

Comprehensive report

First and last name of the doctoral candidate: Raphael GASS

First and last name of the thesis supervisor: Rachid OUTBIB, Zhongliang LI, Daniel HISSEL, Samir JEMEI

Title of the thesis: Advanced physical modelling of PEM fuel cells to enhance their performances

NB. The criteria under the three headings are indicative and non-exhaustive; they are not necessarily relevant in all cases.

1. Synthetic presentation of the thesis, in particular its context (research unit(s), interdisciplinary nature, socio-economic or other partnership ...) and its content (indicate for example the number of pages, annexes, overall structure, hypotheses, main results etc.).

Hydrogen fuel cell technologies are no doubt important for our human being society. Although this technology has been developed for more than 20 years, there are still lots of issues that need to be solved. One of the big challenges is how to prolong the working lifetime of fuel cells in real dynamic conditions, such as in vehicular applications.

The basic mechanism of fuel cell performance degradation is relative clear. However, when we look into a real dynamic conditions, things become complex. The water/gas transport processes, heat generation and release processes, as well as electro-chemical kinetics, coupled together, causing reversible and irreversible performance degradation. How to understand and model the performance degradation processes, is the key challenge right now.

To solve this issue, the first step is to develop a dynamic model that can describe the dynamic behaviours of water and gas transport processes within a large scale fuel cells. Using CFD methodologies can provide such models with enough details in internal states. However, they are so time costing that can't be used quickly in fuel cell stack design and control scenarios. This paper provides an original research on fuel cell dynamic models. It is very important for optimization and control of fuel cells. This topic is very interdisciplinary and valuable.

The content of the paper is very well organized. It contains 163 pages, which is much more than our PhD these in Chinese in Tsinghua University (normally 120~150 pages). Annexes, overall structure, hypotheses, main results, are well organized.

2. Scientific expertise of the work: evaluate, for example, the degree of originality (innovation, advances in relation to the state of the art, contribution to the advancement of knowledge), the methodological contributions (originality of the method, rigour in the analysis of the data, objects or situations studied, rigour of the argumentation), the scope of the work carried out (complexity, extent of the research, quality of the results obtained), the candidate's abilities (critical analysis, synthesis, scientific maturity, ability to put the results into perspective), the valorisation of the work, etc. Indicate the points that may give rise to discussion during the defence.

The degree of originality (innovation, advances in relation to the state of the art, contribution to the advancement of knowledge)

It is an original research related to dynamic modelling of PEM fuel cells. It is difficult to establish a fuel cell model, that fulfils the requirements of modelling precision and calculating

speed. CFD can provide enough details in internal states, but it is very time costing and can't be utilized quickly for diagnosis and control scenarios. This study uses a finite-difference approach to establish a one-dimensional, dynamic, two-phase, isothermal model, which can fulfil the above mentioned targets. Moreover, an open-source software package, AlphaPEM, based on this model and implemented in Python, is developed. It can be regarded as a very good contribution to this field.

The methodological contributions (originality of the method, rigour in the analysis of the data, objects or situations studied, rigour of the argumentation)

The finite-difference approach is not totally new. The contributions are in modelling the details of water/gas transport processes. Especially, a new physical parameter, the limit liquid water saturation coefficient (slim) and corresponding formulas, are introduced in the overvoltage calculation. This will be very helpful for evaluate the influences of liquid water content on fuel cell output voltage. The analysis of simulation and experimental data, as well as the argumentation, are rigour.

The scope of the work carried out (complexity, extent of the research, quality of the results obtained)

This study focuses on modelling. Some implementation scenarios are also introduced, such as in system-level simulation and control. The quality of the results are reliable and solid.

If it is possible, I will suggest authors to extend the research in two aspects.

One is to conduct more experiments to validate the model in details. In this study, several polarization curves are used for model validation. If it is possible, author can conduct more experiments, and use more polarization curves, EIS curves, to make a more detailed calibration and validation of the model.

Since it is a dynamic model, it should be better if the dynamic behaviours are calibrated and validated. In this aspect, new measuring technologies may be developed for internal states measurements.

The other is related to how to use the model in improving the performance of a real fuel cell stack or system. For an example, the vehicular conditions, the temperature is rising very quickly. Sometimes, it may cause voltage collapse. If it is possible, author may get some real scenarios, and use this model to find some possible optimized strategies.

The candidate's abilities (critical analysis, synthesis, scientific maturity, ability to put the results into perspective)

The candidate shows good abilities in critical thinking and synthesis. His scientific maturity is good. The ability to put the results into perspective is also very good.

The valorisation of the work

This work provides a basic platform for fuel cell dynamic modelling. It has great values in applied fundamental research, as well as in engineering application. The open-source software AlphaPEM has good potential in commercialization.

Indicate the points that may give rise to discussion during the defence

Here are several points that may give rise to discuss during the defence.

- 1) How to validate the dynamic model in more details? For an example, use EIS curves.
 - 2) Which measuring technologies is required for internal states calibration and validation, if the dynamic behaviours of fuel cell internal states are to be evaluated?
 - 3) What's the physical meaning of slim (the limit liquid water saturation coefficient)? What may be its potential in evaluate the influences of water content on fuel cell performance?
 - 4) In principle, how to evaluate the water content within a fuel cell?
3. Formal expertise of the thesis manuscript: evaluate, for example, the structuring of thoughts, the quality of the writing (clarity and correctness of expression), the material presentation (footnotes, quotations, titles and subtitles, internal references, etc.), the management of the bibliography (relevance of the bibliographical references, adherence to presentation norms), the quality of the figures and tables, etc.

The paper is well organized and prepared.

If possible, I would like to suggest the candidate to improve the thesis in two aspects.

- 1) Chapter 3.1, Validation of the model. Polarization curves under different operation conditions, as well as EIS information, may be utilized in model calibration.
- 2) Chapter 4, Propositions for improvement and reuse of the model. If it is possible, some challenges in real application scenarios, such as water-imbalance during power loading processes, could be introduced and optimized using the model.

4. Conclusion:

This paper provides an original research on fuel cell dynamic models. It is very important for optimization and control of fuel cells. This topic is very interdisciplinary and valuable. The content of the paper is very well organized. The contributions are in modelling the details of water/gas transport processes using finite-difference approach. Especially, a new physical parameter, the limit liquid water saturation coefficient (slim) and corresponding formulas, are introduced in the overvoltage calculation. This will be very helpful for evaluate the influences of liquid water content on fuel cell output voltage. The analysis of simulation and experimental data, as well as the argumentation, are rigour. The candidate shows good abilities in critical thinking and synthesis. His scientific maturity is good. The ability to put the results into perspective is also very good. The open-source software AlphaPEM has good potential in commercialization.

5. If relevant, list the corrections requested here
There are no requested corrections to be listed.

Favorable to the defense

Unfavorable to the defense

First and last name of the reviewer: Liangfei XU

Date: 2024/12/6

Signature of the reviewer:



Cadre réservé à l'Administration

Avis du directeur / de la directrice de l'École Doctorale

Accepté

Accepté avec corrections ponctuelles (corrections remises le jour de la soutenance)

Je demande le report de la soutenance pour révision complète du manuscrit.



LEMETA – CNRS – Université de Lorraine
2, avenue de la Forêt de Haye
54500 Vandoeuvre les Nancy
Sophie.didierjean@univ-lorraine.fr

Rapport sur le mémoire présenté par Raphaël Gass pour l'obtention du grade de Docteur de l'Université d'Aix-Marseille

Modélisation physique avancée des piles à combustible PEM pour améliorer leurs performances

Monsieur Raphaël Gass présente dans son mémoire de thèse une étude qu'il a réalisée en partenariat entre le Laboratoire d'Informatique et des Systèmes à Marseille et le laboratoire Femto-st à Belfort. Au cours de cette étude, il a élaboré un modèle multiphysique pour simuler numériquement le fonctionnement dynamique d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) environnée de ses auxiliaires fluidiques, et il en a fait un outil de contrôle/commande.

Le document soumis par Raphaël Gass, rédigé en anglais, est bien présenté et de lecture agréable. Les figures sont globalement claires et de bonne qualité (bien que certaines légendes soient un peu petites). Il est composé d'une introduction, de quatre chapitres et d'une conclusion générale. Les chapitres quant à eux n'ont ni synthèse ou conclusion finale ; il conviendra d'en ajouter une dans la version finale du document.

L'introduction générale présente le contexte de l'étude, les technologies de l'hydrogène, des généralités sur le fonctionnement et la modélisation des PEMFC et les objectifs de l'étude.

Le premier chapitre est le plus conséquent en nombre de pages puisqu'il est consacré à la présentation des modèles qui vont permettre de simuler le fonctionnement d'une cellule de PEMFC. Il aurait été bien d'indiquer en préambule qu'il s'agit du texte d'un article publié. Raphaël Gass analyse successivement la modélisation du transport de l'eau dans la membrane, le transport de l'eau en phase liquide puis en phase vapeur dans les couches de diffusion (GDL) et dans les couches catalytiques (CL), le transport de la vapeur dans les canaux (GC), le transport des gaz actifs et de l'azote, et il termine ce chapitre par la modélisation de la tension de cellule. Pour certains phénomènes de transport il aurait été appréciable d'avoir une figure explicative qui mette plus clairement en évidence la direction de transfert considéré ; c'est notamment le cas quand il est question de convection. Les différentes sections de ce chapitre auraient également gagné à se terminer

par une synthèse et par la présentation du, ou des modèles retenus (certaines équations sont encadrées : pourquoi ?). Pour chacun des phénomènes, Monsieur Gass expose les modèles qu'il a sélectionnés dans la littérature. Dans le domaine des piles à combustible à membrane échangeuse de protons la littérature scientifique s'est considérablement développée depuis environ 20 ans ce qui la rend particulièrement foisonnante, et par conséquent rend l'analyse bibliographique complexe et laborieuse. Raphaël Gass a donc fait un tri des articles de journaux et ouvrages lequel tri aurait pu être exposé en préambule (il est question des « avancées récentes » mais toutes les références ne le sont pas tant que ça), l'un de ses objectifs étant d'en faire une analyse approfondie et critique, et d'argumenter ses choix. Le foisonnement de la littérature scientifique aurait pu aussi amener Raphaël Gass à plus de réserve dans certaines de ses remarques et/ou conclusions : il est possible qu'il soit passé à côté d'articles et donc d'informations. D'ailleurs, dans cette analyse de la littérature on comprend difficilement comment le fort impact de la variation de la température de l'Assemblage Membrane Electrode (AME) sur le fonctionnement de la pile a pu échapper à l'attention de Monsieur Gass. L'hypothèse faite d'une cellule isotherme aura une influence très importante sur le transfert d'eau en phase vapeur, sur la quantité d'eau liquide et sa distribution spatiale, et donc sur les résultats du modèle. On note dans ce chapitre une réelle volonté Raphaël Gass de bien comprendre les phénomènes physiques qui, selon certains auteurs, se produisent dans la pile et ont de l'influence sur ses performances énergétiques. De mon point de vue, cette analyse aurait gagné à être accompagnée par l'évaluation de chacun des phénomènes par zone considérée, d'abord séparément puis de façon simultanée, ce qui aurait permis de valider leurs effets isolés et combinés, et surtout de faire une analyse de sensibilité des très nombreux paramètres qu'ils contiennent et sur les valeurs desquels il n'y a pas de discussion. Le nombre de phénomènes considérés suscite donc beaucoup de remarques et questions, quelques-unes sont données ci-après. Tous les choix faits par Monsieur Gass ne sont pas commentés, comme par exemple l'usage de la loi de Fick pour le transport des gaz dans les GDL, le modèle dit de « Stefan-Maxwell » n'étant même pas cité. La justification de l'utilisation de la loi de Tafel pour calculer la surtension d'activation de la réaction de réduction de l'oxygène n'est pas parfaitement claire et pourra être précisée à l'oral. C'est pour le moins audacieux de mettre en garde la communauté scientifique sur l'usage de l'équation de Butler-Volmer qui même si elle peut être discutée pour plusieurs raisons, est très instructive si elle est démontrée rigoureusement. L'introduction des courants de perméation et de leurs effets est intéressante par contre la formulation donnée à la page 62 n'est pas claire : de quels gradients de concentration est-il question pour ce phénomène ? Les flux de vapeur dans les canaux sont calculés en entrée et en sortie de pile mais on ne voit pas clairement où ils agissent dans le modèle de transfert 1D. Pour ce qui concerne l'introduction d'un coefficient d'échange de matière à l'interface entre le canal et la GDL : pourquoi pas, mais la notion de sorption à cet endroit me laisse perplexe. Enfin, sauf erreur de ma part, la présence d'une couche microporeuse n'est pas mentionnée, ce qui devrait être justifié. Finalement, on aurait aimé avoir une liste exhaustive de tous les paramètres du modèle y compris ceux qui ne sont pas connus avec certitude. Dans ce modèle, tous les paramètres opératoires qui influencent la tension aux bornes de la pile n'ont pas tous été donnés : par exemple comment est modélisée

l'influence de la stœchiométrie des gaz ? Ce chapitre se termine par la présentation des équations retenues pour la suite.

Le chapitre 2 présente le travail réalisé par Monsieur Gass pour l'implémentation numérique du modèle 1D décrit dans le chapitre précédent et d'un modèle de système. Il comprend une partie qui décrit la méthode de résolution du modèle de cellule par la méthode des différences finies avec la contrainte de devoir être exécutable en temps réel. Il en résulte 6 pages d'équations qui auraient pu trouver leur place en annexe. Dans la partie suivante, la pile est placée dans son système, l'objectif étant d'examiner comment le fonctionnement des auxiliaires impacte celui de la pile. Monsieur Raphaël Gass a choisi de faire une description « concise » du modèle dynamique du système qu'il a sélectionné dans la littérature, tant est si bien qu'elle est quasiment inexistante : un bref paragraphe de moins d'une page précède 4 pages d'équations. Le travail du modélisateur est de donner les hypothèses et de décrire les phénomènes physiques ; les équations ne sont que le résultat de cette réflexion. Une version modifiée de cette partie est absolument indispensable dans le mémoire de thèse final. Le modèle de tension de cellule est ensuite agrémenté de 2 paramètres supplémentaires avant d'être résolu numériquement. Le chapitre 2 se termine donc sans conclusion !

Le chapitre suivant porte sur l'exploitation du modèle : sa validation, la mise en place de l'outil AlphaPEM et l'analyse des résultats produits. Les éléments de contexte concernant la validation du modèle sont tout à fait pertinents : en effet, celle-ci doit inclure la comparaison avec des données expérimentales diverses et donc différentes de celles qui ont servi à déterminer les paramètres inconnus, et comme cela est justement rappelé par Raphaël Gass, mêmes si les sorties mesurables du modèle semblent coïncider avec les tendances expérimentales cela ne garanti pas que les grandeurs internes non mesurées soient identiques (sans doute est-ce le cas ici pour la température de l'AME). Ainsi, par comparaison avec des données expérimentales, 12 paramètres sont identifiés ; un commentaire des valeurs obtenues aurait été un plus. L'accord modèle expérience est donc assez satisfaisant sauf pour une pression de fonctionnement de 1.5 bar. Une étude de sensibilité complète aurait été intéressante pour cette partie. Le chapitre 3 se poursuit avec la présentation du code AlphaPEM conçu pour le diagnostic et le contrôle dans les systèmes embarqués. Avec les modèles présentés précédemment, Monsieur Gass a réalisé avec Python, un outil de simulation avec une interface utilisateur et différentes fonctionnalités, ce qui a sans doute nécessité énormément de travail. Le simulateur mis au point permet de suivre l'évolution temporelle des grandeurs physiques du modèle ; des exemples de résultats sont présentés pour 2 échelons de courant croissants. L'analyse des résultats faite par Raphaël Gass est intéressante et répond aux exigences scientifiques d'une étude doctorale. Mais l'exercice n'est pas facile car de nombreux phénomènes sont imbriqués. Ce chapitre se termine également sans conclusion.

Dans le dernier chapitre, des adaptations ou modifications du modèle sont proposées par Raphaël Gass. Tout d'abord il propose une discussion sur l'intérêt d'avoir introduit une saturation limite dans le calcul de la surtension d'activation. L'argumentaire très intéressant, qui aurait dû être donné au chapitre 2, s'étend de façon pertinente à l'influence de la présence de l'eau liquide dans le GDL sur les coefficients de diffusion de matière. Le modèle est ensuite utilisé pour examiner l'intérêt d'adapter l'humidité relative des gaz en fonction du point de fonctionnement ; un examen de la littérature aurait permis

à Monsieur Gass de situer ses propositions par rapport à l'existant. Des résultats sont proposés mais il n'est pas indiqué comment est définie l'efficacité de la pile à combustible. Dommage aussi qu'il n'y ait pas davantage de commentaires des résultats qui sont présentés dans cette partie. Après une analyse de la littérature, le modèle est ensuite adapté pour calculer l'impédance de la pile. Il faut pour cela donner un modèle d'électrode volumique et dans celui proposé on ne voit pas apparaître la conduction protonique. Les résultats des simulations sont soigneusement analysés, notamment l'influence des auxiliaires qui apparaît à basses fréquences. Dans une dernière partie, Monsieur Gass propose d'adapter son modèle pour le rendre utilisable dans un système de contrôle/commande du système pile à combustible, atteignant ainsi les objectifs de l'étude. Pas de conclusion.

Le mémoire se termine par une – décidément – brève conclusion, qui donne un résumé du travail et quelques perspectives d'améliorations du modèle multiphysique de la PEMFC.

Monsieur Raphaël Gass a réalisé une étude scientifique très ambitieuse dédiée à la réalisation d'un outil dynamique de contrôle/commande d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons environnée de ses auxiliaires fluidiques. Pour cela il a entrepris un travail de modélisation puis a réalisé un outil numérique comprenant différentes fonctionnalités, qu'il a aussi adapté aux contraintes d'un outil de management du système embarqué. La problématique à laquelle il a fait face est donc particulièrement complexe et on peut noter que tous les objectifs ont été atteints ou qu'au moins les bases ont été posées. Même si parfois la forme du mémoire est discutable, celui-ci montre que Raphaël Gass a de bonnes connaissances scientifiques et un fort esprit critique. L'argumentaire proposé pour l'analyse de ses résultats est généralement convaincant, mais peu de comparaisons sont faites avec ceux de la littérature ce qui aurait été un plus. L'étude apporte par ailleurs des éléments originaux parmi lesquels la spectroscopie d'impédance simulée, l'outil de simulation et celui de contrôle commande du système.

Le travail réalisé démontre que Monsieur Raphaël Gass sait mener un travail de recherche. Je donne donc un avis favorable à la soutenance de la thèse en vue d'obtenir le grade de Docteur de l'Université d'Aix Marseille.

Fait à Nancy le 26 novembre 2024

Sophie Didierjean

