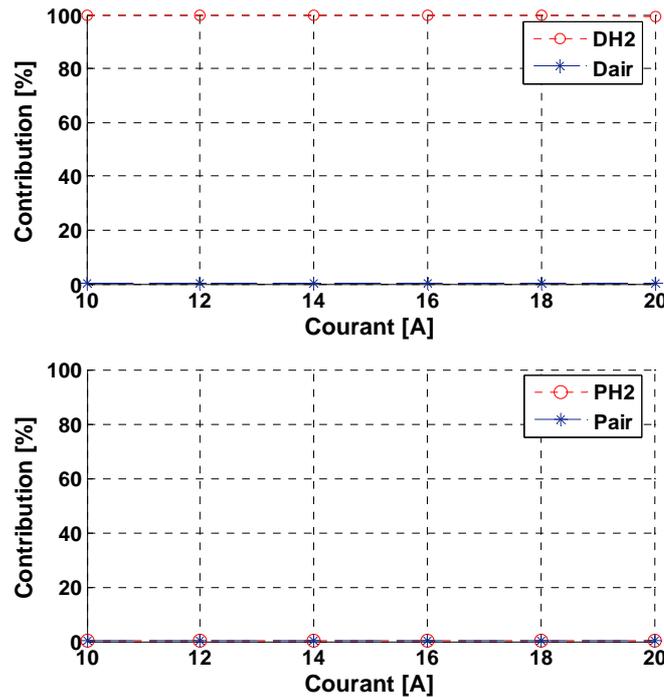


Figure III- 13 : Contribution des facteurs au rendement pour différents courants

En ce qui concerne le rendement, l'étude montre la contribution majeure du facteur débit d'hydrogène au rendement, et ce pour toute la plage de courant considérée.

**Remarque :**

Une optimisation multi-objectifs, ou de type désirabilité [Expérimentique, III.3 – 22], aurait été possible dans le cadre de l'étude présentée ci-dessus. Cette approche est particulièrement intéressante dans le contexte de l'optimisation des conditions opératoires du système PàC où différents critères peuvent être pris en considération : puissance maximale, rendement maximal... Cependant, dans le contexte précis de l'étude proposée ici, l'optimisation multi-critères puissance / rendement de la pile (stack seul) ne conduirait pas forcément à des résultats très « spectaculaires ». En effet, la relation utilisée pour estimer le rendement de la pile doit faire apparaître celui-ci globalement comme une fonction décroissante du courant (à l'image de la tension du stack et donc de la courbe de polarisation). Un compromis puissance / rendement devrait donc se traduire par un décalage vers des courants plus faibles du point de fonctionnement calculé pour l'obtention de la puissance (importance du décalage en relation avec la pondération apportée au critère de rendement). Ce type d'étude serait certainement bien plus intéressante, voire incontournable, si le rendement considéré se rapportait au système (pile + auxiliaires).

### III.4 CONCLUSION DU CHAPITRE III

Un premier exemple applicatif de plan d'expériences destiné à étudier l'influence des débits et des pressions des gaz réactifs, côté hydrogène et côté air, sur les performances de la pile a été réalisé avec un stack PEM 500W utilisé en mode régulation de pression. La réponse étudiée a d'abord été la puissance maximale de la pile, puis son rendement pour cette même puissance. Deux modalités, ou niveaux, ont été retenues pour chacun des quatre paramètres. Les seize essais correspondant au plan complet ont alors été réalisés. Les analyses effectuées pour le plan complet puis pour le plan fractionnaire (comportant huit expériences choisies judicieusement parmi les

seize réalisées) ont conduit à des résultats sensiblement identiques. Dans les deux cas, nous avons abouti aux mêmes conclusions concernant les effets prédominants des deux facteurs débit d'air et débit d'hydrogène sur la puissance maximale de la pile. Ce travail a ainsi prouvé la possibilité du passage du plan complet au plan fractionnaire et mis en évidence son intérêt, à savoir la réduction du nombre d'essais (Il est à noter que la démarche méthodologique adoptée dans l'étude est intéressante surtout sur un plan didactique. Pour résoudre le problème proposé, il serait en effet plus judicieux de faire d'abord un plan en résolution IV à huit essais puis de valider sur un ou deux points l'hypothèse des faibles effets des interactions).

L'objectif de cette première étude par plans d'expériences consistait à caractériser plus rapidement la pile à combustible en réduisant au possible le nombre d'essais, à déterminer les paramètres les plus influents, et à mettre en évidence les corrélations qui les lient. Des résultats « parlant » ont pu être obtenus par l'utilisation de méthodes statistiques (analyses de la variance) et des représentations graphiques des effets des paramètres. Des modèles « statistiques » matriciels ont été proposés pour exprimer la réponse (puissance maximale et rendement) en fonction des débits et pressions.

L'importance majeure du débit d'air relevée dans l'étude explique le fait que certains constructeurs de piles optent pour des technologies à cathodes ouvertes (« air-breathing fuel cell » ou « convection style stacks ») alimentées en air par un simple ventilateur, ou soufflante. Ce type de fonctionnement, très simple et peu consommateur en énergie (pas de compresseur) semble bien adapté aux piles de faibles puissances.

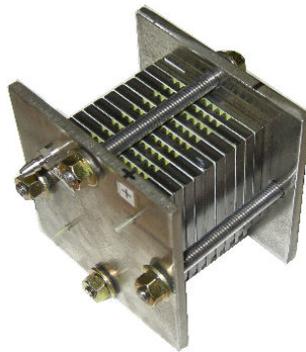


Figure III- 14 :  
Pile à combustible  
à cathode ouverte  
[fuelcellstore]

Des considérations physiques, telles que le calcul du potentiel réversible, grâce à l'équation de Nernst faisant intervenir les pressions partielles des gaz air et hydrogène, nous ont conduit à réaliser une étude complémentaire, sensiblement différente de la première dans la mesure où nous ne nous sommes plus intéressés seulement à la puissance maximale atteinte mais aussi à la puissance de la pile pour un courant de 20A, puis pour des courants compris entre 10 et 20A. L'analyse des résultats a alors permis de mettre également en évidence l'influence des pressions (notamment coté cathode) sur la puissance délivrée par la pile.

L'étude réalisée a permis de montrer l'intérêt d'un fonctionnement en mode régulation de pression, mode dans lequel la régulation est effectuée grâce à un actionneur situé en aval de la pile. Celui-ci correspond à une vanne pneumatique sur le banc 1kW. Dans le projet *Hydro-Gen* de PSA, la technique de régulation de la pression cathode est mécanique : l'organe de régulation est assimilable à une soupape [Poi00b]. La réponse statique et dynamique du composant modélisé dépend de la raideur du ressort et du coefficient d'amortissement choisis. Des constructeurs (tels que Brooks) proposent également des vannes commandées électriquement et compactes qui pourraient permettre la régulation de pression dans les PàC.