



PILES À COMBUSTIBLE

Les piles à combustible : des caractéristiques aux domaines d'applications

Thierry Alleau et Françoise Barbier

Summary Fuel cells: from their characteristics to their application fields

The fuel cell offers a combination of benefits which will ensure it a place in the power generation and transport markets of the future. It is an efficient source of power and produces extremely low emissions. It also has few moving parts and potentially a long lifetime with low maintenance costs.

Cars with fuel cell engines have the potential to be quiet and clean – enhancing the quality of life for many people and reducing damage costs associated with pollution.

Stationary power generation also has much to gain should the fuel cell become widespread, and some fuel cell systems for this market are in the precommercial stage.

Radical new battery technology promises much more power for portable devices; some companies are developing fuel cells that turn methanol directly into electricity and could have many times the capacity of conventional batteries.

Mots-clés Pile à combustible, principes, caractéristiques, applications.

Key-words Fuel cell, principles, characteristics, applications.

La pile à combustible (PAC) est un convertisseur d'énergie qui fournit de l'électricité et de la chaleur à partir d'hydrogène et d'oxygène. Le principe a été découvert vers le milieu du XIX^e siècle et, depuis cette époque, l'intérêt porté à cette technique a été l'objet de mouvements de flux et de reflux. Un regain d'intérêt se manifeste pour cette technologie depuis le début des années 1990 en raison de la nouvelle donne énergétique qui se dessine (contexte de mondialisation et d'ouverture des marchés, sécurité d'approvisionnement à long terme, construction d'un développement énergétique durable, respect de l'environnement...).

Dans un pays comme la France, la consommation d'électricité ne représente que 40 % de la consommation totale d'énergie. Une grande part de la consommation vient des transports qui contribuent pour une large part à l'émission de gaz à effet de serre et au réchauffement climatique. Une autre préoccupation est l'épuisement à terme des énergies fossiles. Il faudra donc assurer une transition en développant des énergies non productrices de gaz à effet de serre. Ce nouveau vecteur énergétique devrait être l'hydrogène. Les premières applications de l'hydrogène devraient concerner l'alimentation des piles à combustible, ce gaz pouvant y être utilisé avec un rendement élevé. Ceci explique les importants efforts de recherches et de développements industriels conduits actuellement dans le monde sur cette technique.

Dans cet article, après un bref aperçu historique, le principe du fonctionnement des piles à combustible est rappelé. Les différents types de piles sont

également décrits avec leur état d'avancement. Enfin, les grands domaines d'applications des piles à combustible sont présentés à travers quelques exemples.

Historique sur les piles à combustible

Le principe de la pile à combustible a été démontré en 1839 par l'anglais William Grove [1-2]. Il réalisa la réaction inverse de l'électrolyse de l'eau en plaçant des électrodes de platine dans des tubes remplis d'hydrogène et d'oxygène et en plongeant le tout dans de l'acide sulfurique. Il avait testé ce qui se révélera être un précurseur de la pile à acide phosphorique (PAFC). Le rendement de sa cellule électrochimique était évidemment très faible, mais il avait saisi l'importance du contact à trois phases (gaz, électrolyte et platine) nécessaire à la production d'énergie. Cette technique fut ensuite mise en sommeil devant le développement plus rapide des générateurs thermiques et des accumulateurs et piles électriques aux environs des années 1860. Néanmoins, en 1895, W.W. Jacques [3] construisit la première pile à combustible de puissance (1,5 kW).

C'est à partir des années 1930 que les piles à combustible gagnèrent en maturité et en crédibilité grâce aux travaux de F.T. Bacon [4]. Vers 1935, il réalisa la première pile hydrogène/oxygène en milieu KOH aqueux (potasse), qui aboutira en 1953 à la réalisation du premier prototype industriel de puissance notable (quelques kWe) pour des densités de courant de 1 A/cm^2 à 0,8 V. Le principe physique étant validé, les



recherches et développements démarrèrent dans le monde.

Durant la période 1950-1965, les premières applications de pointe concernèrent principalement les domaines spatiaux et océanographiques. La pile à combustible a été adoptée par la NASA, notamment pour les véhicules spatiaux habités Gemini en 1963 et Apollo en 1968. Les piles à électrolyte solide polymère (PEMFC) avaient été initialement sélectionnées pour leur simplicité de construction (assemblage tout solide), mais les membranes électrolytes disponibles à cette époque n'avaient pas les qualités requises, si bien qu'elles furent abandonnées au profit du développement des piles alcalines (AFC). Pour ces applications, le prix était secondaire. Il s'agissait de disposer de sources électriques fiables, performantes et sans rejets toxiques.

La réussite technologique des programmes spatiaux à laquelle s'ajoute une conjonction de faits comme la signature du *Clean Air Act* aux États-Unis en 1969-1970 et la 1^{ère} crise du pétrole en 1973 encouragèrent un grand nombre de recherches entre les années 1965-1980 [5]. En 1970, DuPont de Nemours met au point la membrane Nafion[®] pour les électrolyseurs chlore-soude ; elle sera aussi utilisée pour les piles à électrolyte solide polymère. Les compagnies électriques et gazières américaines investissent dans des recherches pour des applications stationnaires qui aboutissent à la réalisation d'unités expérimentales de plusieurs MW, fonctionnant sur le principe des piles à acide phosphorique (Westinghouse, United Technologies Corporation). En France, plusieurs firmes industrielles mènent des recherches et aboutissent à la réalisation de piles au méthanol et à l'hydrazine de 1 kW (Alstom) et de piles alcalines (Compagnie Générale d'Électricité, Institut Français du Pétrole...). Le premier choc pétrolier relance également les travaux sur la PAC appliquée aux véhicules. En 1973, des prototypes roulants de General Motors et Ford font leur apparition, équipés d'une pile à hydrogène avec stockage d'hydrogène. Cependant, on bute encore sur les problèmes d'industrialisation (piles et auxiliaires), de durée de vie des piles (trop limitée), de fourniture et stockage du carburant, de bilan énergétique global et de coût. En outre, de 1965 à 1980, les rendements des moteurs thermiques progressent et les moteurs diesel font l'objet de nombreuses améliorations.

Suite au second choc pétrolier de 1979, une étude sur l'évaluation des possibilités de développement de la PAC pour la traction automobile fut menée en France, associant les industriels (Renault, EDF, GDF, Air Liquide, CGE) et des laboratoires

(IFP, CEA, IRT, Sorapec). De nombreuses incertitudes techniques, économiques et sécuritaires ne purent être levées. Face à ce constat, les programmes de recherche furent arrêtés fin 1981.

A partir de cette période [6-7], seuls quelques pays continuent leurs efforts dans ce domaine : principalement le Japon pour des utilisations stationnaires de forte puissance (filiale acide PAFC, carbonate fondu MCFC et oxyde solide SOFC), l'Allemagne (filiale MCFC) et la Belgique (filiale alcaline AFC). La France a repris des travaux sur la pile PEMFC en 1988 (CEA). Pour les autres pays, seule subsistait une veille technologique.

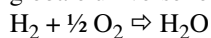
Après ces années de ralentissement, les préoccupations environnementales et la responsabilité des émissions de CO₂ dans l'effet de serre relancent fortement les recherches sur les piles à combustible. Dès 1990, des programmes importants sont de nouveau engagés aux États-Unis, au Canada et au Japon. Comparé à celui de ces pays, l'engagement de l'Europe est plus timide car les sommes investies sont plus modestes. En France, on peut citer le programme VPE – véhicule propre et économe – qui démarre en 1990 avec le CEA, le CNRS et les constructeurs automobiles PSA et Renault, sous l'égide de l'Ademe. Les points forts et les points faibles sont tirés des recherches antérieures, à travers les piles stationnaires en service et les piles embarquées sur des véhicules prototypes.

Pour conduire à des réalisations compétitives, les travaux actuels doivent, en particulier, répondre aux questions suivantes : rendement énergétique au moins aussi élevé que celui des technologies concurrentes (performances et durée de vie des composants de la pile), hydrogène stocké embarqué ou reformeur embarqué pour les véhicules, coût énergétique du carburant, distribution et production de l'hydrogène, sûreté du système, réglementation...

Principe de fonctionnement et types de piles à combustible

Principe

Une pile à combustible est un système électrochimique (convertisseur d'énergie) qui convertit directement l'énergie chimique d'une réaction d'oxydoréduction en énergie électrique. Dans le cas d'une pile hydrogène/oxygène, cette conversion – avec production simultanée d'électricité, d'eau et de chaleur – se réalise selon la réaction chimique globale universellement connue :



PILES À COMBUSTIBLE

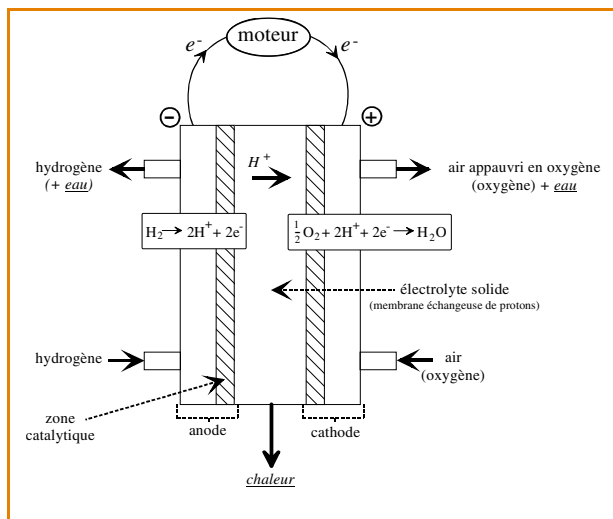


Figure 1 - Schéma de principe d'une pile à combustible hydrogène/oxygène à membrane polymère acide (type PEMFC).

Elle fonctionne donc sur le mode inverse de l'électrolyse de l'eau. La réaction s'opère au sein d'une structure essentiellement composée de deux électrodes garnies de catalyseur (l'anode pour l'oxydation de l'hydrogène et la cathode pour la réduction de l'oxygène) et séparées par un électrolyte, matériau qui bloque le passage des électrons mais laisse circuler les ions (figure 1).

Les trois composants (anode, électrolyte, cathode) constituent la cellule électrochimique élémentaire. Pour obtenir une tension suffisante, il suffit d'empiler les éléments en série. Un matériau d'interconnexion (plaque bipolaire) permet l'assemblage des cellules entre elles. Il a pour fonction de collecter les électrons provenant des électrodes mais aussi de séparer les gaz comburant et combustible. Des informations complémentaires sur ce sujet sont consultables dans la littérature [5, 8-9].

Le principe de fonctionnement est donc tout à fait similaire à celui d'une pile électrique conventionnelle. Dans cette dernière, l'oxydant et le réducteur sont progressivement consommés et on s'en débarrasse lorsque la matière active est épuisée. Dans une pile à combustible, l'anode est alimentée en continu par un combustible provenant d'un réservoir et la cathode est le plus souvent alimentée par l'oxygène de l'air.

Par rapport aux convertisseurs d'énergie classiques (moteurs à combustion interne, turbines), les piles à combustible présentent un certain nombre d'avantages :

- Utilisant de l'hydrogène et de l'oxygène, elles ne rejettent que de la vapeur d'eau. La pile à combustible est donc une technologie propre, la réaction chimique se faisant à des températures

plus basses que la combustion dans les moteurs ou les turbines à gaz. Si l'hydrogène est utilisé pur, les seuls rejets sont de l'eau et de la chaleur. Si un autre combustible est utilisé (gaz naturel, méthanol...), les émissions de CO sont très faibles (inférieures à 10 ppm) et les émissions de CO₂ sont légèrement plus faibles que pour un moteur thermique.

- Le rendement de conversion est très élevé (le rendement électrique brut peut atteindre 50 % et le rendement global peut aller jusqu'à 80 % en cogénération) car il n'est pas soumis aux limitations du cycle de Carnot.
- Elles sont plus silencieuses car, à l'exception des pompes, il n'y a pas de pièces mobiles.
- Elles sont, dans le principe, simples à utiliser car elles réalisent en une seule étape la conversion de l'énergie chimique en énergie électrique alors que les filières classiques, telles que la production d'électricité par les centrales thermiques, présentent au moins trois étapes successives : transformation de l'énergie chimique en énergie thermique par la combustion, transformation de l'énergie thermique en énergie mécanique dans la turbine et transformation de l'énergie mécanique en énergie électrique par l'alternateur.
- Elles peuvent utiliser différentes variétés de combustible.

Types de piles à combustible

Les piles peuvent être classées suivant de nombreux critères : température de fonctionnement, nature de l'électrolyte (solide ou liquide, acide, base...), charge de l'ion diffusant dans l'électrolyte (positive pour l'électrolyte acide et négative pour l'électrolyte alcalin), type de combustible, pile à oxydation directe ou indirecte. La classification communément adoptée est basée sur la nature de l'électrolyte et on distingue cinq types principaux de piles à combustible [8] :

- les piles à électrolyte alcalin (AFC : alkaline fuel cell),
- les piles à électrolyte polymère solide (PEMFC : proton exchange membrane fuel cell),
- les piles à acide phosphorique (PAFC : phosphoric acid fuel cell),
- les piles à carbonate fondu (MCFC : molten carbonate fuel cell),
- les piles à oxyde solide (SOFC : solid oxide fuel cell).

Le tableau 1 regroupe leurs principales caractéristiques. Pour la plupart des piles fonctionnant à basse et moyenne température, l'hydrogène est le combustible le plus utilisé car c'est celui qui



Tableau I - Les différents types de piles à combustible.

Type de pile	Température de fonctionnement (°C)	Électrolyte	Réaction - Anode - Cathode	Domaine d'utilisation
AFC	60-90	alcalin KOH (liquide)	$H_2 + 2OH^- \rightarrow 2H_2O + 2e^-$ $1/2 O_2 + H_2O + 2e^- \rightarrow 2OH^-$	Espace, transports 1-100 kW
PEMFC	60-90	polymère perfluoré $SO_3^-H^+$ (solide)	$H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ $1/2 O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$	Portable, transports, stationnaire 100 mW-1 MW cogénération
PAFC	160-220	acide phosphorique PO_4H_3 (liquide)	$H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ $1/2 O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$	Stationnaire 200 kW-10 MW cogénération
MCFC	620-660	sel fondu Li_2CO_3/K_2CO_3 (liquide)	$H_2 + CO_3^{2-} \rightarrow H_2O + CO_2 + 2e^-$ $1/2 O_2 + CO_2 + 2e^- \rightarrow CO_3^{2-}$	Stationnaire 500 kW-10 MW cogénération
SOFC	750-1000	céramique ZrO_2/Y_2O_3 (solide)	$H_2 + O^{2-} \rightarrow H_2O + 2e^-$ $1/2 O_2 + 2e^- \rightarrow O^{2-}$	Stationnaire, transports 1 kW-10 MW Cogénération

possède la plus grande réactivité. Notons qu'un autre type de pile relativement nouveau (DMFC : direct methanol fuel cell), pile à combustible direct, fait également l'objet d'un certain nombre de recherches. En fait, cette pile s'apparente aux PEMFC de par son électrolyte et sa température. Sa particularité est qu'elle est alimentée en méthanol qui réagit directement à l'anode pour libérer les ions H^+ .

Entre ces divers types, un utilisateur potentiel fera un choix selon les paramètres qui lui sont imposés par son cahier des charges, comme :

- **La température de fonctionnement** : ce choix a des conséquences sur le temps de démarrage et sur le souhait ou non de valoriser la chaleur produite. C'est ainsi qu'on choisit la PEMFC ou l'AFC pour les véhicules automobiles légers, la basse température permettant à la fois un démarrage rapide et une évacuation aisée de la chaleur par les systèmes classiques actuels. On pourra choisir la SOFC ou la MCFC si on veut profiter au mieux de l'énergie résiduelle contenue dans ses rejets gazeux à haute température pour alimenter un cycle thermodynamique aval.

- **La durée de vie** : les piles « tout solide » (PEMFC et SOFC) peuvent prétendre à des durées de vie sensiblement supérieures à celles qui exigent la manipulation et le transfert d'électrolyte liquide,

lequel est – de surcroît – à l'origine de phénomènes de corrosion pas toujours faciles à contrôler. Par exemple, la PEMFC retenue par les Américains pour les futures stations lunaires, a déjà fait la preuve d'un bon fonctionnement au-delà de 50 000 heures.

- **Les contraintes de volume et masse** : selon que l'application est mobile (portable, transports) ou fixe (générateurs stationnaires), on peut être amené à faire des choix différents. Par exemple, la PEMFC se présente actuellement comme la plus compacte (1,4 kW/litre et 1 kW/kg pour la pile seule et 300 W/litre et par kilo environ pour le système générateur électrique complet) et a été ainsi sélectionnée pour la quasi totalité des projets de générateurs mobiles.

- **L'échéance** : les divers types de piles ne sont pas aujourd'hui au même stade de développement : c'est ainsi que les plus développées sont les PAFC de 200 kW (PC 25) de ONSI Corp. (États-Unis), disponibles et déjà vendues à plus de 200 exemplaires alors que les PEMFC – aujourd'hui au stade de prototypes – ne devraient être construites en grande série qu'à partir de 2005.

- **Le coût attendu** : du fait de son marché potentiel (le transport automobile) et de son fort développement probable, la pile PEMFC sera très



PILES À COMBUSTIBLE

vraisemblablement celle qui atteindra les prix les plus bas (on estime généralement le prix plancher qui devrait être atteint vers 2010 – pour la pile d'un véhicule léger – aux environs de 40 €/kW).

État d'avancement des diverses filières de piles à combustible

La pile AFC

La pile alcaline a été essentiellement développée pour l'espace après que les premières piles de type acide, réalisées pour les vols spatiaux Gemini, n'aient pas donné toute satisfaction du fait de l'absence de membrane électrolyte performante (la membrane Nafion[®] de DuPont de Nemours ayant été mise au point plus tard). Aujourd'hui, ce type de pile (en 2 modules de 5 kW), accompagne tous les vols habités de la NASA et donne entière satisfaction.

En Europe, à l'occasion du projet spatial Hermès, au début des années 90, une technologie de même type avait été retenue et développée chez Siemens et la société belge Elenco. Ce projet a été par la suite abandonné et, en 1994, une société anglaise (Zevco) a repris les connaissances acquises par Elenco pour tenter de les valoriser dans le domaine du transport terrestre. C'est ainsi qu'un prototype de taxi londonien a été équipé, en juillet 1998, d'une pile AFC de 5 kW pour charger les batteries d'un véhicule électrique.

Cette technologie est simple et pourrait permettre d'atteindre des coûts assez bas (les catalyseurs employés dans cette pile ne nécessitent pas nécessairement de métaux précieux pour l'anode). Un inconvénient majeur est sa sensibilité au CO₂, polluant majeur de la potasse, ce qui nécessite de traiter l'air pour l'éliminer. La société Zevco, devenue ZeTek Power, est la seule à poursuivre aujourd'hui le développement de cette filière pour des applications terrestres et marines. Elle vient d'implanter un site de production industrielle en Allemagne, à Cologne, et un centre de recherches à Chambéry.

La pile PEMFC (figure 2)

Ce type de pile est celui sur lequel sont actuellement concentrés les plus gros efforts de développement. Ce constat tient au fait que la pile PEMFC semble la plus prometteuse comme convertisseur électrochimique alimentant les portables et les véhicules légers du futur. Ces efforts de recherche pour augmenter les performances et diminuer le coût (d'un

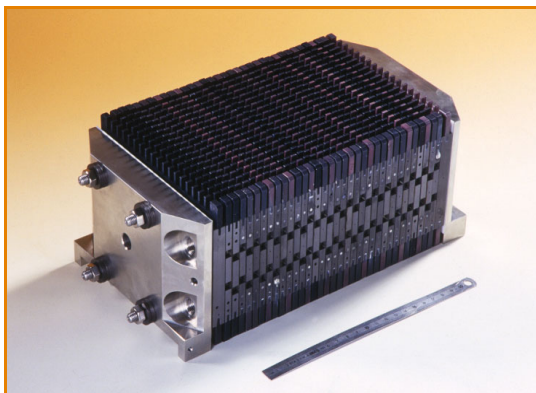


Figure 2 - Prototype de pile PEMFC de 1 kW (CEA).

facteur 5 à 100 selon l'application) aussi bien de la pile elle-même (membrane, charge de platine, plaques d'interconnexion) que de ses périphériques, sont à la hauteur de l'enjeu, c'est-à-dire considérables : par exemple, l'alliance Ballard-DaimlerChrysler-Ford avait déjà investi plus d'un milliard de dollars sur le sujet, en moins de trois ans, à fin 1999, et Renault-Nissan a lancé en 2001, un projet de près d'un milliard de dollars sur 5 ans ! A en croire ces constructeurs, le véhicule à pile à combustible est destiné à remplacer le véhicule thermique actuel à partir de 2005-2010. Cet objectif a été repris par d'autres constructeurs tels que General Motors, Ford, Toyota, Mazda et Honda.

Cette technologie retient l'attention pour trois raisons essentielles : température de fonctionnement relativement basse – point essentiel pour l'application automobile, insensibilité à la présence de CO₂ dans l'air, technologie tout solide. Il faut néanmoins développer des catalyseurs présentant une bonne résistance à l'empoisonnement par le CO.

La pile PAFC

La partie la plus visible de l'activité PAFC dans le monde se résume à celle de la société américaine ONSI Corp. qui commercialise la pile PC 25 de 200 kW depuis plusieurs années avec un certain succès (plus de 2 millions d'heures de fonctionnement cumulées). Leur coût – encore 10 fois trop élevé – est voisin de 3 000 €/kW. Malgré ces durées de fonctionnement, les développements potentiels de cette technologie ne sont pas considérés comme très importants. Un inconvénient est que l'acide phosphorique se solidifie en augmentant de volume, ce qui impose de fortes contraintes en cas d'arrêt, et que le milieu est très agressif, ce qui limite les températures susceptibles d'être atteintes et nécessite d'utiliser des matériaux coûteux.



La pile MCFC

De nombreux prototypes de quelques dizaines de kW à 2 MW ont été construits et testés depuis plusieurs années. Par exemple, la filiale MTU de Daimler teste un prototype de 280 kW depuis fin 1997, MCFC Research Ass. (Japon) a mis en service un prototype de 1 MW qui est une version reconfigurée d'un modèle de 2 MW qui a connu de nombreux déboires, FuelCell Energy Inc. (anciennement ERC) a testé une pile de 1 MW et teste depuis mai 2001 une pile de 270 kWe (+ 160 kWth) à Bad Neustadt en collaboration avec l'allemand MTU. Ce type de pile ne requiert pas la présence de métaux précieux, mais des difficultés majeures d'ordre technologique subsistent (fonctionnement en milieu corrosif à température très élevée, problèmes d'étanchéité des cellules).

La pile SOFC

Ce type de pile – qui est à un état de développement moins avancé que la PEMFC – suscite actuellement un très grand intérêt compte tenu de ses performances présentes et potentielles. En effet, le haut niveau de température des rejets thermiques (de l'ordre de 800 °C) permet une valorisation intéressante au travers de cycles combinés (on peut attaquer une turbine à gaz en sortie de pile, puis valoriser thermiquement des rejets à 300-400 °C), ce qui conduit à un rendement global (électrique + thermique) supérieur à 80 %. En outre, elle permet l'utilisation directe d'hydrocarbures, comme le gaz naturel, qui peuvent être facilement reformés en se passant de catalyseurs à base de métaux nobles. Cette filière fait l'objet d'efforts importants aussi bien aux États-Unis sous l'impulsion du DoE (programme SECA : solid state energy conversion alliance), qu'au Japon dans le cadre du programme NEDO/Sunshine (la qualité de la recherche japonaise sur les céramiques est connue), et qu'en Europe avec l'aide des programmes européens 5^e PCRD (projet de 1 MWe lancé en 2000 avec Siemens-Westinghouse, le DoE et EDF).

Deux grandes familles technologiques sont développées [10] :

- **La technologie cylindrique**, dont Westinghouse est le leader. Récemment rachetée par Siemens, elle a déjà cumulé plus de 70 000 heures de fonctionnement et un prototype de 100 kW fonctionne avec succès depuis près de deux ans (un prototype est installé à Westervoort, Hollande, et est alimenté au gaz naturel). La société souhaite proposer une pile SOFC en 2003 pour des

générateurs de 250 kW de puissance à des prix avoisinant les 1000-1500 €/kWe.

- **La technologie planaire**, plus complexe mais potentiellement plus compacte et peut-être plus économique, développée aux États-Unis, au Japon et en Europe, et dont les prototypes en test sont au niveau de quelques kWe. Les acteurs européens sont Sulzer Hexis, les laboratoires allemands de Jülich (qui ont repris récemment la technologie développée par Siemens) et Stuttgart, les laboratoires hollandais de ECN. En France, EDF, GDF, Alstom et Renault manifestent un intérêt certain pour l'utilisation des SOFC. Les laboratoires du CNRS et du CEA sont impliqués dans cette filière. La réalisation d'un prototype à l'horizon 2003 sera la première en France d'une pile SOFC. La R & D menée par le CEA porte également sur la recherche d'un électrolyte fonctionnant à température plus basse (600 à 700 °C), qui pourrait permettre d'augmenter la durée de vie de la pile, en diminuant les réactions de dégradation aux interfaces, et de faire baisser fortement son prix par l'emploi de matériaux moins coûteux (par exemple, alliages métalliques pour les interconnecteurs à la place des céramiques).

A travers cet état de l'art, on peut constater le rôle crucial de la science des matériaux dans le développement des technologies des piles à combustible. Le choix des matériaux (performances et coûts) et les problèmes d'ingénierie doivent être largement considérés pour assurer une pénétration rapide du marché. Un document récent fait le point sur ce sujet [11].

Les grands domaines d'applications de la pile à combustible

Il y a aujourd'hui trois grands domaines dans lesquels on promet un brillant avenir à la pile à combustible : l'alimentation d'appareils portables, la propulsion de véhicules et la génération stationnaire d'électricité. Pour plus de détails, on peut également consulter le document [12].

Les applications « portable »

Dans cette famille, on inclut essentiellement le téléphone mobile (qui consomme une puissance de l'ordre de 100 mW en veille et 1 W en conversation) et l'ordinateur portable (qui consomme une puissance de l'ordre de 30 W). Ces deux applications connaissent une très forte



PILES À COMBUSTIBLE

croissance, mais sont de plus en plus handicapées par l'autonomie de leur batterie, même la plus performante comme la batterie lithium-ion. Cette dernière atteint aujourd'hui une énergie spécifique de l'ordre de 130 Wh/kg, qui n'augmentera plus significativement et qui laisse classiquement quelques jours d'autonomie à un téléphone et environ 3 heures à un ordinateur portable. Or, les clients demandent 5 à 10 fois mieux et la batterie électrochimique a aujourd'hui atteint ses limites.

Avec une pile à combustible couplée à une batterie, objet de recherches importantes essentiellement aux États-Unis (Motorola, Manhattan Scientifics, MTI Micro Fuel Cells) et au Japon (Sony, NEC), l'autonomie ne sera alors limitée que par la taille du réservoir (hydrogène ou méthanol) : on rechargera son portable comme on recharge un briquet ou un stylo à encre, en quelques secondes, et chaque recharge donnera 5 à 10 fois plus d'autonomie qu'une batterie actuelle... pour le même encombrement !

L'engouement pour ce secteur est tel qu'aujourd'hui de nombreux congrès internationaux ne traitent que de ce sujet : on en est actuellement au stade des prototypes et on peut imaginer les premiers produits commerciaux à l'horizon de 3 à 4 ans. Ce marché de la micropile à combustible pourrait ainsi être le premier à apparaître réellement. Dans ce secteur, les critères économiques seront probablement d'une importance moindre que pour les autres domaines d'applications, dans la mesure où la qualité du nouveau service rendu justifiera – au moins dans un premier temps – un surcoût par rapport à la solution de référence (on vise 4 à 6 €/W dans ce domaine, comparé à 6 centimes €/W dans le secteur automobile). La technologie qui sera utilisée pour cette application est la PEMFC du double fait de sa basse température de fonctionnement (50 à 70 °C) et de sa technologie « tout solide », alimentée soit directement en hydrogène soit en méthanol dans sa version dite « méthanol direct ». En France, les laboratoires du CEA travaillent activement sur ce sujet et fin 2003, un prototype de pile à combustible miniature intégrée devrait voir le jour grâce à des technologies de fabrication dérivées de la microélectronique.

Les applications « transport »

C'est le domaine d'application qui est à l'origine du développement de la pile à combustible à partir du début des années 1990. Il faut distinguer le cas des véhicules lourds (transport de passagers ou de marchandises) du cas des véhicules légers, du fait des



Figure 3 - Les prototypes Necar 5 (premier plan) et Jeep.

durées de vie nécessaires (3 000 h pour le véhicule léger et 50 000 h pour les véhicules lourds) :

Dans le domaine des **véhicules légers**, de nombreux prototypes ont vu le jour depuis 1993 (figure 3) :

- L'allemand DaimlerChrysler, qui s'équipe en piles à combustible chez Ballard, a montré cinq prototypes Necar (New ElectricCar), alimentés soit en hydrogène (Necar 4 en hydrogène liquide et Necar 4 Adv. en hydrogène sous pression), soit en méthanol (Necar 5 présenté en novembre 2000 et équipé du module Ballard Mark 900).

- Les américains ont également présenté des prototypes : General Motors a présenté un véhicule sur une base Opel Zafira (HydroGen3 en décembre 2000) équipée d'une pile Ballard de 90 kW ainsi qu'un Precept équipé d'une pile « maison » de 75 kW, et Ford la Think FC5 alimentée par une pile Ballard au méthanol.

- Les japonais ne sont pas en reste : Toyota qui a présenté son dernier prototype de véhicule hybride à pile à combustible FCHV-4 (2001), Nissan avec sa Xterra, Mitsubishi, Honda avec ses prototypes FCX-V3 et V4 (2001), Daihatsu et Mazda avec sa Premacy FC-EV (2001). Ces véhicules sont alimentés en hydrogène pour la plupart et certains en méthanol.

- Le français Renault, associé à Air Liquide dans le cadre d'un programme européen Joule, a quant à lui présenté à la mi-98 son prototype Laguna équipé d'une pile de Nora (aujourd'hui Nuvera fuel cells) de 30 kW. Enfin, en juin 2001, PSA Peugeot Citroën a présenté deux démonstrateurs sur la base d'un Peugeot Partner : Hydro-Gen alimenté par une pile Nuvera de 30 kW (hydrogène gazeux stocké dans un réservoir sous 700 bars, validé par le CEA), et Taxi PAC alimenté par une pile HPower de 5 kW (hydrogène stocké sous forme gazeuse à 300 bars).

La propulsion électrique à partir d'une pile à combustible devrait se faire en plusieurs étapes successives même si certains constructeurs (comme



DaimlerChrysler, General Motors, Honda ou Toyota) annoncent l'industrialisation en masse prochainement. En France, le groupe PSA considère que la première application (entre 2005-2010) se fera dans un premier temps sur des véhicules électriques utilitaires avec une pile alimentée par de l'hydrogène embarqué et hybridée par des batteries. D'ici à l'horizon 2010-2020, on peut penser que les véhicules à PAC seront équipés, pour la plupart, d'un reformeur alimenté par exemple avec de l'essence de synthèse, du gaz naturel ou du méthanol. En effet, malgré l'existence de plusieurs prototypes présentés avec de l'hydrogène stocké à bord (sous forme liquide, gazeuse ou absorbé dans un hydrure), le combustible utilisé dans une première phase sera vraisemblablement – pour des raisons de sûreté, de réglementation et de logistique de distribution – un combustible hydrogéné alimentant un reformeur embarqué. C'est plus tard, à partir de 2020, que l'on mise sur le développement de la filière carburant hydrogène.

La technologie utilisée dans ces applications sera essentiellement de type PEMFC. Cependant, l'utilisation des piles SOFC n'est pas exclue pour alimenter les unités auxiliaires de bord (à un niveau de puissance de 5 kWe). L'équipementier américain Delphi a déjà présenté des prototypes SOFC concurrentement à IFC (International Fuel Cells) qui en a présenté du type PEMFC montés sur quelques véhicules BMW. Pour le développement commercial des piles dans ce secteur, des coûts acceptables doivent cependant être atteints : moins de 60 €/kW pour une production de 100 000 véhicules par an, soit un coût d'environ 3 500 € pour un système PAC de 60 kW (si on tient compte de l'effet de production en série sur l'abaissement du coût, un facteur 10 doit encore être gagné par rapport à aujourd'hui pour atteindre ce coût objectif).

Dans le domaine des *véhicules lourds*, plusieurs prototypes de bus ont été construits à partir de 1993 :

- Le canadien Ballard a fait office de pionnier avec six bus (équipés d'une pile de 200 kW), qui ont aujourd'hui achevé leurs tests en service régulier à Vancouver et à Chicago, et annonce une commercialisation dès l'an 2002 dans le cadre de sa collaboration avec DaimlerChrysler au travers de leur société commune XCELLSiS.

- L'allemand DaimlerChrysler, sur la base de la même technologie Ballard, a présenté en 1997 le prototype Nebus. Evobus, une de ses filiales, prévoit de faire rouler 30 bus et d'équiper 10 villes en Europe de son véhicule Citaro à partir de fin 2002 (projet européen du 5^e PCRD).

- Le groupe Irisbus (Iveco et Renault V.I.) lance trois expériences simultanées à Paris (début 2003), Madrid (fin 2002) et Turin (juin 2001). L'Irisbus de Paris sera équipé d'une pile PEMFC de 60 kW fournie par Air Liquide/Nuvera (devenu la nouvelle société Axane) et travaillera en mode hybride avec un bloc de batteries. Les partenaires de ce projet sont RATP, Air Liquide/Nuvera, Alstom et Inrets. La traction des bus avec une technologie PEMFC pourrait donc voir le jour assez rapidement (entre 2003-2006). Compte tenu de la durée de vie attendue de ces véhicules, la situation économique de cette application est proche de celle du « stationnaire ». Les coûts acceptables pour cette application sont de 150 à 200 €/kW. Les constructeurs estiment qu'en 2010 on aboutira à des prix équivalents à ceux d'un bus classique. On peut considérer que le lancement du bus alimenté en hydrogène sous pression sur le toit du véhicule enclenchera le processus pour la voiture individuelle.

A ces applications routières, il convient d'ajouter l'intérêt de certains constructeurs de piles pour le transport ferroviaire et urbain (par exemple, un tramway sans caténaire utilisant une pile à combustible hybridée avec des batteries). Par ailleurs, il faut aussi noter un intérêt croissant des constructeurs maritimes (navires civils et militaires, sous-marins) pour les piles à combustible à électrolyte solide, pour une propulsion plus propre, plus efficace et plus discrète. De telles applications sont visées par la nouvelle société HELION, filiale du groupe Technicatome.

Les applications « stationnaire »

Compte tenu des nouvelles lois sur la dérégulation du secteur électrique et des tendances vers la décentralisation de la production d'énergie électrique, ce secteur commence à intéresser de nombreux industriels, en particulier aux États-Unis. La génération stationnaire d'énergie peut s'effectuer dans des centrales électriques et par la mise en œuvre de la cogénération électricité-chaleur. Les piles à combustible peuvent être une solution à la difficulté d'implanter de nouvelles lignes électriques (que ce soit dans les endroits isolés, saturés ou protégés comme les parcs) et peuvent, par ailleurs, constituer des systèmes de secours de grande fiabilité.

L'activité est centrée sur deux grands domaines d'applications : la production collective (les puissances mises en jeu sont dans la gamme 200 kWe quelques MWe) et la production individuelle (les puissances mises en jeu sont dans la gamme 1-7 kWe).



PILES À COMBUSTIBLE

Dans le domaine de la *production collective*, on trouve les projets suivants :

- Deux pôles se sont créés autour d'une filiale du canadien Ballard (la société Ballard Generation Systems, BGS) : un pôle européen avec Alstom-Ballard et un pôle asiatique avec le japonais Ebara. Cet ensemble s'est donné pour objectif la diffusion de co-générateurs (électrique-thermique) de type PEMFC (d'une puissance de 250 kW électriques et 230 kW thermiques). Un exemplaire est en cours d'expérimentation depuis octobre 2000 à Berlin, dans le cadre d'un projet européen avec EDF, Bewag AG, HEW, Preussen Elektra et VEAG. Trois autres du même type sont en montage par ailleurs.

- De son côté, l'américain ONSI Corp. commercialise depuis plusieurs années la pile PAFC (PC 25) de 200 kWe. Un modèle qui fonctionne en co-génération a été implanté en France en octobre 1999 par EDF et GDF, à Chelles dans la région parisienne, pour l'alimentation d'un groupe HLM et fonctionne normalement.

- D'autres technologies font l'objet de tests mais ne sont pas encore au stade d'une commercialisation proche (voir précédemment, l'état de l'art sur les technologies MCFC et SOFC).

Dans le domaine de la *production individuelle* (résidentiel), plusieurs projets sont en cours de réalisation :

- Associée à General Electric (GE MicroGen), la société américaine Plug Power LLC lance un générateur de 7 kW (HomeGen 7000). Des tests sont en cours avec une dizaine de prototypes en situation réelle (en Europe, avec le fabricant de chaudières allemand Vaillant) et la commercialisation est prévue en 2003 avec un coût annoncé de 0,1 centimes €/kWh électrique.

- Des programmes de même nature mais de moindre ampleur ont été engagés avec les américains Northwest Power Systems (devenu IdaTech), Avista Labs, General Motors et Dais Analytic Corporation (*figure 4*). Ces appareils, basés sur une technologie de type PEMFC, fournissent électricité et chaleur à 60 °C (chauffage et eau chaude). Ils sont alimentés par des combustibles classiques : un reformeur transforme le combustible hydrocarbure en hydrogène. GDF teste actuellement sur son centre cette technologie avec une pile H Power de 5 kW alimentée par du gaz naturel. EDF mène également pour un an une expérience avec une pile à combustible alimentée par du méthanol et construite par IdaTech.

- Une voie SOFC est développée par Sulzer Hexis (Suisse) et plus récemment par Siemens-Westinghouse, visant à proposer en Europe un



Figure 4 - Le prototype de pile de type « résidentiel » General Motors.

système fournissant électricité (1 kW) et chaleur, le tout connecté au réseau électrique.

Le coût objectif dans ce secteur se situe autour de 750-1 000 €/kW installé pour le système complet (en moyenne puissance). Il est très proche du niveau actuel de développement de cette technologie (même s'il faut encore le réduire d'environ un facteur 3), ce qui explique les délais proches – à partir de 2002 – généralement annoncés par les divers constructeurs (essentiellement américains jusqu'à maintenant) déjà engagés sur ce marché. Ce sera probablement le premier marché de masse à être occupé par la technologie « pile à combustible ».

Conclusion

Depuis une quinzaine d'années et du fait de leurs performances énergétiques et environnementales, les piles à combustible connaissent un développement spectaculaire dans toutes les gammes de puissance, de dizaines de mWe à quelques MWe. Les caractéristiques techniques obtenues aujourd'hui sont très proches de celles attendues. Toutefois, certaines performances doivent encore être améliorées, comme la durée de vie et le coût qui restent aujourd'hui un obstacle à leur diffusion, en particulier dans le domaine du transport et, dans une moindre mesure, dans celui du stationnaire.

Pour des raisons liées à la fiabilité et à des contraintes d'industrialisation en grande série, le concept d'électrolyte solide est plus attractif que celui de l'électrolyte liquide. C'est la raison pour laquelle se dessine aujourd'hui un consensus international pour privilégier la filière des piles à électrolyte polymère solide (PEMFC) et celle des



pires à oxyde solide (SOFC). Les piles alcalines (AFC), sauf développement d'une membrane anionique solide, devraient rester employées dans le domaine restreint des véhicules spatiaux et sous-marins.

Malgré les efforts de recherche importants déjà consentis à l'étranger dans le domaine des piles à combustible et de l'avance indéniable prise par certains pays, la France peut encore se positionner sur des ruptures technologiques.

Pour la technologie PEMFC, de fortes améliorations des performances du cœur de pile, de la fiabilité et des prix de revient sont nécessaires pour atteindre des produits commercialisables en grande série. Les ruptures technologiques espérées concernent pour l'essentiel la plaque bipolaire et la membrane polymère (augmentation de la température de fonctionnement pour améliorer la catalyse, simplifier l'évacuation de la chaleur et réduire les contraintes associées au combustible telles que la sensibilité au monoxyde de carbone) bien que le domaine des catalyseurs ne soit pas non plus à écarter. Par ailleurs, il faut optimiser la fabrication des ensembles électrodes-membrane tant leur jonction est essentielle pour les performances.

La technologie SOFC, encore assez peu développée mondialement par rapport à la technologie PEMFC, nécessite encore beaucoup de R & D (développer de nouveaux matériaux pour abaisser la température de fonctionnement, améliorer la conductivité ionique, la stabilité chimique et les propriétés mécaniques en particulier vis-à-vis du cyclage thermique, développer des interconnecteurs avec des matériaux adaptés à des températures de fonctionnement plus basses...).

Les recherches concernent également l'ensemble du système intégrant la pile à combustible et pas seulement le cœur de pile (par exemple, les technologies de reformage, les équipements comme les centrales d'air, les compresseurs ou les électrovannes, l'électronique de puissance, l'intégration des systèmes, la gestion de l'ensemble du système, y compris le cas des systèmes hybrides). Enfin, le problème du carburant est une composante importante de la filière. Concernant l'hydrogène, il

convient de séparer le cas de sa production *in situ* (reformeur embarqué) de sa production *ex situ* sur site industriel. Les technologies de stockage font aussi l'objet d'un important effort de recherche.

Enfin, il ne faut pas oublier les aspects de la réglementation qui représentent des enjeux stratégiques très importants pour la commercialisation des piles à combustible et qui sont en voie d'être résolus via les nouvelles normes ISO TC 197 « Technologies de l'hydrogène » et ISO TC 105 « Technologies des piles à combustible », en cours d'élaboration.

Références

- [1] Grove W.R., *Phil. Mag.*, **1839**, vol. 15, 96, p. 287.
- [2] Grove W.R., *Phil. Mag.*, **1842**, vol. 21, 140, p. 417.
- [3] Jacques W.W., *Harper's Magazine*, **1896**, 94, p. 114.
- [4] Bacon F.T., *BEAMA Journal*, **1954**, 6, p. 61.
- [5] Lamy C., Léger J.-M., *Journal de Physique IV*, Colloque C1, supplément au *Journal de Physique III*, **1994**, vol. 4, p. 253.
- [6] Zegers P., *Rev. Gén. Therm. Fr.*, **1990**, 344-345, p. 387.
- [7] Chéron J., *Rev. Gén. Therm. Fr.*, **1990**, 344-345, p. 392.
- [8] Prigent M., *Les piles à combustible : État du développement et des recherches en cours à l'aube de l'an 2000*, Institut Français du Pétrole, **1997**.
- [9] *Clefs CEA, Nouvelles Technologies de l'Énergie*, **2001**, 44.
- [10] *Proceedings of the Seventh International Symposium: Solid Oxide Fuel Cells VII*, Ed. H. Yokokawa and S.C. Singhal, The electrochemical Society Inc, États-Unis, PV **2001-16**.
- [11] Steele B.C., *J. of Mater. Sci.*, **2001**, 36, p. 1053.
- [12] *Pour la Science*, septembre **1999**, 263.



T. Alleau

Thierry Alleau

est président de l'Association Française de l'Hydrogène.



F. Barbier

Françoise Barbier

est assistante à la Direction des Nouvelles Technologies de l'Énergie du CEA-DRT* et co-animatrice du réseau Piles à combustible PACo.

* Direction des Nouvelles Technologies de l'Énergie, BP 6, 92265 Fontenay-aux-Roses.
Tél. : 01 46 54 93 90. Fax : 01 46 54 82 32
E-mail : francoise.barbier@cea.fr