



# Contribution au pronostic de pile à combustible PEMFC basé sur modèle semi-analytique.

Élodie Lechartier

► **To cite this version:**

Élodie Lechartier. Contribution au pronostic de pile à combustible PEMFC basé sur modèle semi-analytique.. Energie électrique. Université de Franche-Comté, 2016. Français. <tel-01345232>

**HAL Id: tel-01345232**

**<https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01345232>**

Submitted on 13 Jul 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

SPIM

Thèse de Doctorat

UFC

école doctorale sciences pour l'ingénieur et microtechniques  
UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

Contribution au pronostic de pile à  
combustible PEMFC basé sur modèle  
semi-analytique

■ ÉLODIE LECHARTIER



# SPIM

## Thèse de Doctorat

UFC

école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**  
UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

THÈSE présentée par

**ÉLODIE LECHARTIER**

pour obtenir le

Grade de Docteur de  
l'Université de Franche-Comté

Spécialité : **Automatique**

Contribution au pronostic de pile à combustible PEMFC  
basé sur modèle semi-analytique

Soutenue publiquement le 27 juin 2016 devant le Jury composé de :

FRANÇOIS LAPICQUE	Président	Directeur de recherche CNRS, ENSIC Nancy
STÉPHANE CAUX	Rapporteur	Professeur, INP Toulouse
BELKACEM OULD-BOUAMAMA	Rapporteur	Professeur, Université Lille 1
DAVID GUCIK-DERIGNY	Examineur	Maitre de conférences, Université de Bordeaux I
MARIE-CÉCILE PÉRA	Directrice de thèse	Professeur, Univ. de Franche- Comté, Belfort
RAFAEL GOURIVEAU	Co-Encadrant de thèse	Maitre de Conférences HDR, ENSMM, Besançon
DANIEL HISSEL	Co-Encadrant de thèse	Professeur, Univ. de Franche- Comté, Belfort
NOUREDDINE ZERHOUNI	Co-Encadrant de thèse	Professeur, ENSMM, Besançon



# REMERCIEMENTS

Le travail présenté dans ce manuscrit a été réalisé dans le cadre d'un co-encadrement entre deux départements de Femto-st : AS2M et Energie. Ainsi, je souhaite remercier ma directrice de thèse, Marie-Cécile Péra, Professeur à l'Université de Franche Comté ; ainsi que mes co-encadrants : M. Rafael Gouriveau, Maitre de Conférence HDR à l'ENSMM ; Daniel Hissel, Professeur à l'Université de Franche Comté et Noureddine Zerhouni Professeur à l'ENSMM.

Je souhaite remercier M. Stéphane Caux Professeur à l'INP de Toulouse, M. Belkacem Ould-Bouamama, Professeur à l'Université Lille 1, M. Gucik-Derigny Maitre de conférences à l'Université de Bordeaux I et M. François Lapicque Directeur de recherche CNRS à ENSIC Nancy, d'avoir accepté d'évaluer mes travaux.

Je tiens à remercier chaque collègue de Besançon ou Belfort, car leur présence, bienveillance et accueil m'ont permis d'avancer plus sereinement. Une mention toute particulière à Isabelle, Estelle et Martine, pour leur aide et écoute. Merci à Kamran et Andrey pour leur aide.

Merci à Haithem et Vladimir avec qui nous partageons un bureau, pour l'ambiance calme et amicale qui y règne.

Merci à ces collègues qui sont devenus des amis, qui m'ont aidé autant personnellement que professionnellement, notamment Amélie, qui a tellement fait pour moi. Mais aussi, Andrey, Tristan, Elodie, Nathalie... Merci à Camille et Alexandre, ces amis de plus longue date qui m'ont soutenue malgré la distance.

Enfin, je souhaite remercier ma famille ainsi que Vincent pour leur soutien et leurs encouragements.



# SOMMAIRE

<b>Nomenclature</b>	<b>1</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>3</b>
<b>1 État de l'art</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction . . . . .	8
1.2 Pile PEMFC et processus PHM : domaines à associer . . . . .	8
1.2.1 La pile PEMFC, technologie d'aujourd'hui et de demain . . . . .	8
1.2.1.1 Historique . . . . .	8
1.2.1.2 Fonctionnement d'une pile à combustible . . . . .	9
1.2.1.3 Les différents types de pile . . . . .	10
1.2.1.4 La pile PEMFC . . . . .	11
1.2.2 Prognostics and Health Management . . . . .	13
1.2.2.1 La maintenance menant vers l'introduction du PHM . . . . .	13
1.2.2.2 Description du PHM . . . . .	15
1.2.2.3 Pronostic . . . . .	17
1.3 Vers le pronostic de PEMFC . . . . .	19
1.3.1 Travaux concernant la PEMFC au sein de l'architecture PHM . . . . .	19
1.3.1.1 Observation . . . . .	19
1.3.1.2 Analyse . . . . .	21
1.3.1.3 Action . . . . .	22
1.3.2 Problématique et objectif . . . . .	23
1.3.2.1 Pronostic de Pile PEMFC . . . . .	23
1.3.2.2 SAPPHERE . . . . .	24
1.4 Modélisation de pile PEMFC . . . . .	25
1.4.1 Vers un modèle de PEMFC pouvant être utilisé en pronostic . . . . .	25
1.4.1.1 Objectif des modèles . . . . .	25
1.4.1.2 Étendue de la modélisation . . . . .	26
1.4.1.3 Modèle statique ou dynamique . . . . .	26
1.4.1.4 Échelle d'espace et de temps . . . . .	26

1.4.1.5	Dégradation incluse ou non dans le modèle . . . . .	27
1.4.1.6	Validation des modèles . . . . .	27
1.4.1.7	Synthèse et discussion . . . . .	27
1.4.2	Description du modèle de comportement . . . . .	30
1.4.2.1	Présentation globale . . . . .	30
1.4.2.2	Normalisation et dénormalisation des données . . . . .	31
1.4.2.3	Bloc de décomposition . . . . .	32
1.4.2.4	Partie statique du modèle . . . . .	32
1.4.2.5	Partie dynamique du modèle . . . . .	33
1.4.2.6	Bloc de recombinaison . . . . .	37
1.4.2.7	Récapitulatif des hypothèses . . . . .	37
1.5	Conclusion . . . . .	39
<b>2</b>	<b>Modèle de comportement</b>	<b>41</b>
2.1	Introduction . . . . .	42
2.2	Procédure d'identification paramétrique du modèle . . . . .	42
2.2.1	Point de vue global de la mise à jour du modèle . . . . .	42
2.2.2	Ajustement du modèle statique . . . . .	44
2.2.3	Ajustement du modèle dynamique . . . . .	46
2.3	Méthodes de régression . . . . .	47
2.3.1	Problèmes d'optimisation . . . . .	47
2.3.2	Méthodes proposées . . . . .	48
2.3.3	Application . . . . .	50
2.4	Validation du modèle . . . . .	50
2.4.1	Description de l'expérimentation . . . . .	51
2.4.2	Évaluation des performances des simulations . . . . .	52
2.4.3	Identification du modèle statique . . . . .	53
2.4.4	Identification du modèle dynamique . . . . .	55
2.4.5	Concordance entre les mesures . . . . .	56
2.4.6	Validation du modèle complet de manière instantanée . . . . .	58
2.5	Analyse de variance . . . . .	59
2.5.1	Les bases du calcul ANOVA (Analyse de variance) . . . . .	60
2.5.1.1	Définitions initiales . . . . .	60
2.5.1.2	Influence d'un paramètre . . . . .	60
2.5.1.3	Influence inter-paramétrique de degré deux . . . . .	61

2.5.2	Première version ANOVA . . . . .	62
2.5.2.1	Modèle statique . . . . .	62
2.5.2.2	Modèle dynamique . . . . .	64
2.5.2.3	Modèle global . . . . .	67
2.5.3	Seconde version de l'analyse de sensibilité paramétrique . . . . .	70
2.5.3.1	Statique . . . . .	71
2.5.3.2	Dynamique . . . . .	72
2.5.4	Synthèse . . . . .	73
2.6	Conclusion . . . . .	76
<b>3</b>	<b>Vieillessement</b> . . . . .	<b>77</b>
3.1	Introduction . . . . .	79
3.2	Prise en compte du vieillissement . . . . .	79
3.2.1	Principe . . . . .	79
3.2.2	Observation . . . . .	80
3.2.3	Objectif . . . . .	83
3.3	Jeux de données utilisés . . . . .	84
3.3.1	Test de longue durée : Jeu 1 . . . . .	84
3.3.2	Test de longue durée avec cycles : Jeu 2 . . . . .	85
3.3.3	Test de longue durée avec oscillation : Jeu 3 . . . . .	87
3.3.4	Test sur cellule unique : Jeu 4 . . . . .	88
3.3.5	Test sur cellule unique : Jeu 5 . . . . .	89
3.4	Analyse de variations paramétriques . . . . .	89
3.4.1	Développement réalisé . . . . .	89
3.4.2	Résultats . . . . .	89
3.4.3	Choix des contraintes imposées aux problèmes d'optimisation . . . . .	93
3.4.4	Choix de la méthode de régression . . . . .	95
3.5	Validation de l'intégration du modèle dynamique . . . . .	96
3.5.1	Observations préliminaires . . . . .	96
3.5.2	Cas de figure envisagés . . . . .	97
3.5.3	Résultats des simulations . . . . .	98
3.6	Validation de la capacité du modèle à estimer le vieillissement . . . . .	100
3.6.1	Protocole . . . . .	100
3.6.2	Évolution temporelle des paramètres . . . . .	102
3.6.3	Simulation du comportement vieillissant . . . . .	104

3.7	Conclusion . . . . .	106
<b>4</b>	<b>Prédiction</b> . . . . .	<b>107</b>
4.1	Introduction . . . . .	108
4.2	Prédiction . . . . .	108
4.2.1	Validation de la prédiction sur un essai de longue durée avec oscillation de courant . . . . .	109
4.2.1.1	Nombre de caractérisations à apprendre . . . . .	109
4.2.1.2	Critique de l'identification des fonctions exponentielles . . . . .	111
4.2.1.3	Prédiction du comportement . . . . .	112
4.2.2	Validation de la prédiction sur un essai de longue durée avec cycles . . . . .	115
4.2.2.1	Mise à jour paramétrique . . . . .	116
4.2.2.2	Nombre de caractérisations à apprendre . . . . .	117
4.2.2.3	Critique de l'identification des fonctions exponentielles . . . . .	118
4.2.2.4	Prédiction du comportement . . . . .	120
4.2.3	Conclusion . . . . .	122
4.2.3.1	Synthèse des résultats de prédiction . . . . .	122
4.2.3.2	Discussion . . . . .	123
4.3	Mise en ligne de l'implantation sur système réel . . . . .	124
4.3.1	Architecture . . . . .	125
4.3.2	Initialisation transposée . . . . .	126
4.3.2.1	Problématique et proposition . . . . .	126
4.3.2.2	Validation . . . . .	127
4.3.2.3	Conclusion . . . . .	128
4.3.3	Spécification du minimum de données nécessaires . . . . .	129
4.3.3.1	Test A : Réduction du nombre de points à chaque caractérisation . . . . .	129
4.3.3.2	Test B : réduction du nombre de points après la première caractérisation complète . . . . .	132
4.3.3.3	Synthèse . . . . .	134
4.4	Conclusion . . . . .	136
	<b>Conclusion générale</b> . . . . .	<b>137</b>

# LISTE DES FIGURES

1.1	Pile à combustible utilisée lors de la mission Gemini (tiré de [13]) . . . . .	9
1.2	Stack ZSW [111] . . . . .	11
1.3	Composition d'une PEMFC . . . . .	12
1.4	Principe de fonctionnement d'une PEMFC . . . . .	13
1.5	Description des 7 couches du PHM . . . . .	17
1.6	Représentation d'un EIS mesuré à FCLAB dans le plan de Nyquist sur un stack ramené à une cellule . . . . .	20
1.7	Exemple d'une courbe de polarisation mesurée à FCLAB sur un stack ramené à une cellule . . . . .	20
1.8	Modèle de Fouquet : Randles augmenté d'un élément de phase constant [36]	29
1.9	Modèle de Reggiani [105] . . . . .	30
1.10	Schéma du modèle . . . . .	31
1.11	Insertion du modèle au sein d'un processus PHM . . . . .	31
1.12	Bloc de décomposition . . . . .	32
1.13	Équivalences électriques du modèle dynamique . . . . .	34
1.14	Circuit électrique équivalent d'une électrode contenant une Warburg exprimée sous forme de $n$ circuits RC en série . . . . .	34
1.15	Fonctionnement du modèle avec la répartition des hypothèses et des limites	38
2.1	Mise à jour du modèle, point de vue global . . . . .	43
2.2	Ajustement du modèle statique pour la $k^{ième}$ caractérisation . . . . .	45
2.3	Ajustement du modèle dynamique pour la $k^{ième}$ caractérisation . . . . .	47
2.4	Classification des algorithmes d'optimisation globale tirée de [127] . . . . .	49
2.5	Méthodes d'optimisations traitées . . . . .	50
2.6	Illustration des sollicitations des essais de longue durée avec ondulation de courant . . . . .	51
2.7	Évolution temporelle des tensions de cellule . . . . .	52
2.8	Ajustement de la courbe de polarisation au temps 0 . . . . .	53
2.9	Ajustement de la courbe de polarisation réalisée à 1016h . . . . .	54
2.10	Evolution de l'erreur RMSE des courbes de polarisation en fonction du temps	54

2.11	Comparaison entre les fonctions définies pour $R_{ta}$ et $R_{tc}$ et les valeurs obtenues au temps zéro . . . . .	55
2.12	Simulation et mesure d'un EIS à un courant de 20A après 1016h d'essais . . . . .	56
2.13	Comparaison entre les données et la simulation pour les EIS à t0 et aux courants de 20A, 45A et 70A . . . . .	56
2.14	Comparaison entre la mesure continue de la tension et le report de la tension obtenue grâce aux courbes de polarisation . . . . .	57
2.15	Comparaison de la réponse du stack et du modèle à la même sollicitation . . . . .	58
2.16	SSVieil . . . . .	59
2.17	Résultats de l'analyse ANOVA pour le modèle statique . . . . .	63
2.18	Résultats de l'ANOVA pour les parties réelle et imaginaire du modèle dynamique (avec de gauche à droite, de la première à la huitième caractérisation) . . . . .	65
2.19	Résultats de l'ANOVA sur le modèle dynamique pour un EIS à 70A avec addition des influences réelles et imaginaires . . . . .	67
2.20	Résultats de l'ANOVA pour le modèle global . . . . .	69
2.21	Influence des paramètres statiques sur la sortie de la partie statique sous différentes sollicitations ( $0A/cm^2$ , $0.5A/cm^2$ et $0.98A/cm^2$ ) . . . . .	72
2.22	Analyse de sensibilité sur la sortie de la partie dynamique du modèle (sous les sollicitations : $5.10^3rad.s^{-1}$ ; $1.27.10^3rad.s^{-1}$ ; $280rad.s^{-1}$ ; $39rad.s^{-1}$ ; $1.39rad.s^{-1}$ ) . . . . .	73
3.1	Introduction du temps dans le modèle global . . . . .	80
3.2	Évolution temporelle des valeurs atteintes par les paramètres dynamiques . . . . .	82
3.3	Évolution temporelle des valeurs atteintes par les paramètres statiques . . . . .	83
3.4	Mesures de tension et de courant pour le stack du Jeu 1(5 cellules de $100cm^2$ . . . . .	85
3.5	Profil de co-génération du Jeu 2 . . . . .	86
3.6	Mesures de tension et de courant pour Jeu 2, stack de 5 cellules de surface active de $100cm^2$ . . . . .	87
3.7	Stack cinq cellules BZ100 de UBzM . . . . .	88
3.8	Profil de test sur monocellule sur le Jeu 4 . . . . .	88
3.9	Tensions statique et dynamique simulées . . . . .	96
3.10	Tensions statique et dynamique simulées . . . . .	97
3.11	Modèle de simulation avec uniquement la partie statique . . . . .	98
3.12	Comparaison des différents tests de simulation avec la mesure . . . . .	99
3.13	Comparaison sous une sollicitation variable des différents tests . . . . .	99
3.14	Protocole d'initialisation des fonctions paramétriques du modèle . . . . .	101
3.15	Evolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle . . . . .	103
3.16	Tension stack simulée avec vieillissement et mesurée . . . . .	104

3.17	Comparaison de la simulation du modèle et de la mesure sur une faible période avec une sollicitation variable à $t = 830h$ . . . . .	105
4.1	Évolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle (sur les trois premières valeurs) pour le Jeu 3 . . . . .	111
4.2	Prédiction (obtenue grâce à trois caractérisations apprises) et mesure sur la fin de la prédiction . . . . .	113
4.3	Prédiction et mesure sur la totalité de la prédiction . . . . .	114
4.4	Prédiction de la huitième et dernière courbe de polarisation faite à 1016h d'essais . . . . .	115
4.5	Évolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle pour le Jeu 2 . . . . .	119
4.6	Prédiction et mesure sur la fin de la prédiction (entre 2000h et 2160h) . . .	121
4.7	Prédiction de la douzième et dernière courbe de polarisation faite à 2010h d'essais . . . . .	122
4.8	Synoptique du premier projet . . . . .	125
4.9	Synoptique du second projet . . . . .	125
4.10	Synoptique du troisième projet . . . . .	126
4.11	Synoptique du quatrième projet . . . . .	126
4.12	Prédiction et mesure sur la fin de la prédiction . . . . .	128



# LISTE DES TABLEAUX

1.1	Tableau de synthèse de l'étude bibliographique de modèles de PEMFC . . .	28
2.1	Résumé des caractérisations pour l'essai . . . . .	51
2.2	Moyenne des erreurs obtenues sur chacune des courbes de polarisation . . .	53
2.3	Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les lieux de Nyquist . . . . .	55
2.4	Valeurs extrêmes des paramètres statiques pour le plan expérimental . . . .	62
2.5	Résultats de la première analyse de sensibilité effectuée sur le modèle statique sur la première courbe de polarisation . . . . .	64
2.6	Valeurs extrêmes prises par les paramètres dynamiques dans le plan expérimental . . . . .	64
2.7	Influences des paramètres sur la partie réelle du modèle dynamique pour la première caractérisation . . . . .	65
2.8	Influence des paramètres sur la partie imaginaire du modèle dynamique sur la première caractérisation . . . . .	66
2.9	Valeurs extrêmes du plan expérimental pour le modèle global . . . . .	68
2.10	Résultats de l'analyse de sensibilité pour le modèle global aux alentours des $35h$ . . . . .	70
3.1	Synthèse des jeux de données présentés dans cette section . . . . .	84
3.2	Récapitulation des variations paramétriques obtenues . . . . .	91
3.3	Récapitulation des variations paramétriques obtenues . . . . .	92
3.4	Choix des contraintes sur les évolutions temporelles paramétriques . . . . .	94
3.5	Coefficients de détermination . . . . .	95
3.6	Variabilité des paramètres sous 100 simulations pour la méthode GS . . . .	96
3.7	Variabilité des paramètres sous 100 simulations pour la méthode GA . . . .	96
3.8	Moyenne des erreurs obtenues sur les courbes de polarisation . . . . .	101
3.9	Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles des régressions sur les plans de Nyquist . . . . .	101
3.10	Valeurs des paramètres fixés . . . . .	102
3.11	Erreurs entre la fonction exponentielle et les valeurs paramétriques . . . . .	103

4.1	Erreur entre la tension simulée et la tension mesurée sur la fenêtre comprise entre 900h et 1016h d'opération du stack (fin de l'essai) . . . . .	110
4.2	Erreurs MAPE calculées entre les estimations des valeurs paramétriques lors des procédures de mise à jour et celles obtenues grâce aux fonctions exponentielles . . . . .	112
4.3	Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée . . . . .	115
4.4	Moyenne des erreurs obtenues sur chacune des courbes de polarisation hormis les deux premières . . . . .	117
4.5	Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les lieux de Nyquist (excepté les deux premiers) . . . . .	117
4.6	Erreur sur la prédiction de la tension sur la fin de l'essai (entre 2000h et 2120h) . . . . .	117
4.7	Erreurs MAPE calculées entre l'estimation et la régression pour les valeurs paramétriques . . . . .	118
4.8	Valeurs des paramètres fixés . . . . .	119
4.9	Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée . . . . .	122
4.10	Erreurs MAPE sur les prédictions . . . . .	123
4.11	Erreurs obtenues sur la procédure de mise à jour du modèle sur la première caractérisation (Moyenne pour les EIS). . . . .	127
4.12	Fréquences des points utilisés et temps respectifs pour les réaliser à 620h . . . . .	130
4.13	Moyenne des erreurs obtenues entre les courbes de polarisation mesurées et régressées . . . . .	130
4.14	Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles des régressions sur les plans de Nyquist . . . . .	130
4.15	Moyenne des écarts paramétriques par rapport aux résultats obtenus, section 4.2.2 sur les caractérisations apprises . . . . .	131
4.16	Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée . . . . .	132
4.17	Exemple des fréquences des points utilisés et temps respectifs pour les réaliser (troisième caractérisation) . . . . .	132
4.18	Moyenne des erreurs obtenues sur les trois courbes de polarisation utilisées . . . . .	133
4.19	Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les plans de Nyquist utilisés . . . . .	133
4.20	Moyenne des variabilités paramétriques par rapport aux résultats obtenus section 4.2.2 . . . . .	133
4.21	Erreur entre la prédiction grâce au Test B et la mesure des courbes de polarisation . . . . .	134
4.22	Comparaison des erreurs MAPE sur les prédictions . . . . .	135

# LISTE DES DÉFINITIONS

1	Définition : Maintenance . . . . .	13
2	Définition : Disponibilité . . . . .	13
3	Définition : Maintenance corrective . . . . .	13
4	Définition : Maintenance préventive . . . . .	14
5	Définition : Maintenance systématique . . . . .	14
6	Définition : Maintenance conditionnelle . . . . .	14
7	Définition : Maintenance prévisionnelle . . . . .	15
8	Définition : Pronostic . . . . .	17
9	Définition : RUL . . . . .	17



# NOMENCLATURE

$\eta_a$	Chute de tension à l'anode	[V]
$\eta_c$	Chute de tension à la cathode	[V]
$\tau_{Oc}$	Constante de temps de l'impédance de diffusion convection	[s]
$b_a$	Paramètre de Tafel à l'anode	[V <sup>-1</sup> ]
$b_c$	Paramètre de Tafel à la cathode	[V <sup>-1</sup> ]
$b_{Oc}$	Paramètre de la loi de variation de $R_{Oc}$	[V <sup>-1</sup> ]
$C_{dca}$	Capacité de double couche à l'anode	[F/cm <sup>2</sup> ]
$C_{dcc}$	Capacité de double couche à la cathode	[F/cm <sup>2</sup> ]
$E_n$	Potentiel de Nernst	[V]
$i$	Nombre d'EIS réalisés à chaque caractérisation	
$j_{0a}$	Densité de courant d'échange à l'anode	[A/cm <sup>2</sup> ]
$j_{0c}$	Densité de courant d'échange à la cathode	[A/cm <sup>2</sup> ]
$j_{0Oc}$	Paramètre de la loi de variation de $R_{Oc}$	[A/cm <sup>2</sup> ]
$J_{AC}$	Densité de courant dynamique	[A/cm <sup>2</sup> ]
$J_{DC}$	Densité de courant statique	[A/cm <sup>2</sup> ]
$J_{EIS}$	Vecteur des densités de courant pour les EIS	[A/cm <sup>2</sup> ]
$J_{pola}$	Vecteur des densités de courant pour la courbe de polarisation	[A/cm <sup>2</sup> ]
$j_{Lc}$	Densité de courant limite à la cathode	[A/cm <sup>2</sup> ]
$k$	Nombre de caractérisations	
$k_{Oc}$	Paramètre de la loi de variation de $\tau_{Oc}$	[A.s/cm <sup>2</sup> ]
$L$	Inductance des connecteurs	[H.cm <sup>2</sup> ]
$R_m$	Résistance de membrane	[Ω.cm <sup>2</sup> ]
$r$	Résistance interne (Modèle statique et global)	[Ω.cm <sup>2</sup> ]
$R_{Oc}$	Module de l'impédance de diffusion convection	[Ω.cm <sup>2</sup> ]
$R_{ta}$	Résistance de transfert à l'anode	[Ω.cm <sup>2</sup> ]
$R_{tc}$	Résistance de transfert à la cathode	[Ω.cm <sup>2</sup> ]
$U$	Tension du stack	[V]
$U_{AC}$	Tension dynamique du stack normalisé par cellule	[V]
$U_{DC}$	Tension statique du stack normalisé par cellule	[V]
$U_n$	Tension du stack normalisé par cellule	[V]
$W_{Oc}$	Impédance de diffusion convection	[Ω.cm <sup>2</sup> ]



# INTRODUCTION GÉNÉRALE

Le phénomène du réchauffement climatique impose aujourd'hui une réflexion sur les modes de production et de consommation d'énergie. Les émissions de presque tous les gaz à effet de serre continuent de croître et induisent des risques importants pour la santé publique, de par la pollution, mais aussi, des risques importants pour la pérennité de la planète. L'utilisation des ressources fossiles comme le charbon, le pétrole et le gaz est problématique et à réduire pour plusieurs raisons : ces ressources sont polluantes car leur combustion émet beaucoup de ces gaz ; leur quantité est par définition limitée. Des solutions existent déjà. On peut utiliser le nucléaire, l'hydro-électricité ou l'éolien pour produire de l'électricité. La géothermie et le solaire apportent des solutions pour le chauffage. Enfin, la biomasse est une des solutions pour les transports. La pile à combustible peut devenir une excellente solution pour les véhicules, voire pour l'alimentation électrique stationnaire, nous nous concentrons sur cette option.

Il existe différents type de pile à combustible, elles se distinguent par les ions échangés et donc par les réactions se produisant, par la température de fonctionnement ou encore par leurs technologies. Nous nous concentrons sur la pile PEMFC (pile à combustible à membrane échangeuse de protons). Cette dernière permet la génération d'un courant grâce aux réactions d'oxydo-réduction se produisant en son sein. Ainsi à partir d'hydrogène et d'oxygène il est possible d'obtenir de l'eau et surtout de l'électricité. Cette technologie en plein essor voit néanmoins son introduction dans le monde industriel freinée par différents verrous. Tout d'abord, il faut considérer la problématique d'une production non polluante d'hydrogène, cela peut s'envisager grâce au couplage électrolyse avec une autre source renouvelable comme l'éolien. Ensuite, il faut considérer la problématique du stockage de l'hydrogène qui doit être économiquement et énergétiquement viable. Enfin, la troisième problématique porte sur l'augmentation de la fiabilité et de la durabilité de la pile. En effet, actuellement, la durée de vie d'une PEMFC est d'environ 3000h pour des applications automobiles, alors que 8000h sont attendues en conditions d'usage de type transport.

Afin de faire face à des problématique concernant la durée de vie d'un système, le *Prognostics and Health Management* (PHM) est introduit au sein de la communauté travaillant sur le management de santé des systèmes. Ainsi, il n'est plus seulement question de traiter les pannes une fois leur occurrence, mais d'avoir une meilleure anticipation des défaillances. C'est dans ce cadre que s'insère le PHM dont les objectifs sont : d'augmenter la disponibilité et de réduire le coût opérationnel de manière à optimiser la maintenance ; d'améliorer la sécurité du système ; d'améliorer le processus de décision de manière à augmenter la durée de vie de l'équipement. Ce processus peut être appliqué à tout système, et est principalement axé sur la prédiction, le pronostic étant l'aspect clef comme le laisse deviner sa dénomination.

L'attention portée à la durée de vie trop faible de la PEMFC a été très accrue, cette préoccupation étant porteuse et clef afin de s'approcher des promesses offertes par cette technologie. C'est ainsi que le projet SAPHIRE, financé par l'Europe a pour but de développer le PHM de PEMFC au sein d'un système industriel stationnaire comprenant

une pile, il vise ainsi à développer un système de contrôle de la pile basé sur du PHM afin d'en accroître la durabilité. Les six partenaires présentent des complémentarités qui permettent de construire un plan de travail cohérent. Lors de ce projets, les objectifs sont variés et se propagent sur les différentes couches du PHM. Le projet s'appuie sur tous les axes du PHM appliqué à la PEMFC : allant de la récupération de données pour FESB (Faculté d'ingénierie électrique, mécanique et navale en Croatie), FEMTO-ST/FCLAB (Laboratoire accueillant cette thèse), ZSW (Centre de recherche pour l'énergie solaire et l'hydrogène en Allemagne) et Dantherm (industriel proposant le système au Danemark) ; au contrôle proposé par SINTEF (Institut de recherche en Norvège). C'est ainsi que FESB utilise sa connaissance approfondie de la pile au service du diagnostic, et que FEMTO-ST/FCLAB se voit confier la tâche du pronostic. La thèse proposée ici s'insère dans ce projet qui donne un cadre d'application à l'algorithme demandé. En effet, la mise en place de ce dernier au sein du système industriel conditionne le domaine d'applicabilité, mais impose aussi une implantation réalisable sur le dit système.

Il existe plusieurs approches pour le pronostic en général : les approches basées données qui utilisent une grande quantité de données pour réaliser une prédiction ; les approches basées physique qui n'utilisent que la connaissance des phénomènes se produisant pour réaliser un pronostic. Et enfin, il existe un dernier type qui combine les deux précédentes. Cela peut cependant être réalisé de deux manières différentes, une approche basée données dans laquelle sont insérées un peu de connaissances, ou une approche basée physique qui utilise des données afin de compléter les lacunes que la connaissance ne permet pas encore de combler. Si le pronostic de PEMFC ne présente que très peu de travaux, il n'en présente aucun sur le pronostic hybride à l'aide d'un modèle comportemental utilisant les connaissances que nous en avons. Ce type d'approche est cependant un choix judicieux car il permet d'être particulièrement précis tout en utilisant le minimum de données.

Ces travaux se penchent finalement sur la prédiction du comportement pour une pile PEMFC. Deux verrous apparaissent alors, un scientifique et un applicatif. Le verrou scientifique est de réussir à effectuer une prédiction précise et satisfaisante du comportement de pile. Afin de ne pas réduire la solution que nous pourrions offrir à l'aspect laboratoire uniquement, c'est à dire développer une approche non envisageable pour une mise en place au sein d'un système industriel, un second verrou conditionne les travaux. En effet, il est nécessaire de prendre en compte l'aspect applicatif de la solution proposée afin de la rendre réalisable au sein d'un système industriel. Le projet SAPPHIRE conditionne ce second verrou, il nous permet d'envisager et d'étudier l'applicabilité de la solution au sein d'un système industriel. Ainsi, un pronostic hybride basé sur un modèle comportemental de la pile PEMFC, à faible coûts, est attendu.

Dans le premier chapitre est proposée une description du processus PHM ainsi que de la PEMFC afin d'exposer les lacunes pour le développement du processus sur cette technologie. Le pronostic de pile est un développement nouveau qui ne comporte pas de nombreux travaux. Afin de compléter ce domaine, le choix s'est porté sur une approche de pronostic hybride basée sur un modèle comportemental semi-analytique. Les modèles basés physiques présentés au sein de la littérature sont donc comparés afin de choisir celui correspondant à l'orientation des travaux.

Dans le second chapitre, l'étude de ce modèle de comportement est réalisée. À l'aide de données obtenues lors d'expérimentations, il faut démontrer que ce modèle est capable de reproduire le comportement d'une pile. L'utilisation des données permet de mettre à jour les valeurs des paramètres du modèle : le modèle est identifié grâce à une caractérisation (données réalisées ponctuellement durant l'essai). Ainsi, nous étudions si une identification du modèle lui permet d'estimer le comportement de la pile de manière satisfaisante. Ensuite, une analyse de sensibilité paramétrique est réalisée. Dans ce chapitre, le modèle de comportement utilisé sur des courtes périodes de temps est présenté et étudié.

Le modèle présenté jusqu'alors n'est pas en mesure de modéliser le vieillissement. C'est dans ce cadre que s'insère le troisième chapitre. Afin d'intégrer le vieillissement, les paramètres du modèle ne sont plus des simples valeurs mais des fonctions temporelles. Il faut ainsi que les valeurs obtenues pour chaque paramètre dessinent une fonction mathématique permettant une modélisation. Afin d'étudier la répétabilité des monotones des paramètres, une analyse statistique est réalisée. Cette analyse permet de dégager des hypothèses pour contraindre les évolutions paramétriques. L'objectif de ce chapitre est finalement de comparer le comportement de la pile et la simulation du modèle afin d'évaluer si il est possible pour ce dernier d'estimer le vieillissement.

Dans le quatrième et dernier chapitre, nous cherchons à utiliser le minimum de données afin de pouvoir réaliser une bonne prédiction. A l'aide de deux jeux de données différents la capacité prédictive de l'approche est évaluée. Pour cela, la quantité de données, et les résultats sont présentés. Ainsi, après s'être concentré sur le verrou scientifique, nous abordons le verrou applicatif. Pour cela les algorithmes développés au sein de SAPPHIRE pour le pronostic sont évoqués. Ensuite, les hypothèses faites dans ce cadre sont explicitées, pour finalement travailler sur le compromis quantité de données / qualité des résultats, afin de tenter de diminuer le coût que représentent les mesures. Ce dernier chapitre présente l'application du modèle sélectionné pour la prédiction du vieillissement.

Enfin, nous concluons les travaux présentés en rappelant les éléments clés pour ensuite proposer des perspectives. Ces dernières évoquent les hypothèses faites tout au long des travaux ainsi que de l'insertion de l'approche au sein du PHM.



# ÉTAT DE L'ART

*Généralement, toute machine se dégrade avec le temps jusqu'à la défaillance. Celle-ci peut se produire à des moments inopportuns et entraîner des conséquences particulièrement négatives. C'est le cas pour la pile PEMFC qui est une technologie prometteuse mais dont l'intégration industrielle est freinée, entre autres, par une durée de vie trop courte. Le PHM qui découle de l'évolution de la maintenance apparaît comme une solution à ce genre de problème, et présente donc un intérêt pour la pile PEMFC.*

## Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>8</b>
<b>1.2</b>	<b>Pile PEMFC et processus PHM : domaines à associer</b>	<b>8</b>
1.2.1	La pile PEMFC, technologie d'aujourd'hui et de demain	8
1.2.2	Prognostics and Health Managment	13
<b>1.3</b>	<b>Vers le pronostic de PEMFC</b>	<b>19</b>
1.3.1	Travaux concernant la PEMFC au sein de l'architecture PHM	19
1.3.2	Problématique et objectif	23
<b>1.4</b>	<b>Modélisation de pile PEMFC</b>	<b>25</b>
1.4.1	Vers un modèle de PEMFC pouvant être utilisé en pronostic	25
1.4.2	Description du modèle de comportement	30
<b>1.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>39</b>

---

---

## 1.1/ INTRODUCTION

Dans ce chapitre, sont tout d'abord présentés indépendamment les deux domaines que nous cherchons à relier. En premier lieu, la technologie pile à combustible, son évolution et l'intérêt qui devrait lui être porté sont abordés, tout en précisant une limite cruciale : sa durée de vie. En effet, les piles à combustible n'ont aujourd'hui pas de durée de vie assez élevée pour une démocratisation industrielle. Dans un second temps, est présenté un processus visant à optimiser la durée de vie d'un système. Ce procédé est issu de l'évolution de la maintenance et son utilisation pour la pile à combustible considérée est pratiquement vierge pour les parties cruciales.

Ainsi, deux domaines présentant un intérêt tout particulier sont introduits de manière à démontrer qu'ils peuvent être reliés car ils présentent des complémentarités. C'est le sujet de la seconde section 1.3 qui présentera les liens qui peuvent être considérés comme existant mais aussi les liens manquants de manière à dégager clairement une problématique qui permettra d'orienter les travaux développés pour la suite.

La seconde section permet de mettre en exergue l'importance de développer du pronostic à l'aide d'une approche hybride avec un modèle de comportement pour la pile PEMFC. La section suivante traite donc des modèles de pile existant dans la littérature afin de sélectionner un modèle de pile et trouver ainsi le point de départ du pronostic de pile PEMFC.

## 1.2/ PILE PEMFC ET PROCESSUS PHM : DOMAINES À ASSOCIER

### 1.2.1/ LA PILE PEMFC, TECHNOLOGIE D'AUJOURD'HUI ET DE DEMAIN

La pile à combustible à membrane échangeuse de proton (PEMFC) est un convertisseur d'énergie permettant de transformer une énergie chimique en énergie électrique. Les avantages de cette technologie face aux préoccupations écologiques de nos jours sont surpassées par la trop courte durée de vie actuelle de cette technologie. Ainsi dans la suite seront développés un historique rapide concernant la pile à combustible de manière à mettre en lumière l'absence d'intérêt qui lui fut porté. Le fonctionnement les différents types de piles existants sont ensuite évoqués avant de se concentrer sur la pile PEMFC.

#### 1.2.1.1/ HISTORIQUE

La pile à combustible n'est pas une technologie très jeune. En effet, sa première apparition eut lieu au cours du XIX<sup>e</sup> siècle grâce à deux chimistes William Grove et Christian Schönbein [100]. William Grove réalisa des cellules produisant de l'électricité entre 1839 et 1842. Christian Schönbein, professeur suisse à l'université de Bâle et spécialiste de la chimie et de l'oxygène réalisait déjà des expériences d'électrolyse de l'eau grâce à des électrodes de platine. Un courant électrique lui permettait d'obtenir du dihydrogène et du dioxygène. Lors de l'arrêt du courant, il constata que ces gaz génèrent un courant électrique de sens inverse au premier. Sir William Robert Grove, avocat et chimiste amateur, réalisa sur ce principe le premier prototype de pile à combustible. Il réussit à créer une

cellule hydrogène-oxygène grâce à des électrodes de platine poreux et de l'acide sulfurique comme électrolyte.

Par la suite, l'invention connut quelques améliorations. Tout d'abord en 1889, Ludwig Mond et Charles Langer introduisirent l'utilisation d'un catalyseur en platine, et perfectionnèrent l'électrolyte grâce à des matrices poreuses en plâtre ou en amiante.

En 1921, Emil Baur ayant compris l'importance de la cinétique, construisit une cellule fonctionnant à haute température. Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, l'utilisation de nouveaux matériaux (carbonates fondus, oxydes solides, acide phosphorique) permit une amélioration de l'électrolyte.

Malgré ces progrès, la pile à combustible ne connut un réel développement que dans les années 1950 grâce à Sir Francis T. Bacon. En 1953, il construisit une pile hydrogène-oxygène ayant des performances suffisamment intéressantes pour susciter l'intérêt des industriels, notamment la NASA qui l'utilisera lors des missions Gemini et Apollo (Figure 1.1).

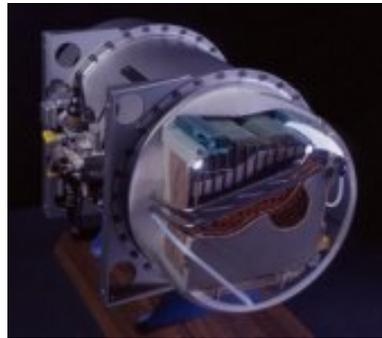


FIGURE 1.1: Pile à combustible utilisée lors de la mission Gemini (tiré de [13])

L'émergence de cette technologie est finalement tout de même assez lente. En effet, des processus plus simples permettent déjà de produire de l'électricité. Cependant, les préoccupations concernant la raréfaction des matières premières fossiles, et le réchauffement climatique, directement lié aux émissions de gaz à effet de serre sont de plus en plus d'actualité. Ce cadre permet aux piles à combustibles d'être avancées au devant de la scène de la recherche mondiale.

#### 1.2.1.2/ FONCTIONNEMENT D'UNE PILE À COMBUSTIBLE

Une pile à combustible est un système électrochimique qui convertit l'énergie chimique contenue dans un combustible et un comburant en énergie électrique [6]. En effet, la pile à combustible est un convertisseur de puissance, elle n'est donc pas concurrente d'autres technologies comme les batteries, ce sont a contrario des technologies complémentaires [100].

Lorsque l'on parle de pile à combustible, il est souvent admis que le carburant utilisé est du dihydrogène. Ceci est vrai dans la plupart des cas, mais certaines piles à combustible peuvent aussi être alimentées par d'autres carburants comme le méthanol ou le gaz naturel, voire même le monoxyde de carbone. De plus, l'hydrogène peut être fourni soit pur, soit après un reformage. Ce dernier procédé permet d'obtenir de l'hydrogène à partir d'un

composé hydrocarboné (méthanol, méthane, essence...) [117].

Dans tous les cas, le principe de fonctionnement reste le même. Il est basé sur deux réactions électrochimiques. D'une part, le carburant est oxydé à l'anode. D'autre part, le comburant (en général du dioxygène pur ou du dioxygène contenu dans l'air) est réduit à la cathode.

La réaction d'oxydation libère des électrons, à l'opposé de la réaction de réduction qui elle, en consomme. La puissance électrique produite par la pile vient donc d'un transfert d'électrons de l'anode vers la cathode au travers d'une charge externe. Ces réactions d'oxydoréduction sont caractérisées par un transfert d'ions d'une électrode à une autre par l'électrolyte. Ces ions sont appelés porteurs de charges. S'il s'agit de cations, le transfert se fait de l'anode vers la cathode. Dans le cas des anions, le transfert s'opère dans le sens opposé. En effet, selon le type de pile utilisée, les ions mis en jeu peuvent être des protons  $H^+$ , des ions hydroxydes  $OH^-$  ou superoxyde  $O^{2-}$ .

C'est la présence de l'électrolyte qui impose ce mode de fonctionnement. En effet, ce matériau est conducteur d'ions mais est résistant au passage des électrons. La nature de cet électrolyte peut avoir diverses formes et natures (alcalin, carbonate, acide, polymère, oxyde...). Ainsi, différents types de pile à combustible existent aujourd'hui.

Une pile à combustible a besoin d'un certain nombre d'auxiliaires pour fonctionner de manière adéquate [19, 52, 98]. Par exemple, la pile s'échauffe sous l'action de ses propres pertes [9]. Ces auxiliaires composant le système sont classés selon différents circuits :

- le circuit anodique dont le but est de contrôler le débit et la pression du gaz entrant dans la pile,
- le circuit cathodique qui régule les pressions et débits coté cathode,
- le circuit de refroidissement : une pile à combustible ne produisant pas seulement une énergie électrique mais aussi de la chaleur, cette dernière doit être évacuée afin de contrôler la température de fonctionnement de la pile,
- le circuit électrique : l'énergie électrique produite par la pile est conditionnée au travers d'un circuit électrique connecté à la charge,
- le circuit de commande : celui-ci doit contrôler l'état et le fonctionnement de tous les périphériques.

Faire fonctionner la pile en mode électrolyseur pour lui permettre de fabriquer son combustible provoquerait un vieillissement prématuré [3]. C'est pour cela qu'il est généralement proposé d'associer une pile à combustible avec une autre technologie qui permettra de fabriquer son carburant. Ainsi, Agbossou [4] propose d'obtenir du dihydrogène produit en local grâce à des panneaux photovoltaïques ou un système éolien.

### 1.2.1.3/ LES DIFFÉRENTS TYPES DE PILE

Il existe plusieurs types de piles à combustible [8, 65, 118]. Les différences résident surtout dans la nature de l'électrolyte utilisé et dans les températures de fonctionnement. Les plus importantes sont les suivantes :

- AFC : pile à combustible alcaline (Alkaline Fuel Cell) à fonctionnement à basse température entre  $65^\circ C$  et  $120^\circ C$  dont les ions échangés sont des  $OH^-$ .
- MCFC : pile à combustible à carbonates fondus (Molten Carbonate Fuel Cell) dont le fonctionnement est à haute température entre  $600^\circ C$  et  $700^\circ C$ , les ions échangés sont des  $CO_3^-$ .
- PAFC : pile à combustible à acide phosphorique (Phosphoric Acid Fuel Cell) qui

- fonctionne à température moyenne, entre 180 ° C et 250 ° C et échange des ions  $H^+$ .
- PEMFC : pile à combustible à membrane polymère (Figure 3.3.2) (Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell) qui fonctionne à basse température entre 60 ° C et 80 ° C , les ions échangés sont des  $H^+$ .
  - SOFC : pile à combustible à oxyde solide (Solid Oxid Fuel Cell) dont la température nominale de fonctionnement est haute entre 750 ° C et 1000 ° C et échange des ions  $O^{2-}$ .

L'objet de notre étude est la pile PEMFC que nous développons dans la sous section suivante.



FIGURE 1.2: Stack ZSW [111]

#### 1.2.1.4/ LA PILE PEMFC

##### **Constitution d'une PEMFC :**

Les PEMFC ont une structure de base commune à toutes les technologies de piles. Il s'agit d'un assemblage anode / électrolyte / cathode (AME) [8].

L'électrolyte est une membrane en polymère perfluoré sulphoné. Ce matériau, lorsqu'il est suffisamment hydraté permet la conduction de protons  $H^+$  tout en empêchant la conduction d'électrons. Cet électrolyte reste néanmoins imperméable aux gaz même si il permet le transfert de vapeur d'eau par électrosmose.

Cet électrolyte est positionné entre deux électrodes composées de carbone sur lesquelles un dépôt catalytique à base de platine est effectué. Cet assemblage électrode / membrane / électrode (AME) est à son tour pris entre deux couches de diffusion (Gaz Diffusion Layer ou GDL). Elles sont composées d'un matériau poreux permettant l'arrivée des gaz jusqu'à l'AME ainsi que l'évacuation de l'eau produite par la réaction électrochimique.

Enfin, deux plaques en métal ou en graphite maintiennent mécaniquement cet empilement de couches successives. Elles sont appelées plaques bipolaires et assument plusieurs fonctions. D'une part, les canaux gravés sur ces plaques permettent l'acheminement des gaz sur toute la surface de l'AME. D'autre part, leur propriété thermique est utilisée pour évacuer la chaleur et donc assurer le contrôle de la température grâce à un système de refroidissement.

Cet assemblage constitue une cellule élémentaire d'une PEMFC (Fig. 1.3). Une PEMFC complète est un empilement (soit stack en anglais) de plusieurs cellules élémentaires.

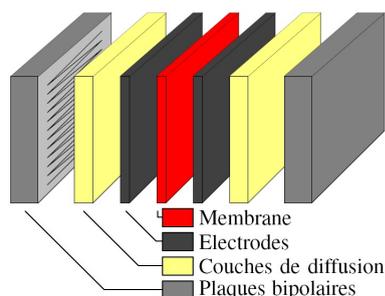


FIGURE 1.3: Composition d'une PEMFC

### Principe de fonctionnement :

La pile est alimentée en dihydrogène du côté anode et en dioxygène du côté cathode. L'alimentation cathodique peut aussi se faire en air. La conversion énergie chimique / électrique est possible grâce aux réactions ayant lieu aux deux électrodes [121]. A l'anode, le dihydrogène est oxydé selon une réaction électrochimique (eq. (1.1)).



Les protons  $H^+$  obtenus traversent l'électrolyte tandis que les électrons passent par une charge externe pour arriver à la cathode. Ici, c'est le dioxygène qui est réduit selon une autre réaction électrochimique (eq. (1.2)).



La réaction globale résultante correspond à l'inverse de électrolyse de l'eau (eq. (1.3)).



Une PEMFC produit donc de l'électricité, de l'eau, mais aussi de la chaleur (Fig. 1.4) [99,100]. En effet, la réaction électrochimique ayant lieu au sein de la PEMFC est exothermique.

La pile PEMFC est un convertisseur d'énergie dont la causalité physique s'exprime par une sollicitation en courant et une réponse en tension. Cette dernière dépend des conditions opératoires et des phénomènes internes se produisant dans la cellule. La tension est notre descripteur pour le comportement du stack.

Cette section 1.2.1 met finalement en lumière le fait que la pile PEMFC est une technologie pleine de promesses mais qui nécessite des améliorations. En effet, comme pour tout système, il existe de nombreuses dégradations possibles [110] et le comportement est influencé par le vieillissement [86]. Les dégradations et le vieillissement rapide [86] font partie des freins à son insertion dans le monde d'aujourd'hui. Il est difficile de corriger ou de prévenir leurs impacts puisque la gestion de maintenance est incomplète. Cela nous mène vers l'introduction du PHM, processus permettant une gestion adéquate de la maintenance d'un système pour des interventions au plus juste moment de manière à ce qu'elles soient réalisées sans pénaliser l'utilisateur du système.

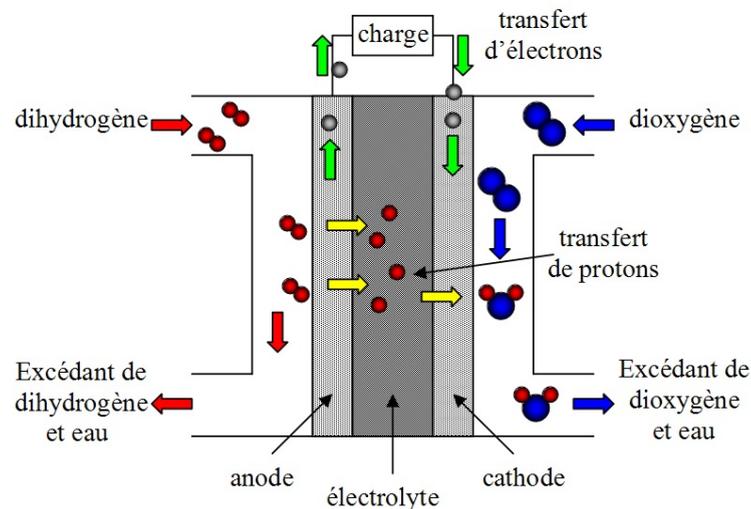


FIGURE 1.4: Principe de fonctionnement d'une PEMFC

## 1.2.2/ PROGNOSTICS AND HEALTH MANAGMENT

### 1.2.2.1/ LA MAINTENANCE MENANT VERS L'INTRODUCTION DU PHM

Toute industrie dans le monde d'aujourd'hui est concernée par la maintenance. Que ce soit au sein de ses usines pour faire face à la dégradation des machines, ou même pour offrir à ses clients un plan de maintenance accompagnant les produits. La norme *NF EN 13306 X 60-319* présente la maintenance comme étant :

#### Définition 1 : Maintenance

*L'ensemble des actions techniques, administratives et de management durant le cycle de vie d'un bien, destinées à le maintenir ou à le rétablir dans un état dans lequel il peut accomplir la fonction requise.*

Cette définition nous permet de donner la définition de la disponibilité selon cette même norme :

#### Définition 2 : Disponibilité

*Aptitude d'un bien à être en état d'accomplir une fonction requise dans des conditions données, à un instant donné ou durant un intervalle de temps donné, en supposant que la fourniture des moyens extérieurs nécessaires est assurée.*

Chronologiquement, la maintenance corrective fut la première à apparaître. Cette approche se définit comme la correction du défaut après l'occurrence d'une défaillance.

#### Définition 3 : Maintenance corrective

*Maintenance exécutée après détection d'une panne et destinée à remettre un bien dans un état dans lequel il peut accomplir une fonction requise.*

Au sein de cette maintenance, deux approches peuvent se distinguer, la **maintenance palliative** dont le résultat présente un caractère provisoire et la **maintenance curative** qui est supposée corriger le défaut de manière plus durable.

La maintenance corrective présente un intérêt relatif [41]. Elle est adaptée à des produits rapides et faciles à réparer, peu coûteux et dont une panne n'implique pas de conséquences critiques. En effet, certaines installations sont cruciales dans une usine et une défaillance entraînant une mise hors service de celles-ci peut engendrer des conséquences dramatiques pour une entreprise : pertes financières, retard de production ou encore chômage technique... La maintenance d'une installation peut effectivement prendre un certain temps de par son intervention, de par la détection de l'origine du défaut, mais aussi de par l'obtention de pièces si nécessaire... De manière à minimiser ce dernier aléa, il peut arriver qu'un stock de pièces de rechange soit constitué. Il représente dans ce cas une immobilisation financière.

Ce type de maintenance peut se justifier pour certains équipements, mais les inconvénients rencontrés pour d'autres systèmes sont trop importants pour être négligés. C'est pour cela qu'un autre type de maintenance a complété cette première approche, la maintenance préventive qui prévoit l'intervention avant l'apparition du défaut :

#### **Définition 4 : Maintenance préventive**

*Maintenance exécutée à des intervalles prédéterminés ou selon des critères prescrits et destinée à réduire la probabilité de défaillance ou la dégradation du fonctionnement d'un bien.*

Cette maintenance peut être appliquée de différentes manières, systématique, conditionnelle ou prévisionnelle.

La **maintenance systématique** est définie par la norme comme :

#### **Définition 5 : Maintenance systématique**

*Maintenance préventive exécutée à des intervalles de temps préétablis ou selon un nombre défini d'unités d'usage mais sans contrôle préalable de l'état du bien.*

Ce type de maintenance suppose un bien ayant des défaillances parfaitement répétables, ce qui est une très grande hypothèse au vu de travaux traitant du caractère aléatoire des défaillances pour Liao et al. [77] et non linéaire du vieillissement pour Uckun et al. [122]. La maintenance systématique permet d'anticiper l'intervention et donc de planifier le plan de production de l'usine afin que ce dernier ne soit pas pénalisé par ces interruptions. Ce type de maintenance présente toutefois des inconvénients notamment basés sur le temps fixé entre deux interventions. En effet un laps de temps trop court entre deux interventions amène à du "sur entretien" et donc à un gaspillage de temps et de moyens financiers, le bien pouvant encore être disponible sans l'intervention. Si ce laps de temps est trop long, il tombera en panne avant l'intervention, ce qui induira des coûts importants de par la perturbation du plan de production, et du plan de maintenance réalisé.

La **maintenance conditionnelle** est défini par la norme comme :

#### **Définition 6 : Maintenance conditionnelle**

*Maintenance préventive basée sur une surveillance du fonctionnement du bien et/ou des paramètres significatifs de ce fonctionnement intégrant les actions qui en découlent.*

Pour mettre en place ce type d'approche il est nécessaire dans un premier temps d'avoir une surveillance des biens constituée d'une acquisition de données et de leur traitement [45]. Cette politique de maintenance va plus loin. En effet, elle permet, en principe, d'éviter les

interventions non nécessaires de manière à les effectuer au juste moment mais aussi d'éviter les défaillances [79]. Ainsi, l'analyse d'indicateurs supposés significatifs obtenus grâce à l'étape d'observation permet de détecter des anomalies dans le fonctionnement du bien et donc d'amorcer les interventions [56]. Cette approche ne permet cependant pas de prévoir avec certitude les interventions de maintenance, la date de la défaillance étant incertaine. C'est pour cela qu'une autre approche découlant de la maintenance conditionnelle a été développée [28].

La **maintenance prévisionnelle** est défini par la norme comme :

**Définition 7 : Maintenance prévisionnelle**

*Maintenance conditionnelle exécutée en suivant les prévisions extrapolées de l'analyse et de l'évaluation de paramètres significatifs de la dégradation du bien.*

La maintenance prévisionnelle a l'ambition de pallier l'incertitude de la maintenance conditionnelle. L'estimation du temps de fonctionnement résiduel avant défaillance est faite grâce à la prédiction de l'évolution de l'état du bien basé sur l'état actuel [53, 68]. Ainsi, les interventions de maintenance sont planifiées pour être faites au juste moment, ce qui permet d'éviter le gaspillage de moyens et la perte de production ou de temps dus à une intervention non planifiée ou une défaillance intempestive.

La maintenance a finalement comme objectif d'augmenter la fiabilité, la disponibilité et la sécurité tout en minimisant les coûts. Pour la maintenance prévisionnelle, il est nécessaire d'anticiper l'apparition de la défaillance de manière à pouvoir planifier l'intervention.

Il est donc primordial à ce stade de définir des approches permettant ce type de maintenance. L'architecture "Open System Architecture for Condition Based Maintenance" OSA/CBM proposée en 2001 par le groupe MIMOSA et développée dans un article de Lebold et al. [68] a fédéré la suite de l'orientation des travaux de la communauté scientifique dédiée à la maintenance. Une rapide étude bibliographique permet de démontrer que la CBM (Condition Based Maintenance) est largement répandue ne serait-ce que par le nombre de travaux traitant un problème avec cette approche. Par exemple Jardine et al. publient un état de l'art de la recherche concernant la CBM en 2006 [56].

Cette structure est finalement la base du "Prognostics and Health Management", processus plus intégré applicable à n'importe quel problème de maintenance [48], et plus concentré sur la prédiction [120].

#### 1.2.2.2/ DESCRIPTION DU PHM

Les principaux objectifs du PHM sont les suivants :

- augmenter la disponibilité et réduire le coût opérationnel de manière à optimiser la maintenance,
- améliorer la sécurité du système,
- améliorer le processus de décision de manière à augmenter la durée de vie de l'équipement.

Pratiquement, le PHM est décrit à l'aide de sept couches qui se regroupent en 3 étapes (Figure 1.5). L'étape d'observation durant laquelle la surveillance du système est mise en jeu, l'étape d'analyse durant laquelle l'état du système présent, futur et ses causes sont investiguées. Puis et enfin l'étape d'action qui permet de prendre les décisions et de transmettre les informations.

### Observation

**Couche 1 : Acquisition des données.** Dans cette première étape du processus, des informations brutes sur le système sont récupérées. Ces informations, sous formes numériques, sont obtenues par mesure de capteurs ou de transducteurs [12]. Elles peuvent refléter différentes formes, ces données pouvant être des mesures de température, de pression, d'humidité, de courant [56]...

**Couche 2 : Traitement des données.** Ces données brutes ne sont généralement pas utilisables. Il est nécessaire de les transformer pour éliminer le bruit et en extraire les informations utiles pour les étapes suivantes.

Ainsi, les informations extraites à partir des données mesurées lors de cette étape d'observation permettent au processus d'analyse d'avoir lieu.

### Analyse

**Couche 3 : Évaluation de l'état de santé.** L'objectif est ici de déterminer l'état de santé actuel du système en détectant les fautes [18]. Les données acquises en ligne sont comparées avec les valeurs attendues des paramètres du système. Des alertes doivent être générées lorsque certains paramètres atteignent des seuils critiques.

**Couche 4 : Diagnostic.** Ce module suggère les causes probables des défauts [59]. Un diagnostic est généré en déterminant si la condition du système s'est dégradée. Il permet d'isoler et d'identifier le composant défaillant. Le rôle du diagnostic est donc de détecter, d'isoler et d'identifier les défaillances au moment ou elles surviennent [74].

**Couche 5 : Pronostic.** Le pronostic quant à lui vise à prédire l'occurrence des défaillances [56]. L'état futur du composant ou système observé est prédit à partir des informations obtenues sur les 4 couches précédentes.

### Action

**Couche 6 : Support de décision.** La fonction de ce module est de fournir des recommandations concernant les actions de maintenance ou les décisions à prendre [44], de manière à augmenter la disponibilité du bien pour lui permettre d'assurer sa mission.

**Couche 7 : Interface homme - machine.** Les différentes informations obtenues par les couches d'analyse et d'action sont transmises à l'utilisateur du bien pour information et/ou action.



FIGURE 1.5: Description des 7 couches du PHM

Le verrou scientifique nous amène à nous concentrer sur la cinquième couche : le pronostic.

### 1.2.2.3/ PRONOSTIC

Le point clef de cette approche, comme le suggère sa dénomination, est le pronostic [25]. C'est en effet l'accent qui est mis sur cette approche [120]. L'aspect prédictif permet d'effectuer les opérations de maintenance au plus juste moment, cela est possible grâce au module de pronostic.

La définition ISO du pronostic est la suivante [55] :

#### **Définition 8 : Pronostic**

*Estimation de la durée de fonctionnement avant défaillance et du risque d'existence ou d'apparition ultérieure d'un ou de plusieurs modes de défaillance.*

Cela nous permet de définir le "Remaining Useful Life" (RUL), soit DEFAD (durée estimée de fonctionnement avant défaillance) selon la norme ISO.

#### **Définition 9 : RUL**

*Estimation du temps écoulé entre l'instant actuel et le moment où la machine surveillée est jugée en panne.*

Le pronostic vise à prédire la durée restante durant laquelle le système sera disponible. Pour ce faire, différentes approches sont généralement distinguées dans la littérature, mais les définitions ne sont pas tout à fait homogènes. En effet, pour certains, tel que Sikorska et al. [114], il existe quatre approches, les modèles basés connaissances dans lesquels sont inclus les systèmes flous; les modèles d'espérance de vie qui comprennent les modèles stochastiques et les modèles statistiques; les réseaux de neurones artificiels et enfin les modèles basés physique. Pour Peng et al. [132] il en existe trois, les modèles basés sur la physique, les modèles basés sur la connaissance et les modèles guidés par les données ainsi

que les modèles combinés qui peuvent réunir deux ou plusieurs approches de pronostic. Cependant, pour Dragomir et al. [35] mais aussi pour Pecht et al. [97] il n'existe que trois grandes catégories distinctes mais dont la classification diffère de celle de Peng et al. [132]. Nous proposons maintenant d'aborder notre répartition.

**Les approches dites "data-driven"** (exemple : [24, 115, 140]); soit basées données. Ce sont des approches qui se basent uniquement sur l'expérience et donc les données obtenues. Ce type d'approches est généralement simple à implémenter mais ne permet pas de lier les phénomènes internes avec les états observés ou prédits. Elles nécessitent une grande quantité de données pour la phase d'apprentissage [34]. Ces approches sont souvent nommées "boite noire", car elles sont capables d'apprendre le comportement du système directement à partir des données obtenues dans les couches d'observations (tel que les réseaux de neurone). C'est ainsi que l'on peut essayer de prédire l'état suivant du système. Elles reposent sur l'hypothèse que les caractéristiques statistiques des données du système restent inchangées. Il s'agit d'une hypothèse forte car un comportement jamais observé jusque là ne pourra pas être prédit. Cette approche est donc à faible coût en instantané et est applicable à différents problèmes mais conditionne un coût important en amont pour obtenir l'éventail de données nécessaires [97].

**Les approches dites "physics-based" ou "model-based"** [20, 29, 108], soit basées sur la physique. Ce sont des approches qui décrivent physiquement les phénomènes qui se produisent [97]. Les critères de défaillances développés se basent sur la description des mécanismes. Ce sont des approches fiables qui nécessitent une très grande connaissance des phénomènes physiques se produisant. En effet, des équations développées grâce à une étude précise du comportement basée sur la connaissance générale du système, par exemple chimiques ou électroniques, sont le point de départ de toute approche model-based. Ces modèles sont donc des approches dédiées à l'application spécifique pour laquelle ils ont été développés, et reposent sur l'hypothèse que le comportement du système peut être décrit de manière analytique tout en restant exacte. Toutefois les connaissances nécessaires ne sont pas toujours acquises par la communauté du domaine. Ce sont des modèles généralement développés dans une situation où la précision est le facteur le plus dominant. Ces approches une fois développées ont une application très restreinte mais ont une précision importante. Elles sont cependant lourdes à développer au vu de la connaissance nécessaire des phénomènes survenant pour pouvoir les modéliser.

**Les approches hybrides se basent sur les deux types précédents** [33, 40, 119]. Ce sont des approches qui se basent sur des équations physiques mais, dont certains paramètres évoluent avec le temps et sont estimés par apprentissage. L'idée ici est d'essayer de combiner les deux premières méthodes de manière à associer leurs forces. Cependant, les faiblesses des deux premiers modèles y sont aussi associées. Cette approche permet d'avoir des besoins en amont moins drastiques, mais il est nécessaire d'avoir les deux types de connaissances, physiques et une bibliothèque de données. Il faut alors s'appliquer à éviter les coûts d'implémentation trop lourds tout en cherchant à atteindre une applicabilité satisfaisante.

La classification en trois approches est discutable et discutée. Il est effectivement nécessaire de conserver un regard critique quant à cette répartition. La définition donnée, ici, d'une approche model-based est clairement discutable. En effet, est-il réellement possible d'avoir un modèle à cent pour cent basé sur la physique et sans aucune nécessité de données? Il est plus réaliste de considérer ces frontières comme floues. Une approche model-based nécessite généralement un minimum de données ou de mesures pour obtenir

les valeurs des paramètres. Cette dénomination repose donc sur la flexibilité de la considération des données, c'est à dire, admettre ou non que certaines mesures ne sont pas des données de surveillance mais plus des mesures standards de connaissances générales.

Il est donc possible de réaliser un pronostic de différentes manières. Le rapprochement de nos deux domaines d'étude nous permettra de définir l'approche choisie pour l'orientation des travaux.

## 1.3/ VERS LE PRONOSTIC DE PEMFC

### 1.3.1/ TRAVAUX CONCERNANT LA PEMFC AU SEIN DE L'ARCHITECTURE PHM

L'étude des piles à combustibles se fait depuis de nombreuses années, avec différents objectifs ou différents noms. En effet, cette technologie est, encore aujourd'hui, insuffisamment comprise. Le principe de fonctionnement est connu, mais certains phénomènes se produisant au sein de la pile sont toujours sujets à discussion.

La considération de la maintenance pour ce système n'est que très peu envisagée. Nous proposons donc directement l'application du processus PHM à la pile PEMFC.

L'intérêt voué à la pile à combustible est majeur, et le nombre de publications la concernant important. Cependant, même si celles-ci ne lient pas spécifiquement l'architecture PHM avec les analyses développées, cela peut se révéler être le cas. En effet, le processus PHM possède des étapes qui s'enchaînent de manière logique face à un besoin de maîtriser la durée de vie. Un besoin qui est clairement exprimé pour la pile à combustible par Knights et al. [62] ou Jourdan et al. [58] ou encore Damour et al. [30]. De nombreux articles concernant la pile PEMFC existent. Ces derniers peuvent être rattachés à une couche spécifique du processus PHM. Même si le PHM a très peu été appliqué à la pile PEMFC sous cette propre dénomination comme Cadet et al. [17] l'a fait récemment, il est possible de trouver dans la littérature de nombreux travaux pouvant être classés dans les différentes couches du PHM.

#### 1.3.1.1/ OBSERVATION

Dans le bloc d'observation sont incluses les couches acquisition de données et traitement de données. Ces deux couches sont très proches et parfois, les méthodes présentées ci-dessous regroupent ces deux étapes. D'autres fois, il est réalisé un traitement de données commun à n'importe quelle technologie monitorée.

Les méthodes d'observations réalisées à espacement régulier au cours d'un essai sont nommées dans la suite des travaux comme étant un caractérisation.

La spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS) est une technique populaire [15, 65, 92, 102, 137] permettant de caractériser le comportement dynamique de la pile comme le précisent Wu et al. [129]. Cette technique consiste en l'application d'une faible perturbation de courant ou de tension permettant la mesure de l'amplitude et de la phase du signal résultant en fonction de la fréquence [8, 66]. La phase de traitement de ces données est la réalisation d'un plan de Nyquist avec, hypothétiquement, un lissage (Figure 1.6). Selon Wasterlain et al. [126] cette méthode s'applique habituellement aux petits stacks

ou cellules uniques. Réaliser un EIS permet de récolter de nombreuses informations, telles que l'empoisonnement au CO à l'anode.

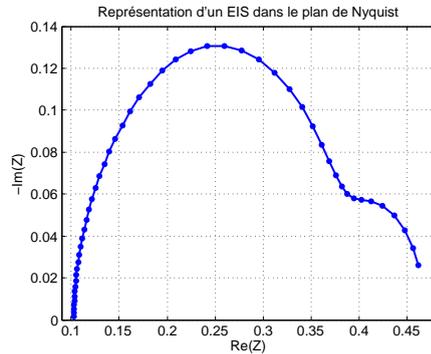


FIGURE 1.6: Représentation d'un EIS mesuré à FCLAB dans le plan de Nyquist sur un stack ramené à une cellule

Un autre méthode de surveillance populaire est la courbe de polarisation [76, 85, 102, 112, 129]. Aussi nommée courbe I-U, cette méthode permet de représenter l'évolution de la tension en fonction du courant [129] (Figure 1.7). Elle caractérise généralement l'état statique de la pile.

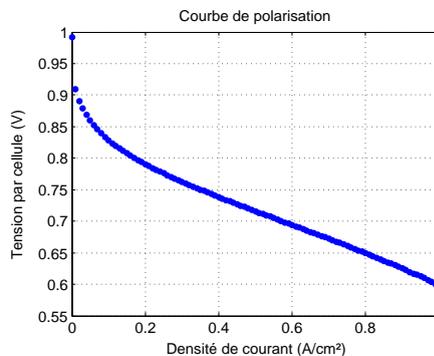


FIGURE 1.7: Exemple d'une courbe de polarisation mesurée à FCLAB sur un stack ramené à une cellule

Il existe de nombreuses autres méthodes servant à acquérir des données, telles la voltamétrie cyclique [126, 129, 137]; l'interruption de courant [65, 129] ou même l'utilisation d'IRM [109]. Dans la littérature, certains auteurs répertorient toutes ces méthodes [129, 130]. Pour éviter l'aspect catalogue nous n'avons présenté que les deux principales méthodes qui sont utiles à ces travaux.

Toutes ces méthodes peuvent être classées dans la partie observation du processus qui est alors bien remplie. Ces méthodes permettant d'obtenir des valeurs représentatives au temps considéré permettent de savoir quelles sont les mesures accessibles et se faire une idée plus précise de ce qui pourrait être applicable dans la suite du processus PHM. Ces méthodes permettent aussi d'apporter de la connaissance du système grâce aux données. Nous considérons que l'utilisation de ces mesures pour le pronostic tend à donner à ce

dernier une partie d'apprentissage par les données.

La partie observation ne nécessite pas dans l'immédiat de nouveaux travaux pour pouvoir appliquer le processus PHM à la pile ; il faut donc avancer au sein des couches pour discerner laquelle est la première nécessitant des développements.

#### 1.3.1.2/ ANALYSE

Les méthodes d'observations présentées précédemment permettent avec une bonne analyse de dégager conclusion sur l'état de santé de la pile. En effet, les informations extraites et rapidement présentées dans la sous-section précédente permettent une évaluation de l'état de santé et un diagnostic dans certains cas de figure.

#### Évaluation de l'état de santé

La distinction entre cette couche et la suivante peut être perçue comme floue au sein de la communauté pile. En effet, dans la littérature, ces deux étapes sont souvent proposées ensemble car liées. L'évaluation de l'état de santé repose sur la détection du défaut, ou simplement de l'état de santé. Une manière d'effectuer cette analyse est la construction de résidus. Cela consiste, pour des phénomènes simples, à comparer les données obtenues par des modèles supposés représenter le système en état non défectueux avec les données réellement mesurées. Hissel et al. [50, 133], ont utilisé une méthode de résidus et un algorithme de classification floue afin de détecter des déviations. Il est aussi possible d'utiliser des réseaux de neurones artificiels comme Yousfi-Steiner et al. [116]. Il est également envisageable d'utiliser les réseaux Bayésien comme Wasterlain et al. [125]. Petrone et al. [102] présentent quant à eux une grande variété d'approches basées modèles qui classifient les états de santé alors que le vocabulaire employé est "diagnostic". Il en est de même pour Zheng et al. [139] qui présentent une classification d'approche basée sur les données pour les états de santé. [94, 95] proposent une alternative aux méthodes conventionnelles en évaluant la durée durant laquelle la pile a été en fonctionnement ce qui permet une description de son état.

#### Diagnostic

Le diagnostic est effectué à la suite de l'étape précédente de détection de défauts. L'objectif est de déterminer la cause de la défaillance. Cadet et al. [17] présentent différentes méthodes de classification de défauts basée sur des approches statistiques ou floues, voire des réseaux de neurones. Onanena [93] a aussi développé des diagnostics variés de PEMFC à l'aide de descripteurs sélectionnés. Yousfi-Steiner et al. [134, 135] présentent des causes de dégradations et donc des diagnostics mais avec un certain manque de liaison quant à la détection. De Lira et al. [31] proposent un diagnostic à l'aide du modèle basé sur un observateur, Zeller et al. [136], Hernandez et al. [46] proposent quant à eux une approche basée modèle avec une identification de paramètres. Il existe aussi des approches basées sur des réseaux bayésiens [126] ou encore, une méthode d'espace de parité comme le proposent Buchholz et al. [16] ou Yang et al. en utilisant la technique de redondance analytique non linéaire [131].

#### Pronostic

Le pronostic pour la pile PEMFC se fait rare au sein de la littérature. Cependant, à partir de 2012 certains travaux ont commencé à apparaître. Tout d'abord avec Zhang et

al. [138] qui proposent une localisation de dommage et une prédiction de RUL grâce à un filtre de Kalman. Cet auteur peut être considéré comme traitant une approche hybride car utilisant le filtre de Kalman sur un modèle de dégradation basé physique. Zhang et al. effectuent leurs recherches aux États-Unis à l'Université de Clemson. Au sein du laboratoire FEMTO-ST dans le cadre de la fédération de recherche FCLAB le rapprochement PEMFC et PHM a été réalisé durant ces dernières années. C'est dans ce cadre que certains travaux de pronostic de pile sont récemment apparus dans ce domaine. Ainsi, ont été traités des modèles basés données comme Silva et al. [115] qui utilise un système neuro-flou ou encore Morando et al. [89] qui utilisent des réseaux de neurones à réservoir. Deux approches plutôt hybrides ont été développées aussi par Jouin et al. [57] avec l'aide d'un filtre particulaire et Bressel et al. [14] avec un filtre de Kalman.

Le pronostic de PEMFC a aussi été promu grâce au PHM challenge qui a été réalisé dans le cadre de la conférence IEEE PHM 2014 [60, 61, 76, 124]. Ce challenge repose sur l'objectif de prédiction de fin de vie résiduelle de la pile à l'aide des données fournies et des approches de pronostic qui sont donc basées données. L'intérêt d'une telle organisation est de promouvoir ce domaine. C'est dans ce cadre que se situent certains travaux de pronostic de pile PEMFC. Grâce aux données maintenant disponibles, le domaine devrait voir son nombre de contributeurs s'agrandir à l'avenir.

Depuis 2014, au sein du laboratoire FEMTO-ST des approches pour le pronostic de pile ont été développées, mais uniquement basées données qui sont parfois étendues en hybrides [14, 57, 89, 115]. Au sein de la communauté en général, il en est de même. Quelques approches sont développées, mais sont basées données ou hybrides [60, 61, 76, 124, 138]. Cette couche est la première dans l'ordre du processus à présent, au final, peu de travaux. Ainsi, pour pouvoir appliquer le PHM à la pile PEMFC, il est nécessaire d'alimenter cette dernière. De plus certaines approches commencent à apparaître au sein de la littérature, mais l'approche basée modèle ou hybride à base d'un modèle, n'est toujours pas présente. C'est donc un manque à combler.

### 1.3.1.3/ ACTION

Les contributions pouvant se rattacher aux étapes du PHM pour la pile PEMFC se font de plus en plus rares à mesure que l'on avance au sein du processus. Pour le pronostic, on ne compte que 9 travaux, et pour les étapes d'action, l'état des lieux est pratiquement vide. Il existe pourtant un article dans la littérature qui traite de la décision [47]. Herr et al. proposent d'aider à gérer un système composé de nombreux stacks. Pour cela, les auteurs proposent une méthode pour ordonnancer les utilisations des stacks dans un générateur multi-stacks de manière à pouvoir répondre à la demande le plus longtemps possible. Une particularité dans ces travaux est la possibilité de travailler à différentes puissances de manière à satisfaire la demande au plus juste. La rareté des travaux dans ce domaine confirme que le processus PHM pour la pile PEMFC est à combler, en commençant par la première couche présentant peu de travaux, le pronostic.

### 1.3.2/ PROBLÉMATIQUE ET OBJECTIF

#### 1.3.2.1/ PRONOSTIC DE PILE PEMFC

Les précédentes sections concernant la pile PEMFC, le PHM et l'exploration des travaux concernant la pile à travers le filtre PHM nous permettent de dégager une problématique.

La pile à combustible PEMFC est une pile très prometteuse qui suscite un intérêt tout particulier. Dans l'ordre de développement de l'architecture PHM, le pronostic est finalement la première couche de travaux manquante.

En effet, l'observation dans sa dénomination du PHM est largement traitée dans la littérature, par de nombreux travaux développant des méthodes plus ou moins intrusives, donnant plus ou moins d'informations. Le traitement des mesures est somme toute basique et permet à la plupart des méthodes d'autres domaines d'être appliquées. Malheureusement, les méthodes développées pour obtenir des mesures peuvent provoquer un vieillissement prématuré ou ont un effet qui n'est pas encore clair au sein de la communauté pile. En effet, après une période de caractérisation [61] il est possible d'observer une période de récupération, la contribution de telle ou telle méthode sur ce phénomène n'est pas encore précise.

Cela nous amène à la phase d'analyse qui est supposée, dans l'ordre, nous permettre de caractériser l'état de santé pour pouvoir en connaître l'origine et ensuite prédire les états futurs ou tout au moins la durée de vie résiduelle. Il a précédemment été démontré qu'il existe une confusion entre l'évaluation de l'état de santé et le terme diagnostic, comme nous l'entendons au sein de la littérature en général. Il existe de nombreux travaux traitant de l'état de santé, mais aussi certains concernant le diagnostic pur. Un constat peut cependant être fait, c'est le faible lien qui est fait entre ces deux aspects. Car si de nombreux travaux traitent des dégradations du stack [62,128], peu les rapprochent du véritable état de santé.

Le pronostic de PEMFC doit être développé de manière à pouvoir totalement appliquer le cycle PHM à ce type de pile. Il existe déjà quelques travaux sur ce sujet, mais aucun basé physique, alors que ce type d'approche présente de nombreux avantages. Tout d'abord elle permettrait une circulation supplémentaire au sein du cycle PHM. C'est à dire ne pas prédire uniquement une durée de vie résiduelle, mais pouvoir prédire l'état du système après un certain temps sous une certaine sollicitation. L'idée est finalement de pouvoir rendre une partie de la roue PHM à double sens. En effet, lors du développement d'une approche basée modèle, la prédiction de la durée de vie résiduelle se fait grâce à la simulation du comportement attendu, soit de la tension. Lorsqu'elle passe un seuil défini, la durée de vie résiduelle estimée est dégagee. Cependant, la force d'un modèle basé physique repose sur la justesse de la reproduction du comportement ainsi que la signification physique. Ces avantages pourraient permettre de ne pas seulement estimer la durée de vie résiduelle, mais de prédire aussi l'état de santé à un temps donné et donc de fournir un diagnostic. Si l'on se penche sur le lien entre la décision et le pronostic, l'idée d'une double circulation prend tout son sens. Il est complexe pour un système dynamique comme la pile à combustible de définir un seuil à partir duquel elle est considérée comme en panne. L'idée d'avoir un seuil dynamique défini par le contexte est particulièrement complexe pour le pronostic car les approches sont supposées s'adapter à différents systèmes soumis à différentes sollicitations. L'étape de décision au PHM possède toutes ces informations puisque cette étape a pour but d'optimiser la disponibilité du bien face aux besoins. Pourquoi donc ne pas introduire un cycle dans l'autre sens, lequel permettrait à la décision de demander au pronostic de lui fournir des prédictions dans les cas envisagés de sollicitations, de seuils... Ceci peut être

rendu possible grâce à une approche basée modèle, cette approche s'adaptant facilement à toutes ces demandes. La possibilité de pouvoir avoir une circulation dans les deux sens, entre les couches du PHM, pourrait être réalisée grâce à une approche basé modèle.

Cependant, les connaissances actuelles sur le vieillissement des piles à combustibles ne sont pas encore assez étendues. Même s'il existe déjà des approches hybrides pour le pronostic de PEMFC, celles-ci sont guidées par les données qui ont été agrémentées de connaissances. Or une approche qui bénéficierait plus amplement des avantages des connaissances physiques déjà explorées est développée sur l'idée inverse. Avoir une approche basée physique avec un modèle de comportement, complétée avec une partie d'apprentissage. Cette partie pourra à l'avenir être réduite dès lors que les connaissances générales sur le vieillissement de la pile PEMFC seront plus étoffées.

**L'orientation choisie** est de développer une approche hybride se basant tout d'abord sur un modèle de comportement. Ce type de modèle n'a jamais encore été appliqué au pronostic d'une pile PEMFC. Cette approche convient bien à notre idée du pronostic, de par la précision et la flexibilité qu'elle offre. Il est nécessaire de composer avec l'inconvénient de ce type d'approche ; la complexité. Pour cela, définir l'échelle des phénomènes décrits, de manière à maîtriser la complexité d'implémentation.

L'intérêt du choix d'une approche hybride avec un modèle de comportement se retrouve aussi dans la flexibilité du modèle. En effet, avec ce type de modèle, l'intégration d'une nouvelle variable en entrée ne remet pas en question tout le travail en amont. C'est un modèle qu'il est possible de faire évoluer facilement sous condition de connaissances physiques précises.

L'objectif de cette étude est de développer un modèle de comportement de PEMFC qui pourra nous permettre d'effectuer un pronostic fiable. Ce travail s'intègre au sein du projet européen SAPPHIRE, l'objectif global est de développer le PHM à la PEMFC. Il ne s'agit pas ici de définir des solutions utilisables en laboratoire uniquement, mais bien de tenter de définir des solutions applicables dans des systèmes industriels.

### 1.3.2.2/ SAPPHIRE

Le PHM en tant que tel n'est pas proposé de manière courante pour la communauté pile PEMFC. C'est dans ce cadre que le projet SAPPHIRE est financé par la Commission Européenne par le "Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking". SAPPHIRE est l'acronyme de "System Automation of PEMFCs with Prognostics and Health management for Improved Reliability and Economy". Ce projet a pour objectif de développer un système de contrôle avancé pour les PEMFCs afin d'en augmenter la durée de vie (cible 20,000 heures), tout en s'appuyant sur les technologies actuelles. Il est donc proposé de réaliser des travaux s'appuyant sur les couches du PHM non développées encore pour les pile PEMFC à l'aide de huit "Work Package" (WP) [2] :

- WP1 : Management du projet.
- WP2 : Spécification des pré-requis.
- WP3 : Expérimentations sur le Stack.
- WP4 : Expérimentations sur le système.
- WP5 : Surveillance et évaluation de l'état de santé de systèmes PEMFC.
- WP6 : Pronostic de PEMFC.
- WP7 : Synthèse et validation des algorithmes de contrôle.

- WP8 : Dissémination et exploitation.

Comme cette liste permet de l'observer, toutes les parties du PHM, l'observation par les mesures lors des expérimentations, l'analyse par les work packages 5 et 6, et l'action par le WP7 sont représentées.

Le travail développé dans ce manuscrit se situe au sein du WP6. Y est développée une approche de pronostic de PEMFC, dont la prédiction concerne le vieillissement du stack.

Six partenaires sont investis dans ce projet, Sintef (Norvège), Eifer (Allemagne), FCLAB (France), ZSW (Allemagne), Dantherm (Danemark). L'industriel Dantherm, propose un système qui génère une combinaison de chaleur et de puissance [39] dans le cadre d'une application stationnaire. L'idée finale est, finalement, de pouvoir appliquer l'approche PHM développée à ce système. Pour cela il est nécessaire de construire un modèle de stack capable d'être simulé sur des milliers d'heures.

## 1.4/ MODÉLISATION DE PILE PEMFC

### 1.4.1/ VERS UN MODÈLE DE PEMFC POUVANT ÊTRE UTILISÉ EN PRONOSTIC

Il est nécessaire de définir un modèle orienté prédiction du comportement afin de répondre au verrou scientifique, le pronostic. Un tel modèle n'existe pas encore dans la littérature. Ainsi, nous devons parcourir cette dernière pour choisir une option nous offrant un bon compromis.

Afin d'étudier si il existe dans la littérature un modèle basé physique adapté à l'objectif de pronostic, nous détaillons dans la suite des critères ainsi que la correspondance de modèles de la littérature face à ces derniers.

#### 1.4.1.1/ OBJECTIF DES MODÈLES

L'objectif du modèle conditionne sa structure et celle ci doit, bien évidemment être compatible avec un usage de pronostic. En effet, les modèles présentés dans la littératures ne sont pas tous réalisés dans le même but. Certains ont pour objectif de comprendre le fonctionnement de la pile, d'autres en permettent le contrôle. Les objectifs revendiqués par les auteurs sont donc variés. Fouquet et al. [36] ont développé leur modèle à des fins de diagnostic ; alors que l'objectif pour Siegel et al. [113] est l'exploration de manière à augmenter la compréhension du système. Pour Hinaje et al. [49], c'est un développement autour du contrôle qui est construit.

Cette information est malgré tout particulièrement difficile à décrypter au sein des publications. Elle est pourtant capitale puisqu'un modèle utilisé à des fins de conception (exemple : [96]) ne sera que difficilement utilisable pour une autre application. Finalement, un modèle développé pour un but exploratoire pourrait correspondre aux besoins. En effet il développe analytiquement les phénomènes se produisant au sein de la pile, ce qui rejoint le critère d'une approche basée physique.

#### 1.4.1.2/ ÉTENDUE DE LA MODÉLISATION

Le modèle attendu devra se limiter à la modélisation du stack. L'objectif final étant le pronostic de stack, ajouter des détails du système complet rendrait le modèle trop complexe et trop lourd pour l'utilisation attendue.

Les objets de la modélisation diffèrent selon les auteurs. Ceux modélisant le système entier ou seulement une de ses parties [5] comprenant stack et auxiliaires n'ont donc pas été étudiés. En effet, ils dépassent les limites fixées. Certains modèles concernent une cellule unique [21, 23, 49, 75, 81, 113]. Fouquet et al. [36] présentent un modèle de cellule, mais il semble facilement augmentable pour modéliser un stack entier, grâce à une répétition du modèle de cellules : Shan [112] présente un modèle de cellule et l'étend en modèle de stack. Asl [7] présente directement dans sa publication un second modèle, tiré du premier concernant une cellule, lequel est appliqué au stack. Enfin une partie de la littérature modélise le stack [54, 64, 105, 107].

Le critère concernant l'objet modélisé peut donc être assoupli. Un modèle de cellule facilement augmentable en modèle de stack pourrait être envisagé.

#### 1.4.1.3/ MODÈLE STATIQUE OU DYNAMIQUE

Un modèle statique présente un aspect avantageux quant à notre objectif. L'idée principale étant de modéliser un comportement sur une longue période de temps, et avoir une constante de temps dans le modèle très faible, apporte une lourdeur de calcul découlant d'une précision trop élevée. Cependant, un modèle dynamique permettrait d'obtenir une précision accrue dans la description du comportement. Il apporterait une plus grande fiabilité lors d'une simulation avec une sollicitation variable. Le choix d'un modèle dynamique ou statique est donc une question ouverte. Définir un modèle statique ou dynamique n'est pas chose aisée. Certains modèles sont dits dynamiques [21, 103, 105, 112] et d'autres statiques [36]. Nous choisissons de caractériser un modèle présentant une dynamique lente proche du régime permanent, comme étant statique. Nous classerons ainsi le modèle de Lee et al. [75] dans la catégorie des modèles dynamiques car ils proposent un modèle d'équivalence électrique présentant une dynamique rapide. Hou et al. [54] est selon nous classé au sein des modèles dynamiques car il modélise des phénomènes transitoires dans la tension simulée. En revanche, Laffly et al. [63] proposent l'association d'un modèle statique et d'un modèle dynamique.

#### 1.4.1.4/ ÉCHELLE D'ESPACE ET DE TEMPS

L'échelle de temps des phénomènes décrite au sein des modèles est aussi variable que la dimension du modèle. Une granularité trop fine, allant jusqu'au nanomètre, est fréquemment liée à une dimension élevée de description, mais est généralement plus adaptée à un objectif de design. Une revue de ce type de modèle est proposée par Biyikoglu et al. [11]. Elle traite de modèles détaillés sur des phénomènes précis. Cependant, dans le but d'effectuer un pronostic, un modèle 1D ou même un modèle appelé 0D devrait être suffisamment précis tout en présentant un coût d'implémentation raisonnable [23, 36, 54, 75, 81, 113]. L'échelle de temps liée au modèle complet est liée à ce premier point, puisqu'un modèle ayant une granularité trop fine aura une constante de temps très faible [78]. L'échelle de temps proposée ne devra pas être non plus de l'ordre de milliers d'heures car cela nuirait

à la justesse de la prédiction. Les phénomènes les plus rapides peuvent tout de même être considérés puis négligés dans un second temps si nécessaire.

#### 1.4.1.5/ DÉGRADATION INCLUSE OU NON DANS LE MODÈLE

Nous parlons de dégradation lorsqu'un seul phénomène de vieillissement spécifique est explicité, qu'il soit dû au vieillissement naturel ou provoqué par un usage particulier. Dans le but de faire du pronostic, il est nécessaire d'avoir dans un premier temps un modèle qui est capable de modéliser le vieillissement. Avoir comme point de départ une approche incluant déjà certaines dégradations présenterait un avantage non négligeable. Dans la littérature, il existe de telles approches. Par exemple, Fouquet et al. [36] caractérisent le noyage et l'assèchement de la membrane afin de classer les modes de fonctionnement dégradés de la pile. Lee et al. [75] ainsi que Laffly et al. [64] ont directement essayé de modéliser le vieillissement en réalisant une régression sur l'évolution des paramètres du modèle, avec une fonction polynomiale. Robin et al. [107] ont tentés de modéliser les mécanismes de dégradations de la surface en platine.

L'objectif final étant le pronostic, un modèle contenant déjà une modélisation de dégradation, peut présenter un atout majeur. Cependant, l'idée est de modéliser le vieillissement du stack et non pas des dégradations réversibles. Ce critère doit donc être pris avec critique. Une modélisation de dégradation peut avoir un intérêt, mais si elle s'avère être réversible cela pourrait représenter un inconvénient pour l'utilisation désirée.

#### 1.4.1.6/ VALIDATION DES MODÈLES

Afin de ne pas se lancer dans une modélisation qui nous donnerait des résultats trop éloignés du véritable comportement de la pile, il est préférable que le modèle présenté ait été validé suite à des expérimentations. Ce critère devrait nous permettre de choisir un modèle suffisamment fiable pour notre objectif. Les auteurs valident leurs modèles de différentes manières : grâce à des expérimentations [54,96], grâce à d'autres publications [7], voire même par comparaison avec des résultats de solveurs d'équations [49]. Lee et al. [75] quant à eux valident leurs modèles en évaluant la qualité de la régression de leurs courbes avec les données utilisées. Cela signifie que c'est l'évaluation des paramètres et la forme du modèle qui sont validées, et non pas sa capacité à estimer le comportement sur le temps. Ainsi seule la correspondance entre la courbe originale sur laquelle est basée l'évaluation et la simulation est présentée. Hou [54] effectue ses évaluations de paramètres grâce à des expérimentations et les valide ensuite grâce à d'autres tests effectués sur un autre stack. Chevalier [23] ne valide son modèle que grâce à une comparaison faite avec des données recueillies dans une autre publication.

#### 1.4.1.7/ SYNTHÈSE ET DISCUSSION

Le tableau 1.1 présente les caractéristiques des modèles évoqués face à chaque critère.

Différents modèles correspondent plus ou moins aux critères. En effet, le PHM appliqué à un stack est un tout nouveau développement au sein de la communauté scientifique. Aucun des modèles présents dans la littérature ne correspond exactement au modèle nécessaire. Il faut donc essayer d'évaluer le niveau des concessions envisageables ce qui nous

Ref.	Premier Auteur	Type de modèle	But	Objet modélisé	Statique ou Dynamique	Dégradation
[7]	Asl	Desc. phys. & chim. & Circuit électrique éq.	Pas clairement défini	Stack	Dyn.	Non
[21]	Ceraolo	Desc. Physique & chimique	Pas clair <sup>t</sup> défini	Cell.	Dyn.	Non
[23]	Chevalier	Desc. Physique & chimique	Diagnostic	Cell.	Stat.	Modélisé
[36]	Fouquet	Circuit électrique équivalent	Diagnostic	Cell. → stack	Dyn.	Caractérisé (Classifié)
[49]	Hinaje	Desc. phys. & chim. & Circuit électrique éq.	Contrôle	Cell	Dyn.	Non
[54]	Hou	Logarithmique & semi-empirique	Pas clair <sup>t</sup> défini	Stack	Dyn.	No
[75]	Lee	Circuit électrique éq.	Diagnostic	Cell.	Dyn.	Modélisé
[64]	Laffly	Desc. phys. & chim. & Circuit électrique éq.	Exploratif	Cell. → stack	Stat. & Dyn.	Modélisé
[67]	Lazarou	Circuit électrique éq.	Pas clair <sup>t</sup> défini	Cell. → stack	Dyn.	Non
[81]	Martins	Desc. Physique & chimique	Pas clair <sup>t</sup> défini	Cell.	Stat.	Non
[96]	Park	Desc. Physique & chimique	Performance	Cell. → stack	Dyn.	Non
[103]	Philipps	Desc. Physique & chimique	Pas clair <sup>t</sup> défini	Cell. → stack	Dyn.	Non
[105]	Reggiani	Circuit électrique éq.	Pas clair <sup>t</sup> défini	Stack	Dyn.	Non
[107]	Robin	Desc. physique et chimique	Exploratif	Stack	Dyn.	Modelisé
[112]	Shan	Physique & chimique	Performance	Cell. → stack	Dyn.	Non
[113]	Siegel	Desc. Physique & chimique	Exploratif	Cell.	Stat.	Non

TABLEAU 1.1: Tableau de synthèse de l'étude bibliographique de modèles de PEMFC

permettra de choisir le modèle qui servira de base. Il convient d'analyser plus en détails les approches, de manière à déterminer si elles peuvent correspondre ou non à notre objectif :

1. Le modèle de Robin [107] tente la combinaison de deux modèles, le premier analytique, et le second plus empirique. Il est très récent n'est pas encore très populaire. Le modèle dynamique modélise le stack et ne présente pas de réelle validation dans la publication, et certaines dégradations sont modélisées : l'oxydation cathodique et la dissolution du platine. Cette approche est donc un fort compétiteur. Ce modèle fait cependant intervenir les pressions partielles, une limitation forte face à une possible utilisation pour un système réel. L'objectif final est d'avoir une approche de pronostic utilisable sur une système réel de manière à renforcer l'intégration de la pile PEMFC au sein de l'industrie. Ce modèle ne correspond finalement pas à nos attentes puisque, faire des mesures de pression partielles n'est pas réalisable.
2. Le modèle de Fouquet [36] est une équivalence électrique basée sur le modèle de Randles mais augmenté d'un CPE ("Constant Phase Element"; soit d'un élément de phase constant) fig. 1.8. Publié en 2005 par PSA, ce modèle dans un but exploratif et de diagnostic, modélise une cellule unique. Il semble facilement augmentable pour modéliser un stack. La dégradation est incluse puisqu'une analyse de paramètres est effectuée pour caractériser l'assèchement ou le noyage de la membrane. Le modèle statique, assez populaire, est validé grâce à une comparaison faite grâce à une expérimentation effectuée sur un stack de six cellules. Cependant, dans ce modèle, les deux électrodes ne sont pas séparées, point que nous n'avons pas développé lors de nos critères. Cette perte d'information nous semble être un compromis trop important compte tenu du manque de précision qu'il induit. Une modélisation ne séparant pas la cathode et l'anode n'est pas assez précise et nous ferait perdre trop d'informations que nous jugeons nécessaires pour une simulation de tension. La non séparation des électrodes est donc problématique.

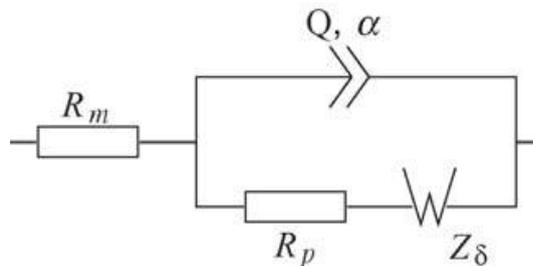


FIGURE 1.8: Modèle de Fouquet : Randles augmenté d'un élément de phase constant [36]

3. Le modèle de Reggiani [105] est un modèle basé sur une équivalence électrique (fig. 1.9) qui modélise le stack. Il n'est pas fréquemment cité, et n'inclut pas la dégradation. Il est comparé avec une expérimentation effectuée sur un stack de 47 AME. Ce modèle présente le même point faible que le précédent ; la non différenciation entre l'anode et la cathode. Ce point justifie de ne pas opter pour ce modèle car la précision apportée par le choix d'une approche basée modèle ne serait pas aussi grande qu'attendue. Si cette concession était faite, cela reviendrait à pousser les hypothèses de simplification trop loin pour notre usage. La simplification amenée par la non différenciation des électrodes est trop importante.

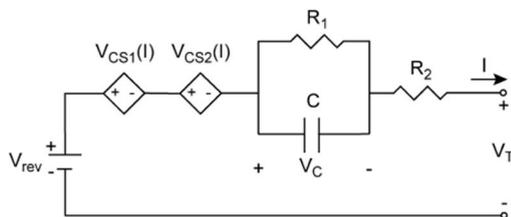


FIGURE 1.9: Modèle de Reggiani [105]

4. Le modèle proposé par Hou et al. [54] est un modèle qui présente au final un objectif très précis : modéliser la réponse de la pile suite à une sollicitation créneau positive ou négative. L'idée est de reproduire le comportement exacte de la pile sur ces petites périodes de temps. Là encore, ce modèle n'est pas assez complet. Il ne répond pas suffisamment à la nécessité de reproduire le comportement exact sur de longues périodes de temps sous une sollicitation variable.
5. Il reste finalement le modèle de Laffly et al. [64]. Ce modèle présente un intérêt particulier puisqu'il permet de ne pas faire le choix entre modèle statique et dynamique puisqu'il propose une combinaison de deux modèles. Les auteurs proposent différentes options de modèle statique. Notre intérêt se porte sur le modèle analytique qui repose sur la connaissance de la pile. La validation a été faite avec une comparaison entre les données de caractérisations (EIS et courbe de polarisation) mais pas avec la comparaison de la tension sur une longue période. Ce modèle propose aussi une intégration du vieillissement au sein des paramètres de chaque modèle, ce qui semble particulièrement adapté à une approche basée donnée. Des hypothèses fortes sont nécessaires pour son utilisation, mais elles reposent sur des comportements très précis au sein de la cellule. Ces derniers peuvent être considérés comme acceptables à notre échelle de modélisation. Ce modèle apparait comme le plus prometteur.

Un modèle apparait comme le plus adapté face à nos critères car dans le détail il est en adéquation avec nos besoins [64]. Le modèle proposé par Laffly et al. [64] semble par de nombreux aspects présenter une grande modularité pour une utilisation en Pronostic. Ce modèle n'est néanmoins pas parfait : il n'a pas été encore démontré sa capacité à reproduire la tension complète ; seulement celle à coller aux courbes de polarisations et EIS. Ces mesures de caractérisations permettent au modèle d'être mis à jour. Ainsi, par l'introduction de cette partie des données, nous pouvons apercevoir la tendance hybride que prend ce modèle de comportement. Cette tendance sera amplifiée au fur et à mesure du développement du travail pour être totalement confirmée dans le chapitre 4.

## 1.4.2/ DESCRIPTION DU MODÈLE DE COMPORTEMENT

### 1.4.2.1/ PRÉSENTATION GLOBALE

Le modèle de comportement proposé est présenté en figure 1.10. Ce modèle sera dans la suite nommé "modèle global", il est composé de deux parties principales, les modèles dynamique (petits signaux) et statique. La seule entrée de ce modèle de comportement est le courant. Celui-ci est ensuite normalisé en densité de courant pour être après décomposé en deux parties, la densité de courant alternative ( $J_{AC}$ ) et la densité de courant directe  $J_{DC}$ . Ce bloc de décomposition est un filtre passe-bas. Ces deux densités de courant sont

ensuite les entrées des modèles dynamique et statique. Les réponses des modèles statique et dynamique sont des tensions qui sont combinées grâce au bloc de recombposition qui donne une tension par cellule. Il est ensuite nécessaire de dénormaliser ce résultat de manière à obtenir une tension.

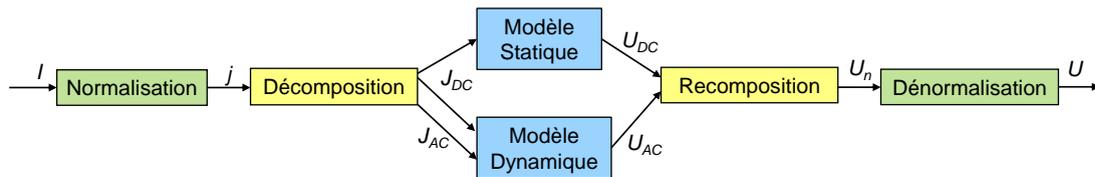


FIGURE 1.10: Schéma du modèle

L'objectif d'une approche de pronostic est de pouvoir prédire le comportement d'un système afin d'obtenir une estimation de l'état de santé (State-of-Health (SOH)) ou de la fin de vie résiduelle (Remaining Useful Life (RUL)). Ce modèle est une première étape permettant de répondre aux besoins, car puisqu'il est capable de reproduire instantanément ou sur une courte durée, le comportement du système. Grâce à une bonne mise à jour des paramètres, il sera démontré dans le chapitre 2 qu'il est à même de reproduire le comportement du système sans son vieillissement. Par la suite, il sera nécessaire de faire évoluer ce modèle en l'insérant au sein d'un processus PHM (Figure 1.11).

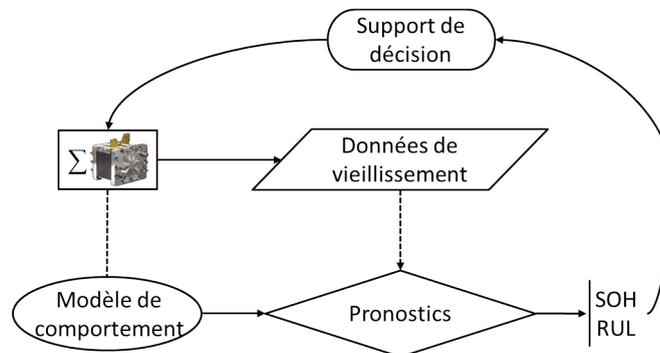


FIGURE 1.11: Insertion du modèle au sein d'un processus PHM

#### 1.4.2.2/ NORMALISATION ET DÉNORMALISATION DES DONNÉES

Le bloc de normalisation des données permet simplement à la sollicitation de passer de courant à densité de courant. Pour cela le courant est simplement divisé par la surface active d'une cellule du stack.

Le bloc de dénormalisation des données fonctionne sur le même principe. Il permet de passer d'une réponse en tension par cellule à une tension du stack. Pour cela, la tension est simplement multipliée par le nombre de cellules du stack.

L'idée liée à cette hypothèse est de rendre le modèle utilisable avec des stacks de dimensions différentes.

## 1.4.2.3/ BLOC DE DÉCOMPOSITION

Les auteurs [64] proposent de modéliser la décomposition de la densité courant en ses composantes directe et alternative à l'aide d'un filtre passe-bas.

$$I_{DC}(p) = \frac{1}{1 + \tau_{filtre} \cdot p} \cdot j(p) \quad (1.4)$$

$$I_{AC} = j - I_{DC} \quad (1.5)$$

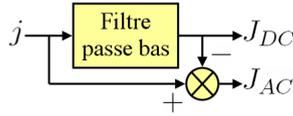


FIGURE 1.12: Bloc de décomposition

## 1.4.2.4/ PARTIE STATIQUE DU MODÈLE

L'objectif de la modélisation statique est d'obtenir la valeur de la tension sous une sollicitation de courant constante ou variant lentement. Le modèle statique proposé est un modèle analytique qui repose sur la loi de Butler-Volmer [63].

Pour une réaction d'oxydo-réduction, la relation de Butler-Volmer, qui ne sera pas démontrée ici, vérifie l'équation (1.6). Cette relation propose l'expression de la densité de courant en fonction du potentiel, il est donc nécessaire de rendre cette expression inversible de manière à obtenir le potentiel en fonction de la densité de courant.

$$j = j_0 \left( \exp\left(\frac{\alpha_{Ox} \cdot n \cdot F}{R.T} \cdot \eta\right) - \exp\left(-\frac{\alpha_{Red} \cdot n \cdot F}{R.T} \cdot \eta\right) \right) \quad (1.6)$$

Les coefficients de transfert  $\alpha_{Red}$  et  $\alpha_{Ox}$  ont une somme égale à un. En prenant l'hypothèse que la réaction est à l'équilibre, ces deux coefficients sont considérés égaux (eq. (1.7)).

$$\alpha = \alpha_{Red} = \alpha_{Ox} = \frac{1}{2} \quad (1.7)$$

L'équation (1.6) devient donc :

$$j = j_0 \left( \exp\left(\frac{\alpha \cdot n \cdot F}{R.T} \cdot \eta\right) - \exp\left(-\frac{\alpha \cdot n \cdot F}{R.T} \cdot \eta\right) \right) \quad (1.8)$$

On peut en déduire :

$$j = 2 \cdot j_0 \sinh\left(\frac{\alpha \cdot n \cdot F}{R.T} \eta\right) \quad (1.9)$$

En inversant ensuite de manière à obtenir l'expression de  $\eta$ , la chute de tension, l'équation (2.5) est obtenue.

$$\eta = \frac{R.T}{\alpha.n.F} \cdot \text{asinh} \left( \frac{j}{2.j_0} \right) \quad (1.10)$$

Or, lors d'une réaction d'oxydo-réduction, à chaque électrode se produit une demi-réaction, l'équation (1.10) est donc vérifiable pour chacune des deux électrodes. Il est alors possible d'écrire les equations suivantes :

$$\begin{aligned} \eta_c &= \frac{R.T}{\alpha_c.n.F} \cdot \text{asinh} \left( \frac{j}{2.j_{0c}} \right) \\ \eta_a &= \frac{R.T}{\alpha_a.n.F} \cdot \text{asinh} \left( \frac{j}{2.j_{0a}} \right) \end{aligned} \quad (1.11)$$

De manière à prendre en compte les phénomènes de courant limite dus à la diffusion des espèces, les densités de courant limite à l'anode et à la cathode ( $j_{La}$  et  $j_{Lc}$ ) sont ajoutées dans les lois de variations des chutes de tensions ( $\eta_a$  et  $\eta_c$ ) (eq.(1.11)).

$$\begin{aligned} \eta_a &= \frac{1}{b_a} \cdot \text{asinh} \left( \frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0a} \cdot \left(1 - \frac{J_{DC}}{j_{La}}\right)} \right) \\ \eta_c &= \frac{1}{b_c} \cdot \text{asinh} \left( \frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0c} \cdot \left(1 - \frac{J_{DC}}{j_{Lc}}\right)} \right) \end{aligned} \quad (1.12)$$

Dans les faits [63], la diffusion à la cathode est la seule prise en compte. En effet les auteurs ont remarqué lors des mesures que la diffusion côté air a une influence plus importante que du coté hydrogène. Les équations (1.11) et (1.12) sont prises en compte pour le calcul des chutes de tension  $\eta_a$  et  $\eta_c$  ; ce qui donne la loi de variation de tension de pile suivante (eq. (1.13)) :

$$U_{DC} = E_n - r \cdot J_{DC} - \frac{1}{b_a} \cdot \text{asinh} \left( \frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0a}} \right) - \frac{1}{b_c} \cdot \text{asinh} \left( \frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0c} \cdot \left(1 - \frac{J_{DC}}{j_{Lc}}\right)} \right) \quad (1.13)$$

L'équation 1.13 représente le modèle statique proposé.

#### 1.4.2.5/ PARTIE DYNAMIQUE DU MODÈLE

La densité de courant statique,  $J_{DC}$  est la seule entrée du modèle statique, mais elle est aussi l'une des entrées du modèle dynamique. Cette densité de courant permet de définir le point de fonctionnement. Ainsi, l'objectif de ce modèle est de lier les variations de tensions aux variations de courant aux alentours d'un point de fonctionnement quasi-statique.

#### Vue globale du modèle

Les phénomènes représentés dans le modèle dynamique sont exprimés grâce à des équivalences électriques (figure 1.13). Les phénomènes multi-physiques sont représentés par des impédances de comportements similaires :

- Une partie des phénomènes de diffusion convection des différents gaz sont modélisés par une impédance de Warburg. Les mesures faites par les auteurs leur ont permis de constater que les phénomènes de diffusion convection sont dominés par celle de l'oxygène à la cathode, ce qui justifie l'absence de Warburg coté anode.
- Les capacités de double couche à l'interface électrode-électrolyte à l'anode et à la cathode sont modélisées respectivement par les capacitances  $C_{dca}$  and  $C_{dcc}$ .
- Les deux résistances de transfert  $R_{ta}$  and  $R_{tc}$  représentent le transfert des électrons dans les électrodes.
- La résistance ionique de la membrane est modélisée par une résistance équivalente  $R_m$ . Une notation différente que la résistance interne dans le modèle statique car ces deux résistances ne sont pas encore liées ici.
- Finalement, le comportement inductif du aux connecteurs est pris en compte grâce à l'inductance  $L_{con}$ .

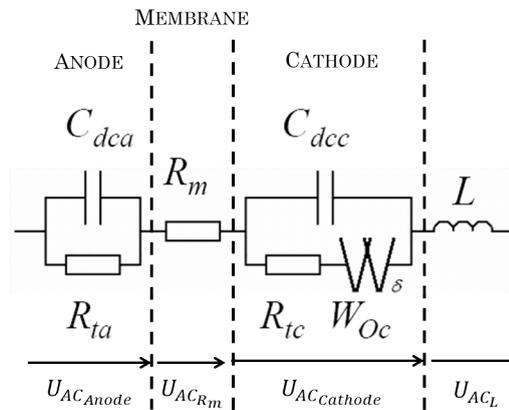


FIGURE 1.13: Équivalences électriques du modèle dynamique

### Impédance de Warburg

La Warburg  $W_{Oc}$  est définie par son module  $R_{Oc}$  et sa constante de temps  $\tau_{Oc}$ , et son expression dans le domaine de Laplace donne l'équation (1.14).

$$W_{Oc}(p) = R_{Oc} \cdot \frac{\tanh(\sqrt{\tau_{Oc} \cdot p})}{\sqrt{\tau_{Oc} \cdot p}} \quad (1.14)$$

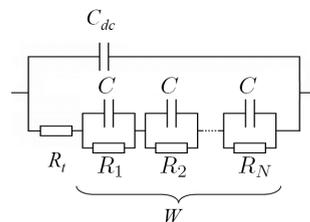


FIGURE 1.14: Circuit électrique équivalent d'une électrode contenant une Warburg exprimée sous forme de  $n$  circuits RC en série

Une équivalence pour cette impédance est un réseau de  $n$  circuits RC en série (figure 1.14) [104]. La valeur des paramètres  $R_n$  (eq. (1.15)) et  $C$  (eq. (1.16)) est considérée comme suit.

$$R_n = \frac{8 \cdot R_{Oc}}{(2 \cdot n - 1)^2 \cdot \pi^2} \quad (1.15)$$

$$C = \frac{\tau_{Oc}}{2 \cdot R_{Oc}} \quad (1.16)$$

L'impédance équivalente vérifie ensuite l'équation (1.17), avec  $R_n$  développé dans l'équation (1.15) et  $N_{eq}$  le nombre de circuits RC :

$$W_{Oc_{eq}}(p) = \sum_{n=1}^{N_{eq}} \frac{R_n}{1 + R_n \cdot C \cdot p} \quad (1.17)$$

Lorsque plus de 5 circuits RC sont utilisés, l'erreur entre le modèle et les mesures sont en dessous de 4% [64]. Les erreurs de mesures expérimentales possédant le même ordre de grandeur [64]. On peut considérer que 5 circuits sont suffisants.

### Représentation d'état

Le circuit équivalent électrique est ensuite exprimé grâce à une représentation d'état. La densité de courant est supposée bien séparée dans ses parties statique  $J_{DC}$  et dynamique  $J_{AC}$ , puisque ce sont les différentes entrées de ce modèle.

Une représentation d'état est exprimée de la façon suivante :

$$\dot{X} = A \cdot X + B \cdot U \quad (1.18)$$

$$Y = C \cdot X + D \cdot U \quad (1.19)$$

Pour l'anode, (figure 1.13), qui n'a pas d'influence de diffusion convection, le vecteur d'état est (eq. (1.20)). Les matrices de représentations sont (eq. (1.21), (1.22), (1.23) and (1.24)) :

$$X = [I_{R_{ta}}] \quad (1.20)$$

$$A = \left[ -\frac{1}{R_{ta} \cdot C_{dca}} \right] \quad (1.21)$$

$$B = \left[ \frac{1}{R_{ta} \cdot C_{dca}} \right] \quad (1.22)$$

$$C = [R_{ta}] \quad (1.23)$$

$$D = [0] \quad (1.24)$$

La représentation d'état à l'anode est finalement (eq. (1.25)) :

$$\begin{cases} [I_{R_{ta}}] &= \left[ -\frac{1}{R_{ta} \cdot C_{dca}} \right] \cdot [I_{R_{ta}}] + \left[ \frac{1}{R_{ta} \cdot C_{dca}} \right] \cdot [j_{AC}] \\ [U_{AC_{Anode}}] &= [R_{ta}] \cdot [I_{R_{ta}}] \end{cases} \quad (1.25)$$

Pour la cathode, en prenant en compte une impédance de Warburg, comme précisé dans le développement précédent, le vecteur d'état et les matrices de représentation sont donnés dans les équations (1.26), (1.27), (1.28), (1.29) and (1.30). Où  $V_i$  est la tension du  $i^{\text{ème}}$  circuit RC dans le circuit équivalent de la Warburg.

$$X = \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ \dots \\ V_N \\ I_{R_{tc}} \end{bmatrix} \quad (1.26)$$

$$A = \begin{bmatrix} \frac{-1}{R_1 \cdot C_{eq}} & 0 & \dots & 0 & \frac{1}{C_{eq}} \\ 0 & \frac{-1}{R_2 \cdot C_{eq}} & \dots & 0 & \frac{1}{C_{eq}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & \frac{-1}{R_N \cdot C_{eq}} & \frac{1}{C_{eq}} \\ \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_1 \cdot C_{eq}} & \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_2 \cdot C_{eq}} & \dots & \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_N \cdot C_{eq}} & -\frac{N}{R_{tc} \cdot C_{eq}} - \frac{1}{R_{tc} \cdot C_{dca}} \end{bmatrix} \quad (1.27)$$

$$B = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ \frac{1}{R_{tc} \cdot C_{dca}} \end{bmatrix} \quad (1.28)$$

$$C = \begin{bmatrix} 1 & 1 & \dots & 1 & R_{tc} \end{bmatrix} \quad (1.29)$$

$$D = [0] \quad (1.30)$$

Finalement, la représentation d'état complète est donnée en équation (1.31).

$$\left\{ \begin{array}{l} \begin{bmatrix} \dot{V}_1 \\ \dot{V}_2 \\ \dots \\ \dot{V}_N \\ I_{R_{tc}} \end{bmatrix} \\ \\ \\ [U_{AC_{cathode}}] \end{array} \right. = \begin{bmatrix} \frac{-1}{R_1 \cdot C_{eq}} & 0 & \dots & 0 & \frac{1}{C_{eq}} \\ 0 & \frac{-1}{R_2 \cdot C_{eq}} & \dots & 0 & \frac{1}{C_{eq}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & \frac{-1}{R_N \cdot C_{eq}} & \frac{1}{C_{eq}} \\ \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_1 \cdot C_{eq}} & \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_2 \cdot C_{eq}} & \dots & \frac{-1}{R_{tc} \cdot R_N \cdot C_{eq}} & -\frac{N}{R_{tc} \cdot C_{eq}} - \frac{1}{R_{tc} \cdot C_{dcc}} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ \dots \\ V_N \\ I_{R_{tc}} \end{bmatrix} \\ + \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \\ \frac{1}{R_{tc} \cdot C_{dcc}} \end{bmatrix} \cdot [j_{AC}] \\ [U_{AC_{cathode}}] = \begin{bmatrix} 1 & 1 & \dots & 1 & R_{tc} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ \dots \\ V_N \\ I_{R_{tc}} \end{bmatrix} \end{array} \quad (1.31)$$

#### 1.4.2.6/ BLOC DE RECOMPOSITION

Comme la figure 1.10 le montre, le bloc de recomposition utilise les deux sorties des modèles statique et dynamique. Pour le modèle statique, la sortie  $U_{DC}$  est simplement décrite dans l'équation (1.13).

Pour le modèle dynamique, l'expression de  $U_{AC}$  peut être développée de la façon suivante :

$$U_{AC} = U_{AC_{Anode}} + U_{AC_{Cathode}} + U_{AC_{Rm}} + U_{AC_L} \quad (1.32)$$

Le bloc de recomposition consiste finalement à soustraire la tension dynamique à la tension statique. En effet, une convention récepteur est utilisée pour le modèle dynamique [64].

$$U = U_{DC} - U_{AC} \quad (1.33)$$

#### 1.4.2.7/ RÉCAPITULATIF DES HYPOTHÈSES

Dans ce modèle, il existe plusieurs points que nous considérons comme limites ou hypothèses à différents niveaux (Figure 1.15). Ces points sont récapitulés dans la suite de cette section car ils délimitent l'utilisation du modèle au sein de ce manuscrit.

- Du point de vue système, il est nécessaire d'avoir un courbe de polarisation et des EIS pour ajuster la valeur des paramètres du modèle. Cette hypothèse est forte, comme il sera précisé dans le chapitre 4.
- À l'échelle du stack, le comportement des cellules est supposé homogène. Cette hypothèse implique donc que le modèle utilisé comme il l'est ne peut pas reproduire le comportement de chaque cellule indépendamment. Il serait cependant envisageable de mettre  $n$  modèles pour modéliser  $n$  cellules.

- À l'échelle de la cellule, les effets de bords ne sont pas pris en compte. En effet les blocs de normalisation et dénormalisation (Section 1.4.2.2) impliquent que le travail de modélisation soit fait sur une cellule unitaire de surface unique.
- Une limite a été identifiée au cours des travaux : le bloc de décomposition. En effet, ce bloc simplement modélisé par un filtre passe-bas apporte des approximations qui impactent la séparation de la densité de courant et donc les contributions des modèles dynamique et statique.
- Du point de vue de la modélisation, de nombreuses hypothèses ont été avancées. En effet, le modèle dynamique considère des variations autour d'un point de fonctionnement statique, et ainsi qu'une pile PEMFC est un système linéaire autour d'un point de fonctionnement. Il faut de plus considérer les équivalences électriques comme des hypothèses de modélisation puisque ces impédances sont supposées reproduire un comportement spécifique. Dans le modèle dynamique, tout comme le modèle statique, les effets de l'oxygène à la cathode sont supposés prédominants. Un lien entre ces deux parties du modèle est aussi réalisé, il est effectué entre la résistance de transfert à l'anode et la chute de tension.

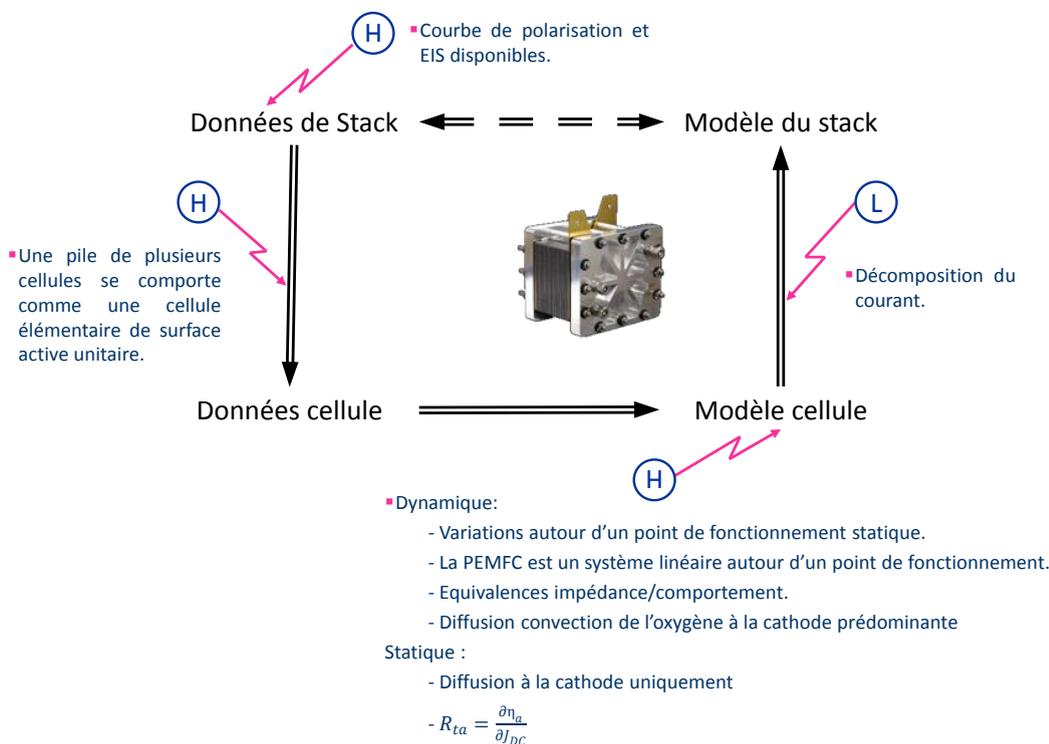


FIGURE 1.15: Fonctionnement du modèle avec la répartition des hypothèses et des limites

Sur la figure 1.15 est récapitulé le processus global qu'effectue le modèle complet. À partir de données mesurées sur le stack les données pour une cellule sont extrapolées afin de permettre l'utilisation du modèle. Sur cette figure apparaissent les hypothèses du modèle sélectionné pour le pronostic et développé précédemment.

## 1.5/ CONCLUSION

Ce chapitre présente l'intérêt que suscite la pile à combustible *Proton Exchange Membrane Fuel Cell* (PEMFC) ainsi que son fonctionnement. Une des limites à l'intégration de cette technologie au sein de l'industrie est sa trop courte durée de vie, qui, de plus, n'est pas gérée.

C'est dans ce cadre et cet objectif que le *Prognostics and Health Managment* (PHM) est développé en utilisant la description de l'historique de la maintenance. En effet, le PHM est un processus qui permet de faire face à certains besoins de maintenance.

Après avoir rapproché les travaux concernant la pile avec les couches du PHM, il est démontré que trop peu de travaux sur le pronostic de PEMFC sont présents au sein de la littérature. Dans le laboratoire qui a accueilli cette thèse certains travaux tentent de pallier ce manque. Toutefois une approche est toujours absente, le pronostic hybride de PEMFC à l'aide d'un modèle de comportement. Bien que ce type d'approche présente généralement bon nombre de difficultés, elle présente tout de même de grands avantages, tels que la précision et la modularité. Grâce au projet européen SAPPHIRE qui cherche à traiter le PHM de PEMFC, il est possible de développer cette approche.

De nombreux modèles de pile sont décrits au sein de la littérature. Celle-ci est donc analysée de manière à pouvoir étudier en détails chaque modèle qui pourrait correspondre aux besoins. C'est après ce travail de recherche qu'un modèle est finalement sélectionné afin de pouvoir l'améliorer pour du pronostic.

La présentation complète de ce modèle avec la liste des hypothèses qu'il implique est finalement proposée. Ce dernier combine une partie statique et dynamique et repose sur une hypothèse forte d'homogénéité du comportement au sein du stack et de la cellule.

La dernière section de ce chapitre permet de mettre en lumière des points spécifiques devant être traités. Tout d'abord, il est nécessaire de vérifier que ce modèle est capable de reproduire efficacement le comportement, et donc la tension. Le chapitre 2 traite du modèle de comportement instantané. Nous verrons dans ce chapitre que le modèle, malgré son orientation physique nécessite des données pour fonctionner. Ce qui nous dirigera ensuite vers une approche de pronostic hybride.



# MODÈLE DE COMPORTEMENT

*Le modèle de comportement présenté dans le chapitre précédent possède certaines lacunes qu'il faut combler. Il est tout d'abord nécessaire de valider l'utilisation de ce modèle pour la reproduction du comportement d'une pile. Dans ce chapitre est développée la procédure de mise à jour des paramètres, pour ensuite présenter une confrontation modèle et données expérimentales. Il est enfin présenté une analyse de sensibilité paramétrique. Cette dernière permettra d'évaluer l'influence de chaque paramètre sur différentes sorties du modèle. En effet, le nombre de paramètres étant très important, il est intéressant d'étudier la possibilité de le réduire.*

## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>42</b>
<b>2.2</b>	<b>Procédure d'identification paramétrique du modèle</b>	<b>42</b>
2.2.1	Point de vue global de la mise à jour du modèle	42
2.2.2	Ajustement du modèle statique	44
2.2.3	Ajustement du modèle dynamique	46
<b>2.3</b>	<b>Méthodes de régression</b>	<b>47</b>
2.3.1	Problèmes d'optimisation	47
2.3.2	Méthodes proposées	48
2.3.3	Application	50
<b>2.4</b>	<b>Validation du modèle</b>	<b>50</b>
2.4.1	Description de l'expérimentation	51
2.4.2	Évaluation des performances des simulations	52
2.4.3	Identification du modèle statique	53
2.4.4	Identification du modèle dynamique	55
2.4.5	Concordance entre les mesures	56
2.4.6	Validation du modèle complet de manière instantanée	58
<b>2.5</b>	<b>Analyse de variance</b>	<b>59</b>
2.5.1	Les bases du calcul ANOVA (Analyse de variance)	60
2.5.2	Première version ANOVA	62
2.5.3	Seconde version de l'analyse de sensibilité paramétrique	70
2.5.4	Synthèse	73
<b>2.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>76</b>

---

---

## 2.1/ INTRODUCTION

Le besoin d'un modèle de comportement a été clairement exposé dans le chapitre précédent, avec une étude permettant de choisir un modèle de la littérature pouvant s'appliquer à notre usage : le pronostic de PEMFC.

Le modèle choisi est proposé par E. Laffly [64], il a été validé par sa capacité à reproduire les courbes de polarisation et les EIS mesurés. Cependant, il n'a pas été démontré que ce modèle capable de reproduire les données de caractérisation, est en mesure d'approcher efficacement le comportement temporel du stack. Cette lacune est le sujet de la seconde partie de ce chapitre. Le modèle est ainsi démontré valide sur un jeu de données expérimentales. En effet, il est capable de reproduire les données des caractérisations tout en permettant d'approcher un comportement temporel de courte durée ne faisant pas intervenir le vieillissement.

Avant de pouvoir valider le modèle de manière plus approfondie, il est nécessaire de développer les méthodes et les processus appliqués qui permettent la mise à jour des valeurs paramétriques. La première partie de ce chapitre développe donc la procédure de mise à jour ainsi que les différentes approches qui s'offrent à nous pour la réaliser. Cette procédure de mise à jour paramétrique est décomposée en différentes parties qui peuvent être traitées comme des problèmes d'optimisation ayant pour objectif de minimiser l'erreur entre les données et la simulation. En effet, l'objectif est de trouver les valeurs de paramètres permettant au modèle de reproduire parfaitement les données. Cependant, ces problèmes d'optimisation ne nous permettent pas, de par leur complexité, d'utiliser un algorithme garantissant d'obtenir le minimum global avec un durée acceptable.

C'est pourquoi notre attention se concentre sur le nombre de paramètres qui est élevé. Cela accroît la possibilité de tomber sur des minima locaux. En se concentrant sur le modèle de comportement instantané, la dernière partie de ce chapitre étudie les influences des paramètres. Cette étude n'étant pas suffisante pour contraindre nos problèmes d'optimisation, elle sera complétée par une étude sur le modèle de comportement vieillissant au chapitre suivant.

## 2.2/ PROCÉDURE D'IDENTIFICATION PARAMÉTRIQUE DU MODÈLE

### 2.2.1/ POINT DE VUE GLOBAL DE LA MISE À JOUR DU MODÈLE

Valider le modèle revient à confirmer sa capacité à approcher le comportement d'une PEMFC grâce à des données mesurées ponctuellement qui permettent d'estimer les paramètres.

Les données utilisées pour la mise à jour du modèle sont composées de  $k$  caractérisations réalisées à des temps différents. Une caractérisation consiste en la réalisation d'une courbe de polarisation et de  $i$  EIS à différents courants au temps considéré. Les essais réalisés comprennent généralement des phases de caractérisations effectuées au cours d'une expérimentation de longue durée. Le cœur de ce chapitre est le modèle de comportement instantané, mais l'objectif final est de réaliser de la prédiction. Ainsi, c'est dans ce cadre

que les plans expérimentaux sont définis et c'est dans ce but qu'ils sont réalisés sur des longues durées avec des mesures de caractérisations ponctuelles.

L'objectif, est de mettre à jour les paramètres du modèle de manière à ce que la sortie de ce dernier soit la plus proche possible des données fournies. Ainsi sont obtenues des valeurs de paramètres à différents temps considérés. La procédure de mise à jour des paramètres peut donc être réalisée pour chaque caractérisation. La suite de cette section développe la procédure réalisée pour chaque caractérisation.

Le processus complet peut être observé figure 2.1. Une description précise des deux parties nommées *Ajustement du modèle dynamique* et *Ajustement du modèle statique* est proposée dans la suite du développement.

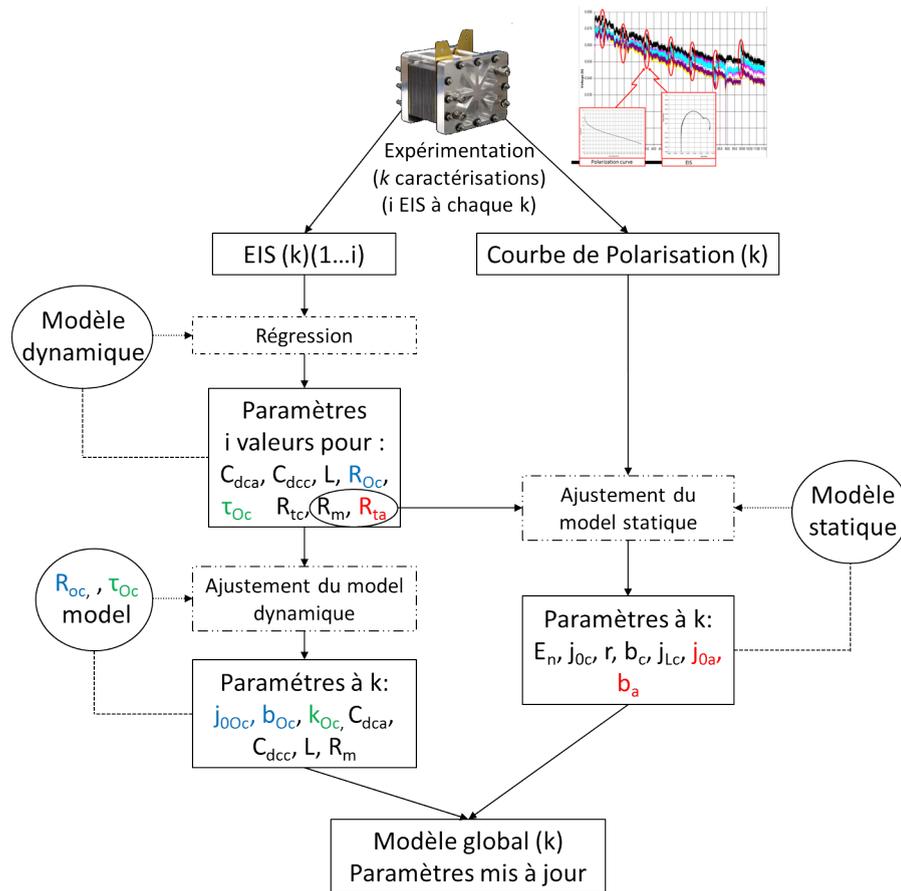


FIGURE 2.1: Mise à jour du modèle, point de vue global

Cette mise à jour nécessite donc des données, elle peut donc être réalisée à chaque caractérisation. Ainsi, lors de la première étape, un processus que nous nommerons régression est réalisé sur les  $i$  lieux de Nyquist obtenus à la  $k^{\text{ième}}$  caractérisation. Cela permet d'obtenir un premier jeu de  $i$  valeurs pour les paramètres suivants :

- le module  $R_{Oc}$  et la constante de temps  $\tau_{Oc}$  de l'impédance de diffusion convection de l'oxydant à la cathode,
- les capacités de double couche à l'anode et à la cathode  $C_{dca}$ ,  $C_{dcc}$ ,
- les résistances de transfert à l'anode et à la cathode  $R_{ta}$ ,  $R_{tc}$ ,

- la résistance de membrane  $R_m$ ,
- l'inductance des connecteurs  $L$ .

Dans une seconde étape, *l'ajustement du modèle dynamique* (Section 2.2.3) est réalisé sur chaque courbe de polarisation. La matrice des paramètres calculée précédemment est utilisée ici. En effet, certains paramètres statiques sont obtenus grâce à des paramètres dynamiques. Cette étape permet de définir les valeurs des paramètres statiques pour chaque caractérisation considérée (Section 2.2.2) :

- le potentiel de Nernst  $E_n$ ,
- la densité de courant d'échange à la cathode et à l'anode  $j_{0c}$   $j_{0a}$ ,
- la résistance interne  $r$ ,
- les paramètres de Tafel à la cathode et à l'anode  $b_c$   $b_a$ ,
- la densité de courant limite à la cathode  $j_{Lc}$ .

Parallèlement, étant donné que  $\tau_{Oc}$  et  $R_{Oc}$  dépendent du courant, les valeurs des paramètres des fonctions dépendantes du courant sont obtenues grâce à une régression cherchant à minimiser les différences entre les valeurs des modèles approximés aux courants auxquels sont réalisés les EIS et les valeurs de  $\tau_{Oc}$  et  $R_{Oc}$ . Ce dernier ajustement permet alors d'obtenir, pour la caractérisation concernée (et non pas pour chaque EIS de cette caractérisation), les paramètres suivant :

- les sous paramètres du module  $R_{Oc}$  et de la constante de temps  $\tau_{Oc}$  de l'impédance de diffusion convection ( $j_{0Oc}$ ,  $b_{Oc}$  et  $k_{Oc}$ ),
- les capacités de double couche à l'anode et à la cathode  $C_{dca}$ ,  $C_{dcc}$ ,
- la résistance de membrane  $R_m$ ,
- l'inductance des connecteurs  $L$ .

Tous les paramètres nécessaires à la mise à jour du modèle dynamique sont ainsi obtenus. Cependant, certains paramètres dynamiques,  $R_{tc}$  et  $R_{ta}$  n'ont pas de valeurs définies à la suite de cette mise à jour. En effet, ces deux paramètres suivent des lois dépendantes du courant (eq. (2.1)) and (2.2)), et sont finalement exprimés grâce à des paramètres statiques.

$$R_{tc} = \frac{1}{b_c} \cdot \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0c} \cdot 1 - \frac{j_{DC}}{j_{Lc}}}\right)^2 + 1}} \cdot \frac{1}{2 \cdot j_{0c} \cdot \left(1 - \frac{j_{DC}}{j_{Lc}}\right)^2} \quad (2.1)$$

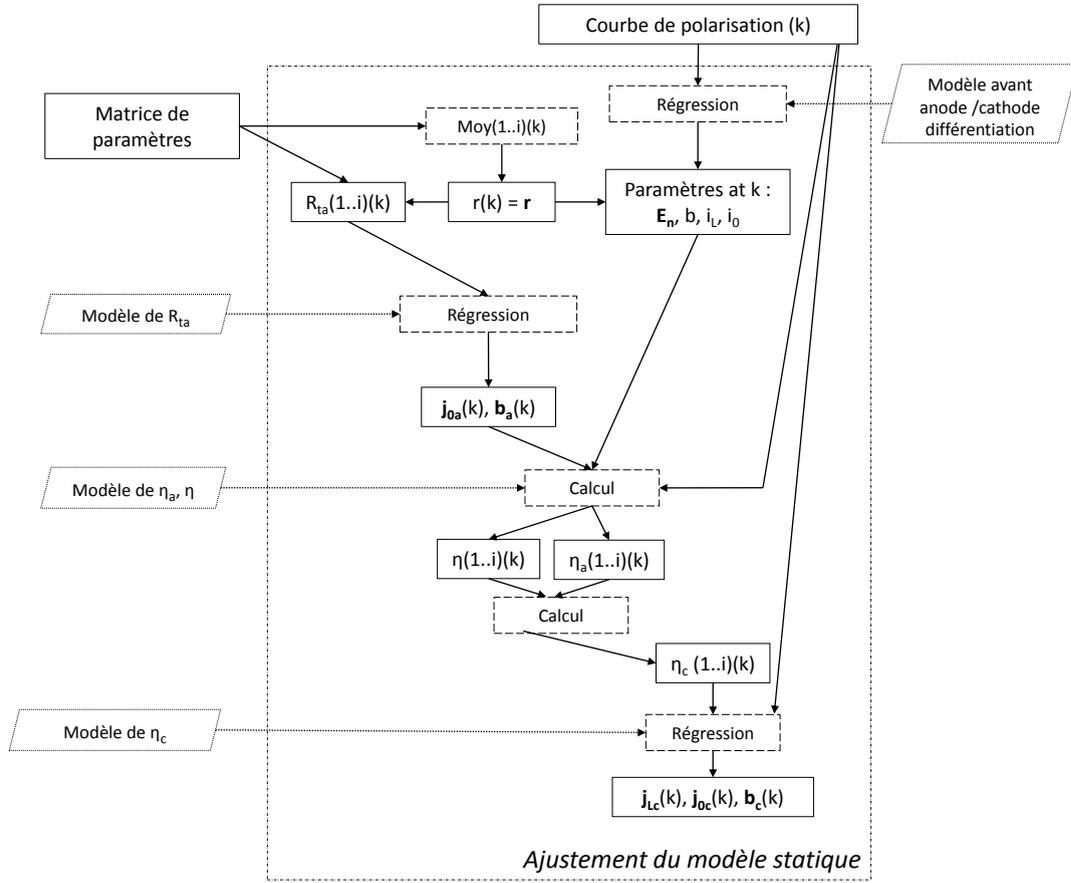
$$R_{ta} = \frac{1}{\left(b_a \cdot 2 \cdot j_{0a} \cdot \sqrt{\left(\frac{J_{DC}}{2 \cdot j_{0a}}\right)^2 + 1}\right)} \quad (2.2)$$

Finalement, les valeurs des paramètres obtenues ainsi permettent de mettre à jour les modèles statique et dynamique et donc la globalité du modèle. Cependant, étant donné que cette mise à jour est basée sur des données propres à une caractérisation, le modèle ajusté n'est valide qu'après cette caractérisation et sur une courte durée.

## 2.2.2/ AJUSTEMENT DU MODÈLE STATIQUE

Dans cette partie est développée la partie nommée *Ajustement du modèle statique* citée précédemment. Une schéma descriptif, plus précis, de ce procédé est visible sur la figure

2.2.

FIGURE 2.2: Ajustement du modèle statique pour la  $k$ ème caractérisation

La matrice de paramètres obtenue lors de la première étape (régression initiale sur les lieux de Nyquist), est utilisée ici. Pour chaque caractérisation  $k$  considérée, une valeur unique de la résistance  $r$  est nécessaire pour le modèle statique. En effet,  $r$  n'est pas supposée dépendre du courant dans ce modèle (eq. (1.13)). Pour cela, la moyenne des valeurs obtenues pour  $R_m$  lors de la première étape et pour cette caractérisation  $k$  est réalisée.

La valeur de  $R_{ta}$  étant dépendante du courant (eq. (2.3)), une régression est réalisée sur ce modèle, grâce aux valeurs obtenues dans la matrice et aux courants auxquels ont été réalisées les EIS. Cela permet d'obtenir les valeurs du paramètre de Tafel  $b_a$  et de la densité de courant d'échange à l'anode  $j_{0a}$ . La loi de variation de  $R_{ta}$  est ainsi définie, de même que certains paramètres du modèle statique.

$$R_{ta} = \frac{1}{\left( b_a \cdot 2 \cdot j_{0a} \cdot \sqrt{\left( \frac{j_{EIS}}{2 \cdot j_{0a}} \right)^2 + 1} \right)} \quad (2.3)$$

Parallèlement, une autre régression est réalisée sur les données de la courbe de polarisation  $k$  considérée et sur un modèle simplifié sans différenciation anode/cathode (eq.

(2.4)).

$$U_{pola} = E_n - r.J_{pola} - \frac{1}{b}.asinh\left(\frac{J_{pola}}{2.i_0.\left(1 - \frac{J_{pola}}{i_L}\right)}\right) \quad (2.4)$$

Toutes les composantes permettant d'obtenir la valeur de la chute de tension complète,  $\eta$ , mais aussi la chute de tension anodique,  $\eta_a$ , sont finalement connues. Grâce aux expressions respectives de ces chutes de tension (eq. (2.5) and (2.6)), il est finalement possible de les calculer pour chaque courant de la courbe de polarisation.

$$\eta = \frac{1}{b}.asinh\left(\frac{J_{pola}}{2.i_0.\left(1 - \frac{J_{pola}}{i_L}\right)}\right) \quad (2.5)$$

$$\eta_a = \frac{1}{b_a}.asinh\left(\frac{J_{pola}}{2.j_{0a}}\right) \quad (2.6)$$

Grâce aux calculs précédents, la chute de tension cathodique peut être déduite car  $\eta = \eta_a + \eta_c$ .

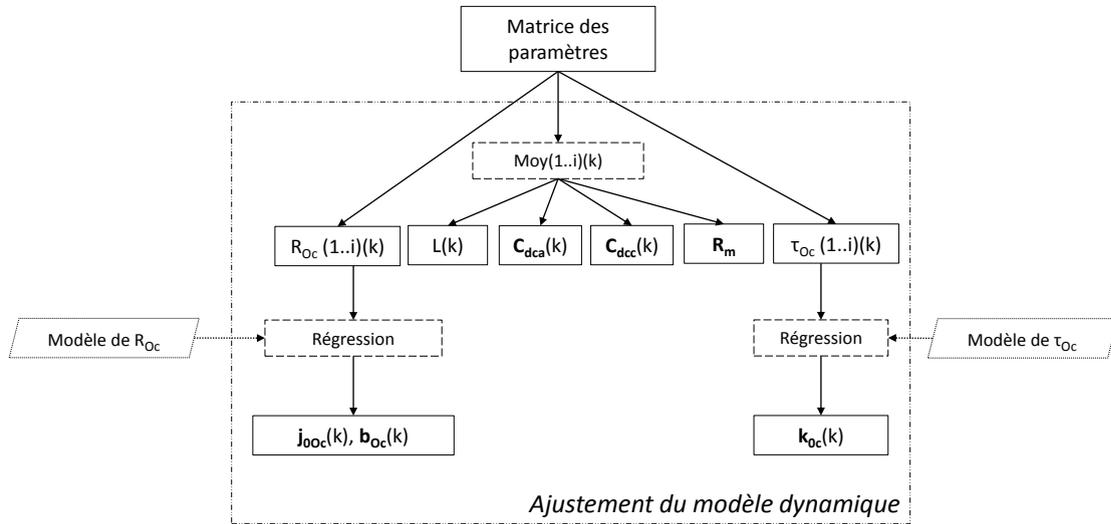
Ensuite, étant donné que l'expression de  $\eta_c$  est aussi connue en fonction des paramètres cathodiques (eq. (2.7)), une regression sur ses valeurs et les courants de la courbe de polarisation permettent d'obtenir le paramètre de Tafel ( $b_c$ ), la densité de courant d'échange ( $j_{0c}$ ) ainsi que la densité de courant limite ( $j_{Lc}$ ) pour la caractérisation considérée.

$$\eta_c = \frac{1}{b_c}.asinh\left(\frac{J_{pola}}{2.j_{0c}.\left(1 - \frac{J_{pola}}{j_{Lc}}\right)}\right) \quad (2.7)$$

Suite à tout ce processus, les paramètres du modèle statique ont tous une valeur à jour. Le modèle est finalement utilisable après la caractérisation qui a permis la mise à jour paramétrique.

### 2.2.3/ AJUSTEMENT DU MODÈLE DYNAMIQUE

La procédure de mise à jour du modèle dynamique est décrite schématiquement figure 2.3. Pour  $L$ ,  $C_{dca}$ ,  $C_{dcc}$ , et  $R_m$  la valeur moyenne est calculée, ceci pour toutes les valeurs obtenues à la caractérisation  $k$  considérée. En effet, une seule valeur est nécessaire. De plus, prendre la moyenne des  $i$  valeurs obtenues grâce aux EIS permet de lisser les erreurs de mesures possibles, lesquelles se répercuteraient sur les paramètres.

FIGURE 2.3: Ajustement du modèle dynamique pour la  $k^{\text{ième}}$  caractérisation

Pour le développement des paramètres concernant la diffusion convection,  $R_{Oc}$  et  $\tau_{Oc}$ , certaines régressions sont réalisées à l'aide de leurs expressions (eq. (2.8) et (2.9)). Grâce à la première étape de l'ajustement du modèle d'un point de vue global, les  $i$  valeurs obtenues pour les paramètres à la caractérisation  $k$  sont déjà connues. Une régression est donc réalisée, leur loi de variation étant dépendante du courant.

$$R_{Oc} = \frac{1}{\left( b_{Oc} \cdot 2 \cdot j_{0Oc} \cdot \sqrt{\left( \frac{J_{EIS}}{2 \cdot j_{0Oc}} \right)^2 + 1} \right)} \quad (2.8)$$

$$\tau_{Oc} = \frac{k_{Oc}}{J_{EIS}} \quad (2.9)$$

## 2.3/ MÉTHODES DE RÉGRESSION

### 2.3.1/ PROBLÈMES D'OPTIMISATION

Les phases que nous avons précédemment appelées régressions traitent finalement des problèmes d'optimisation. En effet, il s'agit de trouver les valeurs optimales des paramètres afin d'obtenir le meilleur ajustement possible entre les données et le modèle.

Toutes ces phases de régression peuvent être effectuées selon différents algorithmes d'optimisation. L'objectif étant de trouver les paramètres permettant au modèle d'être le plus proche des données, ces algorithmes sont des approches capables de résoudre ce type de problèmes.

Il n'est pas strictement possible de définir la valeur des paramètres à l'aide de la littérature ou même à l'aide de calculs. En effet, l'éventail des valeurs se trouvant dans la littérature permet d'obtenir un intervalle de définitions supposé mais pas d'obtenir une valeur fixe. De plus, les modèles proposés ne permettent pas d'obtenir les valeurs à l'aide de mesures faites directement sur le stack.

Ainsi dans cette section sont proposées trois méthodes. Le chapitre suivant se propose de les comparer.

On peut citer deux types d'algorithmes d'optimisations, les locaux et les globaux. Un algorithme d'optimisation local est relativement rapide et cherche une solution dans un espace de solutions candidates défini en appliquant des changements locaux [106]. Les algorithmes d'optimisation globaux, ne garantissent pas de trouver l'optimum global avec un nombre fini d'itérations, mais couvrent un champ de solution plus grand.

Il est important de prendre en considération la complexité des régressions à effectuer dans notre application, de par le nombre de paramètres mais aussi de par la complexité des modèles. Ainsi il est possible d'atteindre des minima locaux lors des différentes régressions. En effet, toutes les méthodes d'optimisation proposées ne garantissent pas de trouver l'optimum global. Cet aspect est contraignant puisque chaque paramètre est supposé représenter un phénomène physique bien défini, et cela amène donc une possibilité d'avoir une solution numérique acceptable mais ayant perdu une partie du sens physique.

### 2.3.2/ MÉTHODES PROPOSÉES

Une première méthode locale, a été appliquée dans ces travaux implémentés sous Matlab. Elle est basé sur la méthode proposée par les scientifiques Levenberg et Marquardt [80, 84, 91]. Cet algorithme est une combinaison de deux méthodes de minimisation : la méthode de la descente du gradient et la méthode de Gauss-Newton [38]. Selon la documentation MathWorks [84], la fonction *lsqcurvefit* proposée par Matlab avec l'algorithme Levenberg-Marquardt est particulièrement adaptée lorsque l'on cherche à réaliser la régression d'une fonction grâce à des données de manière à réaliser une estimation non linéaire des paramètres. Cela correspond à nos attentes. Cet algorithme cherche à minimiser le résidu. Lorsque celui-ci est assez faible, une direction de recherche est évaluée de manière à assurer qu'à chaque itération la fonction à minimiser diminue. Il est ainsi facile d'imaginer que lorsqu'on s'engage dans une pente nous menant vers un minimum local il est peu probable de réussir à s'en affranchir pour trouver l'extremum global. Pour cette méthode, nous fixons la valeur initiale du facteur d'amortissement à 0.0045, et le nombre d'itération maximal à 2000 au vu de la convergence observée lors des simulation.

Ainsi, même si les algorithmes d'optimisation globaux ont généralement un temps de calcul plus important, ils peuvent tout de même présenter un intérêt par l'espace de solutions possibles parcouru. Les algorithmes d'optimisations globaux sont séparés en deux classes basiques [87, 127], les algorithmes déterministes et les algorithmes probabilistes (Figure 2.4). Appliquer un algorithme déterministe devient plus ardu lorsque la relation existant entre une possible solution, et son évaluation de correspondance augmente en complexité. C'est à dire lorsque la dimension de l'espace de recherche pour les solutions augmente. Les algorithmes probabilistes quant à eux sont aussi nommés algorithmes randomisés. En effet au moins une instruction de l'algorithme repose sur la base de nombres aléatoires.

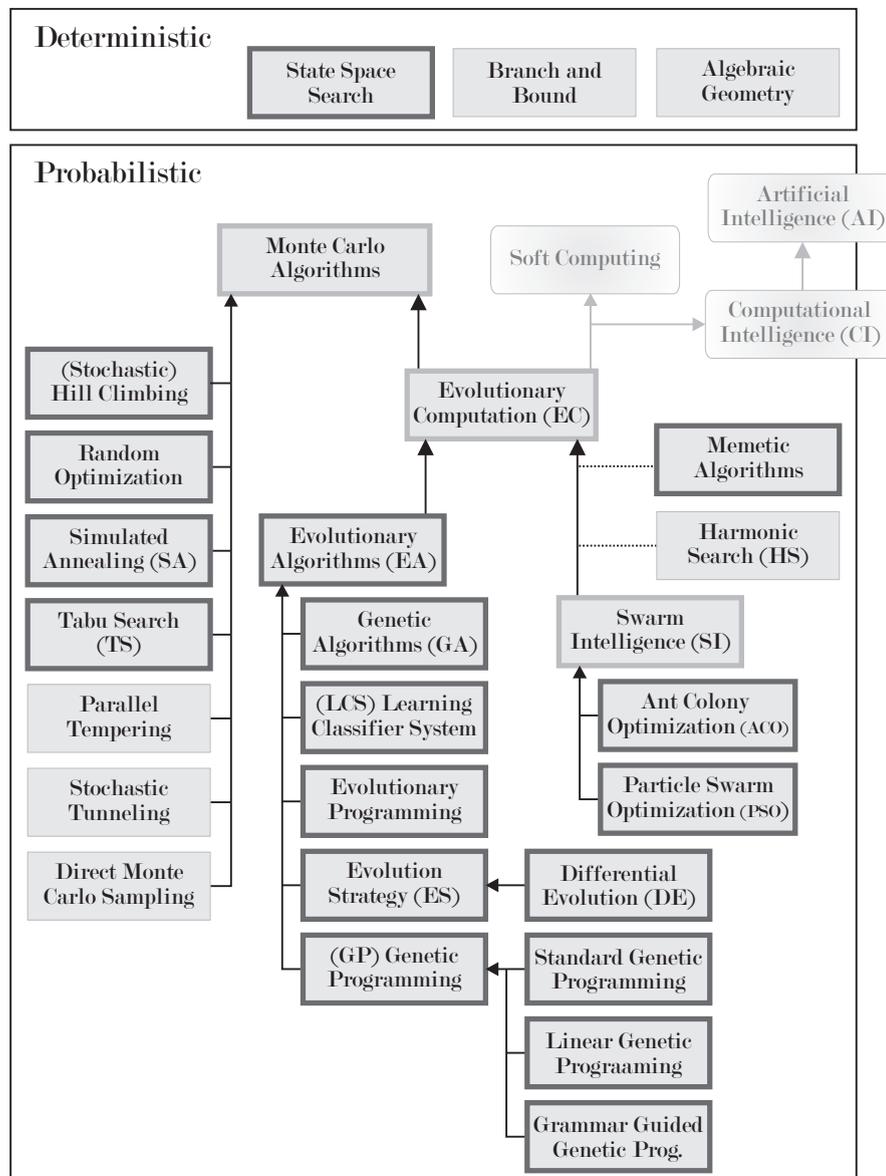


FIGURE 2.4: Classification des algorithmes d'optimisation globale tirée de [127]

L'algorithme génétique (*AG*) proposé par Matlab se base sur les travaux de Conn et al. [26, 27, 83], comme l'indique l'organigramme proposé par Weise [127], cette approche est probabiliste. Ainsi à partir d'une génération initiale aléatoire, l'algorithme crée une séquence de nouvelles populations. Dans celles-ci, chaque individu sera évalué, de manière à sélectionner les parents et l'élite de cette génération. Les enfants sont produits à l'aide des parents par mutation ou crossover pour ainsi remplacer l'ancienne population par la nouvelle. Cette algorithme a été paramétré comme suit :

- la taille de la population est de 150 ;
- la quantité de générations est de 1000 ;
- le nombre d'individus survivant à la génération suivante est de 50 ;
- la proportion de la génération suivante, sauf les enfants élite, qui est produite par

- crossover est de 0.6 ;
- chaque caractère d’un individu sélectionné pour la mutation a une probabilité de 0.01 de subir une mutation ;
- la création d’un enfant se fait en trois vecteurs sur les caractères.

Le dernier algorithme sélectionné est nommé *GlobalSearch* [82, 123]. Cette approche revient à utiliser un algorithme local sur des multiples points de départ de manière à proposer un minimum global. À partir du point initial, une régression est réalisée et un algorithme permet de générer un jeu de potentiels points de départ. Le meilleur parmi ces derniers permet la réalisation d’une nouvelle régression.

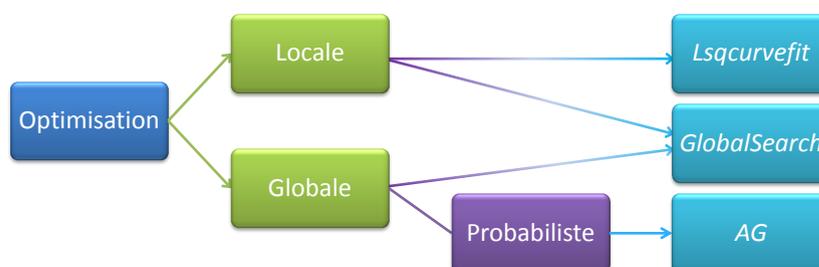


FIGURE 2.5: Méthodes d’optimisations traitées

### 2.3.3/ APPLICATION

Trois méthodes d’optimisations ont été appliquées pour les régressions (Figure 2.5). Elles seront comparées dans le chapitre 3. Dans la suite de ce chapitre, les paramètres seront identifiés à l’aide de la première méthode de régression présentée, dans le but de valider sa capacité à reproduire le comportement d’un stack. Cette première méthode est suffisante pour une première étude sur le modèle. Dans un second temps, des analyses de sensibilité paramétriques sont réalisées de manière à caractériser correctement le modèle de comportement avant d’envisager de l’étendre à un modèle de vieillissement.

Pour cela, des fonctions objectives sont à minimiser pour chaque régression. Ces fonctions sont définies comme étant la norme Frobenius (norme euclidienne de la matrice considérée) de la différence entre la simulation et les données. Il est ainsi possible de n’avoir qu’un scalaire en sortie, matrices et vecteurs n’étant pas gérés par les algorithmes d’optimisations.

Afin de minimiser les dispersions d’erreurs sur les régressions des caractérisations, le résultat de la régression au temps précédant sert de point de départ pour la régression à faire. Autrement dit, les résultats obtenus servent de points de départ aux régressions suivantes.

## 2.4/ VALIDATION DU MODÈLE

Dans cette section, une campagne expérimentale est utilisée afin de réaliser la procédure d’identification paramétrique. Cette étape permet ainsi de confirmer que les formes des modèles statique et dynamique sont capables de simuler les mesures que nous souhaitons reproduire. Ensuite il est nécessaire de valider le fait que la procédure d’identification

paramétrique permet au modèle global d'estimer convenablement la tension sous une même sollicitation que l'essai.

### 2.4.1/ DESCRIPTION DE L'EXPÉRIMENTATION

Dans cette sous-section nous allons présenter l'essai de longue durée auquel le modèle a été appliqué.

L'essai s'est déroulé sur une durée de 1016 heures à un courant de 70 A perturbé (Figure 2.6) sur un stack de 5 cellules avec une surface active de  $100\text{cm}^2$ . Les harmoniques de courant sont générées par l'ajout à ce courant nominal d'une composante dynamique de forme triangulaire. L'amplitude crête à crête de cette sollicitation est de  $\pm 10\%$  du courant nominal, soit 14 A, à une fréquence de 5 kHz. Lors de cet essai, une caractérisation complète de la pile a été réalisée régulièrement (0h, 35h, 182h, 343h, 515h, 666h, 830h, 1016h). Un résumé est visible tableau 2.1.



FIGURE 2.6: Illustration des sollicitations des essais de longue durée avec ondulation de courant

Essai sous oscillations de courant	
Caractérisations	@ t = 0 ; 35 ; 182 ; 343 ; 515 ; 666 ; 830 ; 1016 h
Rampe de la courbe de polarisation	de 0 $A/cm^2$ à 1 $A/cm^2$ pendant 1000 s
EIS effectué après la polarisation	J = 0,70 ; 0,45 ; 0,20 $A/cm^2$

TABLEAU 2.1: Résumé des caractérisations pour l'essai

Les mesures faites lors des expérimentations les plus importantes pour ce modèle sont listées ci-après :

- A intervalle de temps fixe, une caractérisation est effectuée. Pour ce faire l'essai de longue durée est stoppé le temps de sa réalisation. Une première partie de cette caractérisation est la réalisation de la courbe de polarisation, qui représente la correspondance tension-courant. Une seconde partie est la réalisation du lieu de Nyquist obtenu grâce à la spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS). L'impédance de la pile est un nombre complexe. Le lieu de Nyquist fait apparaître l'opposé de la partie imaginaire, en fonction de la partie réelle. Trois EIS sont réalisés lors de chaque phase de caractérisation.
- L'évolution des tensions de cellules et de la tension totale du stack en fonction du temps est présentée en figure 2.7. Ces mesures sont prises lors de l'essai de longue durée durant lequel la pile est soumise à un courant constant.

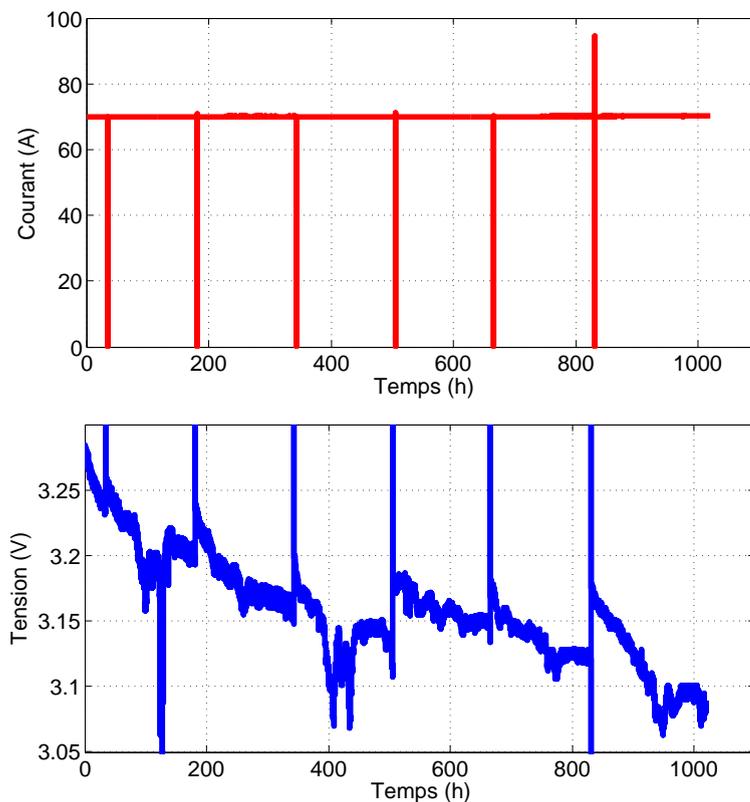


FIGURE 2.7: Évolution temporelle des tensions de cellule

#### 2.4.2/ ÉVALUATION DES PERFORMANCES DES SIMULATIONS

Afin d'évaluer et de comparer les simulations entre elles, des mesures d'erreur sont utilisées. Celles-ci sont définies comme suit :

- La RMSE (Root-Mean-Square Error ou Racine carrée de l'erreur quadratique moyenne) est une valeur représentant la déviation standard entre deux valeurs, obtenue avec la somme du carré des écarts divisée par le nombre de points, dont on prend la racine carrée.

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{\text{Nombre de points}} \cdot \sum_{\text{Points}} (\text{Mesure} - \text{Estimation})^2} \quad (2.10)$$

- La MAPE (Mean Absolute Percentage Error ou Erreur absolue en pourcentage) est une valeur d'erreurs mesurant la précision d'une estimation. À chaque point, la différence entre la valeur réelle et la valeur estimée du résultat est calculée puis divisée par la valeur réelle. La moyenne des valeurs absolues est ensuite faite sur tous les points.

$$MAPE = \text{Moyenne}_{\text{Points}} \left( \left| 100 \cdot \frac{(\text{Mesure} - \text{Estimation})}{\text{Mesure}} \right| \right) \quad (2.11)$$

- Le coefficient de détermination ( $R^2$ ) est un indicateur permettant de juger la qualité d'une régression. D'une valeur comprise entre zéro et un, il calibre l'adéquation

existant entre le modèle et les données.

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{Points} (Mesure - Estimation)^2}{\sum_{Points} (Mesure - Moyenne_{Points}(Mesure))^2} \quad (2.12)$$

### 2.4.3/ IDENTIFICATION DU MODÈLE STATIQUE

L'objectif ici, est d'évaluer la justesse du modèle sur la partie statique. La comparaison entre les courbes de polarisation simulées et les courbe de polarisation mesurées n'est possible qu'après la réalisation du processus de mise à jour des paramètres à chaque caractérisation (section 2.2.2).

La moyenne des erreurs obtenues lors de ces comparaisons est reportée tableau 2.2. Ce dernier nous montre que les résultats obtenus lors des régressions sont très bons. En effet, le coefficient de détermination  $R^2$  est très proche de 1. Cela est confirmé par l'observation des figures de fitting au temps 0 (Figure 2.8) et au temps 1016h (Figure 2.9) par exemple. Ces figures montrent une très grande adéquation entre la mesure et la simulation. La partie statique du modèle est donc bel et bien performante pour la reproduction d'une courbe de polarisation.

Erreur moyenne	
RMSE	$2.25 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.99

TABLEAU 2.2: Moyenne des erreurs obtenues sur chacune des courbes de polarisation

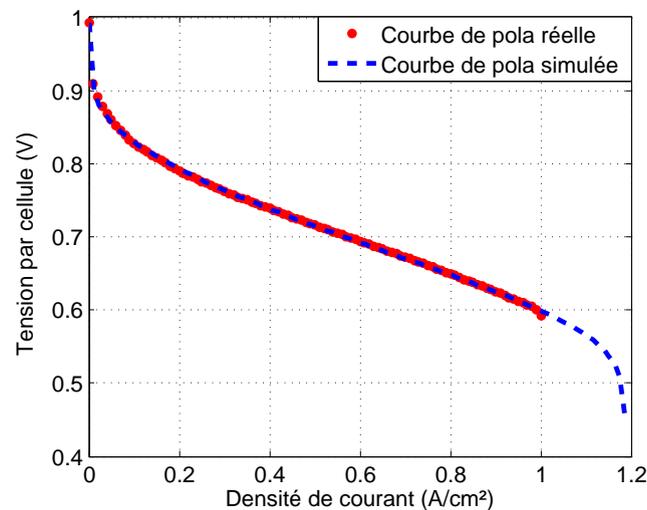


FIGURE 2.8: Ajustement de la courbe de polarisation au temps 0

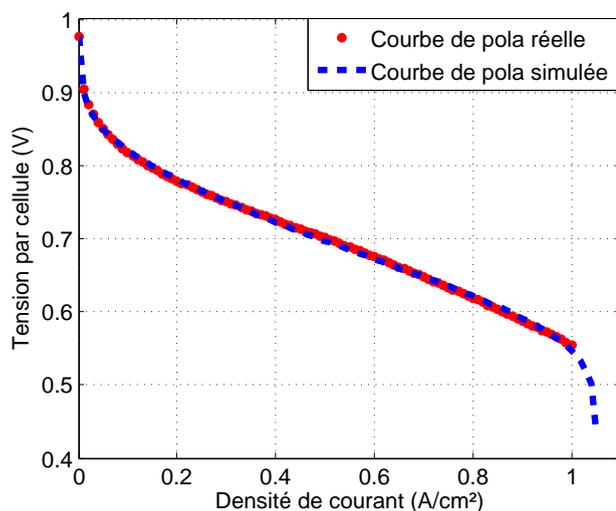


FIGURE 2.9: Ajustement de la courbe de polarisation réalisée à 1016h

Dans la figure 2.10 sont représentées les erreurs RMSE sur l'ajustement de courbe de polarisation aux différents temps et donc aux différentes caractérisations. Cette figure permet de démontrer que le modèle est tout aussi adapté à une pile jeune qu'à une pile ayant déjà subi un vieillissement. En effet, le fitting reste tout aussi bon sur les premières caractérisations que sur la dernière. Le modèle n'est donc pas uniquement valable sur un état particulier de la pile.

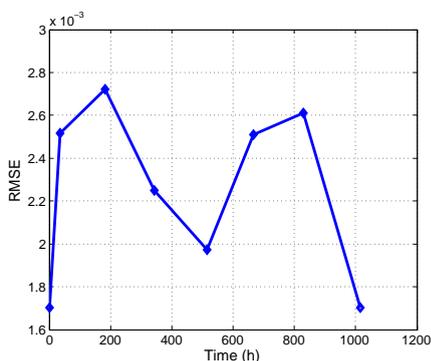


FIGURE 2.10: Evolution de l'erreur RMSE des courbes de polarisation en fonction du temps

De plus, les fonctions définies pour les paramètres  $R_{ta}$  et  $R_{tc}$  sont cohérentes avec les valeurs obtenues lors de la régressions des EIS (figure 2.11). Ce point est important puisque, rappelons le, les valeurs des paramètres anodique  $b_a$  et  $j_{0a}$  sont définies grâce aux valeurs de  $R_{ta}$  selon l'équation (2.3), mais coté cathodique, la valeur de  $R_{tc}$  n'est pas utilisée. La figure 2.11 nous permet de confirmer un bon ajustement des paramètres anodiques. Elle nous permet aussi de confirmer que l'identification des paramètres dynamique sans utiliser la valeur de  $R_{tc}$  est cohérente. En effet, les valeurs de  $R_{tc}$  obtenues lors de la première régression (Section 2.1) et les valeurs obtenues grâce à l'équation (2.1) avec les paramètres initialisés lors de l'ajustement du modèle statique (Section 2.2) sont proches.

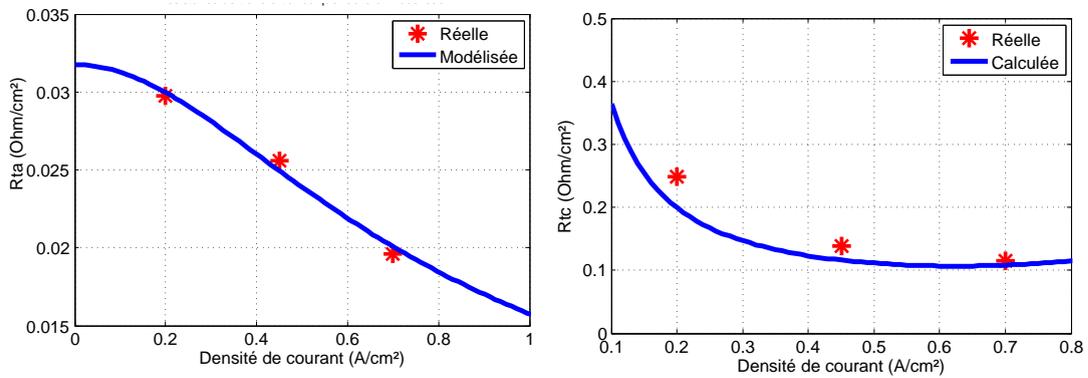


FIGURE 2.11: Comparaison entre les fonctions définies pour  $R_{ta}$  et  $R_{tc}$  et les valeurs obtenues au temps zéro

Ainsi, le modèle est en mesure de reproduire une courbe de polarisation de manière satisfaisante. De plus, il est démontré que ce modèle correspond à différents états de vieillissement d'un stack.

#### 2.4.4/ IDENTIFICATION DU MODÈLE DYNAMIQUE

Il est maintenant nécessaire de regarder plus en détail la partie dynamique du modèle et de comparer la réponse du modèle et les mesures relevées sous la même sollicitation.

Les erreurs présentées dans le tableau 2.3 sont les moyennes faites sur toutes les erreurs obtenues, pour tous les EIS, à chaque caractérisation. Il y a cependant deux erreurs distinctes, sur la partie imaginaire et sur la partie réelle. En effet, la réponse du système et du modèle sont exprimées en impédance dont les valeurs sont des nombres complexes, la sollicitation étant la fréquence. Ainsi les erreurs sont calculées indépendamment, sur les axes des réels et des imaginaires. Elles présentent des coefficients de détermination très proches de 1 ce qui démontre un ajustement adéquat de bonne qualité. Cela est confirmé visuellement sur chaque figure représentant la simulation comparée à l'expérimentation, comme sur la figure 2.12 qui présente les résultats de l'EIS à la fin de l'essai longue durée avec un courant de 20A.

	Partie imaginaire	Partie réelle
RMSE	$2.72 \cdot 10^{-3}$	$2.79 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.989	0.999

TABLEAU 2.3: Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les lieux de Nyquist

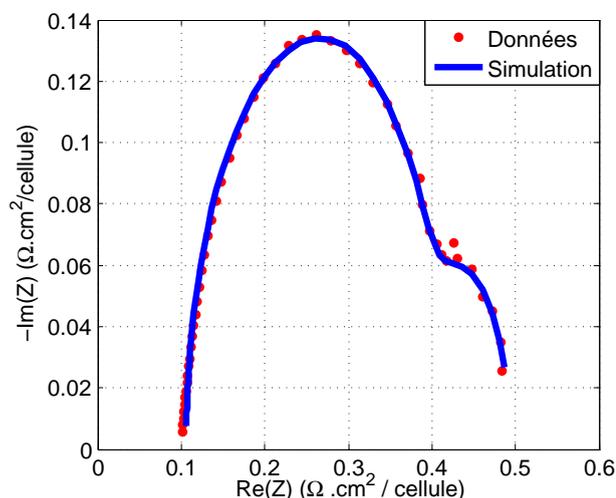


FIGURE 2.12: Simulation et mesure d'un EIS à un courant de 20A après 1016h d'essais

Les EIS sont aussi réalisés à trois courants différents à chaque caractérisation. Sur la figure 2.13 sont visibles les EIS aux trois courants différents. On peut y constater que le modèle reste tout autant capable de reproduire avec fiabilité le comportement avec des courants différents.

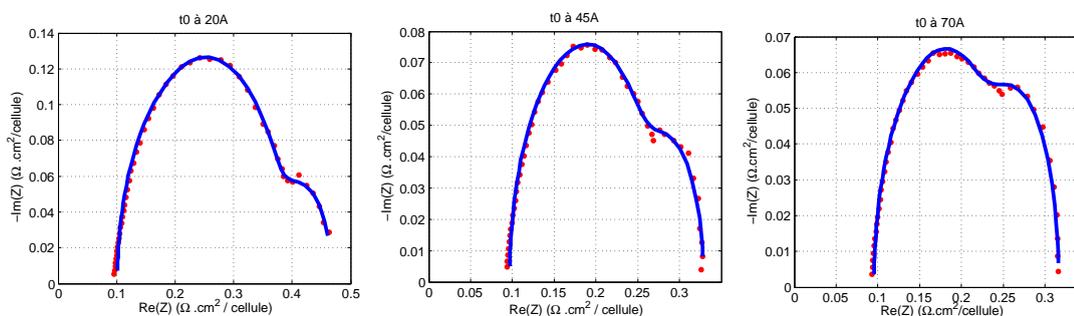


FIGURE 2.13: Comparaison entre les données et la simulation pour les EIS à  $t_0$  et aux courants de 20A, 45A et 70A

Le modèle dynamique est donc tout à fait en mesure de reproduire les plans de Nyquist obtenus lors de mesures. De plus, comme nous l'avons conclu précédemment, le modèle dynamique est tout autant capable de s'adapter parfaitement au comportement d'une pile durant tout le long de l'expérimentation.

#### 2.4.5/ CONCORDANCE ENTRE LES MESURES

Lors de la validation du modèle complet de manière instantanée détaillée dans la section suivante (2.4.6), un décalage est apparu entre la simulation de la tension et la mesure. Afin d'identifier le problème, nous avons comparé les résultats de la mesure de tension avec les résultats obtenus grâce à la courbe de polarisation.

En effet, lors de la réalisation des courbes de polarisation, de nombreux courants sont

parcourus, parmi eux, le courant nominal de l'essai expérimental. La réponse du stack à ce courant spécifique lors de la réalisation de la courbe de polarisation devrait être la même que celle mesurée à la reprise de l'essai expérimental.

Ainsi la figure 2.14 présente cette comparaison. En traits horizontaux sont dessinées les tensions obtenues grâce aux courbes de polarisations. Cette figure permet de constater que la tension, lors de la reprise de l'essai de longue durée n'est pas la même que celle obtenue par la courbe de polarisation. C'est le cas après chaque caractérisation réalisée.

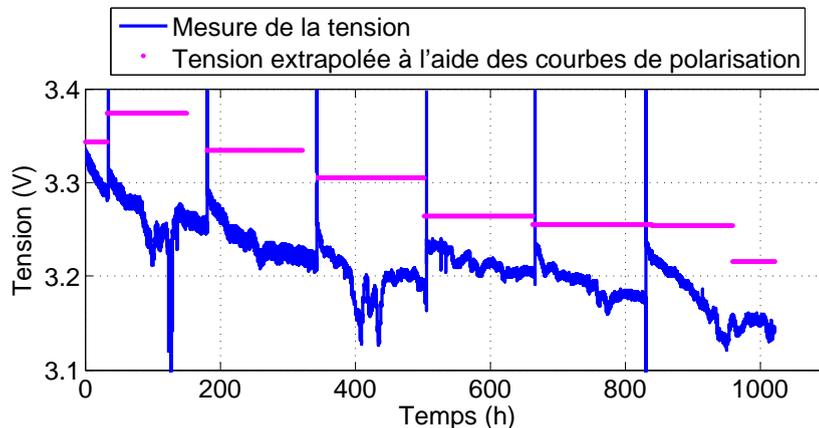


FIGURE 2.14: Comparaison entre la mesure continue de la tension et le report de la tension obtenue grâce aux courbes de polarisation

Cet écart compris entre 0.54% et 2.27% de la tension mesurée, pose problème lors de l'utilisation du modèle. En effet, l'identification du modèle statique se base sur les données obtenues d'après les courbes de polarisation. Si les données utilisées par cette identification donnent des résultats différant des mesures obtenues lors de la sollicitation en courant ondulé lors du protocole de vieillissement de la pile ; le modèle ne peut pas estimer correctement la tension du stack.

L'étude plus précise des autres paramètres entrant en jeu lors de la prise des mesures permet d'approcher l'explication de ces différences. En effet, la température et l'humidité relative au sein de la pile présentent des différences lors des prises de mesure pour les caractérisations et lors de l'essai expérimental. Ces deux paramètres sont connus pour être influents sur le comportement du stack.

Pour compenser cette différence, une constante de décalage,  $d$  est ajoutée dans le modèle global lors de la de-normalisation (eq. (2.13)). Celle-ci est considérée comme équivalente à la différence existant entre la simulation et la mesure de tension au temps zéro (eq. (2.14)).

$$\widehat{U}_{\text{modèle}} = U_{\text{modèle}} + d \quad (2.13)$$

$$d = U_{\text{mesure}_{T_{\text{emps}0}}} - U_{\text{modèle}_{T_{\text{emps}0}}} \quad (2.14)$$

$U_{\text{modèle}}$  est la tension estimée par le modèle et construite à l'aide des équations (1.13) à (1.33).

## 2.4.6/ VALIDATION DU MODÈLE COMPLET DE MANIÈRE INSTANTANÉE

Les modèles statique et dynamique sont capables de reproduire chacun les comportements attendus. Ils sont donc bien adaptés au stack utilisé.

A chaque caractérisation, ce sont les régressions qui sont évaluées. Elles sont certes très satisfaisantes, et trouver les paramètres permettant aux modèles de correspondre aux données valide leurs formes. Cependant, il est maintenant nécessaire de confirmer que le modèle global est en mesure de donner une réponse à un courant similaire que celui du véritable stack grâce aux régressions sur les modèles statique et dynamique. L'idée est de valider le modèle complet de manière instantanée. Dans ce cadre "instantané" signifie sans faire intervenir les phénomènes de vieillissement que subit le stack lors de l'essai expérimental. Ainsi comparer la simulation et la mesure sur une courte période de temps, de l'ordre de la minute par exemple, est considéré comme une évaluation de performance instantanée.

Pour ce faire nous avons soumis au modèle une sollicitation identique à celle qui avait été appliquée lors de l'expérimentation. La figure 2.15 se situe aux alentours de la cinquième caractérisation et représente environ les 100s de sollicitation variable. Les deux courbes sont pratiquement confondues. La reproduction par le modèle est donc très bonne. En effet, la valeur moyenne de l'erreur MAPE sur cette portion est de 1.65% : un résultat très satisfaisant. Néanmoins, le modèle produit un pic, alors que la mesure non. Cela est dû au filtre passe-bas qui est le bloc de décomposition du courant. En effet, la décomposition n'est pas parfaite et induit des contributions des modèles statique et dynamique qui produisent ce pic. Cette erreur n'est pas très importante et se produit sur une très courte période. Elle n'est donc pas considérée comme une priorité. En effet, l'objectif final étant d'effectuer des prédictions sur des milliers d'heures, une erreur d'à peine une seconde n'est pas considérée comme étant un point gênant dans ce cadre.

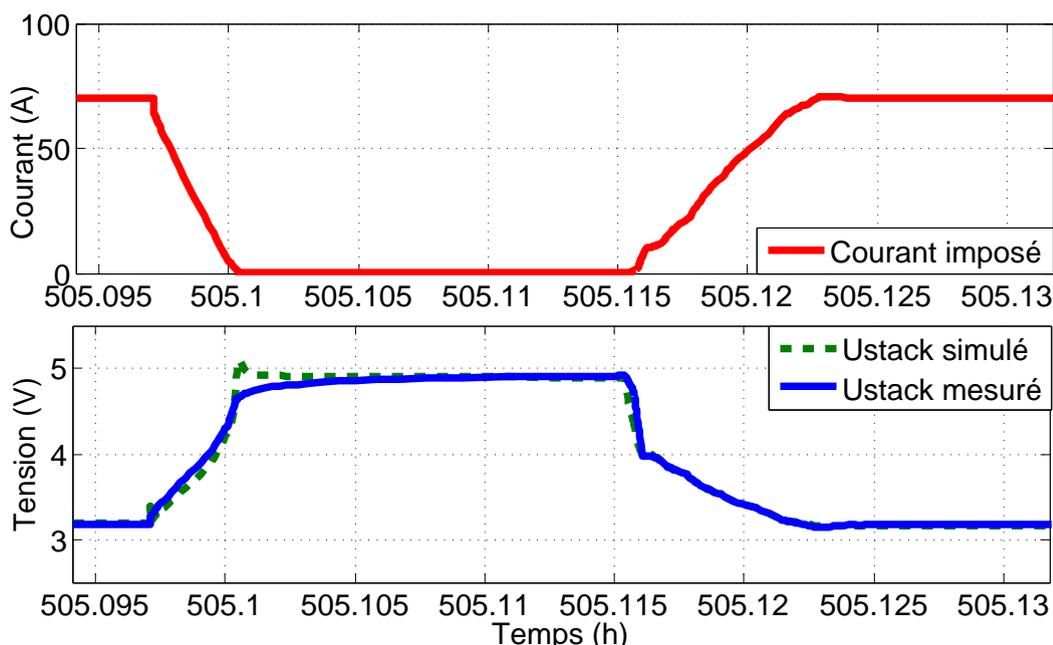


FIGURE 2.15: Comparaison de la réponse du stack et du modèle à la même sollicitation

Ainsi à partir de caractérisations et grâce au modèle global il est tout à fait possible de reproduire de manière fiable la tension de la pile, et donc de prévoir son comportement. Cependant, le comportement de la pile évolue avec son vieillissement. Bien qu'avec une caractérisation nous sommes capables de mettre à jour le modèle de manière satisfaisante, cela ne convient pas à long terme puisque le modèle n'est valable que sur une faible portion de temps. Comme cela peut être observé sur la figure 2.16) une divergence se produit avec le temps. Elle est due au vieillissement de la pile face à notre modèle qui n'évolue pas avec le temps.

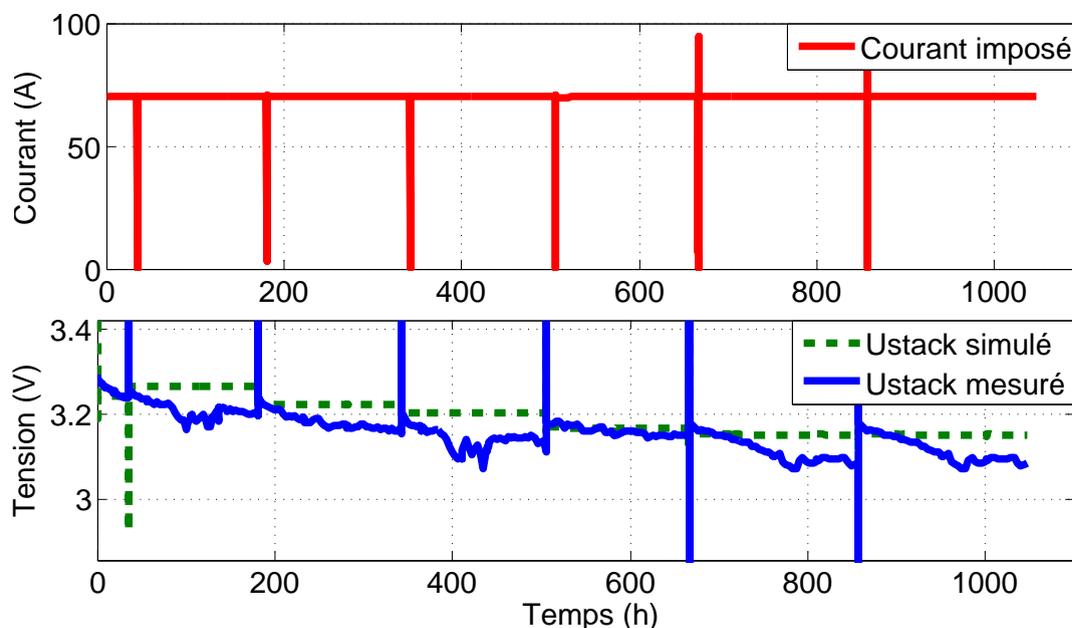


FIGURE 2.16: SSVieil

Ainsi le modèle proposé est parfaitement totalement capable de reproduire un comportement de manière instantané. Nous proposons d'étudier cela plus en profondeur ce modèle de comportement instantané. Pour cela, une analyse de sensibilité paramétrique est réalisée.

## 2.5/ ANALYSE DE VARIANCE

Comme nous l'avons précisé dans la section 2.3, on utilise un grand nombre de paramètres. Il peut être intéressant dans un premier temps d'analyser la sensibilité du modèle afin d'identifier les paramètres critiques.

Le nombre de paramètres étant élevé, nos problèmes d'optimisation risquent de présenter un grand nombre de minima locaux. Contraindre ces problèmes paraît donc nécessaire. Pour cela, différentes options peuvent être envisagées. Elles sont traitées à la fin de ce chapitre mais aussi au cours du suivant. Tout d'abord, le nombre de paramètres peut être réduit. Le modèle ayant été choisi pour son compromis judicieux entre précision et simplicité, il n'est pas envisageable de réduire le nombre de paramètres de chaque modèle. Toutefois la possibilité de supprimer le modèle dynamique sera évoquée au chapitre

suisant. Ensuite, le nombre de paramètres regressés à chaque étape peut être diminué en fixant des valeurs ou contraint en imposant une monotonie. C'est sur cet aspect que nous nous concentrons pour le moment. En étudiant tout d'abord la sensibilité du modèle et de l'erreur induite grâce à cette ANOVA (*ANalysis Of VAriance* soit analyse de variance). Cette dernière n'est cependant pas suffisante, et est complétée par une autre analyse figurant au chapitre suivant.

Ces deux analyses combinées permettent de conclure quant à certains paramètres et ainsi de contraindre les problèmes d'optimisation.

L'analyse de variance a été choisie parce qu'elle nous offre la possibilité d'étudier, sur une sortie, l'influence de plusieurs paramètres [90].

### 2.5.1/ LES BASES DU CALCUL ANOVA (ANALYSE DE VARIANCE)

Dans cette sous-section, les bases de l'analyse de sensibilité sont présentées de manière générale afin de pouvoir être appliquée à différentes études [88].

#### 2.5.1.1/ DÉFINITIONS INITIALES

Dans cette première partie sont développées les premières notations ainsi que les valeurs basiques nécessaires aux calculs des influences mono-paramétriques et inter-paramétriques.

Considérons  $Y$  comme le résultat d'une simulation devant être étudiée,  $P$  le nombre de paramètres dont la valeur peut varier et  $A$  le nombre de niveaux pour chaque paramètre  $p$  (i.e. le nombre de valeurs prises par chaque paramètre  $p$ ).

Le plan expérimental est réalisé de façon à ce que toutes les combinaisons de niveaux/paramètres possibles soient simulées. Le nombre total de simulations peut donc être exprimé par l'équation suivante :

$$N = A^P \quad (2.15)$$

La  $n^{\text{ième}}$  simulation donne un résultat numérique  $Y_n$ . Cela permet de définir le résultat moyen de toutes les simulations du plan d'expérience  $\bar{Y}$  :

$$\bar{Y} = \frac{1}{N} \cdot \sum_{n=1}^N Y_n \quad (2.16)$$

Ensuite, la somme des carrés totaux ( $SCT$ ), qui est la base des calculs suivants est définie grâce à l'équation suivante :

$$SCT = \sum_{n=1}^N (Y_n - \bar{Y})^2 \quad (2.17)$$

#### 2.5.1.2/ INFLUENCE D'UN PARAMÈTRE

L'analyse ici réalisée est l'influence de chaque paramètre  $p$ , faisant parti des  $P$  paramètres, qui varient chacun sur  $A$  niveaux dans le plan d'expérience. Chaque influence

mono-paramétrique est donc calculée pour chaque  $p$  distinct.

Notons ici  $Y_{pa}$  le résultat de la simulation correspondant au paramètre  $p$  au niveau  $a$ .  $\bar{Y}_{pa}$  est défini comme la moyenne des simulations pour ce paramètre à laquelle est soustraite la moyenne  $\bar{Y}$  :

$$\bar{Y}_{pa} = \left( \frac{A}{N} \sum_a Y_{pa} \right) - \bar{Y} \quad (2.18)$$

La somme du carré des écarts  $SCE$  est ensuite calculée pour le paramètre  $p$  considéré dans le plan d'expérience :

$$SCE_p = \frac{N}{A} \sum_{a=1}^A \bar{Y}_{pa}^2 \quad (2.19)$$

L'influence d'un paramètre est finalement défini avec l'équation suivante :

$$Inf_p = \frac{SCE_p}{SCT} \quad (2.20)$$

En conclusion, l'influence d'un paramètres  $p$  peut être définie grâce à l'équation suivante :

$$Inf_p = \frac{\frac{N}{A} \sum_{a=1}^A \left( \left( \frac{A}{N} \sum_a Y_{pa} \right) - \bar{Y} \right)^2}{\sum_{n=1}^N (Y_n - \bar{Y})^2} \quad (2.21)$$

### 2.5.1.3/ INFLUENCE INTER-PARAMÉTRIQUE DE DEGRÉ DEUX

Dans la partie suivante, l'influence inter-paramétrique entre deux paramètres est considérée. Elle décrit l'influence que deux paramètres peuvent avoir de manière combinée.

Le résultat de la simulation du paramètre  $p_1$  au niveau  $a_1$  et du paramètres  $p_2$  au niveau  $a_2$  sera noté dans la suite  $Y_{p_1 a_1, p_2 a_2}$ .

Le rayon spectral noté  $RS$  peut être défini tel que :

$$RS_{p_1 a_1, p_2 a_2} = \left( \left( \frac{A^2}{N} \sum_{a_1, a_2} Y_{p_1 a_1, p_2 a_2} \right) - \bar{Y} - Y_{p_1 a_1}^- - Y_{p_2 a_2}^- \right)^2 \quad (2.22)$$

La somme du carré des écarts est donc calculée pour le couple de paramètre  $p_1, p_2$  :

$$SCE_{p_1, p_2} = \frac{N}{A^2} \sum_{\substack{a_2=0 \\ a_1=0}}^A R2_{p_1 a_1, p_2 a_2} \quad (2.23)$$

L'influence inter-paramétrique est finalement définie grâce à l'équation suivante :

$$Inf_{p_1, p_2} = \frac{SCE_{p_1, p_2}}{SCT} \quad (2.24)$$

## 2.5.2/ PREMIÈRE VERSION ANOVA

Deux versions de l'ANOVA ont été réalisées de manière à analyser deux aspects différents, une comparaison et une synthèse paramètre par paramètre est réalisée en section 2.5.4. Cette première version a permis de déterminer dans quelles mesures les paramètres influencent l'erreur entre les données et la simulation. Cette étude a été réalisée sur les parties statique, grâce aux courbes de polarisation, et dynamique, grâce aux EIS, ainsi que sur le modèle global, grâce à l'évolution temporelle.

### 2.5.2.1/ MODÈLE STATIQUE

Dans un premier temps, cette analyse de sensibilité a été réalisée sur la partie statique du modèle. Pour cela, le  $Y$  pris pour les calculs ANOVA est l'erreur (MAPE) existant entre la courbe de simulation simulée et l'expérimentale. Cette étude a également été réalisée sur chacune des caractérisations disponibles. Cela permet de voir si lorsqu'une pile est plus âgée, l'influence des paramètres sur la divergence simulation/données reste similaire ou non.

Pour rappel, le modèle statique est défini grâce aux paramètres suivants :

- $r$  la résistance interne ;
- $E_n$  le potentiel de Nernst ;
- $b_a, b_c$  les paramètres de Tafel ;
- $j_{0a}, j_{0c}$  la densité de courant d'échange ;
- $j_{Lc}$  la densité de courant limite à la cathode.

Comme cela a été développé dans la partie 2.5.1.1, un plan expérimental complet traitant toutes les combinaisons de paramètres possibles est réalisé. Le tableau 2.4 présente les valeurs de chacun des paramètres. Ces dernières ont été choisies en cohérence avec les résultats de simulations. Le nombre de niveaux étant 3, 2187 simulations ont été réalisées pour chaque courbe de polarisation de ce plan d'expérience.

Paramètre	Valeur Min	Valeur moy	Valeur Max	Unité
$r$	0.08	0.14	0.2	$\Omega.cm^2$
$E_n$	0.9	0.95	1	$V$
$b_a$	20	60	100	$V^{-1}$
$b_c$	20	60	100	$V^{-1}$
$j_{0a}$	0.001	0.5005	1	$A/cm^2$
$j_{0c}$	0.001	0.5005	1	$A/cm^2$
$j_{Lc}$	1.001	1.2505	1.5	$A/cm^2$

TABLEAU 2.4: Valeurs extrêmes des paramètres statiques pour le plan expérimental

Les résultats du modèle statique sont visibles figure 2.17. Sur cette figure est représenté le pourcentage d'influence de chaque paramètre sur l'erreur entre la simulation et les mesures expérimentales. Il y a huit barres pour chaque paramètre, étant donné que l'analyse de sensibilité a été réalisée sur les huit caractérisations. Les caractérisations sont numérotées selon leur ordre de réalisation. La première a été faite au temps  $0h$ , la seconde à  $35h$  et la dernière à  $1016h$ .

Les influences de chaque paramètre varient avec le temps et suivant une évolution plutôt régulière.

Cependant, les paramètres n'influencent pas de manière drastiquement différente l'erreur avec le vieillissement de la pile. En effet, parmi les paramètres les plus importants, aucune influence ne s'inverse. C'est à dire que l'ordre d'influence des paramètres est conservé lors du vieillissement. Cela permet de pouvoir poursuivre cette analyse sur les résultats concernant une seule caractérisation. En effet, ce sont surtout les influences relatives entre elles qui nous intéressent.

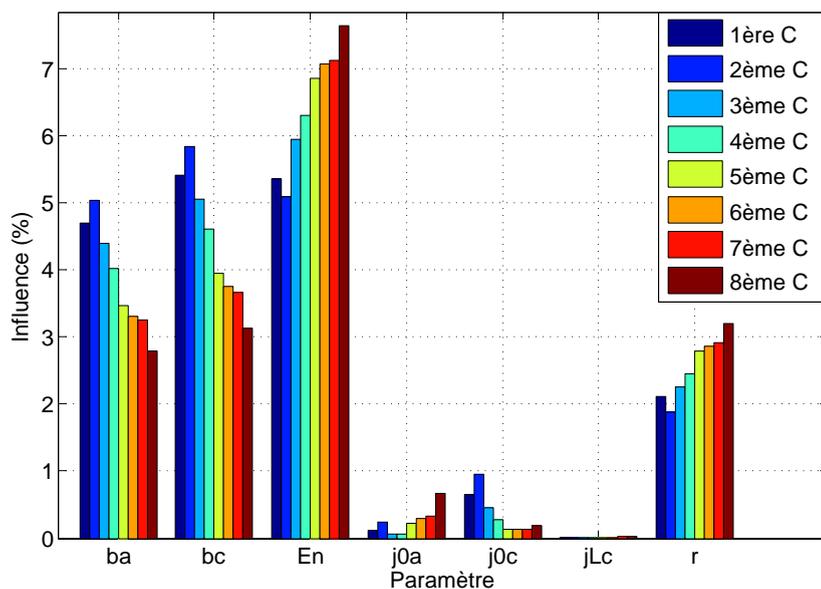


FIGURE 2.17: Résultats de l'analyse ANOVA pour le modèle statique

Les paramètres ayant la plus grande influence sont  $E_n$ ,  $r$ ,  $b_a$  et  $b_c$ , cela peut être facilement vérifié en regardant l'équation (1.13). Cela est lié au fait qu'une variation de ces paramètres a une influence directe sur la tension.

Dans le tableau 2.5, le pourcentage des influences n'est donné que pour la première caractérisation. En effet chacune des caractérisations est étudiée séparément. Les résultats étant similaires il n'en est présenté qu'un seul. Sur la diagonale l'influence de chaque paramètre est visible le reste présentant l'influence inter-paramétrique.

La somme totale des influences est très faible, aux alentours de 18% (Tableau 2.5). Et les influences inter-paramétriques n'ont pas de valeur supérieure à 0.1%.

La faible valeur de la somme totale des influences peut être expliquée par l'étendue des valeurs prises qui n'est pas assez grande. En effet, la courbe de polarisation simulée par le modèle la moins satisfaisante ne présente pas une erreur importante face à la courbe de polarisation mesurée. Les calculs sont faits entre deux valeurs d'erreur trop proches pour obtenir des résultats significatifs. Cette hypothèse a été confirmée lors de la réalisation d'une même analyse avec des variations plus importantes pour chaque paramètre. Ces nouveaux plans d'expériences permettent d'obtenir une somme plus élevée.

Influence (%)	$b_a$	$b_c$	$E_n$	$j_{0a}$	$j_{0c}$	$j_{Lc}$	$r$
$b_a$	4.69	0.0043	0.014	0.15	0.016	$1.9 \cdot 10^{-4}$	0.0059
$b_c$		5.41	0.016	0.026	0.24	$5.59 \cdot 10^{-4}$	0.0082
$E_n$			5.3547	0.040	0.038	$1.58 \cdot 10^{-4}$	0.0019
$j_{0a}$				0.11	0.090	$7.10 \cdot 10^{-4}$	0.016
$j_{0c}$					0.65	0.0016	0.015
$j_{Lc}$						0.0038	$1.76 \cdot 10^{-4}$
$r$							2.10

TABLEAU 2.5: Résultats de la première analyse de sensibilité effectuée sur le modèle statique sur la première courbe de polarisation

### 2.5.2.2/ MODÈLE DYNAMIQUE

Pour réaliser cette première ANOVA sur cette seconde partie du modèle, le  $Y$  pris est l'erreur (MAPE) entre l'EIS simulé et mesuré à 70A. 70A étant la sollicitation nominale de courant durant l'expérimentation. Cette erreur est décomposée en deux parties car elle concerne un nombre complexe. Il y a donc deux résultats de l'analyse de sensibilité sur la partie dynamique : l'erreur sur la partie réelle et celle sur la partie imaginaire.

Pour rappel, les paramètres du modèle dynamique sont :

- l'impédance de Warburg  $W_{Oc}$  qui est décomposée en  $R_{Oc}$  et  $\tau_{Oc}$  ; 1.13
- les capacités de double couche  $C_{dca}$  et  $C_{dcc}$  ;
- les résistances de transfert  $R_{ta}$  and  $R_{tc}$  ;
- la conductance ionique de la membrane est modélisée par une résistance équivalente  $R_m$  ;
- le comportement inductif des connecteurs est modélisé par  $L$ .

Le plan expérimental complet peut être lu sur le tableau 2.6, ce dernier se présente de la même manière que le plan expérimental du modèle statique. Il y a donc pour chaque EIS 6561 simulations comportant chacune deux résultats.

Paramètre	Valeur Min	Valeur Moy	Valeur Max	Unité
$C_{cdca}$	0.03	0.045	0.06	$F/cm^2$
$C_{dcc}$	0.02	0.035	0.05	$F/cm^2$
$R_{Oc}$	0.05	0.125	0.2	$\Omega.cm^2$
$\tau_{Oc}$	0.1	0.35	0.6	$s$
$L$	$0.8 \cdot 10^{-06}$	$1.4 \cdot 10^{-06}$	$2 \cdot 10^{-06}$	$H$
$R_m$	0.08	0.14	0.2	$\Omega.cm^2$
$R_{ta}$	0.01	0.305	0.6	$\Omega.cm^2$
$R_{tc}$	0.01	0.205	0.4	$\Omega.cm^2$

TABLEAU 2.6: Valeurs extrêmes prises par les paramètres dynamiques dans le plan expérimental

Les résultats de l'analyse de sensibilité du modèle dynamique sont visibles en figure 2.18. Il y est aussi présenté les tableaux de résultats des influences sur la partie réelle de celle-ci (Tableau 2.7) ainsi que sur la partie imaginaire de l'erreur (Tableau 2.8) . La somme des

influences et des influences inter paramétriques est proche de 100% pour les deux parties de l'impédance. Cela est plus satisfaisant, il n'y a donc pas d'influence que nous n'ayons pas identifiées. Le résidu étant minime, nous pouvons conclure que nos résultats sont fiables.

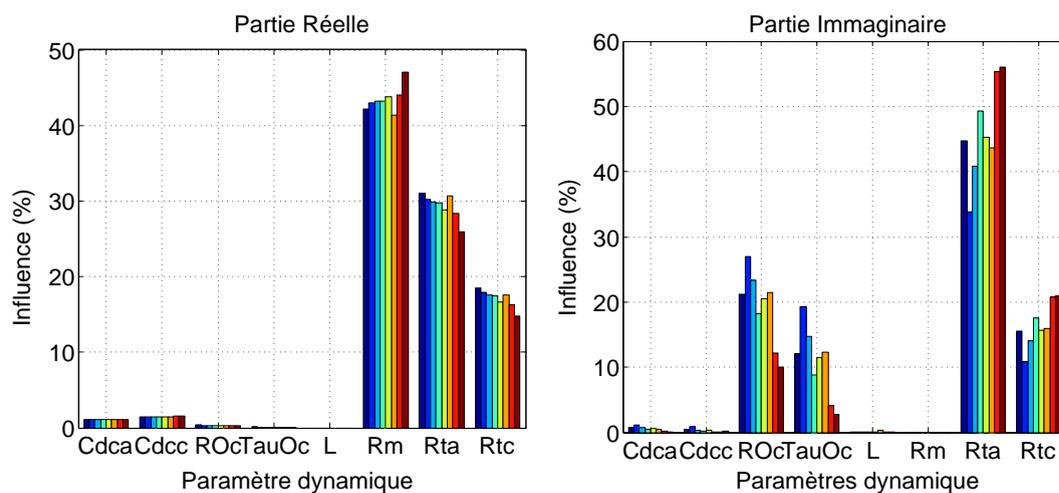


FIGURE 2.18: Résultats de l'ANOVA pour les parties réelle et imaginaire du modèle dynamique (avec de gauche à droite, de la première à la huitième caractérisation)

Inf. (%)	$C_{dca}$	$C_{dcc}$	$R_{Oc}$	$Tau_{Oc}$	$L$	$R_m$	$R_{ta}$	$R_{tc}$
$C_{dca}$	1.10	$1.76 \cdot 10^{-5}$	$4.40 \cdot 10^{-7}$	$1.83 \cdot 10^{-7}$	$5.67 \cdot 10^{-29}$	$9.04 \cdot 10^{-4}$	$6.1 \cdot 10^{-3}$	$8.20 \cdot 10^{-5}$
$C_{dcc}$		1.45	$3.22 \cdot 10^{-5}$	$1.50 \cdot 10^{-5}$	$3.81 \cdot 10^{-29}$	$3.8 \cdot 10^{-3}$	$7.32 \cdot 10^{-5}$	0.075
$R_{Oc}$			0.35	$3.16 \cdot 10^{-4}$	$4.66 \cdot 10^{-29}$	$4.42 \cdot 10^{-5}$	$5.67 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-5}$
$Tau_{Oc}$				0.1189	$1.85 \cdot 10^{-27}$	$2.26 \cdot 10^{-5}$	$1.82 \cdot 10^{-4}$	$1.81 \cdot 10^{-5}$
$L$					$3.27 \cdot 10^{-27}$	$5.20 \cdot 10^{-29}$	$5.45 \cdot 10^{-29}$	$2.56 \cdot 10^{-29}$
$R_m$						42.1	$2.8 \cdot 10^{-3}$	$6.4 \cdot 10^{-3}$
$R_{ta}$							31.0	$1.4 \cdot 10^{-2}$
$R_{tc}$								18.5

TABLEAU 2.7: Influences des paramètres sur la partie réelle du modèle dynamique pour la première caractérisation

Inf. (%)	$C_{dca}$	$C_{dcc}$	$R_{Oc}$	$Tau_{Oc}$	$L$	$R_m$	$R_{ta}$	$R_{tc}$
$C_{dca}$	0.71	5.49 .10 <sup>-5</sup>	5.30 .10 <sup>-6</sup>	2.82 .10 <sup>-6</sup>	4.75 .10 <sup>-5</sup>	4.40 .10 <sup>-28</sup>	0.0075	2.35 .10 <sup>-4</sup>
$C_{dcc}$		0.42	5.60 .10 <sup>-4</sup>	1.46 .10 <sup>-5</sup>	1.35 .10 <sup>-4</sup>	5.69 .10 <sup>-28</sup>	2.7 .10 <sup>-4</sup>	0.0025
$R_{Oc}$			21.2	0.028	2.67 .10 <sup>-7</sup>	5.20 .10 <sup>-28</sup>	2.99 .10 <sup>-4</sup>	0.0023
$Tau_{Oc}$				12.0	1.37 .10 <sup>-7</sup>	6.34 .10 <sup>-28</sup>	6.54 .10 <sup>-5</sup>	1.62 .10 <sup>-4</sup>
$L$					0.0017	5.50 .10 <sup>-28</sup>	2.11 .10 <sup>-5</sup>	5.07 .10 <sup>-5</sup>
$R_m$						3.97 .10 <sup>-26</sup>	5.26 .10 <sup>-28</sup>	4.74 .10 <sup>-28</sup>
$R_{ta}$							44.7	9 .10 <sup>-3</sup>
$R_{tc}$								15.60

TABLEAU 2.8: Influence des paramètres sur la partie imaginaire du modèle dynamique sur la première caractérisation

Comme il peut être observé, les deux parties du résultat présentent une complémentarité pour les influences de certains paramètres. La somme de ces deux influences peut donc être considérée pour la suite de l'analyse. Le graphique présentant les résultats additionnés peut être consultés figure 2.19.

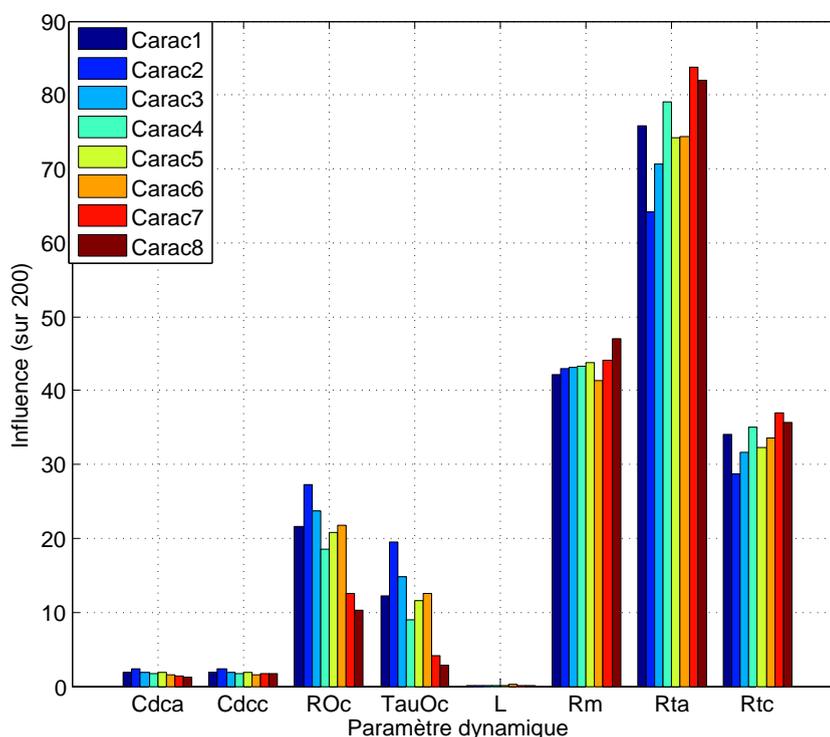


FIGURE 2.19: Résultats de l'ANOVA sur le modèle dynamique pour un EIS à 70A avec addition des influences réelles et imaginaires

Ces résultats montrent que les paramètres  $C_{dca}$ ,  $C_{dcc}$  et  $L$  ont une très faible influence sur l'erreur d'estimation. Les paramètres de la diffusion-convection  $R_{Oc}$  ainsi que  $\tau_{Oc}$  présentent quant à eux une certaine influence qui reste toutefois limitée contrairement aux résistances  $R_m$ ,  $R_{ta}$  et  $R_{tc}$  qui elles font preuve d'une très grande influence. Ces derniers paramètres sont des paramètres à surveiller de très près car il sont susceptibles d'induire des écarts non négligeables.

### 2.5.2.3/ MODÈLE GLOBAL

Certains paramètres étant communs au modèle statique et dynamique, il paraît important de réaliser aussi cette analyse sur le modèle complet, qui est la combinaison des modèles statique et dynamique (Section 1.4.2). Certains paramètres pourraient ainsi voir leur influence revue à la baisse. En effet, une influence importante sur une méthode de caractérisation n'implique pas systématiquement sa répercussion sur le comportement du stack.

Les paramètres intervenant au sein du modèle global sont les suivants :

- $R_m$ , la résistance ;
- $E_n$ , le potentiel de Nernst ;
- $b_a$ ,  $b_c$  les paramètres de Tafel ;
- $j_{0a}$ ,  $j_{0c}$  les densités de courant d'échange ;
- $j_{Lc}$  la densité de courant limite à la cathode ;
- $C_{dca}$ ,  $C_{dcc}$  les capacités de double couche ;

- $L$  le comportement inductif des connecteurs ;
- $j_{0Oc}$  et  $b_{Oc}$  les sous paramètres de  $R_{Oc}$  ;
- $k_{Oc}$ , le sous paramètre de  $\tau_{Oc}$ .

Certains paramètres dynamiques ne sont pas présents dans cette liste. Cela s'explique par la décomposition de  $R_{ta}$  et  $R_{tc}$  en fonction de paramètres statiques.

Le plan expérimental (Tableau 2.9) est présentée sous la même forme que les deux précédentes. 1594323 simulations sont réalisées pour chaque analyse.

Paramètres	Valeur Min	Valeur Moy	Valeur Max	Unité
$E_n$	0.9	0.95	1	$V$
$b_a$	20	60	100	$V^{-1}$
$b_c$	20	60	100	$V^{-1}$
$j_{0a}$	0.001	0.5005	1	$A/cm^2$
$j_{0c}$	0.001	0.5005	1	$A/cm^2$
$j_{Lc}$	1.001	1.2505	1.5	$A/cm^2$
$R_m$	0.08	0.14	0.2	$\Omega.cm^2$
$C_{cdca}$	0.03	0.045	0.06	$F/cm^2$
$C_{dcc}$	0.02	0.035	0.05	$F/cm^2$
$L$	$0.8.10^{-06}$	$1.4.10^{-06}$	$2.10^{-06}$	$H$
$j_{0Oc}$	0.01	0.255	0.5	$A/cm^2$
$b_{Oc}$	10	20	30	$V^{-1}$
$k_{Oc}$	0.01	0.255	0.5	$A.s/cm^2$

TABLEAU 2.9: Valeurs extrêmes du plan expérimental pour le modèle global

Pour pouvoir réaliser une ANOVA de la même manière que les deux précédentes, il est nécessaire d'avoir des données simulées à comparer avec des données expérimentales. Le  $Y$  pris pour cette étude est donc la moyenne de la différence entre l'évolution temporelle des mesures et la simulation durant 100s. Nous avons arbitrairement choisit cette durée, car elle est assez faible pour permettre une telle analyse, mais ne permettent pas de faire intervenir de vieillissement, de plus les périodes durant lesquelles la sollicitation varie ne durent pas plus de 100s.

Sur la totalité de l'essai expérimental, il y a 6 portions présentant cette spécificité (i.e. durant environ 100s avec une sollicitation variable). Elles se situent auprès des caractérisations.

La différence étudiée est faite entre la mesure et la simulation soumis à la même sollicitation. L'analyse de sensibilité a été réalisée sur ces 6 portions de manière à comparer les résultats et visualiser si un des paramètres a plus d'influence sur l'erreur au fur et à mesure que le stack vieillit.

Le graphe des résultats est présenté figure 2.20. Une nouvelle fois, les résultats ne sont pas trop éparses sur les différentes portions sélectionnées. Il n'est donc présenté sur le tableau 2.10 que les résultats de la première caractérisation.

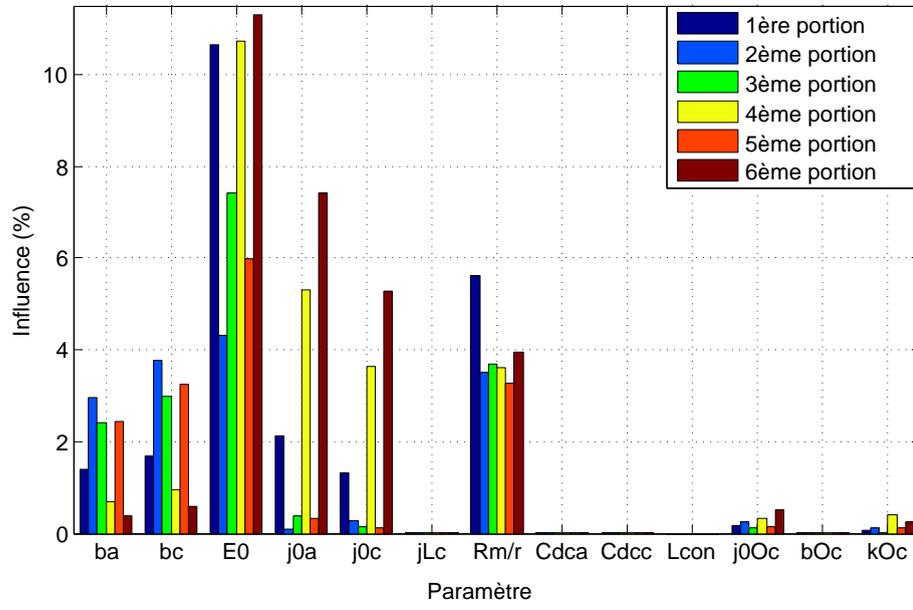


FIGURE 2.20: Résultats de l'ANOVA pour le modèle global

Inf (%)	$b_a$	$b_c$	$E_n$	$j_{0a}$	$j_{0c}$	$j_{Lc}$	$R_m$	$C_{dca}$	$C_{dcc}$	L	$j_{0Oc}$	$b_{Oc}$	$k_{Oc}$
$b_a$	1.38	$7.3 \cdot 10^{-3}$	$1.6 \cdot 10^{-2}$	$7.7 \cdot 10^{-2}$	$2.9 \cdot 10^{-2}$	$8.1 \cdot 10^{-5}$	$9.8 \cdot 10^{-3}$	$3.31 \cdot 10^{-6}$	$4.6 \cdot 10^{-6}$	$1.8 \cdot 10^{-26}$	$7.6 \cdot 10^{-5}$	$2.7 \cdot 10^{-5}$	$4.2 \cdot 10^{-5}$
$b_c$		1.67	$1.7 \cdot 10^{-2}$	$3.6 \cdot 10^{-2}$	0.14	$6 \cdot 10^{-5}$	1	$1.8 \cdot 10^{-6}$	$4.2 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-26}$	$6.8 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$4.5 \cdot 10^{-5}$
$E_n$			10.6	$3.1 \cdot 10^{-2}$	$3.2 \cdot 10^{-2}$	$5.3 \cdot 10^{-6}$	$4.9 \cdot 10^{-4}$	$7.9 \cdot 10^{-7}$	$5.3 \cdot 10^{-6}$	$1.9 \cdot 10^{-26}$	$8.5 \cdot 10^{-6}$	$7.2 \cdot 10^{-6}$	$2.2 \cdot 10^{-5}$
$j_{0a}$				2.12	0.11	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$1.8 \cdot 10^{-2}$	$3.9 \cdot 10^{-5}$	$6.9 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-26}$	$4.5 \cdot 10^{-4}$	$9.8 \cdot 10^{-5}$	$3.2 \cdot 10^{-4}$
$j_{0c}$					1.32	$6.8 \cdot 10^{-4}$	$1.9 \cdot 10^{-2}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$	$2.2 \cdot 10^{-26}$	$3.2 \cdot 10^{-4}$	$6.9 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-4}$
$j_{Lc}$						$1.1 \cdot 10^{-2}$	5	$1.7 \cdot 10^{-8}$	$4.2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-26}$	$7.5 \cdot 10^{-7}$	$4.5 \cdot 10^{-8}$	$1.5 \cdot 10^{-7}$
$R_m$							5.62	$9.2 \cdot 10^{-8}$	$1.4 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-26}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$1.5 \cdot 10^{-5}$	$8.4 \cdot 10^{-5}$
$C_{dca}$								$4.84 \cdot 10^{-5}$	$1.6 \cdot 10^{-7}$	$2.1 \cdot 10^{-26}$	$8.3 \cdot 10^{-8}$	$2.6 \cdot 10^{-8}$	$2.4 \cdot 10^{-7}$
$C_{dcc}$									$5.49 \cdot 10^{-4}$	$2.21 \cdot 10^{-26}$	$1.7 \cdot 10^{-7}$	$8.9 \cdot 10^{-7}$	$2.18 \cdot 10^{-6}$
L										$1.55 \cdot 10^{-24}$	$2.2 \cdot 10^{-26}$	$2.07 \cdot 10^{-26}$	$2.14 \cdot 10^{-26}$
$j_{0Oc}$											0.16	$1.3 \cdot 10^{-5}$	$1.06 \cdot 10^{-4}$
$b_{Oc}$												$5.3 \cdot 10^{-3}$	$1.58 \cdot 10^{-5}$
$k_{Oc}$													$7.6 \cdot 10^{-2}$

TABLEAU 2.10: Résultats de l'analyse de sensibilité pour le modèle global aux alentours des 35h

Le paramètre ayant la plus grande influence est  $E_n$ . Cela est confirmé par des simulations. En effet, une mauvaise valeur de  $E_n$  influe directement la sortie du modèle en produisant une erreur importante à la tension en circuit ouvert.

Globalement, les paramètres statiques sont ceux ayant le plus d'influence. Cette observation est logique puisque les paramètres ayant la plus grande influence lors de l'analyse du modèle dynamique sont finalement décomposés à l'aide de paramètres statiques.

### 2.5.3/ SECONDE VERSION DE L'ANALYSE DE SENSIBILITÉ PARAMÉTRIQUE

Une seconde analyse de sensibilité a été réalisée. Les résultats de ces deux analyses sont présentés dans la section 2.5.4.

L'objectif est de faire une analyse indépendante des données de manière à évaluer l'influence de chaque paramètre uniquement sur la sortie des modèles et non sur l'erreur qui est provoquée. Pour cela les mêmes plans d'expériences que décrits précédemment sont simulés de manière à pouvoir effectuer l'ANOVA sur les réponses des modèles.

Seuls les modèles statique et dynamique ont été traités. En effet, cette analyse est réalisée sur des points spécifiques. Le modèle global fait intervenir des constantes de temps qui ne permettent pas à cette analyse d'être réalisable.

Le lecteur notera qu'il est possible, à l'aide de cette analyse, d'extraire des influences marquées ou non. Une synthèse s'appuyant sur une comparaison entre les deux analyses est proposée. Cependant, l'analyse ANOVA n'étant qu'un seul aspect des études devant être menées pour la prise de décision concernant la contrainte des problèmes d'optimisation, nous ne tirons, dans ce chapitre, aucune conclusion en se basant uniquement sur cette analyse de variance. Elle viendra compléter une analyse faite au chapitre suivant.

### 2.5.3.1/ STATIQUE

Pour cette analyse portant sur le modèle statique, le  $Y$  pris est la réponse en tension à une sollicitation définie. Ainsi, trois analyses sont finalement réalisées, avec les mêmes plans d'expérience que ceux développés précédemment. L'idée ici étant d'étudier l'influence de chaque paramètre sous différentes sollicitations, les trois densités de courant ont été choisies spécifiquement comme étant les extrêmes de ce qui est réalisé expérimentalement ainsi que la valeur au centre ( $0A/cm^2$ ,  $0.5A/cm^2$  and  $0.98A/cm^2$ ).

Les résultats sont visibles sur la figure 2.21. Pour l'analyse de la réponse au premier point, le potentiel de Nernst  $E_n$  est le seul paramètre influençant la sortie. Ceci peut être vérifié car si  $J_{DC}$  est nul, d'après l'équation (1.13) la tension est égale à  $E_n$ . Les résultats pour le second et le troisième point se différencient par l'influence des paramètres cathodiques. À plus haut courant, l'influence du courant limite  $j_{Lc}$  est sensible, comme attendu, puisque le terme des surtensions de concentrations cathodiques n'est notable que dans cette portion de la courbe de polarisation. Il existe ici une différence notable avec les résultats obtenus dans l'analyse précédente, cette étude traitée dans la section 2.5.4.

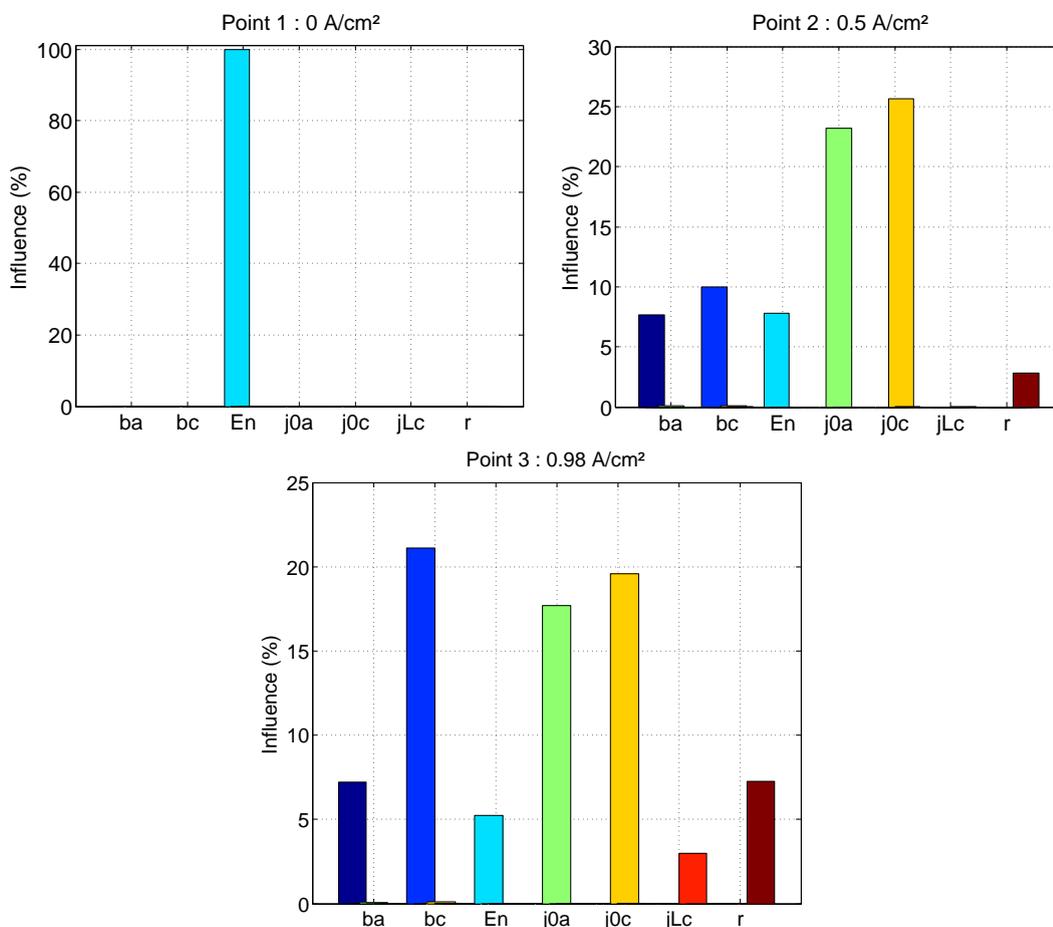


FIGURE 2.21: Influence des paramètres statiques sur la sortie de la partie statique sous différentes sollicitations ( $0A/cm^2$ ,  $0.5A/cm^2$  et  $0.98A/cm^2$ )

### 2.5.3.2/ DYNAMIQUE

Pour la partie dynamique du modèle, cette seconde analyse repose sur la sortie, l'impédance obtenue sous une sollicitation de fréquences. Le plan d'expérience adopté a donc été réalisé sous différentes sollicitations choisis reparties sur le lieu de Nyquist :  $796Hz$  (ou  $5.10^3 rad.s^{-1}$ );  $202Hz$  (ou  $1.27.10^3 rad.s^{-1}$ );  $46Hz$  (ou  $280 rad.s^{-1}$ );  $6Hz$  (ou  $39 rad.s^{-1}$ );  $0.22Hz$  (ou  $1.39 rad.s^{-1}$ ).

Les points choisis sont liés aux données qui sont et seront utilisées pour le modèle. En effet, il n'est pas nécessaire d'excéder ces valeurs car l'entrée du stack durant les expérimentation ne les dépassent jamais. Sur la figure 2.22, on peut remarquer que les résistances ont en permanence une influence importante. Les autres paramètres ont une influence plus ou moins importante suivant la sollicitation. Ainsi les paramètres représentant l'impédance de diffusion convection ( $R_{Oc}$  et  $Tau_{Oc}$ ) n'ont d'influence qu'à partir des sollicitations de faible fréquence. Les capacités de double couche présentent néanmoins systématiquement une influence faible.

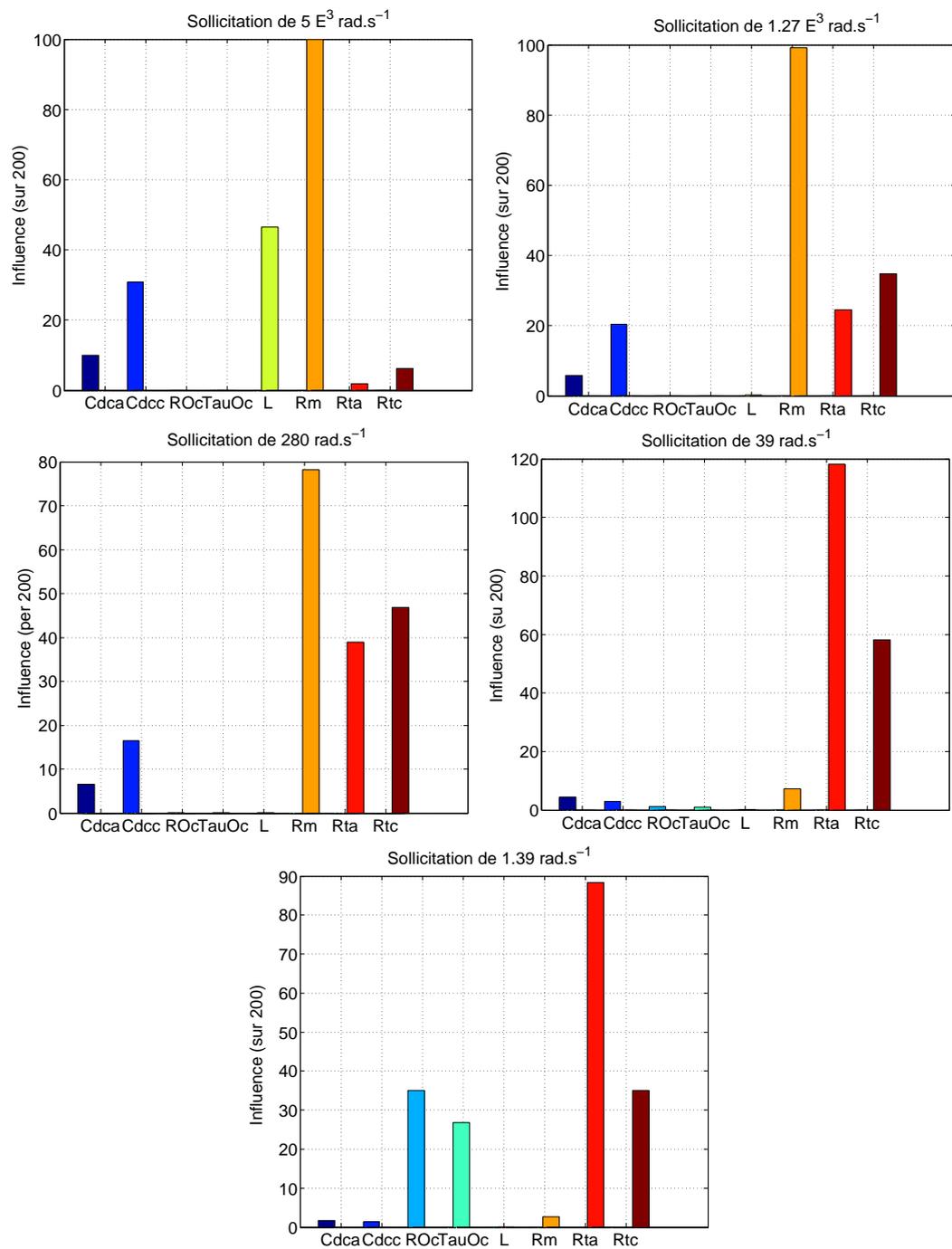


FIGURE 2.22: Analyse de sensibilité sur la sortie de la partie dynamique du modèle (sous les sollicitations :  $5 \cdot 10^3 \text{rad.s}^{-1}$  ;  $1.27 \cdot 10^3 \text{rad.s}^{-1}$  ;  $280 \text{rad.s}^{-1}$  ;  $39 \text{rad.s}^{-1}$  ;  $1.39 \text{rad.s}^{-1}$  )

#### 2.5.4/ SYNTHÈSE

Les deux analyses de sensibilité ne donnent pas systématiquement les mêmes résultats. Elles présentent finalement une complémentarité qui nous permet d'obtenir une analyse plus complète. Cette dernière nous permettra, accompagnée de l'analyse de variabilité

proposée au chapitre suivant, de proposer des solutions pour contraindre les problèmes d'optimisation.

Étudions ainsi les résultats obtenus grâce à ces analyses de variance en les comparant paramètre par paramètre.

La grande divergence sur la partie statique du modèle concerne les densités de courant d'échange ( $j_{0a}$  et  $j_{0c}$ ). En effet, ces paramètres ont une grande influence sur la réponse du modèle (Figure 2.21), mais elle est moindre sur l'erreur entre le modèle et la courbe de polarisation (Figure 2.17). Cela signifie que ces paramètres sont importants pour le comportement instantané, même si leur impact sur l'erreur avec la mesure est moins élevé. Ceci est confirmé par leur influence sur la sortie du modèle globale qui est moyenne (Figure 2.20).

Les paramètres de Tafel ( $b_a$  et  $b_c$ ), quant à eux, ont aussi une grande influence sur l'erreur ainsi que sur la sortie du modèle statique et global. Ce sont donc des paramètres qui se révèlent importants pour les deux analyses effectuées.

La densité de courant limite à la cathode ( $j_{Lc}$ ) ne présente pas de grande influence. En effet, ce paramètre ne présente une influence que sur la sortie de la courbe de polarisation sous une sollicitation à haut courant. Cela est cohérent avec la signification physique de ce paramètre. En effet, les conditions opératoires traitées ne lui permettent pas d'exprimer l'ampleur de son effet.

Le potentiel de Nernst ( $E_n$ ) présente une influence importante à chaque fois qu'il intervient, c'est à dire dans l'analyse du modèle statique et celle faite sur le modèle global. Ainsi, ce paramètre a une incidence réelle et s'avère être très important.

Le résistance interne ( $R_m$ ) présente dans chaque analyse une influence modérée. Ce paramètre a cependant toujours une incidence.

Les capacités de double couche ( $C_{dca}$  et  $C_{dcc}$ ) sont des paramètres qui présentent systématiquement des faibles influences, que ce soit sur les erreurs ou sur la sortie du modèle dynamique.

L'inductance des connecteurs ne présente d'incidence que sur la sortie du modèle dynamique sous la sollicitation du point à très haute fréquence. Son importance est donc toute relative.

L'impédance de diffusion convection est exprimée grâce à deux sous paramètres  $R_{Oc}$  et  $\tau_{Oc}$ . Ces derniers présentent une influence moyenne au fil de nos études sont aussi exprimés en sous paramètres dans le modèle global  $j_{0Oc}$ ,  $b_{Oc}$  and  $k_{Oc}$ . Le seul paramètre à avoir vraiment une influence nulle sur l'erreur entre la simulation globale et les mesures est  $b_{Oc}$ . Les autres, quant à eux, présentent une influence qui se révèle véritablement faible.

Finalement, l'objectif de ces analyses est d'amorcer une solution pour faire face au problème lié au nombre de paramètres trop élevé lequel augmente la possibilité de tomber sur un minimum local. En effet, la définition des valeurs des paramètres, grâce à la procédure de mise à jour, s'avère être plus une solution numérique qu'une solution avec une signification physique. De plus, la probabilité d'avoir une solution numérique s'accroît avec le nombre de paramètres ; avec un problème plus complexe trouver la solution optimale est plus long.

Réduire ainsi les paramètres régressés permettrait d'éviter les minima locaux atteints lors de cette procédure. Cette analyse pourrait nous permettre de faire des choix afin de

contraindre nos problèmes d'optimisation. Cependant, nous utiliserons une analyse faite au prochain chapitre afin de baser nos choix sur différents aspects.

## 2.6/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, le modèle présenté précédemment est développé de manière plus précise. Son analyse a démontré qu'il est satisfaisant.

Ainsi les processus de mise à jour de paramètres sont présentés. C'est une partie clef, puisque l'attribution des valeurs aux paramètres est un point sensible. En effet, leur nombre étant important, le risque de minima locaux impliquant de ne pas trouver les valeurs réelles est dangereux. Chaque paramètre représentant une valeur physique il est critique de conserver cette signification.

Il est donc proposé une analyse de sensibilité du modèle face à ses paramètres afin d'identifier ceux qui possèdent une influence significative. L'objectif de cette analyse est de permettre de mieux contraindre les problèmes d'optimisation. Le chapitre 3 proposera de parfaire cette étude. En effet, une autre analyse porte sur le modèle de vieillissement et vient compléter l'analyse de sensibilité ; elle sera développée de manière à optimiser les processus de mise à jour des paramètres.

Lors de la validation du modèle instantané qui présente une performance satisfaisante, la nécessité d'inclure le vieillissement apparaît clairement. C'est sur ce point que les chapitres 3 puis 4 seront articulés, en présentant tout d'abord l'ajout du vieillissement puis l'intégration de la prédiction.

# MODÈLE DE COMPORTEMENT AVEC ESTIMATION DU VIEILLISSEMENT

*Le modèle proposé précédemment présente un désavantage pour son évolution en tant que modèle de pronostic : de l'évolution de certains paramètres ne se dégage pas de tendance claire. Cela est certainement dû à un trop grand nombre de paramètres et donc aux minima locaux pouvant être atteints lors des régressions. C'est dans ce cadre que ce chapitre traite d'une analyse de variation paramétrique et de la justification de l'utilité du modèle dynamique. Le rapprochement des ces résultats avec l'analyse de sensibilité faite au chapitre précédent, nous permet de valider l'utilisation du modèle pour l'estimation du comportement vieillissant d'une pile.*

## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>79</b>
<b>3.2</b>	<b>Prise en compte du vieillissement</b>	<b>79</b>
3.2.1	Principe	79
3.2.2	Observation	80
3.2.3	Objectif	83
<b>3.3</b>	<b>Jeux de données utilisés</b>	<b>84</b>
3.3.1	Test de longue durée : Jeu 1	84
3.3.2	Test de longue durée avec cycles : Jeu 2	85
3.3.3	Test de longue durée avec oscillation : Jeu 3	87
3.3.4	Test sur cellule unique : Jeu 4	88
3.3.5	Test sur cellule unique : Jeu 5	89
<b>3.4</b>	<b>Analyse de variations paramétriques</b>	<b>89</b>
3.4.1	Développement réalisé	89
3.4.2	Résultats	89
3.4.3	Choix des contraintes imposées aux problèmes d'optimisation	93
3.4.4	Choix de la méthode de régression	95
<b>3.5</b>	<b>Validation de l'intégration du modèle dynamique</b>	<b>96</b>
3.5.1	Observations préliminaires	96
3.5.2	Cas de figure envisagés	97
3.5.3	Résultats des simulations	98
<b>3.6</b>	<b>Validation de la capacité du modèle à estimer le vieillissement</b>	<b>100</b>
3.6.1	Protocole	100
3.6.2	Évolution temporelle des paramètres	102

3.6.3	Simulation du comportement vieillissant . . . . .	104
<b>3.7</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>106</b>

---

---

## 3.1/ INTRODUCTION

Le chapitre 2 traite du modèle utilisé sans prise en compte du temps. Dans ce chapitre, l'introduction du temps va se faire progressivement de manière à obtenir un modèle traitant le vieillissement de manière satisfaisante. L'intégralité des données sur la durée du test sera utilisée et l'aspect prédictif n'apparaîtra que dans le chapitre 4. En effet, avant de tenter une prédiction à l'aide du modèle comportemental, nous souhaitons valider sa capacité à reproduire le comportement d'une pile vieillissante.

L'introduction du temps pour ce modèle se fera à travers les paramètres. En effet, les valeurs seront remplacées par des fonctions temporelles de manière à faire évoluer le modèle complet avec le temps.

Comme la première section de ce chapitre nous le montrera, certains paramètres du modèle ne présentent pas d'évolution cohérente avec le temps. Ainsi étant donné qu'il y a de grandes probabilités pour que le processus de mise à jour des paramètres atteigne de nombreux minima locaux, nous pouvons supposer que le nombre de paramètres est trop important. Pour faire face à ce problème plusieurs possibilités se présentent : diminuer le nombre de paramètres évoluant avec le temps ; contraindre leurs évolutions, et ainsi diminuer les chances de minima locaux, ou supprimer une partie de la modélisation.

Deux analyses sont donc réalisées pour évaluer la pertinence des ces trois options.

La première analyse porte sur la variation des paramètres suite à la procédure de mise à jour. Cette procédure est réalisée grâce aux trois algorithmes de régression présentés dans le chapitre précédent. Ainsi, il est possible d'émettre des hypothèses quant aux variations de tel ou tel paramètre.

La section suivante consiste en l'analyse des contributions des modèles statique et dynamique. Une étude sera menée pour déterminer si le modèle dynamique, qui augmente le nombre de paramètres de manière significative doit être maintenu.

Enfin l'intégration du temps pour réaliser le modèle de comportement vieillissant est réalisée.

## 3.2/ PRISE EN COMPTE DU VIEILLISSEMENT

### 3.2.1/ PRINCIPE

Reprenons, la validation du modèle complet vue dans le précédent chapitre, section 2.4. Dans cette partie, la capacité du modèle à reproduire des mesures de caractérisation a été démontrée, ainsi que sa capacité à reproduire le comportement temporel instantané. Nous parlons de comportement instantané pour l'évolution de la tension sur une très courte période, que l'on oppose au comportement vieillissant qui s'observe sur de longues périodes.

L'évolution du modèle instantané en y ajoutant la prise en compte du vieillissement est nécessaire avant de permettre une prédiction. Distinguons les sujets des chapitres 3 et 4. Dans ce chapitre, l'idée est d'estimer le vieillissement à l'aide de l'intégralité des données.

Dans le chapitre suivant, les données acquises au début du test seulement seront utilisées afin de tenter de prédire la suite et de pouvoir comparer prédictions et mesures. Ainsi, avant de prédire, il est nécessaire de valider l'hypothèse que le modèle est en mesure de simuler le comportement d'une pile vieillissante.

Pour intégrer une dimension temporelle au sein du modèle, nous nous concentrons sur les paramètres. En effet, l'objectif est de remplacer les valeurs des paramètres par des fonctions temporelles de manière à avoir un modèle évolutif avec le temps (Figure 3.1).

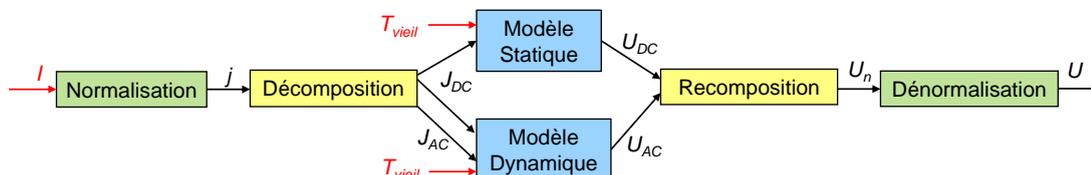


FIGURE 3.1: Introduction du temps dans le modèle global

### 3.2.2/ OBSERVATION

Afin de faire évoluer chaque paramètre en fonction du temps, il est proposé tout d'abord d'étudier les évolutions obtenues de manière à observer si il est possible déduire une fonction mathématique en fonction du temps de façon empirique.

Les courbes suivantes (Figure 3.2 et 3.3) représentent les valeurs obtenues par chacun des paramètres suite aux processus de mise à jour réalisés à chaque caractérisation. Il nous est ainsi possible de voir les valeurs de chaque paramètre à différents instants.

Le processus de mise à jour des paramètres se base sur la régression *lsqcurvefit* nommée par la suite LCF. Ces régressions (Section 2.1) sont finalement les traitements des problèmes d'optimisation (Section 2.3). Lors de ces régressions, la valeur de tous les paramètres sauf  $E_n$  sont à définir. En effet, comme le lecteur peut l'observer sur l'équation (1.13), la valeur de ce paramètre correspond à la tension à vide, c'est à dire sous une sollicitation en courant nulle. Ce point, observable sur une courbe de polarisation n'évolue pas réellement avec le temps [10] ce qui permet de le fixer.

#### – Paramètres dynamiques :

Sur la figure 3.2, sont visibles toutes les évolutions temporelles des paramètres dynamiques du modèle.

La plupart des paramètres ne présentent pas d'évolution claire avec le temps. Prenons pour exemple  $C_{dca}$ , ce paramètre semble, sur les cinq premiers points, avoir une tendance décroissante plutôt claire contenant une anomalie : le second point. Cependant, après 600h, la valeur de  $C_{dca}$  fait un bond pour se stabiliser par la suite. Face à ce type de graphique, aucune conclusion ne peut être tirée quant à l'évolution temporelle de ce paramètre.

Le paramètre  $C_{dcc}$ , quand à lui, présenterait une tendance décroissante sur les huit points qui semblerait linéaire, toutefois, trois points au total seraient considérés comme des anomalies...

Il en est ainsi pour la constante de temps de l'impédance de diffusion convection  $\tau_{Oc}$ , son sous paramètre  $k_{Oc}$  et l'inductance des connecteurs  $L$ .

La résistance de l'impédance de diffusion convection  $R_{Oc}$  présente quant à elle une

évolution croissante qui semble plutôt claire. Par extension, son sous paramètre  $b_{Oc}$  présente également une bonne tendance. Cependant, le second sous paramètre,  $j_{0Oc}$  est constant.

– **Paramètres statiques :**

La figure 3.3 suivante, présente les résultats pour les paramètres statiques. Comme précisé plus tôt, le paramètre  $E_n$  n'évolue pas avec le temps. Un autre paramètre  $j_{0c}$  est observé constant sur ces évolutions. Les paramètres statiques ne présentent pas non plus d'évolution temporelle donnant satisfaction.  $j_{Lc}$ , quant à lui, présente une belle décroissance.

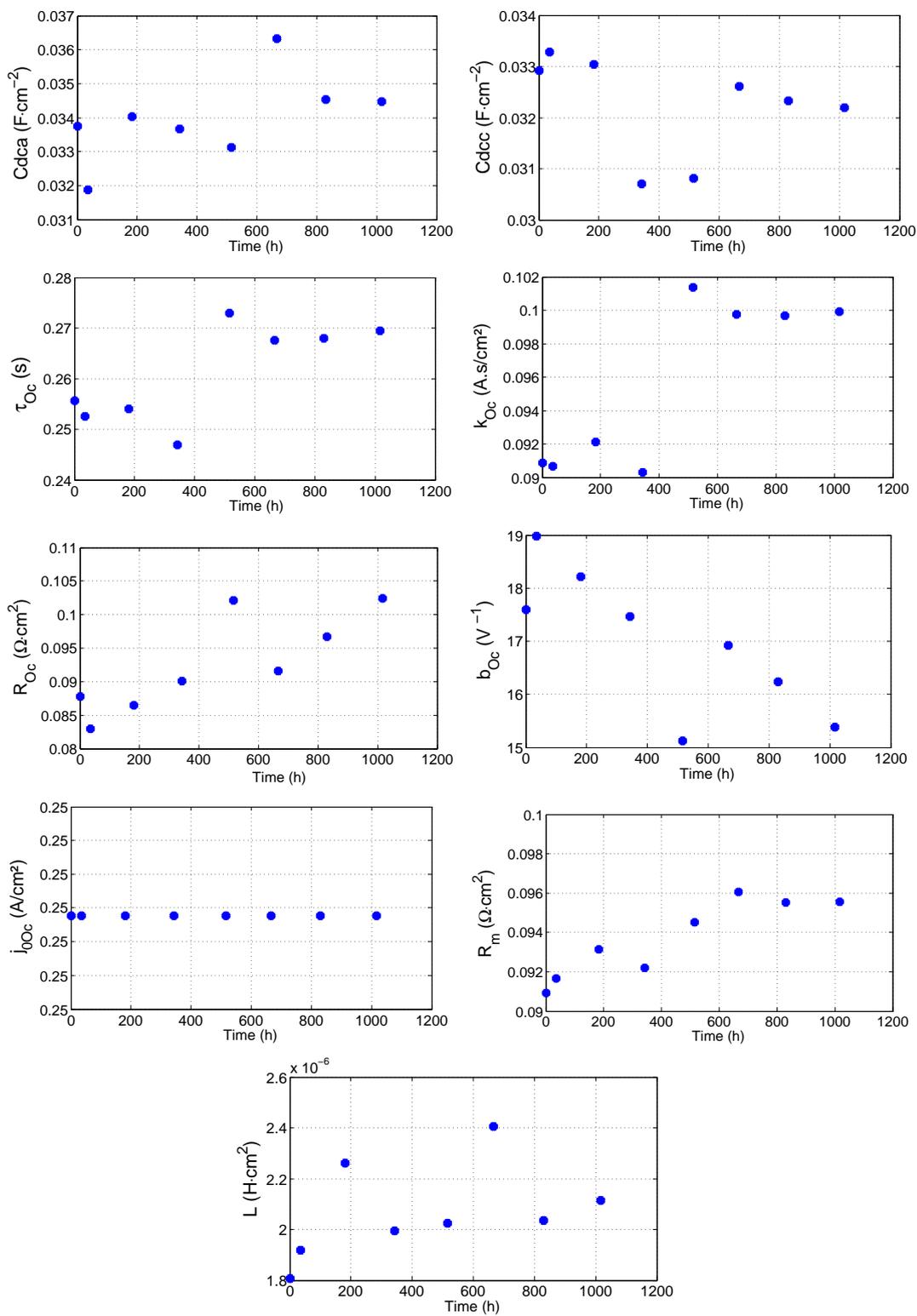


FIGURE 3.2: Évolution temporelle des valeurs atteintes par les paramètres dynamiques

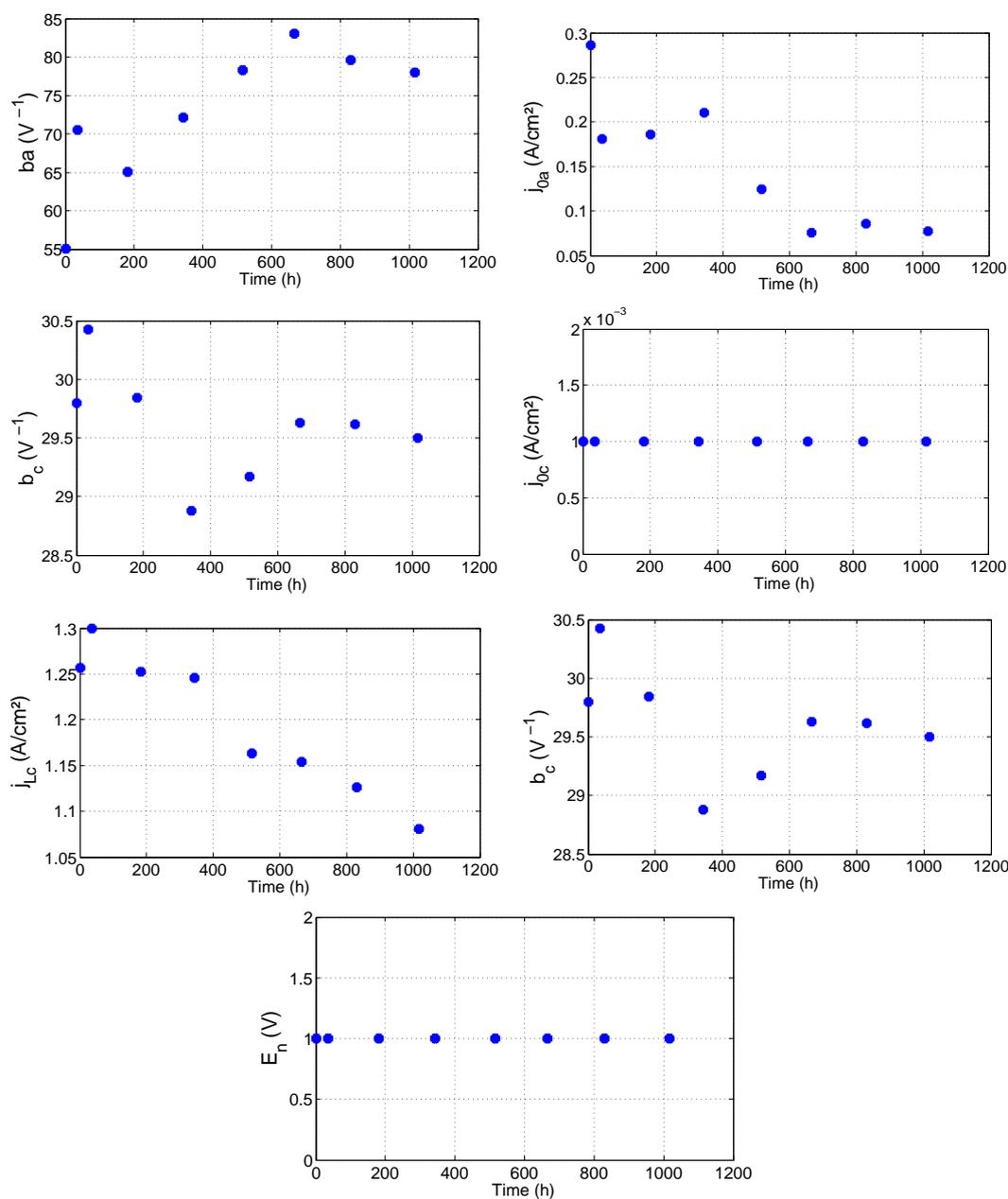


FIGURE 3.3: Évolution temporelle des valeurs atteintes par les paramètres statiques

### 3.2.3/ OBJECTIF

Face à ces évolutions qu'il est difficile d'approcher avec une fonction, il est nécessaire d'identifier l'origine du problème.

Le nombre de paramètres très important qui implique la possibilité de trouver des minima locaux lors des régressions est très probablement la cause de ces évolutions erratiques. En effet, il est possible que le minimum local atteint avec cette méthode de régression ne soit pas le même au fur et à mesure du temps.

Une solution semble donc de contraindre plus ces problèmes d'optimisation de manière à réduire les risques de tomber sur des minima locaux. Ainsi, il serait possible de réduire le nombre de paramètres régressés en les fixant avec le temps, ou en imposant une monotonie à l'évolution paramétrique lors des processus de mise à jour.

Cependant pour cela il est nécessaire d'extraire des tendances pour chaque paramètre et d'identifier quels sont ceux qui sont pertinents. En effet, mis à part quelques cas particuliers, les évolutions temporelles des paramètres ne sont pas encore physiquement explicitées. C'est à dire que les mécanismes de vieillissement ne sont pas suffisamment bien connus et sont fortement influencés par les conditions opératoires pour permettre de proposer une représentation mathématique explicite de l'évolution des paramètres du modèle en fonction du temps.

Ainsi, est proposée dans la suite une étude statistique qui traite de la variation de chaque paramètre au cas par cas sous les trois méthodes de régressions proposées et sous cinq jeux de données différents.

### 3.3/ JEUX DE DONNÉES UTILISÉS

Dans cette section, cinq jeux de données venant de différents laboratoires et de différents bancs d'essais sont présentés et donc réalisés par différents opérateurs. Le tableau 3.1 synthétise les données décrites dans les prochaines pages.

	Type	Système	Durée	Nb. caractérisations	Sollicitation	Remarque
Jeu 1	Essai de longue durée	Stack	2500h	10	Courant constant	Hors projet SAPPHERE
Jeu 2	Essai de longue durée	Stack	2155h	12	1 cycle de courant par jour	2 premières caractérisations non utilisables. Rainbow stack.
Jeu 3	Essai de longue durée	Stack	1016h	8	Courant constant perturbé	
Jeu 4	Test accéléré	Cellule	68h	5	Tension cyclée	Un EIS par caractérisation
Jeu 5	Test accéléré	Cellule	55h	2	Tension cyclée	Uniquement deux caractérisations

TABLEAU 3.1: Synthèse des jeux de données présentés dans cette section

#### 3.3.1/ TEST DE LONGUE DURÉE : JEU 1

Cette expérimentation a été réalisée dans les locaux FCLAB/FEMTO-ST à Belfort. Cet essai est effectué à charge constante sous une sollicitation de courant de  $0.6A/cm^2$  et sur une durée approximative de 2500h.

Le stack qui a subi cette expérimentation est un stack fabriqué par ZSW de 5 cellules de surface active de  $100\text{cm}^2$ .

Une phase de caractérisation est réalisée toutes les semaines. Celle-ci est composée d'une courbe de polarisation ainsi que de cinq spectroscopies d'impédance à des courants de  $0.2\text{A}/\text{cm}^2$ ,  $0.4\text{A}/\text{cm}^2$ ,  $0.6\text{A}/\text{cm}^2$ ,  $0.8\text{A}/\text{cm}^2$  et  $0.9\text{A}/\text{cm}^2$ .

D'autres mesures sont prises en continue sur le banc de ces essais, notamment, le courant et la tension (Figure 3.4).

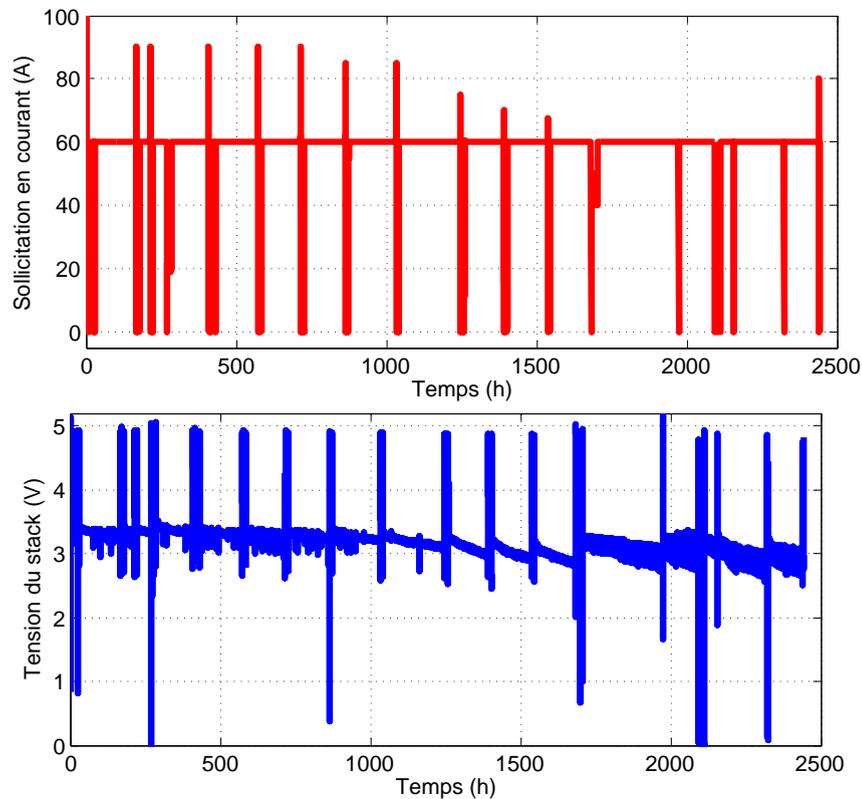


FIGURE 3.4: Mesures de tension et de courant pour le stack du Jeu 1 (5 cellules de  $100\text{cm}^2$ )

Ce jeux de données présente une répétabilité dans la réalisation des caractérisations qui rend sont utilisation pour le modèle aisée.

### 3.3.2/ TEST DE LONGUE DURÉE AVEC CYCLES : JEU 2

Cette expérimentation a été effectuée par ZSW en Allemagne dans le cadre du projet européen SAPPHERE. Le profil de mission est basé sur un profil journalier d'un système de micro-cogénération stationnaire (Figure 3.5). Ce profil fut réalisé une fois par jour pendant une durée totale de test de 2155h.

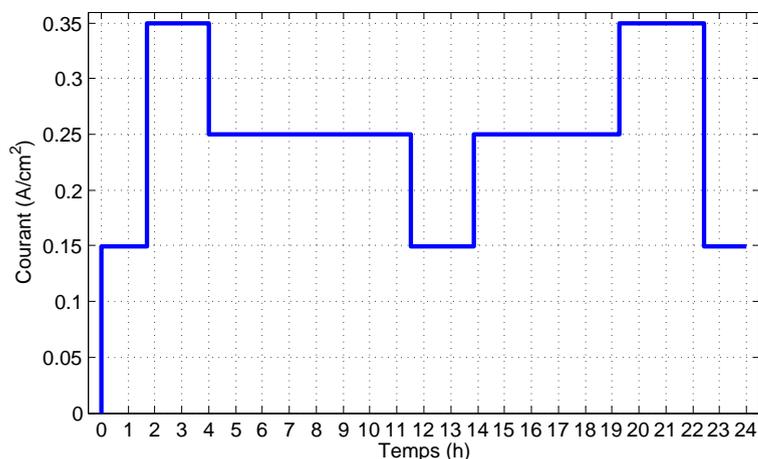


FIGURE 3.5: Profil de co-génération du Jeu 2

Le stack utilisé est fabriqué par ZSW et est composé de 5 cellules de surface active de  $100\text{cm}^2$ . Les cellules ne sont cependant pas identiques. En effet, le stack concerné est nommé "rainbow stack" car composé de cellules ayant des membranes différentes. Les trois premières ont des membranes de type SolviCore, la quatrième de type IRD et la dernière de type Gore (dans le sens cathode vers anode). Ce type de stack rend l'hypothèse d'homogénéité entre les cellules trop grossière, c'est pour cela que dans la suite de ce chapitre nous utilisons la troisième cellule.

Une caractérisation est également réalisée en moyenne toutes les semaines. Celle-ci est composée d'une courbe de polarisation composée de 29 points allant de  $0\text{A}/\text{cm}^2$  à  $1.10\text{A}/\text{cm}^2$  la densité de courant maximale. Les points sont pour la plupart stabilisés 15 minutes sauf pour ceux se trouvant trop près de la densité de courant à vide, la courbe de polarisation ainsi réalisée dure plus de  $5\text{h}30$ . Sont ensuite réalisés trois EIS aux densités de courant du profil,  $0.15\text{A}/\text{cm}^2$ ,  $0.25\text{A}/\text{cm}^2$  puis  $0.35\text{A}/\text{cm}^2$ . Cette caractérisation représente environ  $9\text{h}$  soit  $5.4\%$  du profil hebdomadaire.

Les mesures continues de la tension et du courant sont aussi enregistrées (Figure 3.6).

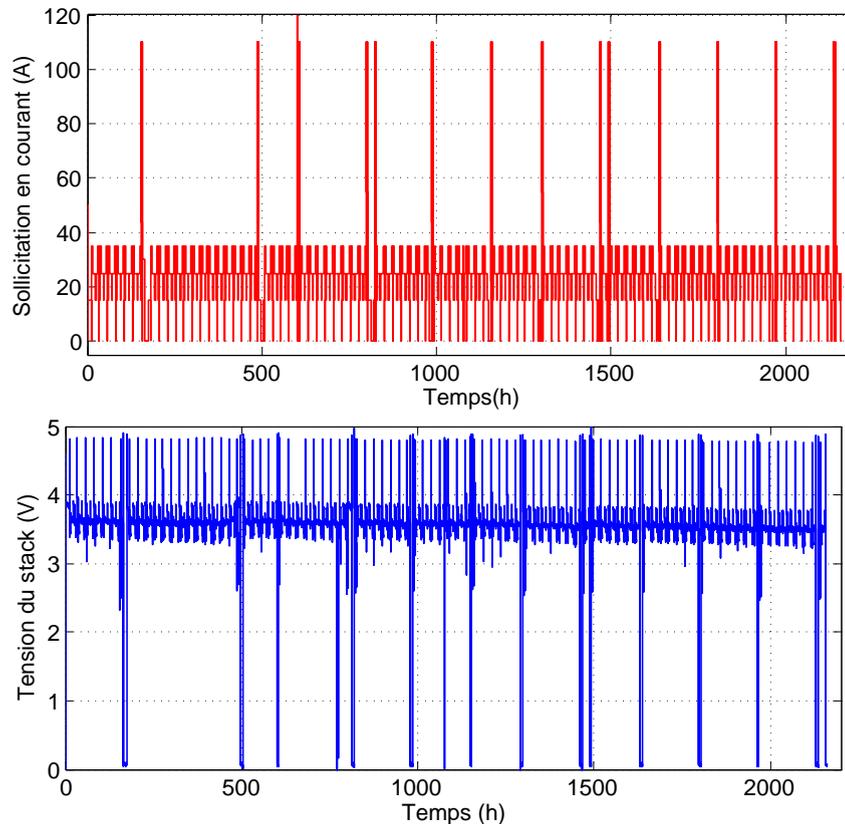


FIGURE 3.6: Mesures de tension et de courant pour Jeu 2, stack de 5 cellules de surface active de  $100\text{cm}^2$

Les conditions opératoires n'ont pas été stables durant la totalité de l'expérimentation. En effet, après  $456\text{h}$  d'essais, la température de test a été augmentée de  $60$  à  $65$  degrés celsius. De plus la première caractérisation ne comporte pas de courbe de polarisation, la seconde ne comporte pas d'EIS à  $15\text{A}$ . L'usage de ces données est rendu complexe par ces lacunes.

### 3.3.3/ TEST DE LONGUE DURÉE AVEC OSCILLATION : JEU 3

Le troisième jeu de données utilisé, est présenté dans la section 2.4.1 du chapitre précédent. Il a déjà été utilisé avec notre modèle dans le but de valider le comportement instantané.

Ce jeu de données a été obtenu grâce à des expérimentations réalisées à FEMTO-ST/FCLAB. L'essai s'est déroulé sur une durée d'environ  $1000\text{h}$  à un courant de  $70\text{A}$  perturbé. La perturbation a été réalisée grâce à l'ajout à ce courant nominal d'une composante dynamique de forme triangulaire (Figure 2.6). L'amplitude crête à crête de cette sollicitation est de plus ou moins  $10\%$  de  $70\text{A}$ , soit une amplitude totale de  $14\text{A}$  à une fréquence de  $5\text{kHz}$  autour de  $70\text{A}$ .

Lors de la réalisation de cet essai, une caractérisation complète fut effectuée chaque semaine (toutes les  $160\text{h}$  environ). De plus, des mesures ont été réalisées en continu lors de l'essai. C'est le cas notamment du courant et de la tension.

La pile concernée est une technologie fournie par la société UBzM nommée BZ100 (Figure 3.7). Le stack est composé de cinq cellules de type Gore de surfaces active de  $100\text{cm}^2$ . La densité de courant nominale est de  $0.70\text{A}/\text{cm}^2$ , et la densité de courant maximale est de  $1\text{A}/\text{cm}^2$ .



FIGURE 3.7: Stack cinq cellules BZ100 de UBzM

Le banc d'essai utilisé a été développé pour le test de piles à combustible d'une puissance allant jusqu'à  $1\text{kWe}$  [42, 43, 51]. Ce banc d'essai permet de réaliser une expérimentation en continu.

#### 3.3.4/ TEST SUR CELLULE UNIQUE : JEU 4

Cette expérimentation a été réalisée dans le cadre de SAPPHIRE à FESB, laboratoire situé à Split en Croatie. L'essai a été effectué sur une cellule unique de  $50\text{cm}^2$  avec membrane fabriquée par BASF de type Gore. L'idée est la réalisation d'un test de vieillissement accéléré grâce à un cyclage. Ainsi durant un cycle, la cellule est maintenue à  $0.9\text{V}$  pendant 30 secondes puis à  $0.6\text{V}$  pendant 10 secondes. Un profil composé de trois cycles est visible figure 3.8. La totalité de cet essai a duré 5000 cycles soit environ  $68\text{h}$ .

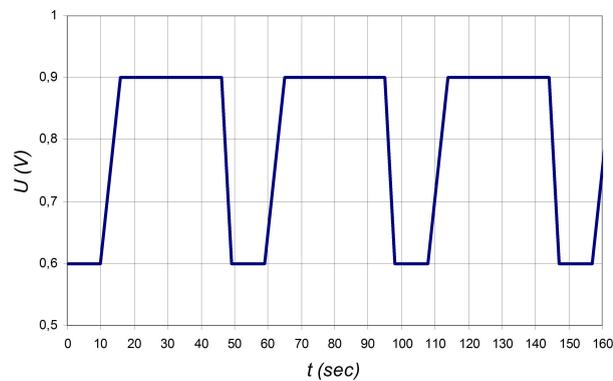


FIGURE 3.8: Profil de test sur monocellule sur le Jeu 4

Une caractérisation est réalisée chaque 1000 cycles. Celle-ci est composée d'une courbe de polarisation et d'un EIS sous une densité de courant de  $0.1\text{A}/\text{cm}^2$ . Il y a donc 5 caractérisations au total. Cet essai ne comporte qu'un seul EIS, il ne permet pas d'avoir de valeur pour certains paramètres dynamiques.

Aucune mesure n'a été enregistrée en continu durant l'essai.

### 3.3.5/ TEST SUR CELLULE UNIQUE : JEU 5

Cet autre essai, fait sur cellule unique, répond aux mêmes caractéristiques que le Jeu 4 présenté précédemment. En effet, une cellule similaire a subi les mêmes cycles. La durée de l'expérimentation fut de 55h environ, soit 4000 cycles. Les phases de caractérisation n'ont été réalisées qu'au début et à la fin de l'essai. Celles-ci sont composées d'une courbe de polarisation et de trois EIS réalisés sous des courants de 5A, 15A, 30A.

## 3.4/ ANALYSE DE VARIATIONS PARAMÉTRIQUES

### 3.4.1/ DÉVELOPPEMENT RÉALISÉ

Comme évoqué dans la section 3.2, certains paramètres ne présentent pas d'évolution temporelle claire, cela est certainement lié aux minima locaux atteints lors des régressions. Pour palier à cela nous proposons de contraindre davantage les problèmes d'optimisation, en fixant des paramètres ou en imposant des variations.

Ainsi, à chaque jeu de données présentés précédemment, ont été appliquées les trois méthodes de régression présentées dans le chapitre précédent (section 2.3). Cela revient à réaliser le processus d'initialisation du modèle avec les différents jeux de données et les différentes méthodes de régressions. L'idée est de regarder ensuite les tendances que prennent chacun des paramètres avec le temps, pour chaque couple jeux de données / régression, en se cantonnant à croissant, décroissant ou constant. Ainsi, nous proposons une étude statistique de variation paramétrique.

Les données sont finalement très variées, les cinq jeux de données ont été réalisés dans trois laboratoires différents, sur des bancs de conception différente, sur des stacks différents avec des sollicitations différentes. Les tests sur cellule unique reposent sur un cyclage intensif afin de réaliser un test accéléré. L'objectif étant de comparer les résultats obtenus par chaque données sous chaque méthode de régression. Il est donc nécessaire de valider que ce sont des tests comparables [22]. Petrone et al. [101] confirment qu'il est envisageable de comparer un vieillissement sous test accéléré par cyclage avec un test de longue durée sous sollicitation de courant variable. Il nous est donc possible de comparer nos 5 jeux de données.

### 3.4.2/ RÉSULTATS

Le tableau 3.2 synthétise les évolutions paramétriques constatées :

- pour les modèles statique et dynamique,
- sur les 5 jeux de données,
- en utilisant les 3 méthodes de régression.

Sur les lignes où une large tendance se détache, les cases colorées en orange montrent ce que nous appellerons "les aberrations" : des tendances qui ne suivent pas la majorité. Ainsi pour les paramètres qui présentent une monotonie récurrente, ces aberrations sont les tendances différentes face à cette récurrence.

Il sera intéressant de vérifier si les aberrations se recourent sur la même méthode de régression ou le même jeu de données. Il y a ainsi 15 processus de mises à jour complets réalisés. Cependant le Jeu 4 ne présentant qu'un seul EIS, les paramètres  $b_{Oc}$ ,  $j_{0OC}$  et  $k_{Oc}$  ne peuvent pas être obtenus.

	Jeu 1 (3.3.1)			Jeu 2 (3.3.2)			Jeu 3 (3.3.3)			Jeu 4 (3.3.4)			Jeu 5 (3.3.5)			Compte des tendances		
	LCF	AG	GS	LCF	AG	GF	Nb ↗	Nb →	Nb ↘									
$C_{dca}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	13	1	1
$C_{dcc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	2	2	11
$b_{Oc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	1	1	10
$j_{0Oc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	3	7	2
$k_{Oc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	9	1	2
$L$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	4	4	7
$R_m$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	10	1	4
$R_{Oc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	13	2	0
$\tau_{Oc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	11	0	4
$b_a$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	6	1	8
$j_{0a}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	3	4	8
$b_c$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	2	0	13
$j_{0c}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	7	5	3
$j_{Lc}$	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	3	3	9

TABLEAU 3.2: Récapitulation des variations paramétriques obtenues

Huit tendances sont considérées comme marquées (plus de 70%) :

- $C_{dcc}$  présente 13 croissances sur 15,
- $C_{dca}$  est majoritairement décroissante avec 11 monotonies sur 15,
- les paramètres de la Warburg  $\tau_{Oc}$  et  $R_{Oc}$  présentent une tendance à être croissants,
- et ainsi leurs sous paramètres  $k_{Oc}$  et  $b_{Oc}$  possèdent une monotonie qui se dégage,
- la résistance de membrane  $R_m$  est majoritairement croissante,
- le paramètre de Tafel à la cathode  $b_c$  présente une décroissance avec 13 correspondances sur 15.

Notons cependant que ces monotonies, et ces choix, ne peuvent pas être étayées par une compréhension physique.

Les autres paramètres ne présentent pas de tendance assez détachée pour être considérée comme une majorité flagrante.

Il est important de noter que les aberrations représentées en orange sont éparses. En effet, il n'y a pas une méthode qui les regroupe. Ce sont des minima locaux ponctuels qui sont atteints. De plus, si on les regarde avec précision ; la méthode LCF comporte 7 erreurs de tendances, la méthode AG 11 et la méthode GS 6. Ainsi, la méthode d'optimisation d'algorithme génétique est celle qui présente le plus de tendances opposées à la majorité.

De plus, les aberrations ne sont pas non plus toutes concentrées sur le même jeux de données. Le Jeu 2 comporte tout de même une quantité importante mais ne les regroupe pas toutes.

Les paramètres prennent aussi des valeurs très différentes en fonction des méthodes et du jeu de données. Le tableau 3.3 présente les valeurs extrêmes que peuvent prendre les paramètres sur toutes les procédures de mise à jour réalisées avec les trois méthodes de régressions sur les différents jeux de données aux différentes caractérisations.

	Minimum	Maximum
$C_{dca}$	0.01	0.5
$C_{dcc}$	$1.5 \cdot 10^{-3}$	0.22
$b_{Oc}$	3	100
$j_{0Oc}$	0.05	0.25
$k_{Oc}$	0.014	2
$L$	$1 \cdot 10^{-10}$	$3 \cdot 10^{-5}$
$R_m$	0.03	0.164
$R_{Oc}$	0.05	0.35
$\tau_{Oc}$	0.013	6
$b_a$	2	90
$j_{0a}$	0.002	2.2
$b_c$	2	100
$j_{0c}$	$1 \cdot 10^{-5}$	1
$j_{Lc}$	0.725	4

TABLEAU 3.3: Récapitulation des variations paramétriques obtenues

## 3.4.3/ CHOIX DES CONTRAINTES IMPOSÉES AUX PROBLÈMES D'OPTIMISATION

De manière à contraindre nos problèmes d'optimisations (ou régressions, Sections 2.1 et 2.3), nous avons choisi de nous concentrer sur les paramètres pour leur imposer différentes conditions ou limites.

Grâce à l'analyse de variations paramétriques (Section 3.4.2) des tendances se détachent. Par ailleurs, l'analyse ANOVA présentée en section 2.5 permet d'évaluer l'importance de chacun.

- Un paramètre qui représente l'état de l'électrolyte est le paramètre  $R_m$ . Celui-ci est reconnu par la communauté comme étant un indicateur clair et facilement lisible sur les plans de Nyquist donnés par les EIS. Ce paramètre qui présente une influence dans chaque analyse ANOVA a une tendance plutôt croissante avec 10 monotonies sur 15. Il arrive cependant qu'il soit décroissant. Ainsi, nous choisissons de laisser ce paramètre libre de toute contrainte, en effet, nous considérons qu'il peut représenter un phénomène capable de faire évoluer sa valeur dans un sens comme dans l'autre.

- Le paramètre qui représente l'inductance des connecteurs,  $L$  n'est pas supposé évoluer drastiquement avec le temps. De plus celui-ci présente une faible incidence dans toutes nos analyses ANOVA. Ce paramètre sera donc régressé lors de la première procédure de mise à jour des paramètres puis fixé à cette valeur.

- Les paramètres de double couche anodique et cathodique  $C_{dca}$  et  $C_{dcc}$  sont des paramètres dont la tendance apparaît clairement. Cependant les analyses ANOVA nous montrent qu'ils possèdent une faible influence, c'est pour cela que nous décidons qu'ils seront fixés de la même manière que le paramètre  $L$ .

- La résistance équivalente de l'impédance de diffusion convection  $R_{Oc}$  présente quant à elle une tendance claire, combinée à une influence moyenne, mais présente lors des analyses ANOVA. Ce paramètre mérite d'évoluer avec le temps. Ainsi, nous lui imposons une croissance lors des régressions. Ses sous-paramètres  $b_{Oc}$  et  $j_{0Oc}$  présentent pour le premier une tendance claire contrairement au second. Sachant que les deux sont complémentaires, fixer l'un des deux pourrait permettre de clarifier la tendance. C'est ainsi que le paramètre  $j_{0Oc}$  est fixé et le paramètre  $b_{Oc}$  laissé libre de toute contrainte pour pouvoir tout de même trouver une solution lors de la régression.

- La constante de temps de l'impédance de diffusion convection  $\tau_{Oc}$  est également clairement croissante, de même que son sous paramètre  $k_{Oc}$ . Ainsi, en contraignant la constante de temps à une croissance, le paramètre  $k_{Oc}$  directement proportionnel, conservera sa monotonie.

- Les paramètres anodiques du modèle statique  $b_a$  et  $j_{0a}$  n'ont pas de tendance se détachant clairement. Ces paramètres sont complémentaires, fixer l'un pourrait donner à l'autre une monotonie plus franche. Les analyses ANOVA ont révélé que ces deux paramètres étaient importants. Toutefois le paramètre de Tafel présente une influence dans les deux analyses de sensibilités du chapitre 2 (Section 2.5), c'est ainsi la densité de courant d'échange qui est fixée.

• Coté cathode, les paramètres du modèle statique sont au nombre de trois,  $j_{0c}$ ,  $b_c$  et  $j_{Lc}$ . Ce dernier, le paramètre de densité de courant limite, ne présente pas de tendance claire ni d'influence très importante lors des analyses de sensibilités ; il est ainsi fixé. Le paramètre de Tafel présente une tendance apparente qui est donc imposée. La densité de courant d'échange cathodique est reconnue comme étant un paramètre important, il est ainsi laissé libre de contrainte.

Paramètre	Choix le concernant
$C_{dca}$	Régressé sur la première puis fixé à cette valeur
$C_{dcc}$	Régressé sur la première puis fixé
$b_{Oc}$	Libre de contraintes
$j_{0Oc}$	Régressé sur la première puis fixé
$k_{Oc}$	Libre de contraintes
$L$	Régressé sur la première puis fixé
$R_m$	Libre de contraintes
$R_{Oc}$	Régressé sur la première puis imposé croissant
$\tau_{Oc}$	Régressé sur la première puis imposé croissant
$b_a$	Libre de contraintes
$j_{0a}$	Régressé sur la première puis fixé
$b_c$	Régressé sur la première puis imposé décroissant
$j_{0c}$	Libre de contraintes
$j_{Lc}$	Régressé sur la première puis fixé

TABLEAU 3.4: Choix des contraintes sur les évolutions temporelles paramétriques

Chaque paramètre a donc été étudié de manière à être traité. Le tableau 3.4 récapitule les choix pour chacun d'eux. Lorsque nous imposons une tendance, cela signifie que la valeur obtenue pour ce paramètre à la régression précédente est donnée comme borne inférieur ou supérieur lors de la régression suivante, et ainsi de suite. De même lorsqu'un paramètre est dit fixé, la valeur obtenue à la première régression est imposée pour les suivantes.

Ces choix supposent des hypothèses qu'il est difficile de valider. Chaque paramètre est supposé lié avec un phénomène se produisant au sein de la pile, nous faisons une hypothèse sur sa monotonie que nous ne pouvons pas valider. En effet, au sein de la littérature, il n'existe pas d'étude très approfondie traitant des phénomènes de vieillissement de la pile, et permettant de rapprocher avec certitude chaque paramètre du phénomène considéré. Ainsi, les choix faits nous permettent d'avancer et de s'adapter à une connaissance encore trop faible de la pile PEMFC. Il est de plus nécessaire de définir la forme que prendront les fonctions temporelles. Celle-ci sera de forme exponentielle car les équations du modèle statique étant des arcsinus hyperboliques (eq. (1.13)), l'utilisation d'exponentiels paraît cohérente.

$$Param(t) = \alpha.e^{\beta.t} \quad (3.1)$$

Les choix que nous avons fait pour les variations paramétriques font clairement apparaître la tendance hybride des travaux. En effet, nous proposons de combler les lacunes

concernant la connaissance des phénomènes de vieillissement de la pile par des données.

#### 3.4.4/ CHOIX DE LA MÉTHODE DE RÉGRESSION

L'analyse statistique présentée précédemment consiste à utiliser les trois méthodes de régression proposées.

En effet, les trois méthodes de régressions proposées sont utilisées afin de réaliser la procédure de mise à jour paramétrique sur différents jeux de données et sur les différentes caractérisations qu'ils proposent. Ainsi il est possible de comparer les erreurs moyennes obtenues par les méthodes de régressions utilisées.

Cela permet donc de faire un choix parmi ces dernières. Les trois méthodes permettent d'obtenir des résultats sous forme d'erreurs, la grandeur choisie pour mettre en compétition ces trois méthodes de régressions est le coefficient de détermination  $R^2$ . Sur le tableau 3.5 sont visibles les coefficients de détermination obtenus pour deux jeux de données, le premier sur stack (Jeu 2) et l'autre sur cellule unique (Jeu 5). Les valeurs données correspondent à la moyenne réalisée sur les processus de mise à jour des paramètres sur les différentes caractérisations. Les résultats de deux jeux de données uniquement sont présentés les autres résultats étant similaires. Cela permet ainsi au tableau 3.5 d'être lisible.

	Jeu 2 (3.3.2)			Jeu 5 (3.3.5)		
	LCF	AG	GS	LCF	AG	GS
Partie Imaginaire	97.36.10 <sup>-2</sup>	99.13.10 <sup>-2</sup>	99.32.10 <sup>-2</sup>	98.78.10 <sup>-2</sup>	98.03.10 <sup>-2</sup>	99.46.10 <sup>-2</sup>
Partie Réelle	99.91.10 <sup>-2</sup>	99.95.10 <sup>-2</sup>	99.98.10 <sup>-2</sup>	99.82.10 <sup>-2</sup>	99.76.10 <sup>-2</sup>	99.98.10 <sup>-2</sup>
Courbe de polarisation	99.61.10 <sup>-2</sup>	89.69.10 <sup>-2</sup>	99.78.10 <sup>-2</sup>	98.49.10 <sup>-2</sup>	80.46.10 <sup>-2</sup>	98.34.10 <sup>-2</sup>

TABLEAU 3.5: Coefficients de détermination

Sur chaque ligne, les différentes valeurs sont comparées entre elles, et apparaissent en couleur pour plus de lisibilité. Plus la couleur d'un résultat se rapproche d'un vert foncé, meilleur il est. Inversement, si la couleur se rapproche du rouge, le résultat fait partie des plus mauvais de la ligne.

Il est important de noter, que même les résultats rouges (les moins bons), ne sont pas des résultats insatisfaisants. En effet, ce ne sont que des comparaisons, ligne à ligne, des valeurs entre elles. Ainsi, des valeurs comme 97.36.10<sup>-2</sup> restent des coefficients de déterminations très honorables car très proche de 1.

Les colonnes présentant le plus de résultats qualifiés de "meilleurs", sont et pour la cellule unique et pour le stack, la colonne intitulée GS. Ainsi, la méthode de régression *Global Search* permet au processus de mise à jour des paramètres d'obtenir un modèle au plus proche des données. En effet, les coefficients de détermination sont, lorsque l'on utilise cette méthode, au plus proche de 1.

De plus, la variabilité des valeurs obtenues pour les paramètres est moins grande avec l'approche *Global Search*. En effet, 100 régressions identiques sur les lieux de Nyquist ont été réalisées avec les deux algorithmes d'optimisation AG et GS sur le Jeu 3. Ces méthodes

de régressions faisant intervenir une partie d'aléatoire, les résultats ne sont pas identiques pour une même simulation. Les variations paramétriques ont ensuite été calculées. Le maximum et la moyenne totale apparaissent dans les tableaux 3.6 et 3.7.

	$C_{dca}$	$C_{dcc}$	$R_{OC}$	$R_{ta}$	$R_{tc}$	$\tau_{Oc}$
Maximum	0.81	0.015	0.13	0.11	0.13	7.43
Moyenne	0.1	0.0031	0.022	0.043	0.049	0.68

TABLEAU 3.6: Variabilité des paramètres sous 100 simulations pour la méthode GS

	$C_{dca}$	$C_{dcc}$	$R_{OC}$	$R_{ta}$	$R_{tc}$	$\tau_{Oc}$
Maximum	8.02	1.23	0.19	0.26	0.26	9.99
Moyenne	1.47	0.42	0.13	0.16	0.16	6.8

TABLEAU 3.7: Variabilité des paramètres sous 100 simulations pour la méthode GA

### 3.5/ VALIDATION DE L'INTÉGRATION DU MODÈLE DYNAMIQUE

#### 3.5.1/ OBSERVATIONS PRÉLIMINAIRES

Le modèle complet est composé d'une partie statique, d'une partie dynamique, et compte 13 paramètres. Comme il est précisé précédemment, nous cherchons à contraindre davantage les régressions. Diminuer le nombre de paramètres permettrait d'atteindre cet objectif.

Regardons donc les contributions du modèle statique et du modèle dynamique. Sur la figure 3.9, sont représentées les tensions à la sortie des modèles statique et dynamique sous la sollicitation durant plus de 1000h du Jeu 3 avec les hypothèses de vieillissement élaborées précédemment. Le trait discontinu, qui correspond à la tension dynamique, oscille aux alentours de 0.

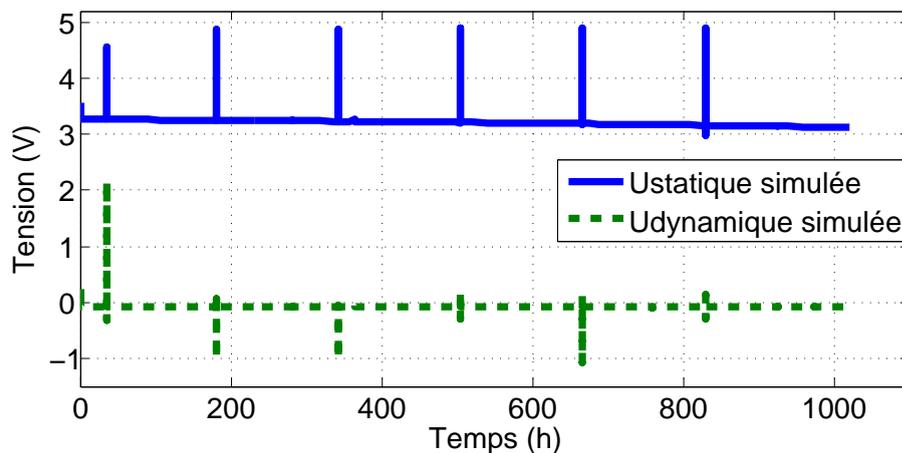


FIGURE 3.9: Tensions statique et dynamique simulées

Le profil du Jeu 3, qui est constant, pourrait laisser croire que l'importance du modèle dynamique est négligeable. Or il existe tout de même sur cet essai des périodes durant lesquelles la sollicitation est variable. Ainsi, l'étude sur l'importance du modèle dynamique dans un cadre aussi simple devrait nous permettre de savoir dans quelle mesure l'intervention du modèle dynamique est nécessaire. En effet, si dans ce cadre, sa prise en compte apporte des précisions que nous considérons utiles, il n'est pas envisageable de s'en passer.

Le modèle dynamique étant construit en convention récepteur, la tension du modèle global est la tension du modèle statique à laquelle on a soustrait la tension du modèle dynamique. La figure 3.10 présente sur une fenêtre de 60s les réponses du modèle global, ainsi que les composantes statique et dynamique sous une sollicitation en courant variable. Cette figure permet d'observer que la contribution du modèle dynamique semble peu importante, mais est tout de même existante.

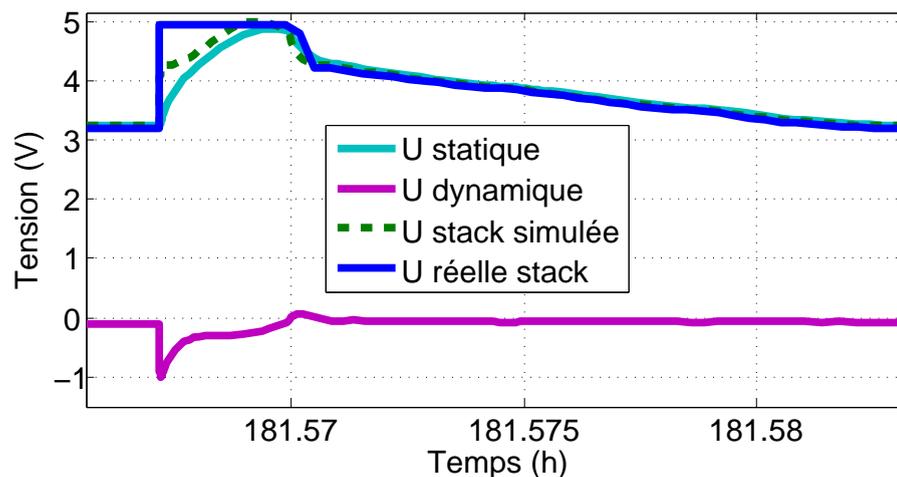


FIGURE 3.10: Tensions statique et dynamique simulées

### 3.5.2/ CAS DE FIGURE ENVISAGÉS

Il est donc nécessaire d'essayer d'évaluer l'importance du modèle dynamique de manière à valider sa suppression ou sa présence au sein du modèle complet.

Rappelons tout d'abord dans quelle mesure le modèle dynamique intervient au sein de cette modélisation. Les mesures de spectroscopie d'impédances sont utilisées pour les régressions du modèle dynamique. Cependant, certains paramètres ainsi définis sont utilisés pour la mise à jour paramétrique statique. Le modèle dynamique intervient ensuite lors de la simulation temporelle du modèle complet.

Il est donc possible d'évaluer l'importance du modèle dynamique en deux volets :

- son utilité pour la mise à jour paramétrique ;
- son utilité dans la simulation temporelle.

Sont donc proposés trois tests. Tout d'abord la partie dynamique est utilisée dans la mise à jour paramétrique statique. Dans la simulation temporelle les bloc de décomposition et recombinaison de courant ainsi que le modèle dynamique sont enlevés (Test 2).

Ensuite, la partie dynamique est complètement oubliée. La mise à jour paramétrique

du modèle statique se fait en une seule étape : la régression se fait sur l'équation 1.13 et la courbe de polarisation (Test 1).

Pour ces deux tests, le modèle de simulation peut être schématisé comme présenté sur la figure 3.11.

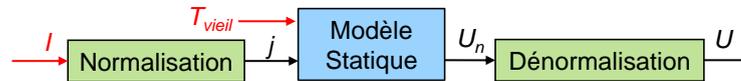


FIGURE 3.11: Modèle de simulation avec uniquement la partie statique

Finalement, le test de référence qui ne fait intervenir aucun changement pour la procédure de mise à jour paramétrique (Section 2.1) et le modèle de simulation (Figure 1.10) ; il permet de savoir si la suppression du modèle dynamique apporte des erreurs importantes.

### 3.5.3/ RÉSULTATS DES SIMULATIONS

Dans cette partie le test utilisé comme référence pour les comparaisons est la simulation sans altération. C'est à dire la simulation faite avec les choix considérés dans le tableau 3.4 et avec le modèle et la mise à jour paramétrique comme présentés dans le chapitre 2.

Ainsi dans la suite de cette partie sont comparés le Test 1 et le Test 2 face au Test de référence, mais aussi face à la mesure que le modèle est supposé estimer.

Les simulations sans modèle dynamique sont plus rapides. En effet, la suppression du filtre passe bas permet à Simulink de garder un pas de calcul constant. Cela nous empêche cependant de faire une comparaison quantitative d'erreur, en effet, les simulations ne sont pas comparables car la mesure d'erreur ne se fait pas sur le même nombre de points. Le gain apporté sur le coût de simulation reste cependant limité puisque la diminution du temps de simulation est de moins d'une seconde.

Regardons tout d'abord les résultats de la simulation d'un point de vue macro en regardant globalement les 1000h simulées. La figure 3.12 présente la comparaison de ces test sur l'intégralité des données. La différence de performance entre le Test 2 et le Test de référence semble inexistante. Le Test 1 n'utilise que le modèle statique pour la simulation mais aussi pour la mise à jour paramétrique. La différence ici est flagrante, la tendance n'est pas bonne est l'erreur est importante.

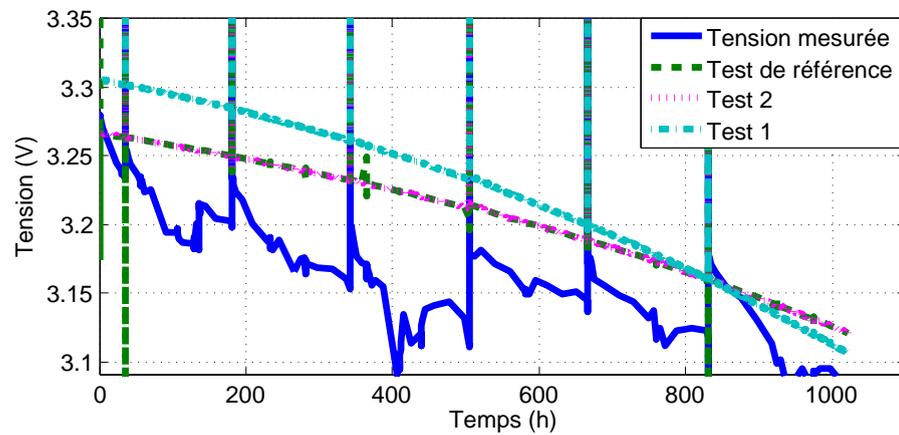


FIGURE 3.12: Comparaison des différents tests de simulation avec la mesure

On constate donc que le modèle dynamique permet d'obtenir de bons résultats sur la mise à jour du modèle statique. Afin de savoir si son utilité se résume à cela, la figure 3.13 présente les simulations des tests faites sur une période de temps de l'ordre de la minute.

Le Test de référence nous servant toujours de point de comparaison, on peut s'apercevoir que les deux autres courbes simulées ne suivent pas la tendance de la mesure. Comme on peut le voir la simulation correspondant au Test de référence est la plus proche de la mesure. Les deux autres tests ne présentent pas assez de points pour suivre exactement les mesures. Cela est certainement dû à la suppression du filtre passe-bas qui ne permet pas de détecter des sollicitations dynamiques et donc de réduire le pas de calcul là où cela serait nécessaire.

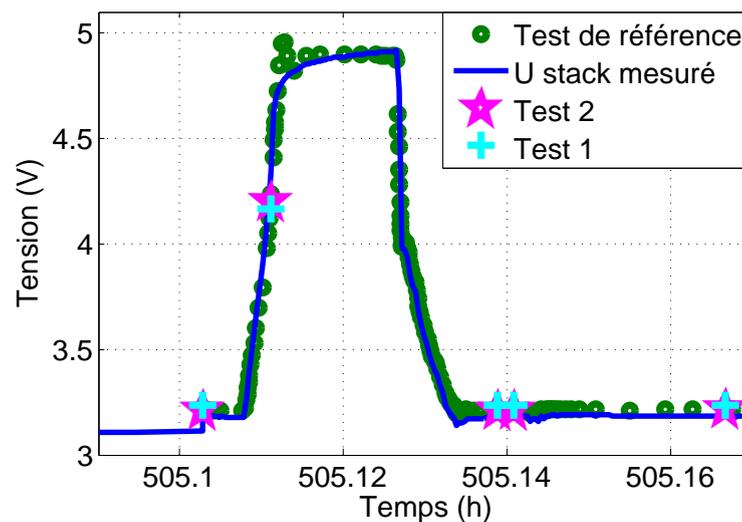


FIGURE 3.13: Comparaison sous une sollicitation variable des différents tests

Lorsque le modèle statique est utilisé seul pour simuler le comportement de la pile, le résultat n'est pas satisfaisant. En effet, la portion de 60s, présentée figure 3.13, fait apparaître une tendance qui n'est pas du tout reproduite par le modèle face à la mesure qui

avait été faite, contrairement à la simulation nommée standard. Le bloc de décomposition et le modèle dynamique permet d'avoir une réponse du modèle plus proche des données sous une sollicitation dynamique.

Il pourrait sembler qu'un manque de précision d'une soixantaine de secondes est une concession envisageable face à l'ordre de grandeur de simulation qui est du millier d'heures. Cependant, cette faiblesse n'est présente ici que sur cette courte fenêtre de temps car la sollicitation en courant n'est pas véritablement variable le reste du temps. Cette limitation est ainsi trop importante. En effet, une sollicitation constante n'est pas une hypothèse réaliste que nous souhaitons imposer au modèle car celui-ci, avec l'ajout du modèle dynamique est capable de faire face à une sollicitation variable.

Le gain apporté par la suppression du modèle dynamique, n'est pas assez important compte tenu des concessions que cela nous amènerait à faire.

Cette partie nous permet de valider l'utilité du modèle dynamique et ainsi de démontrer l'aspect complémentaire qu'il présente pour la précision du modèle dans sa tâche de reproduction du comportement réel.

Ainsi, grâce aux choix faits concernant les paramètres et le maintien du modèle dynamique, il est possible de valider le modèle pour l'estimation du comportement vieillissant d'une pile.

## 3.6/ VALIDATION DE LA CAPACITÉ DU MODÈLE À ESTIMER LE VIEILLISSEMENT

### 3.6.1/ PROTOCOLE

L'utilité du modèle dynamique ayant été confirmée, l'option choisie pour reproduire le comportement vieillissant du stack est celle du modèle complet.

Précédemment, des décisions ont été prises concernant les évolutions temporelles des paramètres. Certains sont fixes, d'autres ont leur monotonie imposée. Les paramètres restants sont libres. Le vieillissement est considéré comme apparaissant dans la tension [37].

Ainsi, la validation du modèle en mode vieillissement doit être effectuée. Pour cela, nous continuons à travailler spécifiquement avec le Jeu 3 puisque c'est sur ce jeu de données que sont basées toute les analyses précédentes.

Afin d'utiliser le modèle en mode vieillissement, nous considérons toutes les données de caractérisations connues à tous les temps. C'est ainsi qu'à chaque caractérisation les processus de mise à jour paramétrique sont effectués. Pour la première, un point de départ proche du résultat estimé est donné et une régression complète est faite sur tous les paramètres. Pour les suivantes, certains paramètres sont imposés à la même valeur que précédemment. D'autres voient leur tendance contrainte par les résultats de la caractérisation précédente, laquelle est, pour les autres paramètres uniquement, le point de départ de la régression.

Les erreurs obtenues lors de ces procédures de mise à jour paramétriques sont récapitulées tableau 3.8 pour la partie statique et tableau 3.9 pour la partie dynamique. Dans ces tableaux figurent les moyennes des erreurs obtenues sur tous les résultats des régressions réalisées avec toutes les caractérisations disponibles. Ces erreurs restent très faibles avec

des coefficients d'ajustement très proches de 1. Ainsi, contraindre les problèmes d'optimisation n'a pas empêché les régressions de trouver des solutions satisfaisantes.

Erreur moyenne	
RMSE (V)	$4.91 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.996

TABLEAU 3.8: Moyenne des erreurs obtenues sur les courbes de polarisation

	Partie imaginaire	Partie réelle
RMSE	$3.09 \cdot 10^{-3}$	$2.74 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.99	0.9993

TABLEAU 3.9: Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles des régressions sur les plans de Nyquist

Les ensembles de paramètres obtenus permettent au final d'obtenir des fonctions exponentielles qui sont utilisées en lieu et place des valeurs des paramètres (Figure 3.14).

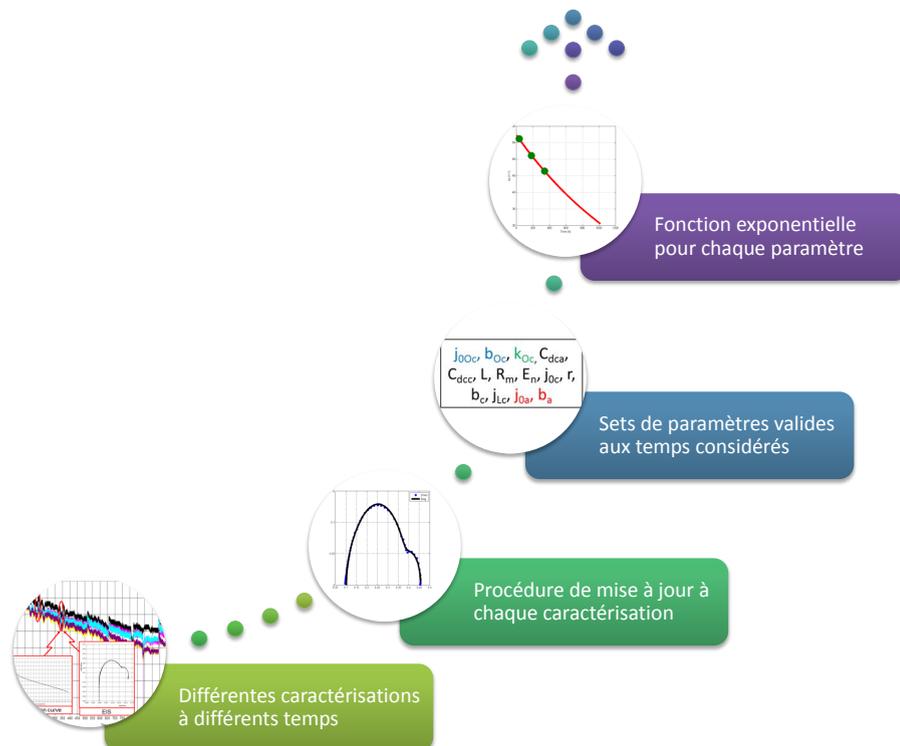


FIGURE 3.14: Protocole d'initialisation des fonctions paramétriques du modèle

## 3.6.2/ ÉVOLUTION TEMPORELLE DES PARAMÈTRES

Le verrou sur lequel s'est concentré ce chapitre jusque là est le nombre de paramètres trop élevé. En effet, celui-ci amène des minima locaux qui sont atteints lors des régressions et qui ne permettent pas d'avoir une évolution temporelle claire des paramètres.

Ainsi, après réduction du nombre de paramètres à mettre à jour sur les caractérisations autres que la première, et la diminution du nombre de degrés de liberté du problème à optimiser, il est intéressant de regarder les évolutions temporelles des paramètres.

Suite aux décisions prises, les paramètres dynamiques fixés sont : les capacités de double couche anodique et cathodique  $C_{dca}$  et  $C_{dcc}$ , l'inductance des connecteurs  $L$  ainsi que le sous paramètre de la résistance équivalente de l'impédance de diffusion convection  $j_{0Oc}$ . Du point de vue du modèle statique, les paramètres fixés : la densité de courant d'échange à l'anode  $j_{0a}$ , la densité de courant limite à la cathode  $j_{Lc}$  ainsi que le potentiel de Nernst  $E_n$ .

Le tableau 3.10 présente les valeurs obtenues à la première régression pour les paramètres qui sont imposés, constants dans les suivantes. Pratiquement, cela est réalisable en contraignant la borne inférieure et supérieure atteignable par le paramètre lors de la réalisation de l'algorithme *Global search*.

Paramètre	Valeurs obtenues	
$C_{dca}$	0.033	$[F/cm^2]$
$C_{dcc}$	0.032	$[F/cm^2]$
$E_n$	1	$[V]$
$j_{0a}$	0.271	$[A/cm^2]$
$j_{0Oc}$	0.25	$[A/cm^2]$
$j_{Lc}$	1.78	$[A/cm^2]$
$L$	$1.65 \cdot 10^{-6}$	$[H.cm^2]$

TABLEAU 3.10: Valeurs des paramètres fixés

Tous les autres paramètres évoluent avec le temps. Ceux-ci peuvent avoir une tendance imposée ou être laissés libres comme décidé en section 3.4.3. Ainsi les problèmes d'optimisations sont plus contraints, et l'approche présente une orientation hybride. La figure 3.15 présente leurs évolutions temporelles ainsi que la régression exponentielle donnant une fonction utilisée en lieu et place de valeurs. L'erreur entre la fonction et les valeurs est quant à elle présentée tableau 3.11.

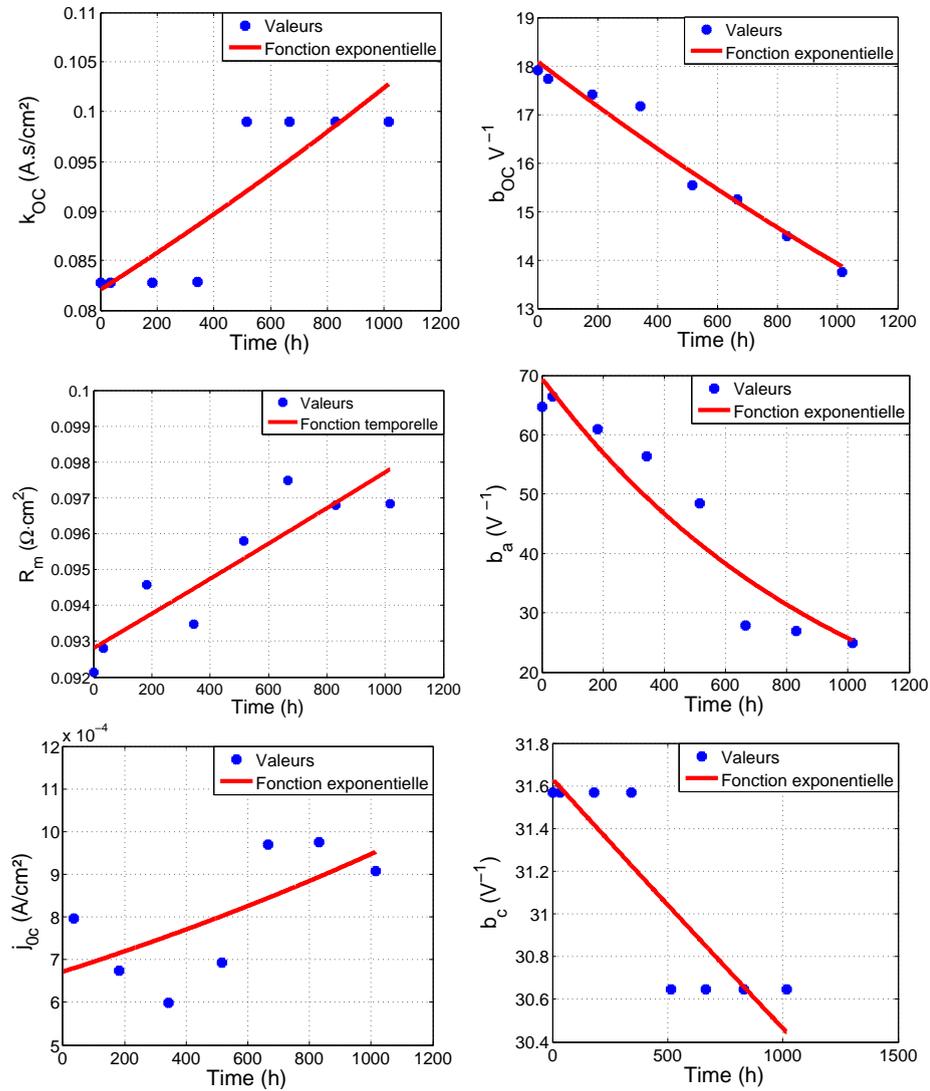


FIGURE 3.15: Evolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle

Paramètre	RMSE
$b_{Oc}$	0.9
$k_{Oc}$	$1.14.10^{-14}$
$R_m$	$4.56E-3$
$b_a$	5
$b_c$	0.2
$j_{0c}$	$9.8.10^{-5}$

TABEAU 3.11: Erreurs entre la fonction exponentielle et les valeurs paramétriques

Les évolutions temporelles de certains paramètres sont satisfaisantes contrairement à d'autres. Le paramètre  $k_{OC}$  présente finalement le même aspect que précédemment (Section 3.2.2) avec deux paliers. On peut se demander si ce palier ne représente pas finalement

un phénomène physique qui se serait produit et qui aurait en conséquence imposé brusquement le changement de sa valeur ainsi que celle de  $b_c$  qui présente aussi un palier. Le paramètre  $j_{0c}$  ne présente pas non plus de tendance cohérente avec une régression exponentielle. Tous les autres paramètres présentent quant à eux une tendance pratiquement linéaire

Le problème initial n'est donc pas totalement résolu : certaines évolutions temporelles de paramètres restent trop aléatoire. Cependant, des tendances claires et approchables, grâce à une fonction prédéfinie, apparaissent pour d'autres paramètres.

### 3.6.3/ SIMULATION DU COMPORTEMENT VIEILLISSANT

Concentrons nous ensuite sur la réponse du modèle global sous la même sollicitation que lors de la réalisation de l'expérimentation. Pour cela, les fonctions exponentielles obtenues précédemment sont utilisées pour obtenir les valeurs des paramètres en fonction du temps.

La figure 3.16 présente la comparaison entre la simulation en traits discontinus et la mesure en traits pleins. Il est clair que la tendance est bien suivie et le comportement vieillissant est bien reproduit.

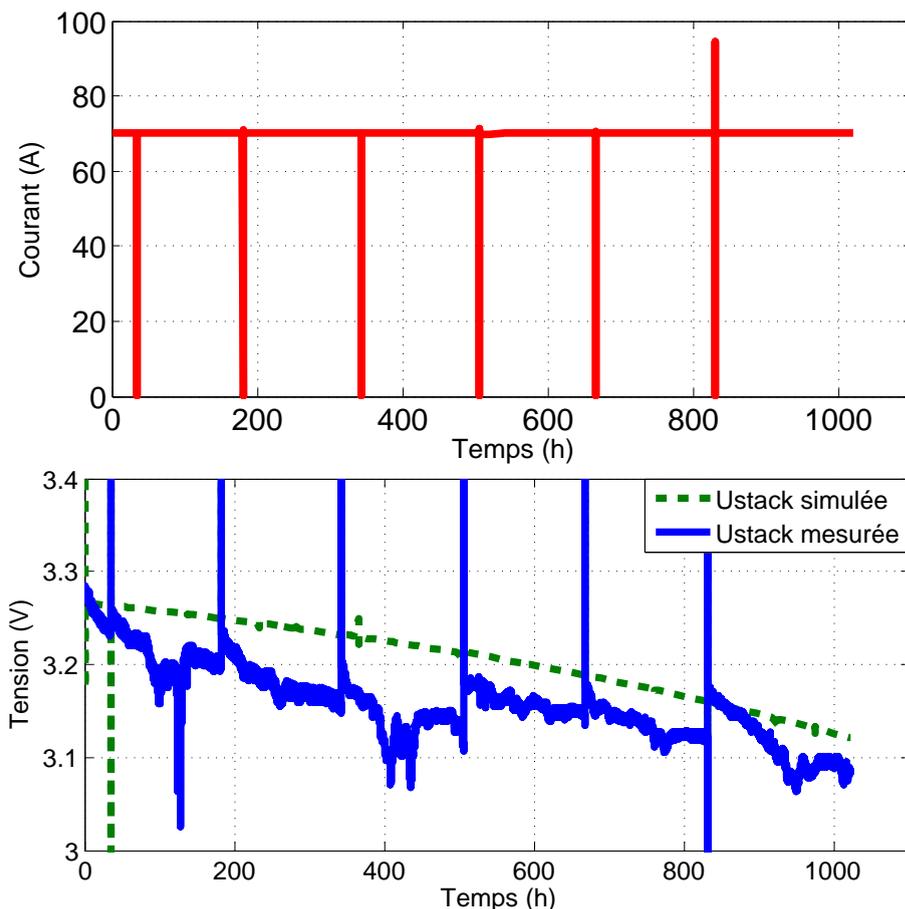


FIGURE 3.16: Tension stack simulée avec vieillissement et mesurée

La partie du comportement que le modèle dynamique nous permet d'estimer est assurée

sur toutes les périodes présentant une sollicitation de courant variable. En effet, sur la figure 3.17, une portion de l'ordre de la minute prise aux alentours de 830h le confirme. Il en est de même aux alentours de 505h comme la figure de la simulation standard 3.10 nous le confirme.

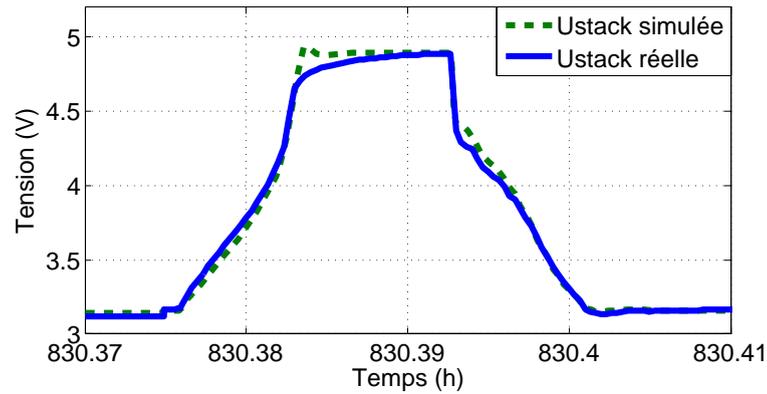


FIGURE 3.17: Comparaison de la simulation du modèle et de la mesure sur une faible période avec une sollicitation variable à  $t = 830h$

Au final cette simulation de vieillissement est très satisfaisante. Cela est confirmé par le calcul d'erreur entre la mesure et la simulation, qui atteint sur la totalité de l'exercice une erreur MAPE de 4.35% et RMSE de 0.35V. Sur la fin de cette simulation, soit sur les 100 dernières heures, l'erreur MAPE est de 1.32% et RMSE de 0.04V.

### 3.7/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons constaté que le modèle de comportement instantané présenté dans le chapitre précédent n'était pas prêt à évoluer pour l'estimation du vieillissement. En effet, la représentation de l'évolution temporelle des paramètres montre que trop d'entre eux n'ont pas d'évolution claire avec le temps.

Les problèmes d'optimisation présentés dans le chapitre 2 sont rencontrés lors des processus de mise à jour des paramètres. La quantité de minima locaux atteints lors de ces régressions est certainement la cause de ces évolutions aléatoires. Ainsi, dans la première partie de ce chapitre, nous cherchons à réduire le nombre de paramètres obtenus à chaque étape de régression afin de contraindre les problèmes d'optimisation et donc de limiter les minima locaux.

Pour cela, une analyse de la variation paramétrique rentre en jeu. Sur cinq jeux de données différents, et avec les trois méthodes de régressions proposées, les monotonies des valeurs prises par les paramètres sont comparées entre elles. L'analyse de variation paramétrique rapprochée avec l'analyse ANOVA du chapitre précédent (Section 2.5) permet de prendre des décisions quant aux paramètres que nous fixons et ceux auxquels nous imposons une tendance.

L'intérêt du modèle dynamique est démontré, cela permet de justifier la complexité qu'il apporte.

Les paramètres sont représentés par des fonctions temporelles qui sont injectées dans la simulation de manière à valider le modèle sur un jeu de données. Ainsi, le modèle est capable de reproduire le comportement vieillissant d'un stack. La dernière partie de ce chapitre nous permet de démontrer que le modèle n'est pas uniquement capable de simuler le comportement instantané mais aussi le comportement vieillissant, et donc qu'il est cohérent d'envisager son évolution pour la prédiction.

Le modèle utilisé à des fins de vieillissement est performant et prometteur pour l'introduction de la prédiction. En effet, dans tout ce chapitre, l'intégralité des données est connue afin de permettre au modèle de reproduire le comportement vieillissant d'un stack. Et si nous ne connaissions pas l'intégralité des données, le modèle serait-il capable de prédire le comportement avec fiabilité ?

# PRÉDICTION DU COMPORTEMENT VIEILLISSANT

*Le modèle proposé et étudié dans les chapitres précédents est utilisé à des fins prédictives. L'approche proposée permet une prédiction du comportement de la pile tout à fait satisfaisante. La mise en place en ligne d'un tel algorithme est discutée afin de démontrer sa faisabilité.*

## Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>108</b>
<b>4.2</b>	<b>Prédiction</b>	<b>108</b>
4.2.1	Validation de la prédiction sur un essai de longue durée avec oscillation de courant	109
4.2.2	Validation de la prédiction sur un essai de longue durée avec cycles	115
4.2.3	Conclusion	122
<b>4.3</b>	<b>Mise en ligne de l'implantation sur système réel</b>	<b>124</b>
4.3.1	Architecture	125
4.3.2	Initialisation transposée	126
4.3.3	Spécification du minimum de données nécessaires	129
<b>4.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>136</b>

---

---

## 4.1/ INTRODUCTION

Le chapitre précédent nous a permis de déposer les bases permettant au modèle de simuler le comportement vieillissant de manière satisfaisante. Ainsi, nous pouvons maintenant envisager le pronostic, soit la prédiction du comportement pour une pile PEMFC.

Dans le chapitre 3 l'intégralité des données sont utilisées pour la simulation du comportement sur une longue durée. Or cela ne correspond pas à une approche prédictive puisque nous reproduisons le comportement à des périodes ou nous avons utilisé des données.

L'objectif face au verrou scientifique est de n'utiliser qu'un minimum de données pour obtenir une prédiction du comportement de la pile. La première partie de ce chapitre traite de l'évaluation des prédictions. Pour ce faire, des jeux de données sont utilisés.

Le cadre de l'étude est un projet européen qui a pour finalité l'implantation de cet algorithme de prédiction au sein d'un système industriel. Ainsi, la seconde partie de ce chapitre se concentre sur la prise en compte des contraintes d'implémentations de manière à étudier les limites de l'approche proposée face aux exigences d'une application réelle.

Ainsi ce chapitre s'articule en deux axes autour de deux verrous. Le premier scientifique présente la capacité prédictive du modèle. Le second axe parle des contraintes de la mise en place de l'approche prédictive au sein d'un système industriel réel.

## 4.2/ PRÉDICTION

Dans cette section, la capacité du modèle à prédire le comportement de la pile à des temps postérieurs à son apprentissage est exposée.

Deux jeux de données complets sont utilisés afin d'évaluer la performance du modèle pour l'aspect prédictif.

L'utilisation de chacun des deux jeux de données est traitée sous différents aspects afin de valider l'approche de pronostic :

- La taille de la base d'apprentissage nécessaire est étudiée. Pour cela, nous prenons un peu d'avance, en effet, des résultats d'erreur sur la prédiction du comportement sont présentés pour comparer les tailles d'apprentissage. En effet, il n'est pas possible de présenter les résultats de prédiction pour chacun des cas envisagés, nous le présenterons donc une fois le nombre de caractérisations apprises est choisis. Ce point permet d'évaluer le taille de la base d'apprentissage qui nous permet d'obtenir le meilleur compromis prédiction / taille d'apprentissage.
- Ensuite, l'identification des modèles exponentiels des paramètres est étudié, cet aspect découlant directement du nombre de caractérisations apprises. Cet aspect est un objectif secondaire, les travaux étant d'orientation hybride, car cette partie est au cœur de l'apprentissage.
- Finalement, la prédiction du comportement obtenue grâce aux points précédents est étudiée. Nous analysons la qualité de la prédiction obtenue avec le nombre de caractérisations choisies pour l'apprentissage. Ce dernier point permet de spécifier dans quelle mesure

la prédiction est satisfaisante, grâce à l'évaluation de la bonne prédiction du comportement et des courbes de polarisation.

#### 4.2.1/ VALIDATION DE LA PRÉDICTION SUR UN ESSAI DE LONGUE DURÉE AVEC OSCILLATION DE COURANT

La première validation se fait grâce au Jeu 3. Ce jeu de données a été le fil conducteur tout au long de ces travaux, mais est aussi légèrement plus complexe qu'un essai sous sollicitation constante. Le stack étant soumis à un courant avec de faibles mais rapides oscillations ( $70A$  avec  $+/- 7A$  à  $5kHz$ ).

##### 4.2.1.1/ NOMBRE DE CARACTÉRISATIONS À APPRENDRE

La prédiction du comportement étant notre principal intérêt, nous cherchons à trouver le juste équilibre entre qualité de la prédiction du comportement et nombre de caractérisations apprises. La forme choisie pour représenter le vieillissement des paramètres est une forme exponentielle composée de deux sous-paramètres (Chapitre 3). Ainsi, il n'est possible de trouver leurs valeurs qu'à partir de deux caractérisations au minimum.

Les fonctions exponentielles des paramètres sont obtenues grâce à une identification réalisée sur les valeurs obtenues aux caractérisations considérées. Ces fonctions sont utilisées en lieu et place des valeurs des paramètres dans le modèle qui est ainsi simulé. Ainsi, seulement les données des caractérisations sont utilisées; entre chacune d'elles aucune mesure n'est prise en compte.

Les simulations réalisées sont ici au nombre de 7. Cela correspond aux possibilités d'apprentissage. En effet, le nombre de caractérisations utilisées est compris entre 2 et 8. Dans chacun de ces cas, les identifications des fonctions exponentielle sont réalisées uniquement grâce aux caractérisations considérées comme disponibles, afin de pouvoir réaliser la simulation du modèle global vieillissant, sous la sollicitation mesurée lors de l'expérimentation.

L'objectif prioritaire de l'approche de pronostic proposée est la prédiction du comportement de la pile, qui est représentée par la tension. Nous sommes donc obligés d'anticiper légèrement l'analyse critique concernant la prédiction du comportement, laquelle sera décrite en détail section 4.2.1.3, ceci afin de comparer les résultats obtenus. En effet, il n'est pas possible ici de présenter en détail les résultats de ces 7 simulations.

Ainsi, est prise en considération l'erreur entre la prédiction et la mesure de la tension du stack sur une fenêtre définie. L'objectif étant la prédiction de fin de vie; l'essai expérimental allant jusque  $1016h$ , l'erreur a été calculée entre  $900h$  et cette fin de mesure. Ces calculs d'erreurs sont utilisés ici afin de comparer les quantités de caractérisations apprises dans le but de sélectionner l'option permettant le meilleur compromis apprentissage-justesse.

Les étapes suivantes sont donc réalisées pour chaque ligne du tableau 4.1 :

- les caractérisations disponibles sont répertoriées dans la première colonne;
- les procédures de mise à jour paramétriques sont réalisées sur ces caractérisations (section 2.2);
- les valeurs des paramètres obtenues sont utilisées afin de faire une identification des fonctions exponentielles (eq. (3.1));
- ces fonctions exponentielles sont utilisées en lieu et place des paramètres (Figure 3.14)

- dans le modèle global (Figure 3.1) ;
- le modèle global est simulé sous la sollicitation subie par le stack lors de l'expérimental ;
  - les erreurs sur la fin de l'essai (entre 900h et 1016h d'âge d'essai pour le stack) sont calculées et reportées dans les deux dernières colonnes.

Caractérisations apprises	MAPE (%)	RMSE (V)
0h et 35h (2)	21,9	0.68
0h, 35h et 182h (3)	.92	0.03
0h, 35h, 182h et 343h (4)	0.96	0.03
0h, 35h, 182h, 343h et 515h (5)	0.96	0.03
0h, 35h, 182h, 343h, 515h et 666h (6)	1	0.03
0h, 35h, 182h, 343h, 515h, 666h et 830h (7)	1.3	0.04
0h, 35h, 182h, 343h, 515h, 666h, 830h et 1016h (8)	1.3	0.04

TABLEAU 4.1: Erreur entre la tension simulée et la tension mesurée sur la fenêtre comprise entre 900h et 1016h d'opération du stack (fin de l'essai)

Ce tableau 4.1 permet de comparer la qualité de la prédiction suivant l'apprentissage, et donc d'avoir un œil critique sur l'amélioration qu'amène l'augmentation de l'ensemble d'apprentissage.

Rappelons que l'idée est ici d'utiliser la qualité de la prédiction pour comparer les résultats. La critique de la prédiction du comportement est faite plus tard en section 4.2.1.3.

L'évolution des erreurs avec l'apprentissage est surprenante. En effet, nous pouvions nous attendre à une évolution décroissante de l'erreur en fonction du nombre de caractérisations utilisées pour le fitting exponentiel. Or, la tendance se dégageant n'est pas aussi évidente. En effet, lorsque, deux caractérisations uniquement sont apprises, les résultats sont catastrophiques. Ceci ne paraît pas aberrant. La dispersion des erreurs étant amplifiée : les valeurs des paramètres obtenues peuvent relever d'une erreur de mesure ou d'une erreur de régression. Ainsi en principe plus la quantité de valeurs de paramètres prises est grande moins les risques d'avoir une mauvaise tendance sont élevés.

Lorsque trois caractérisations sont utilisées, les résultats présentent les valeurs d'erreur minimales. Au delà de quatre caractérisations utilisées, les résultats se stabilisent. Lorsque l'on dépasse les six caractérisations apprises, la qualité de la prédiction diminue. La variation est tout de même particulièrement faible. Ainsi, à partir d'un apprentissage de trois caractérisations la prédiction est suffisamment satisfaisante, puisqu'au final cela présente un bon compromis quantité d'apprentissage / qualité des résultats.

Si lors de cet essai, un vieillissement brutal de la pile s'était produit, l'ajout d'une caractérisation pour identifier les fonctions exponentielles aurait présenté un plus grand intérêt. Dans ce cas, les erreurs auraient diminué avec le nombre de caractérisations utilisées pour l'apprentissage.

Finalement, uniquement trois caractérisations sont utilisées pour réaliser la prédiction du Jeu 3. L'aperçu des erreurs de ce cas visible tableau 4.1 nous permet d'ores et déjà de savoir que la prédiction du comportement est satisfaisante.

## 4.2.1.2/ CRITIQUE DE L'IDENTIFICATION DES FONCTIONS EXPONENTIELLES

Nous avons démontré qu'avec l'utilisation de seulement trois caractérisations, la prédiction est honorable. Regardons dans un premier temps, l'implication directe du choix du nombre de caractérisations qui est l'estimation des valeurs paramétriques.

Les valeurs de chaque paramètre aux temps  $0h$ ,  $35h$  et  $182h$  sont utilisées afin d'identifier la fonction exponentielle qui en décrit l'évolution. Le modèle à partir de ce moment fonctionne sans usage d'autres données.

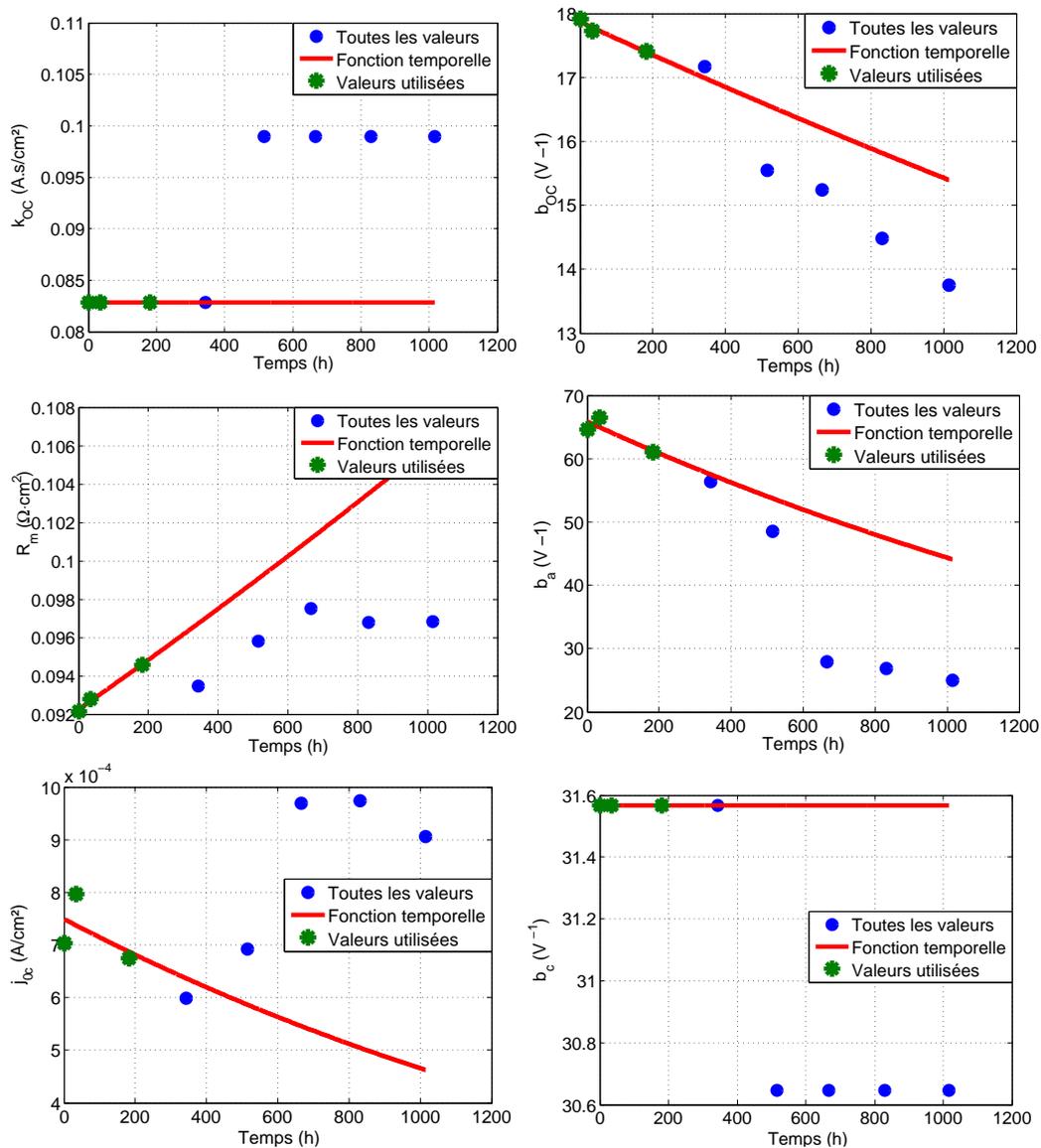


FIGURE 4.1: Évolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle (sur les trois premières valeurs) pour le Jeu 3

Nous connaissons l'intégralité des données, ce qui permet de comparer les résultats obtenus grâce aux régressions et ceux estimés grâce aux fonctions exponentielles.

La figure 4.1 présente les fonctions obtenues pour les paramètres ainsi que tous les points obtenus à l'aide des phases de mise à jour paramétrique et ceux pris pour l'obtention de l'exponentielle.

La majorité du temps, la fonction temporelle utilisée pour modéliser le paramètre est cohérente en tendance. En effet, pour  $b_{Oc}$ , la tendance que prennent les valeurs est bien respectée, mais leurs estimations grâce à la fonction exponentielle divergent légèrement de celles obtenues précédemment. Il en est de même pour  $b_a$  et  $R_m$ . Pour d'autres paramètres, l'estimation s'éloigne réellement des valeurs atteintes, en effet,  $b_c$  et  $k_{Oc}$  présentent toujours des aspects de pallier, qu'il n'est pas possible d'anticiper avec les données prises en compte, mais qui au final, semblent se compenser. La densité de courant d'échange à la cathode  $j_{0c}$  ne présente aucune variation claire avec le vieillissement. L'estimation des valeurs obtenues grâce aux fonctions exponentielles présente une différence avec les valeurs estimées avec les données des caractérisations suivantes (Tableau 4.2).

Paramètre	Erreur MAPE (%)
$b_{Oc}$	4.4
$k_{Oc}$	8.6
$R_m$	3.4
$b_a$	31.5
$b_c$	1.5
$j_{0c}$	22

TABLEAU 4.2: Erreurs MAPE calculées entre les estimations des valeurs paramétriques lors des procédures de mise à jour et celles obtenues grâce aux fonctions exponentielles

Cet aspect qui n'est que la préoccupation mineure, confirme bien que l'approche proposée prend un angle hybride. En effet, l'estimation des valeurs paramétriques n'est pas pas idéale. Il est possible que le sens physique renfermé par les paramètres soit, a priori, légèrement perdu de vue. Cependant, si l'approche est capable de proposer une prédiction du comportement satisfaisante, et donc de répondre à nos attentes, le contrat reste rempli.

#### 4.2.1.3/ PRÉDICTION DU COMPORTEMENT

Le point le plus important dans cet étude de résultats est l'analyse de la qualité de la prédiction du comportement. Cette préoccupation est le réel cœur de la problématique à laquelle ces travaux font face.

Validons le fait que la prédiction du comportement avec l'apprentissage des trois premières caractérisations est satisfaisante comme l'aperçu section 4.2.1.1 le laissait présager.

Le calcul de l'erreur entre la mesure et la simulation sur la fin de la prédiction (entre 900h et 1016h), est de 0.92% (MAPE) et 0.03V (RMSE). Ce qui est particulièrement bon. Cela est confirmé par l'observation de la figure 4.2. Cette dernière présente la sortie du modèle et du stack qui ont été soumis à la même sollicitation sur la période donnant ces résultats d'erreur (entre 900h et 1016h).

La prédiction de comportement est particulièrement bonne sur cette fin d'essai. Cet aspect est important puisque la tolérance d'erreur sur la prédiction diminue généralement avec le temps. Sur la fin de l'exercice cette erreur est de moins d'un pour cent.

Regardons aussi l'intégralité de la prédiction présentée figure 4.3 dont les erreurs sont en moyenne de 1.05% (MAPE) et 0.08V (RMSE).

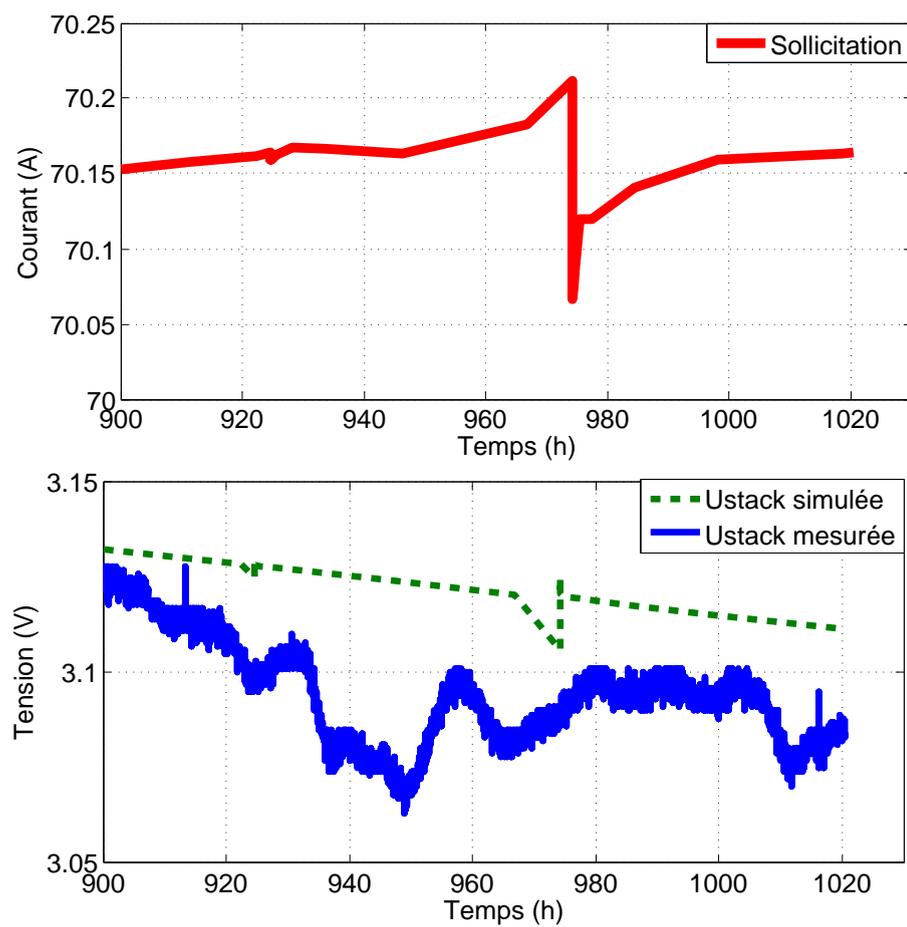


FIGURE 4.2: Prédiction (obtenue grâce à trois caractérisations apprises) et mesure sur la fin de la prédiction

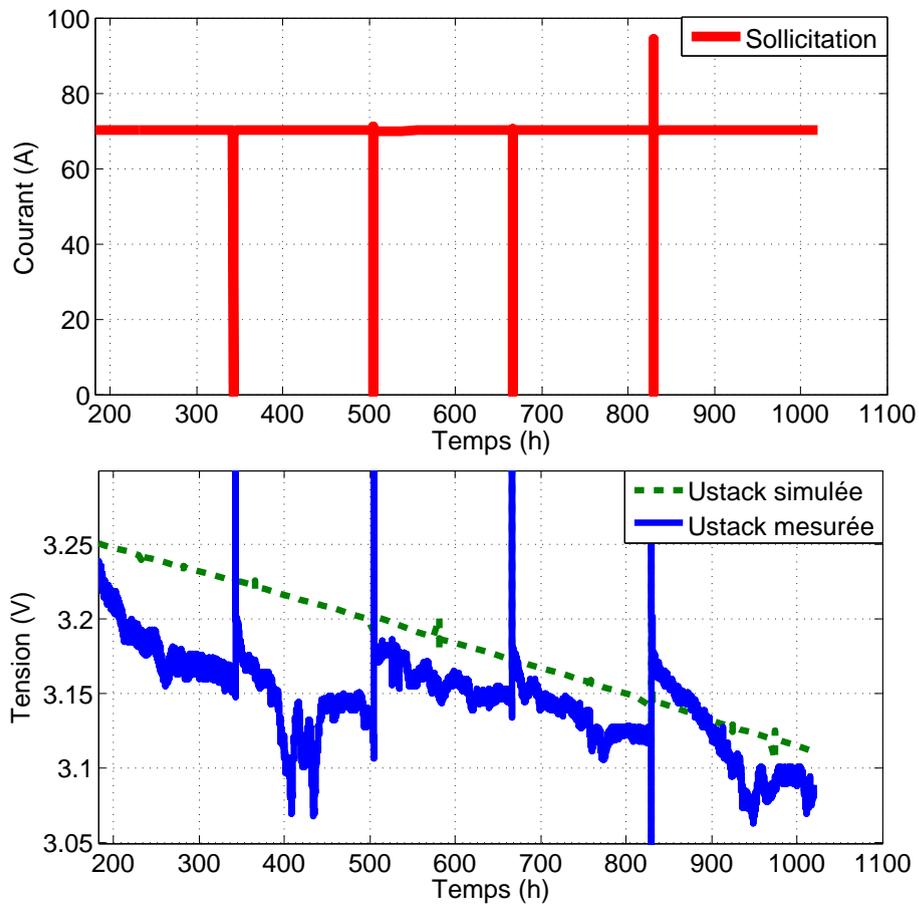


FIGURE 4.3: Prédiction et mesure sur la totalité de la prédiction

L'estimation des paramètres permet de prédire la courbe de polarisation qui serait obtenue au temps considéré grâce au modèle statique. La figure 4.4 présente la prédiction de la huitième courbe de polarisation à titre d'illustration.

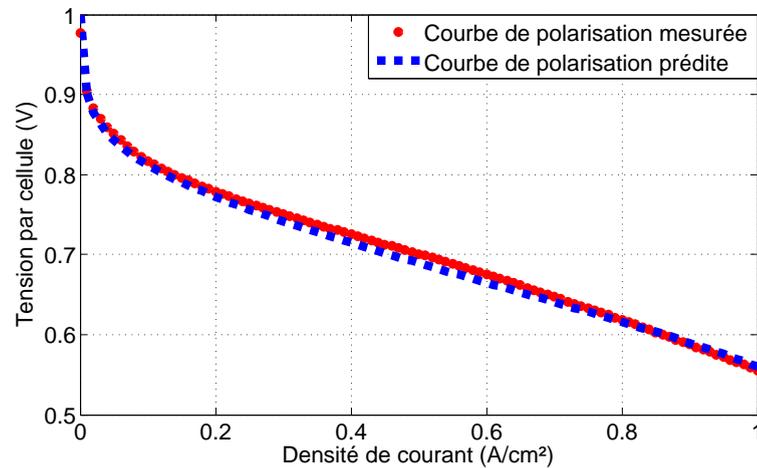


FIGURE 4.4: Prédiction de la huitième et dernière courbe de polarisation faite à 1016h d'essais

Courbe de polarisation	MAPE (%)	$R^2$
4 (343h)	0.25	0.998
5 (515h)	0.3	0.999
6 (666h)	0.35	0.999
7 (830h)	0.76	0.995
8 (1016h)	0.99	0.992

TABLEAU 4.3: Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée

Ce résultat est bon pour la prédiction de toutes les courbes de polarisations disponibles (Tableau 4.3). Pour la prédiction de la quatrième courbe de polarisation se produisant à 343h, l'erreur MAPE est de 0.25% avec un coefficient d'ajustement de 0.998. Pour la dernière, soit la huitième qui se produit à 1016h, l'erreur MAPE est de 0.99% avec un coefficient d'ajustement de 0.992.

Ainsi, même si la dispersion des erreurs sur prédiction des courbes de polarisation augmente avec le temps, l'amplitude des erreurs reste vraiment acceptable, avec un coefficient d'ajustement compris entre 0.99 et 1.

L'utilisation de ce modèle pour la prédiction avec ce jeu de données est très satisfaisante. L'erreur moyenne sur la totalité de la prédiction est aux alentours de 1%, elle est encore moindre sur la fin. La prédiction n'a nécessité que trois caractérisations, l'apprentissage étant réalisé entre le temps 0 et le temps 182 pour une prédiction de plus de 1000h.

#### 4.2.2/ VALIDATION DE LA PRÉDICTION SUR UN ESSAI DE LONGUE DURÉE AVEC CYCLES

L'utilisation d'un seul jeu de données ne nous permet pas d'affirmer que le modèle est capable de prédire le comportement de manière ferme. C'est ainsi que nous proposons dans cette section le même procédé que celui décrit précédemment mais avec le Jeu 2. Ici, le

stack a subi des cycles de courant répétés toutes les 24h.

Dans cette section sont évalués dans cet ordre :

- la qualité de la procédure de mise à jour paramétrique réalisée sur toutes les caractérisations utilisables ;
- la quantité de caractérisation permettant un compromis prédiction / apprentissage convenable ;
- l'estimation des paramètres grâce à l'identification des modèles exponentiels ;
- la qualité de la prédiction du comportement et des courbes de polarisation.

Le modèle de comportement prédictif est ainsi évalué sur des essais totalement différents de par les piles, les sollicitations et les laboratoires les réalisant. Cela permet de renforcer l'affirmation que le modèle est performant.

#### 4.2.2.1/ MISE À JOUR PARAMÉTRIQUE

Afin d'étudier quel est le meilleur taux d'apprentissage, il faut procéder par étape. Tout d'abord, la procédure de mise à jour des paramètres décrite section 2.2 doit être réalisée sur toutes les caractérisations. Ici nous validerons aussi la justesse de cette procédure. Ensuite, les modèles exponentiels des paramètres sont identifiés. Cela permet au modèle global d'être simulé afin de comparer les résultats obtenus. Comme précédemment, la priorité étant la prédiction du comportement, la comparaison se fera à l'aide de la mesure d'erreur, entre la prédiction simulée et la mesure. Ces résultats sont uniquement présentés ici pour permettre de choisir le nombre de caractérisations optimales pour l'apprentissage. Ils seront précisés dans la section 4.2.2.4 avec l'application du set d'apprentissage choisi.

Rappelons que pour le Jeu 2 les données ne sont pas complètes pour les deux premières caractérisations. En effet, ces dernières ne comportent pas les mêmes composantes et ne sont ainsi pas comparables avec les suivantes (la courbe de polarisation manque pour la première et l'EIS à 15A manque pour la seconde). Le jeu de données proposé ne nous permet donc pas d'utiliser les deux premières caractérisations.

La première caractérisation que nous pouvons utiliser pour la régression est celle se produisant après 620h d'essais. Les suivantes se produisent à 800h, 984h, 1130h, 1298h, 1465h, 1635h, 1800h, 1968h et 2010h.

Ainsi, la procédure d'identification paramétrique (section 2.2) est réalisée sur les caractérisations utilisables, ne sont exclues que les deux premières. Les régressions sont donc réalisées et leurs erreurs moyennes obtenues sont visibles sur les tableaux 4.4 pour les régressions sur les courbes de polarisation et 4.5 pour les régressions sur les EIS. Ces erreurs démontrent de bons résultats pour les régressions avec les choix faits au chapitre précédent. Les contraintes que nous avons décidé de fixer au chapitre 3 sont cependant trop grandes. En effet, nous avons été obligé de lever la contrainte imposée sur  $\tau_{Oc}$  (imposé croissant) afin de pouvoir obtenir un ajustement correct sur les lieux de Nyquist. Ainsi, il est probable que ce paramètre puisse représenter un phénomène qui le fasse évoluer dans un sens comme dans l'autre, comme c'est le cas pour  $R_m$ . En effet ce dernier paramètre qui représente la résistance de membrane peut être croissant ou décroissant.

Erreur moyenne	
RMSE	$2.25 \cdot 10^{-2}$
$R^2$	0.986

TABLEAU 4.4: Moyenne des erreurs obtenues sur chacune des courbes de polarisation hormis les deux premières

	Partie imaginaire	Partie réelle
RMSE	$4,82 \cdot 10^{-3}$	$3,17 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.989	0.9995

TABLEAU 4.5: Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les lieux de Nyquist (excepté les deux premiers)

#### 4.2.2.2/ NOMBRE DE CARACTÉRISATIONS À APPRENDRE

De la même manière que précédemment, le modèle est simulé avec chaque fonction exponentielle obtenue pour chaque paramètre avec le nombre de caractérisations considérées. En effet, les valeurs obtenues pour chaque paramètre aux différents temps des caractérisations permettent l'identification de la fonction exponentielle définissant son évolution temporelle dans la simulation du modèle global.

Il est ainsi possible de comparer la simulation et la mesure qui avait été obtenue lors de l'essai expérimental. Le tableau 4.6 présente les résultats des erreurs sur la fin de l'essai en fonction du nombre de caractérisations utilisées pour la régression exponentielle. En effet, l'erreur de prédiction sur la tension est calculée entre  $2000h$  et  $2120h$  (ceci est justifié section 4.2.2.4).

Caractérisations apprises	MAPE (%)	RMSE
2 ( $620h$ et $800h$ )	6.6	0.057
3 (... et $984h$ )	3.9	0.037
4 (... et $1130h$ )	4.4	0.039
5 (... et $1298h$ )	3.9	0.037
6 (... et $1465h$ )	3.9	0.038
7 (... et $1635h$ )	4.1	0.039
8 (... et $1800h$ )	3.9	0.038
9 (... et $1968h$ )	4	0.038
10 (... et $2010h$ )	4	0.038

TABLEAU 4.6: Erreur sur la prédiction de la tension sur la fin de l'essai (entre  $2000h$  et  $2120h$ )

Les erreurs ne varient pas beaucoup, aucune tendance claire ne se détache. Il est cependant évident que l'utilisation de deux points n'est pas suffisante pour l'identification de la fonction exponentielle.

Pour cet essai, le nombre de caractérisations minimum nécessaire pour obtenir de bons résultats de prédiction est de trois. Ce qui rejoint la conclusion obtenue pour le Jeu 3. La nouvelle occurrence de ce résultat laisse à penser que trois caractérisations seront généralement suffisantes pour obtenir une prédiction satisfaisante.

La suite de notre étude traite donc des résultats obtenus pour un apprentissage fait sur trois caractérisations.

#### 4.2.2.3/ CRITIQUE DE L'IDENTIFICATION DES FONCTIONS EXPONENTIELLES

Dans la suite de cette section concernant ce jeu de données, les trois premières caractérisations (utilisables) sont considérées comme apprises, leur dispersion temporelle représente  $364h$ .

De la même manière que précédemment, les valeurs obtenues lors de l'identification paramétrique du modèle sont utilisées afin d'identifier les fonctions exponentielles qui modélisent les paramètres au sein du modèle global.

Même si, seulement trois caractérisations sont utilisées pour l'apprentissage, les autres sont connues et nous permettent de faire la comparaison entre les estimations des valeurs paramétriques obtenues grâce aux processus de mise à jour et celles obtenues grâce aux fonctions exponentielles.

Cela revient finalement à faire une critique quant à l'identification de chaque modèle exponentiel.

L'estimation des paramètres présente les mêmes traits généraux qu'avec le précédent jeu de données. Pour la majorité des paramètres, la tendance obtenue est bonne, mais l'estimation de valeur n'est pas tout à fait correcte (Figure 4.5). En effet, comme le montre le tableau 4.7, l'erreur entre l'estimation des valeurs paramétriques et les valeurs obtenues aux régressions peut être qualifiée d'importante.

Paramètre	Erreur MAPE (%)
$b_{Oc}$	31
$k_{Oc}$	79
$R_m$	18
$b_a$	5.8
$b_c$	3.7
$j_{0c}$	42

TABLEAU 4.7: Erreurs MAPE calculées entre l'estimation et la régression pour les valeurs paramétriques

La densité de courant d'échange à la cathode  $j_{0c}$  pose une nouvelle fois problème. Cette fois-ci, sa tendance s'est directement inversée à partir du milieu de l'essai, ce qui ne peut être anticipé.

Le tableau 4.8 présente les valeurs des paramètres fixés. Elles sont finalement très proches de celles obtenues avec le jeu de données précédent, excepté pour  $j_{0a}$  et  $j_{0OC}$  qui sont très inférieurs ici. Ceci est contrebalancé par  $b_{Oc}$  et  $b_a$  qui ont également changé d'ordre de grandeur.

Paramètre	Valeurs obtenues	
$C_{dca}$	0.036	$[F/cm^2]$
$C_{dcc}$	0.022	$[F/cm^2]$
$E_n$	1	$[V]$
$j_{0a}$	0.042	$[A/cm^2]$
$j_{0Oc}$	$1.10^{-8}$	$[A/cm^2]$
$j_{Lc}$	1.16	$[A/cm^2]$
$L$	$3.29.10^{-7}$	$[H.cm^2]$

TABLEAU 4.8: Valeurs des paramètres fixés

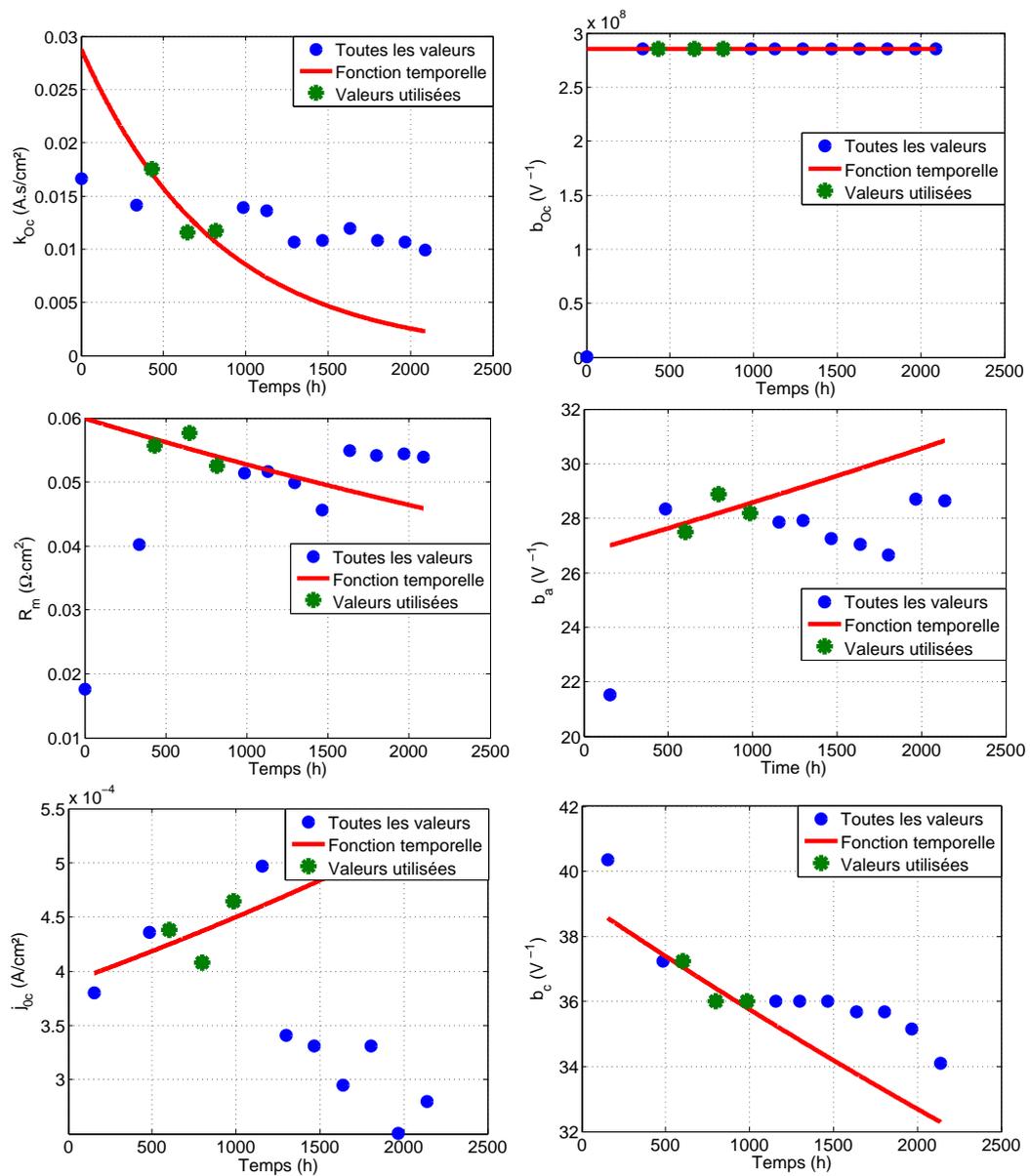


FIGURE 4.5: Évolution temporelle des paramètres avec leur régression exponentielle pour le Jeu 2

L'estimation des valeurs n'est donc pas à chaque fois cohérente avec les valeurs obtenues lors des régressions. Il faut cependant avoir un regard critique sur cet aspect. Les régressions nous permettent d'obtenir une combinaison de valeurs pour les paramètres permettant au modèle d'être au plus proche des données, mais ces valeurs ne sont pas forcément justes. En effet, les valeurs données aux paramètres relèvent d'une solution mathématique cohérente en ordre de grandeur avec la physique mais il ne nous est pas possible de les justifier précisément physiquement. Ainsi, l'évolution temporelle des paramètres n'est le résultat que d'une estimation. Lorsque la fonction proposée pour représenter l'évolution temporelle de ces paramètres s'éloigne de cette estimation, ce n'est pas un point critique.

L'aspect hybride des travaux transparait clairement par la modélisation des paramètres, en effet cette dernière relève clairement d'apprentissage sur des données.

#### 4.2.2.4/ PRÉDICTION DU COMPORTEMENT

Validons maintenant la prédiction du comportement. Pour cela les fonctions exponentielles obtenues grâce aux trois premières caractérisations (utilisables) permettent d'obtenir la valeur en fonction du temps de chaque paramètre et ainsi d'effectuer la simulation du modèle global.

Présenter les résultats sur une figure pour ces données est peu aisé. En effet, la sollicitation de cet essai est d'un cycle pour  $24h$  et la prédiction s'effectue sur  $1100h$ . Les périodes contenant une caractérisation qui est apprise n'étant pas concernées par l'aspect prédictif commencent à partir  $984h$ . Il n'est pas possible de présenter une figure lisible de la concordance entre la simulation et la mesure sur la totalité de la prédiction.

C'est pour cette raison que la figure 4.6 propose une vue de la fin de prédiction.

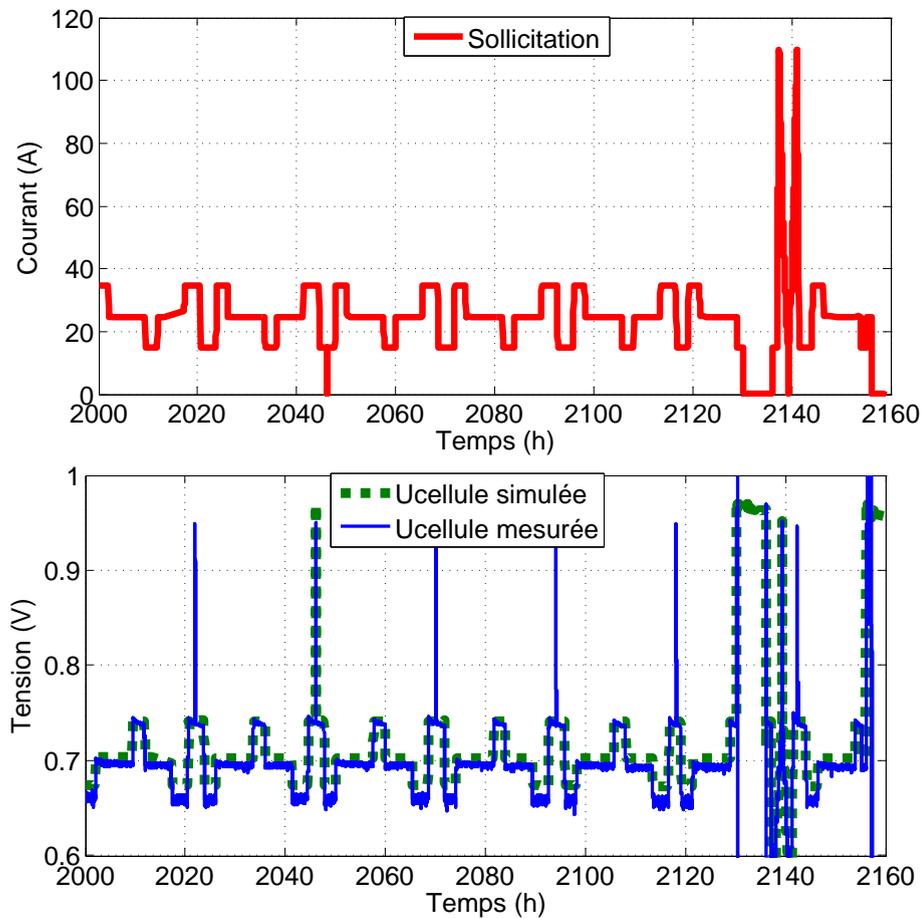


FIGURE 4.6: Prédiction et mesure sur la fin de la prédiction (entre 2000h et 2160h)

Le calcul d'erreur sur la totalité de l'essai n'est possible que pour la RMSE. En effet, la tension atteint un voltage nul à plusieurs endroits, ce qui ne permet pas de faire un calcul de MAPE. Sur la totalité de la prédiction l'erreur RMSE est de 0.12V. Le calcul d'erreur sur la fin de la prédiction a été fait entre 2000h et 2120h afin d'éviter les points atteignant zéro. La MAPE sur cette période est de 3.9% et la RMSE de 0.037V.

L'estimation des courbes de polarisation est, elle aussi, satisfaisante, comme le montre la figure 4.7. Le calcul d'erreur le confirme avec une MAPE de 2.8% et un coefficient d'ajustement de 0.96 pour la prédiction de la dernière.

Courbe de polarisation	MAPE (%)	$R^2$
6 (1130h)	1.26	0.98
7 (1298h)	1.12	0.98
8 (1465h)	1.17	0.984
9 (1635h)	1.53	0.983
10 (1800h)	1.69	0.982
11 (1968h)	2.39	0.97
12 (2010h)	2.8	0.96

TABLEAU 4.9: Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée

La prédiction des courbes de polarisation s'aggrave légèrement avec le temps puisque le calcul des erreurs entre la prédiction et la mesure de la courbe de polarisation démontre que l'erreur MAPE a une tendance clairement croissante (Tableau 4.9). Ces erreurs restent tout de même faibles et tout à fait acceptables.

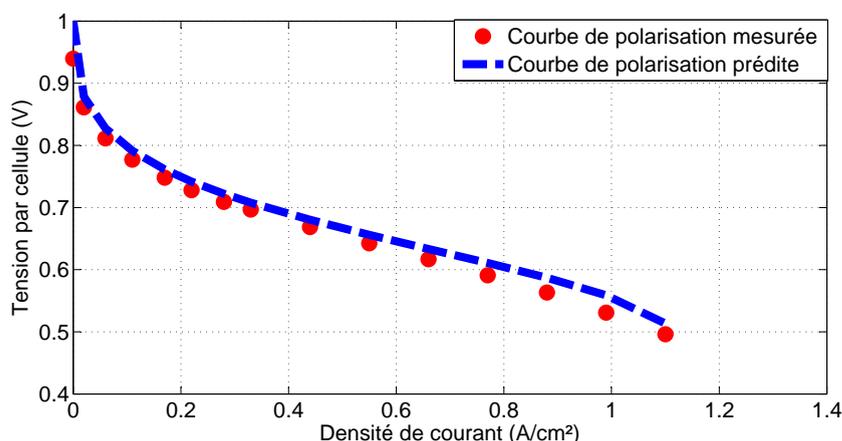


FIGURE 4.7: Prédiction de la douzième et dernière courbe de polarisation faite à 2010h d'essais

L'utilisation de ce jeu de données confirme que le modèle de prédiction est bon. En effet, avec l'apprentissage de seulement trois caractérisations, la prédiction du comportement est très satisfaisante sur la totalité de l'essai.

## 4.2.3/ CONCLUSION

### 4.2.3.1/ SYNTHÈSE DES RÉSULTATS DE PRÉDICTION

L'utilisation du modèle pour la prédiction sur deux jeux de données a été réalisée sur des données concernant deux stacks de technologies différentes, avec des sollicitations variées et dans des locaux distincts. En effet, le Jeu 3 est un essai sous sollicitation avec ondulations de courant ayant été réalisé à FEMTO-ST / FCLAB. Le Jeu 2, essai sous sollicitation cyclée effectué dans les locaux de ZSW.

Ainsi, les deux jeux de données permettent de valider l'approche dans ces deux cas de

figure différents. En effet, le modèle présente une prédiction du comportement du stack particulièrement satisfaisante, malgré une estimation des valeurs paramétriques s'éloignant des valeurs obtenues lors des régressions.

L'apprentissage suffisant dans les deux cas est uniquement de trois caractérisations pour une prédiction de plus de mille heures. Cela s'avère être un atout majeur puisque la prédiction est possible dès 182h d'essais pour le Jeu 3, elle représente 364h pour Jeu 2. Ainsi, même si la quantité des données nécessaires pour former une caractérisation est importante, cela nous permet de réduire la durée de l'apprentissage à seulement trois caractérisations. Il n'est pas nécessaire de mettre en place un monitoring continu pour obtenir une bonne prédiction. Aucune contrainte particulière n'apparaît pour les dates de caractérisations choisies, mais nous pouvons tout de même supposer que ces dates doivent laisser le temps au stack étudié de commencer à se dégrader. Ainsi, les caractérisations feront apparaître le début du vieillissement ce qui permet son apprentissage.

Le tableau 4.10 présente la synthèse des résultats de prédiction qui ont été donnés précédemment :

- pour l'évaluation de la prédiction du comportement :
  - pour le Jeu 3 entre 900 et 1016h ;
  - pour le Jeu 2 entre 2000h et 2120h ;
- pour l'évaluation de la prédiction de la courbe de polarisation, la dernière mesurée, soit :
  - pour le Jeu 3 la 8<sup>ième</sup> à 1016h ;
  - pour le Jeu 2 la 12<sup>ième</sup> à 2120h.

Que ce soit sur la prédiction de courbe de polarisation ou de comportement, l'approche donne de très bons résultats. On peut cependant remarquer que sur la sollicitation la plus simple les erreurs sont moins grandes.

	Jeu d'apprentissage	Prédiction de Pola	Prédiction du comportement final
Jeu 3	182h	0.99%	0.92%
Jeu 2	364h	2.8%	3.9%

TABLEAU 4.10: Erreurs MAPE sur les prédictions

Le temps de simulation pour le traitement d'une caractérisation est de moins de 5 minutes pour la première, et d'un peu plus de 3 minutes pour les suivantes sans réduction de points. La simulation permettant la prédiction du comportement prend 2.2 secondes pour un peu plus de 1000 heures dans le cas du Jeu 3. Ainsi le coût de simulation mis en place par cet algorithme est minime face à l'amplitude de la prédiction effectuée (PC ayant 4Go de RAM et un processeur de 3.20GHz).

#### 4.2.3.2/ DISCUSSION

Le pronostic est en général dans la littérature décrit comme l'évaluation du RUL. Cette approche propose plus que ça : la prédiction du comportement.

La définition du seuil en dessous duquel le stack est considéré comme défectueux est problématique. Il existe des propositions au sein de la littérature, mais pour un système aussi dynamique que la pile à combustible on ne devrait pas se résoudre à un seuil. Ce

système ne fonctionne pas en tout-ou-rien, la réponse est relative à la sollicitation et au vieillissement. Ainsi, est-ce que l'on considère que le stack est défaillant lorsqu'il n'est plus en mesure de fonctionner, ou dès qu'il ne fournit plus la réponse attendue, sachant que cette dernière est très dépendante de l'utilisation? Pourquoi donc ne pas considérer le temps durant lequel le stack peut répondre à telle ou telle autre demande?

Le département d'énergie américain US Department of Energy (DoE) définit la fin de vie comme étant la perte de 10% par rapport à la performance initiale [32]. Le constructeur du système industriel utilisé dans le projet européen SAPPHIRE, qui accueille l'algorithme, définit le seuil comme étant la tension de  $27.6V$  sous une sollicitation de  $0.35A/cm^2$  pour un stack de 46 cellules.

L'approche proposée permet de calculer le temps de vie restant pour un large champ de définition de la fin de vie, en effet, grâce à la modularité de la prédiction du comportement proposée, il est possible de répondre à de nombreuses interrogations telles que : pendant quelle durée le stack peut-il fonctionner en fournissant une certaine tension.

Elle permet ainsi d'ajouter au processus PHM un autre cycle, c'est à dire d'envisager une circulation dans les deux sens, et non plus dans un seul. Rappelons-le, les couches formant la partie d'analyse envoient l'information aux couches formant l'action (Figure 1.5). Le processus PHM propose habituellement un processus avec des étapes communiquant dans une direction unique entre elles. Or l'approche proposée permet d'ajouter une communication au sein du processus dans l'autre sens, avec une communication n'étant plus uniquement de l'analyse vers action, mais aussi d'action vers analyse. Ainsi, les phases de décision peuvent envisager différents cas de figure tout en ayant la possibilité de les voir analysés.

Nous proposons donc une solution flexible qui permet de répondre à n'importe quelle interrogation que poserait les étapes suivantes du PHM ; soit la décision.

### 4.3/ MISE EN LIGNE DE L'IMPLANTATION SUR SYSTÈME RÉEL

L'approche de pronostic proposée est démontrée comme efficace grâce à l'usage de données expérimentales. Ainsi, cet axe nous permet de répondre au verrou scientifique concernant la prédiction du comportement d'une pile PEMFC.

Cependant, au delà des ambitions purement scientifiques, il faut aussi prendre en compte les contraintes d'une implémentation réelle.

C'est ainsi, que l'approche est considérée comme validée "hors-ligne" puisque cela n'a pas été fait en temps réel sur un système. Nous cherchons à optimiser la mise en ligne de cet algorithme, c'est à dire son implémentation au sein d'un système industriel. Dans le cadre de SAPPHIRE, l'algorithme de pronostic doit être implémenté au sein du système proposé par Danthem. Or le système impose des contraintes, tel que le langage de l'algorithme mais aussi l'impossibilité de réaliser des EIS dans un premier temps.

Après avoir développé l'architecture de l'implémentation, deux problématiques dues aux contraintes de mise en œuvre sont traitées, l'une discutant de l'initialisation, l'autre du compromis coût/temps que posent les mesures.

## 4.3.1/ ARCHITECTURE

Le système d'accueil de l'algorithme nous contraint sur de nombreux points. Tout d'abord, le logiciel pour la mise en ligne de l'approche de pronostic devra être Labview, or l'intégralité du développement a été réalisé sous Matlab. Ainsi, grâce à l'encadrement d'une stagiaire de niveau Master2, l'algorithme sous Matlab a été transféré sous Labview avec une architecture facilitant son usage. Quatre "projets" (dénomination propre à Labview) ont été réalisés.

Ces quatre projets permettent à l'utilisateur de réaliser la majorité des étapes nécessaires pour une bonne utilisation du modèle.

- Le premier projet a pour objectif d'estimer la tension du stack. Avec pour entrées l'évolution du courant et le temps, ainsi que les paramètres exponentiels et ceux du stack. Ce projet est simplement la retranscription du modèle global.

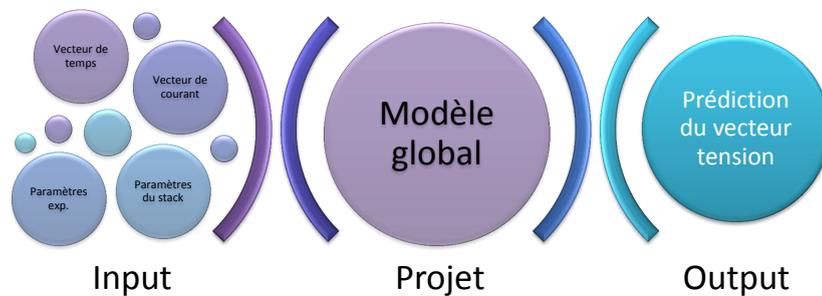


FIGURE 4.8: Synoptique du premier projet

- Le second projet a pour objectif d'estimer une courbe de polarisation avec seulement le modèle statique. Pour cela, les entrées demandées sont les points de courant et les valeurs des paramètres statiques.

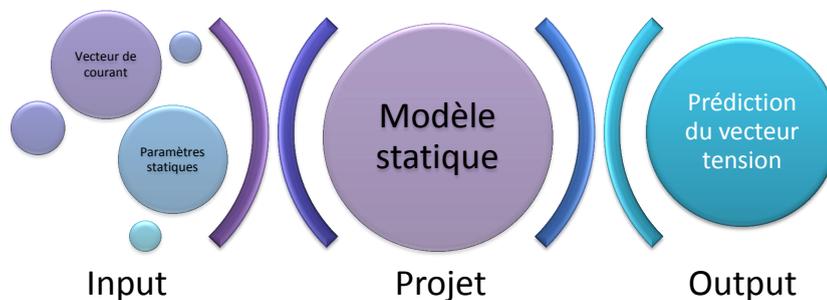


FIGURE 4.9: Synoptique du second projet

- Le troisième projet est la procédure de mise à jour. Grâce à une courbe de polarisation, la procédure de mise à jour des paramètres statiques est réalisée. Lorsque le nombre de courbes de polarisations rentré est supérieur ou égal à trois, les paramètres exponentiels du modèle statique sont identifiés.

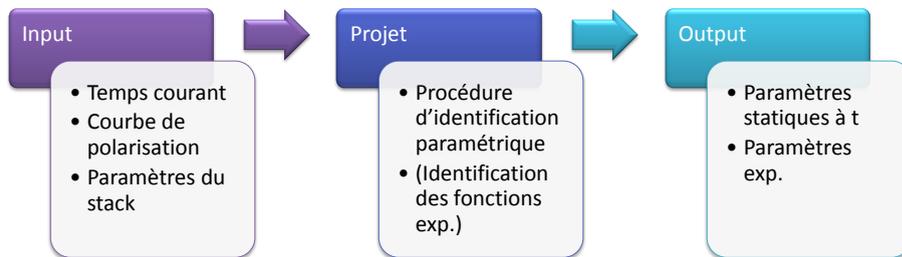


FIGURE 4.10: Synoptique du troisième projet

- Le dernier projet est la reproduction du premier avec un calcul de date de fin de vie restante. Ainsi, sous une sollicitation constante de  $35A$ , la sortie en tension est étudiée afin de donner les dates entre lesquelles elle descend sous le seuil de  $0.6V$  par cellule. Les deux temps concernés sont finalement les sorties de ce projet afin de donner un encadrement pour la date de fin de vie estimée.



FIGURE 4.11: Synoptique du quatrième projet

La principale limite ici, est l'impossibilité du partenaire industriel à réaliser des spectroscopies d'impédance. En effet, le système n'a pas encore l'équipement permettant de réaliser les EIS. Cependant, un autre projet européen, nommé D-CODE [1] a pour objectif d'élaborer un système permettant des mesures d'EIS à moindres coûts et moindres encombrements. L'usage de mesures d'impédance n'est pas incompatible avec une mise en ligne sur un système industriel.

L'absence des mesures d'impédances doit tout de même être compensée dans un premier temps. Une proposition à cette limite est offerte dans la section suivante.

## 4.3.2/ INITIALISATION TRANSPOSÉE

### 4.3.2.1/ PROBLÉMATIQUE ET PROPOSITION

Coté modèle dynamique, les paramètres ne peuvent être obtenus puisque l'absence de mesure d'EIS empêche de réaliser l'ajustement du modèle dynamique. Nous proposons donc d'utiliser un autre jeu de données pour permettre la prédiction. Ainsi sont faites des simulations permettant d'étudier l'utilisation de données d'un stack pour la prédiction d'un autre.

Une force du modèle proposé est sa capacité à s'adapter à différentes piles grâce aux paramètres. Cependant faire l'hypothèse que ceux obtenus sur un stack puissent se transposer sur un autre est une hypothèse forte et qu'il faut valider. Cela suppose le vieillissement de stacks similaires dès lors qu'ils sont soumis aux mêmes sollicitations.

Un autre essai a été réalisé durant le projet européen SAPPHIRE avec une sollicitation similaire à celle attendue sur le système. Ce Jeu 6 a été réalisé dans les locaux de FCLAB, sur un stack similaire à celui utilisé lors du Jeu 2. La sollicitation est basée sur le même cycle, mais avec une amplitude doublée et avec 10 cycles par jour. Lors de cet essai qui dure 800h environ, seulement deux caractérisations ont été réalisées, au début et à la fin (composées de 3 EIS à  $0.30A/cm^2$ ,  $0.50A/cm^2$  et  $0.70A/cm^2$  ainsi qu'une courbe de polarisation). Dans la suite, nous cherchons à réaliser la prédiction du comportement de ce stack en utilisant les données obtenues lors du Jeu 2.

#### 4.3.2.2/ VALIDATION

Pour confirmer s'il est réalisable ou non de combiner les résultats pour deux stacks différents, la procédure de mise à jour a été réalisée au temps zéro sur le Jeu 6. Les valeurs paramétriques trouvées permettent de définir les valeurs du premier paramètre des fonctions exponentielles. En effet, la valeur que prend le paramètre au temps zéro est celle du premier paramètre exponentiel. Le second paramètre des fonctions exponentielles est fixé en prenant les valeurs obtenues lors de l'utilisation du Jeu 2 décrite en section 4.2.2.

Le principe proposé est donc :

1. réaliser la procédure de mise à jour paramétrique sur la caractérisation au temps 0 pour le Jeu 6 ;
2. réaliser la procédure de mise à jour paramétrique ainsi que l'identification des fonctions exponentielles sur le Jeu 2 ;
3. créer les fonctions exponentielles à l'aide des deux résultats précédent, dans l'équation (3.1) représentant les évolutions paramétriques temporelles : fixer les  $\alpha$  avec les résultats du point 1, et les  $\beta$  valant ceux obtenus au point 2.

Le traitement du point 1 relève de la réalisation de la procédure d'identification paramétrique. L'ajustement du modèle avec les données donne de bon résultats (Figure 4.11). De nouveau, les coefficients d'ajustement sont très proches de 1.

	Pola	(EIS) Partie imaginaire	(EIS) Partie réelle
RMSE	$7.84.10^{-3}$	$1.11.10^{-2}$	$1.26.10^{-2}$
$R^2$	0.993	0.961	0.995

TABLEAU 4.11: Erreurs obtenues sur la procédure de mise à jour du modèle sur la première caractérisation (Moyenne pour les EIS).

La qualité de la prédiction est calculée sur les 200 dernières heures. De la même façon que précédemment, présenter les courbes sur la totalité de l'essai est impossible cela est dû au nombre de cycles. La figure 4.12 présente donc une portion située vers la fin de la prédiction.

Avec le protocole présenté, l'erreur de prédiction de tension entre 600h et 800h est de 3.03% en MAPE, 0.025V en RMSE avec un coefficient d'ajustement à 0.92. Ces résultats sont très satisfaisants.

Les cycles de l'expérimentation étant au nombre de 10 par jour la fenêtre de temps présentée figure 4.12 est très courte et ne permet pas de visualiser un quelconque vieillissement. Le calcul d'erreur permet toutefois de démontrer que la prédiction est satisfaisante.

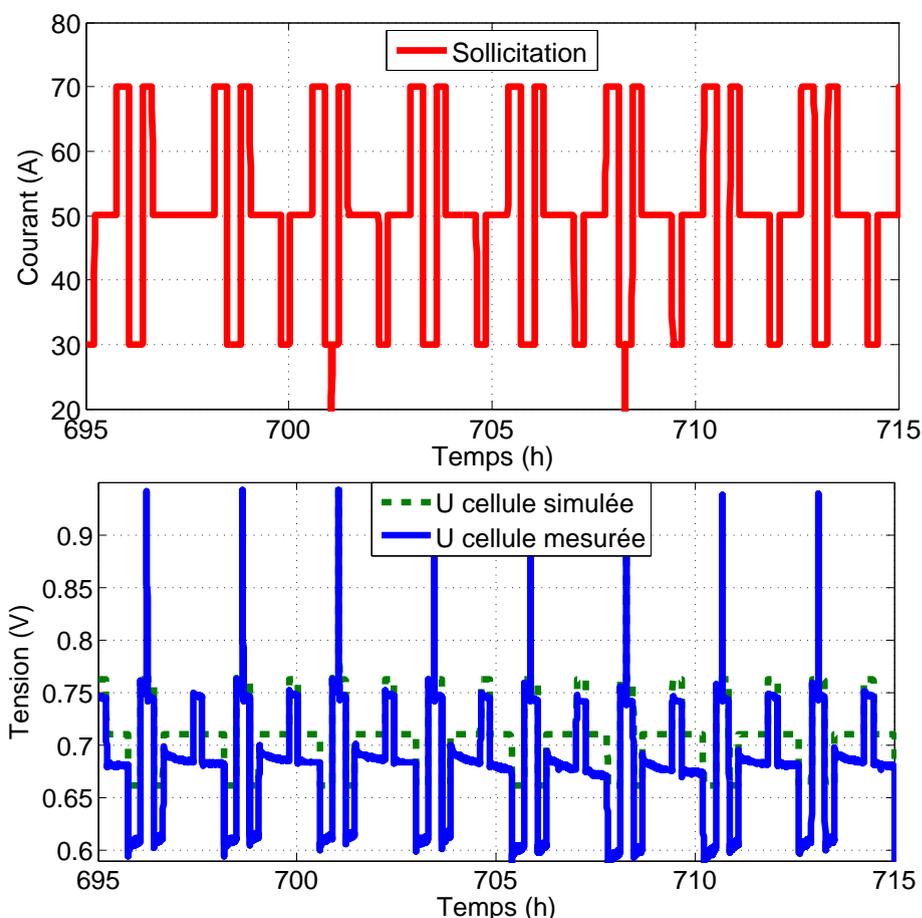


FIGURE 4.12: Prédiction et mesure sur la fin de la prédiction

#### 4.3.2.3/ CONCLUSION

Il est donc possible de combiner une caractérisation initiale sur le stack étudié avec l'étude d'un autre jeu de données pour obtenir une bonne prédiction. L'hypothèse faite pour la réalisation en ligne de l'approche de prédiction n'est pas aberrante.

L'implémentation réalisée pour le système industriel repose sur ce principe qui est donc valide. Le stack mis en place au sein du système a subi une caractérisation complète permettant d'initialiser les fonctions exponentielles. De plus, le Jeu 2 a permis de mettre une valeur sur les paramètres, modélisant l'évolution temporelle. Grâce au second projet (Figure 4.9) il est possible de prendre en compte les courbes de polarisation et d'en obtenir des modèles exponentiels mis à jour.

Cependant, l'hypothèse sur laquelle repose ce principe reste imprécise, elle ne permet pas réellement d'adapter la prédiction autant que désiré au stack considéré. C'est pourquoi nous avons cherché à spécifier le minimum de données que requiert le modèle pour une utilisation optimale.

Il a déjà été démontré, sur les jeux de données étudiés, que trois caractérisation suffisent pour une bonne prédiction, cherchons maintenant à minimiser ce que représente une caractérisation.

#### 4.3.3/ SPÉCIFICATION DU MINIMUM DE DONNÉES NÉCESSAIRES

Pour une mise en ligne au sein d'un système industriel, la réalisation des caractérisations devra prendre le moins de temps possible. Pour cela il faut envisager de réduire la quantité de points mesurés.

Afin de réduire au maximum les données nécessaires, différents tests ont été effectués sur le Jeu 2. Ceux-ci permettent de spécifier la quantité de données minimale recommandée. Lorsque l'on parlera de "points" dans la suite, il faudra comprendre, points de mesure pour l'EIS (fréquence, impédance) et / ou la courbe de polarisation (courant, tension).

- Le Test A cherche à réduire strictement le nombre de points à chaque caractérisation. La quantité minimale de points nécessaire dans chaque EIS et chaque courbe de polarisation est exposée.
- Le Test B considère que la première caractérisation complète est accessible car elle peut être réalisée en usine. Ainsi, l'idée est de spécifier la quantité de points nécessaire pour chaque EIS et chaque courbe de polarisation pour les caractérisations suivantes.

Toute cette étude a été réalisée sur le Jeu 2. Le procédé mis en place est le suivant :

- réalisation de l'identification paramétrique pour les caractérisations (nous rappelons que pour le Jeu 2 la première caractérisation utilisée est celle se produisant à 620h) ;
- identification des modèles exponentiels ;
- réalisation de la prédiction de comportement.

Précédemment, il a été démontré que trois caractérisations suffisent pour obtenir une prédiction satisfaisante. Il faut donc que, même avec une réduction de données, ce set d'apprentissage soit suffisant. Dans cette partie, seules les trois premières caractérisations sont apprises et traitées.

La critique sur la qualité des résultats est faite sur différents points. Tout d'abord la qualité de l'ajustement entre les caractérisations mesurées et simulées. Ensuite le temps nécessaire pour mesurer un EIS, et enfin l'erreur sur la prédiction des courbes de polarisation et du comportement entre 2000h et 2120h.

##### 4.3.3.1/ TEST A : RÉDUCTION DU NOMBRE DE POINTS À CHAQUE CARACTÉRISATION

Le nombre de points pris par mesure est réduit au nombre de 5. Le choix des points est motivé par la volonté de parcourir l'intégralité des données. Ainsi, les points utilisés sont simplement choisis comme étant équidistants en points de mesure. Sur l'intégralité des fréquences parcourues, nous utilisons la première, celle ayant été réalisée après un quart de points mesurés, après la moitié, les trois quarts et la dernière fréquence. Cela se justifie par notre ambition de parcourir le spectre entier sans limiter les points choisis afin de visualiser si il est nécessaire d'imposer des points spécifiques.

Pour l'EIS, les fréquences de sollicitations à la troisième caractérisation sont résumées sur le tableau 4.12.

Ce tableau récapitule aussi le temps que prend la mesure de chaque point. En effet, lors de la mesure de l'impédance sous une sollicitation de moins de 10Hz, 5 cycles sont réalisés, 10 le sont pour les fréquences plus élevées.

Courant de l'EIS	Fréquence d'acquisition d'un point du spectre (Hz)	Temps (s)
15A/cm <sup>2</sup> (Au total 39s)	0.15	34
	1.16	4.3
	10	1
	86.6	0.11
	673	0.015
0.25A/cm <sup>2</sup> (Au total 32s)	0.18	27
	1.29	3.9
	10	1
	69.8	0.14
	542	0.018
0.30A/cm <sup>2</sup> (Au total 59s)	0.09	52
	0.75	6.67
	6.5	0.77
	56.2	0.18
	487	0.02

TABLEAU 4.12: Fréquences des points utilisés et temps respectifs pour les réaliser à 620h

Ne réaliser que 5 points de mesure pour l'EIS permet à ce dernier de durer moins d'une minute alors que cette mesure peut prendre plus de 15 minutes habituellement.

Le même processus que précédemment décrit a été réalisé. Tout d'abord, il faut effectuer la mise à jour paramétrique du modèle sur les caractérisations utilisées pour la prédiction, soit les trois premières utilisables.

Les tableaux 4.13 et 4.14 présentent les résultats des erreurs sur ces régressions. Seulement 5 points ont été utilisés pour obtenir les valeurs des paramètres mais l'intégralité des points ont été utilisés pour les calculs d'erreurs. On peut ainsi remarquer que les erreurs démontrent un ajustement modèle / données très satisfaisant, et ce, même si on utilise que 5 points de mesure pour la régression.

Erreur moyenne	
RMSE	$1.97 \cdot 10^{-2}$
$R^2$	0.97

TABLEAU 4.13: Moyenne des erreurs obtenues entre les courbes de polarisation mesurées et régressées

	Partie imaginaire	Partie réelle
RMSE	$5.00 \cdot 10^{-3}$	$4.26 \cdot 10^{-3}$
$R^2$	0.981	0.9999

TABLEAU 4.14: Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles des régressions sur les plans de Nyquist

Il est important de préciser que les erreurs sur la troisième caractérisation ne varient pas réellement entre les courants. C'est à dire que l'utilisation de l'EIS qui ne durerait que 32s ne génère pas plus d'erreur lors de la régression que celle qui durerait 59s.

La suppression de certains points de mesure amène des solutions différentes lors des régressions. Le tableau 4.15 présente la moyenne des écarts obtenus sur les caractérisations apprises par rapport aux résultats de la section 4.2.2.

Paramètre	Moyenne des écarts face aux précédents
$C_{dca}$ ( $F/cm^2$ )	0.96
$C_{dcc}$ ( $F/cm^2$ )	0.13
$b_{Oc}$ ( $V^{-1}$ )	$3.7.10^7$
$j_{0Oc}$ ( $A/cm^2$ )	$2.1.10^{-14}$
$k_{Oc}$ ( $A.s/cm^2$ )	0.05
$L$ ( $H.cm^2$ )	$1.10^{-2}$
$R_m$ ( $\Omega.cm^2$ )	$1.10^{-2}$
$b_a$ ( $V^{-1}$ )	16
$j_{0a}$ ( $A/cm^2$ )	0.06
$b_c$ ( $V^{-1}$ )	18.6
$j_{0c}$ ( $A/cm^2$ )	$6.10^{-3}$
$j_{Lc}$ ( $A/cm^2$ )	0.44

TABLEAU 4.15: Moyenne des écarts paramétriques par rapport aux résultats obtenus, section 4.2.2 sur les caractérisations apprises

Ce tableau nous permet de voir que les valeurs obtenues divergent grandement. Cependant, vu l'aspect hybride que les travaux présentés possèdent, cela reste cohérent. De plus, les valeurs obtenues dans la section précédente ne sont finalement pas des valeurs de référence. Ce sont des valeurs qui fonctionnent et pour les régressions et pour la prédiction, mais qui ne représentent pas véritablement de phénomène physique.

Enfin, nous utilisons les valeurs obtenues pour générer les fonctions exponentielles permettant de réaliser la prédiction. Cette dernière est honorable, et l'erreur calculée entre 2000h et 2120h est de 0.055 pour la RMSE et de 6.67% pour la MAPE. La prédiction de la dernière courbe de polarisation est aussi satisfaisante, car elle a une erreur par rapport à la mesure de 1.67% (MAPE) avec un coefficient d'ajustement de 0.97 (Tableau 4.16). La comparaison avec la simulation de prédiction sans aucune réduction est faite dans la synthèse de cette sous-section (Section 4.3.3.3).

Courbe de polarisation	MAPE (%)	$R^2$
6 (1130h)	2.4	0.96
7 (1298h)	1.79	0.97
8 (1465h)	1.79	0.98
9 (1635h)	1.68	0.98
10 (1800h)	1.49	0.98
11 (1968h)	1.58	0.97
12 (2010h)	1.67	0.97

TABLEAU 4.16: Erreur entre la prédiction et la courbe de polarisation mesurée

Ainsi, réduire le nombre de points utilisés est totalement viable. Cela rend les mesures de caractérisations réalisables et rapides.

#### 4.3.3.2/ TEST B : RÉDUCTION DU NOMBRE DE POINTS APRÈS LA PREMIÈRE CARACTÉRISATION COMPLÈTE

Afin de minimiser encore plus la quantité de données à obtenir sur le stack en fonctionnement, nous proposons d'étudier la qualité des résultats dans un nouveau cas de figure. La première caractérisation serait réalisée entièrement, mais elle pourrait être effectuée avant même la mise en service du système. Ensuite chaque mesure de caractérisation (courbe de polarisation et EIS) ne serait composée que de 3 points de mesure.

Les temps nécessaires pour réaliser un EIS sont présentés sur le tableau 4.17. Ce tableau présente aussi les fréquences utilisées pour les régressions. Ainsi, les trois points parcourent simplement l'amplitude des fréquences pouvant être observées mais sans point spécifique à conserver, cela peut être observé facilement puisque les fréquences ne sont pas les mêmes. Ainsi, les points à conserver pour les EIS ne sont pas fixes, uniquement l'ordre de grandeur est conservé. Les durées pour mesurer ces EIS réduits sont comprises entre 28 et 53s. Des durées très raisonnables pour une réalisation en ligne sur un système stationnaire.

Courant lors de l'EIS	Fréquence d'acquisition d'un point du spectre (Hz)	Temps (s)
0.15A/cm <sup>2</sup> (34s)	0.15	34
	10	1
	673	0.015
0.25A/cm <sup>2</sup> (28s)	0.18	27
	10	1
	542	0.018
0.30A/cm <sup>2</sup> (53s)	0.09	52
	6.5	0.77
	487	0.02

TABLEAU 4.17: Exemple des fréquences des points utilisés et temps respectifs pour les réaliser (troisième caractérisation)

Les régressions sur la caractérisation à 800h et 984h sont réalisées grâce aux trois

points, mais les erreurs calculées le sont sur tous les points. De la même manière que précédemment, les points utilisés ne sont pas particulièrement choisis. Parmi les fréquences des points mesurés, ce sont la première, dernière et celle du milieu qui ont été utilisées.

Les tableaux 4.18 et 4.19 présentent les résultats des erreurs pour les trois caractérisations utilisées. Comme on peut le voir, les erreurs sont à nouveaux très acceptables.

Erreur moyenne	
RMSE	$1.36.10^{-2}$
$R^2$	0.986

TABLEAU 4.18: Moyenne des erreurs obtenues sur les trois courbes de polarisation utilisées

	Partie imaginaire	Partie réelle
RMSE	$5.00.10^{-3}$	$4.26.10^{-3}$
$R^2$	0.981	0.999

TABLEAU 4.19: Moyenne des erreurs sur les parties imaginaires et réelles de la régression sur les plans de Nyquist utilisés

La valeur des paramètres sur les trois caractérisations utilisées sont comparées avec la valeur de ces derniers obtenues sur les caractérisations complètes. A nouveau, les écarts sont non négligeables (Figure 4.20).

Paramètre	Moyenne de la variabilité face aux précédents
$C_{dca}$ ( $F/cm^2$ )	0.96
$C_{dcc}$ ( $F/cm^2$ )	0.13
$b_{Oc}$ ( $V^{-1}$ )	$3.7.10^7$
$j_{0Oc}$ ( $A/cm^2$ )	$2.34.10^{-14}$
$k_{Oc}$ ( $A.s/cm^2$ )	0.05
$L$ ( $H.cm^2$ )	$2.1.10^{-7}$
$R_m$ ( $\Omega.cm^2$ )	$1.10^{-2}$
$b_a$ ( $V^{-1}$ )	16
$j_{0a}$ ( $A/cm^2$ )	0.06
$b_c$ ( $V^{-1}$ )	18.6
$j_{0c}$ ( $A/cm^2$ )	$6.10^{-3}$
$j_{Lc}$ ( $A/cm^2$ )	0.44

TABLEAU 4.20: Moyenne des variabilités paramétriques par rapport aux résultats obtenus section 4.2.2

La validation de la prédiction complète donne sur la fin de l'essai (entre 2000h et 2120h) une erreur RMSE de 0.038 et MAPE de 4.33%. Des erreurs faibles qui montrent l'efficacité du Test B.

La prédiction de la dernière courbe de polarisation démontre aussi la bonne estimation du modèle (Figure 4.21). En effet, l'erreur sur cette prédiction est de 1.57% en MAPE et

.98 en  $R^2$ .

Courbe de polarisation	MAPE (%)	$R^2$
6 (1130h)	1.27	0.98
7 (1298h)	0.88	0.98
8 (1465h)	0.84	0.987
9 (1635h)	0.89	0.987
10 (1800h)	1.01	0.988
11 (1968h)	1.28	0.98
12 (2010h)	1.57	0.98

TABLEAU 4.21: Erreur entre la prédiction grâce au Test B et la mesure des courbes de polarisation

#### 4.3.3.3/ SYNTHÈSE

La mise en place de l'approche de prédiction proposée semble être mise en péril par le type de données nécessaires pour bien réaliser la procédure de mise à jour des paramètres.

Afin de faire face à ce problème nous avons tout d'abord proposé une implémentation contenant des hypothèses rendant l'approche utilisable pour ensuite spécifier les données nécessaires à l'approche pour une prédiction satisfaisante.

L'approche a été implémentée sous Labview afin d'être adaptée au système. L'hypothèse que nous avons été contraints de faire de par l'absence d'EIS est démontrée comme cohérente. En effet, l'utilisation d'un jeu de données obtenu sur un premier stack, combinée avec une première caractérisation sur le stack rend la prédiction du comportement de ce dernier totalement possible. Cela a permis la mise en place de l'approche proposée sur le système industriel au sein de SAPPHIRE.

Il est cependant tout à fait possible de réaliser des EIS à moindre investissement grâce au projet D-CODE, mais aussi de réaliser des caractérisations très rapides. La répartition des points de mesures pris pour les régressions nous montre qu'il n'est pas nécessaire de prendre des points spécifique. En effet, les erreurs ne sont pas plus différentes dans nos cas, avec uniquement l'ordre de grandeur conservé.

Le tableau 4.22 nous présente les résultats des erreurs de prédictions avec toutes les données et avec les deux cas de réduction de données envisagés ici.

Les erreurs sont tout de même plus grandes sur la prédiction lorsque l'on réduit la quantité de données à chaque caractérisation. Toutefois la suggestion de prendre une première caractérisation complète puis seulement trois points de mesure est viable. En effet, l'erreur n'augmente que modérément et le temps de mesures est de moins d'une minute par EIS.

	Prédiction de Pola à 2016 <i>h</i>	Prédiction du comportement final
Initiale (4.6)	1.26%	3.9%
Test A : 5 points utilisés (4.3.3.1)	1.67%	6.67%
Test B : totale puis 3 points (4.3.3.2)	1.57%	4.33%

TABLEAU 4.22: Comparaison des erreurs MAPE sur les prédictions

## 4.4/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, l'objectif scientifique est étudié, en validant la capacité prédictive de l'approche proposée. Au delà de cette dernière la prise en compte des contraintes de mise en œuvre permet aussi de justifier de l'utilisation d'une telle approche pour un système industriel.

L'approche prédictive proposée est validée grâce à deux jeux de données différents. Le Jeu 3 qui présente une sollicitation constante perturbée permet d'obtenir de meilleurs résultats que le Jeu 2, qui lui présente une sollicitation sous forme de cycles. La prédiction du comportement est satisfaisante avec une erreur de moins de 3% sur les cents dernières heures pour les deux essais. L'aspect hybride de l'approche proposée apparaît clairement. En effet, les fonctions exponentielles des paramètres ne permettent pas une estimation des valeurs similaire à celles obtenues lors des procédures de mise à jour paramétrique. Malgré toutes les contraintes ajoutées, nous n'avons pas vraiment obtenu des valeurs qui représentent véritablement les phénomènes physiques. Les connaissances actuelles restent trop imprécises pour nous permettre de contraindre plus ces valeurs. L'approche permet tout de même une bonne prédiction du comportement ainsi que de la courbe de polarisation finale.

Une discussion sur la définition de pronostic est faite car il n'est pas proposé de valeur de durée de vie résiduelle. Le modèle est capable, grâce à l'estimation du comportement, de répondre à n'importe quelle interrogation que l'étape de décision pourrait poser. La question de définition du RUL est donc laissée ouverte. Cela permet de rendre souple la communication entre les phases suivantes du PHM et l'étape de pronostic, une pile PEMFC étant un système particulièrement dynamique avec une dégradation progressive.

Les contraintes d'une implémentation réelle sont ensuite discutées. En effet, l'algorithme de pronostic avec prédiction du RUL défini par le constructeur du système est implanté sous Labview dans le cadre de SAPPHERE. Le système industriel sur lequel l'approche a été implantée ne propose pas encore de mesure de spectroscopies d'impédance. Toutefois, une caractérisation avant la mise en service du système considéré et des données sur un autre stack de même technologie permettent tout de même de proposer une prédiction satisfaisante.

Cependant, la précision apportée par la prise en compte de mesure d'EIS semble préférable. C'est pourquoi nous avons spécifié la quantité de données nécessaires tout en démontrant la viabilité de cette solution pour l'implantation réelle.

Ce chapitre permet de démontrer que l'approche proposée fait face au verrou scientifique exposé, tout en levant les contraintes de mise en œuvre, au sein d'une implantation réelle.

# CONCLUSION GÉNÉRALE

## SYNTHÈSE DES TRAVAUX

La PEMFC est une technologie très prometteuse mais sa percée dans le monde industriel est freinée par différents aspects dont notamment sa durée de vie trop courte. Le PHM est un processus particulièrement adapté à ce type de limites. Cette thèse met en lumière l'importance de développer le PHM pour la pile PEMFC. Ce processus est composé par sept couches qui se répartissent en trois catégories : l'observation, l'analyse et l'action. Au sein de la large littérature traitant de la pile, on trouve de nombreux articles qui, même si ils ne portent pas la dénomination du PHM, peuvent être rapprochés aux différentes étapes du processus. La catégorie traitant de l'observation est finalement largement couverte. La première couche manquant cruellement de matière est celle du pronostic. Développer le pronostic de PEMFC est manifestement la prochaine étape à remplir avant de pouvoir lui appliquer le PHM.

Pour réaliser un pronostic, il existe plusieurs approches. Celle que nous choisissons est une approche hybride partant d'un modèle comportemental basé sur la formalisation des phénomènes physiques entrant en jeu. Cette approche est complétée par l'apport de données afin de combler les lacunes de connaissances.

Le premier chapitre de ce manuscrit pose le cadre en présentant la PEMFC ainsi que le processus du PHM afin d'étudier les aspects existants au sein de la littérature. Le projet européen SAPPHIRE encadre ces travaux et permet d'avoir un objectif plus concret : la mise en place de l'algorithme développé au sein d'un système industriel stationnaire. Au sein de la littérature concernant la PEMFC, les modèles sont étudiés afin de déterminer celui qui permettra une application en pronostic. Le choix s'est porté sur un modèle comportemental semi-analytique qui envisageait déjà l'inclusion de la dégradation. Deux parties composent ce modèle : la partie statique qui est développée à l'aide de la loi de Butler-Volmer ; et la partie dynamique petits signaux basée sur une équivalence électrique.

Le second chapitre du manuscrit présente la procédure d'identification paramétrique du modèle. Cette procédure nécessite une caractérisation qui est composée d'une courbe de polarisation et de plusieurs spectroscopies d'impédance. La procédure de mise à jour paramétrique apparaît comme une partie charnière des travaux, elle permet de définir le modèle et donc de le rendre utilisable grâce à des valeurs paramétriques. A la suite de cela, il est possible de valider le modèle sur des temps proches de la caractérisation utilisée. Ainsi, grâce à une expérimentation, il nous est possible de comparer la mesure de tension et la réponse du modèle à une même sollicitation en courant. Le nombre de paramètres apparaît d'or et déjà comme trop grand. En effet, lors de la procédure d'identification, il est possible d'atteindre de nombreux minima locaux. Réduire le nombre de paramètres à identifier pourrait permettre de réduire les risques de minima locaux. Nous réalisons une analyse de sensibilité paramétrique afin d'analyser l'influence des paramètres. Cette analyse est réalisée sur le modèle de comportement sur courte durée et sert de support

au chapitre suivant. La seconde partie de ce chapitre valide le modèle, elle nous permet d'affirmer qu'il lui est possible d'estimer le comportement d'une pile de manière précise (1.65% sur 100s après la caractérisation), mais sur une courte durée.

Le troisième chapitre tend à utiliser le modèle pour la simulation du vieillissement de la pile. L'importance du nombre de paramètres devient ici une préoccupation prépondérante car le nombre de minima locaux atteints lors des processus de mise à jour rend leur évolution temporelle aléatoire. Elle est donc difficile à modéliser. C'est dans ce cadre qu'une analyse statistique de la variabilité des paramètres est effectuée. Combinée à l'analyse de sensibilité paramétrique, nous pouvons faire des choix réduisant le nombre de paramètres obtenus à chaque procédure d'identification paramétrique. Ainsi, certains paramètres n'évolueront pas avec le temps, et d'autres seront modélisés par une fonction temporelle. En appliquant ces choix et en utilisant toutes les données il est possible de simuler avec exactitude le comportement vieillissant du stack étudié. Sur la totalité d'un essai avec oscillation dans la sollicitation, l'erreur entre la simulation et la mesure de la tension, est de 1.32% pour le vieillissement. Il est ainsi démontré qu'il est cohérent d'utiliser ce modèle pour la prédiction du comportement. Finalement, ce dernier chapitre, se concentre sur la validation de la modélisation du comportement vieillissant d'une pile.

Le quatrième et dernier chapitre apporte une solution complète et argumentée aux problématiques mises en lumière dans ces travaux. Tout d'abord, d'un point de vue purement scientifique, le modèle est en mesure d'apporter une prédiction satisfaisante à l'aide de trois caractérisations. Pour un essai sous une sollicitation nominale avec oscillation, la simulation donne 0.92% d'erreur sur la fin de la prédiction et 1.05% sur la totalité. Malgré une quantité de données nécessaires importante, l'ensemble utilisé pour l'apprentissage peut être réparti sur une courte durée (182h pour ce cas). L'approche proposée est donc bien une approche hybride de pronostic basée sur un modèle de comportement avec un apprentissage permettant aux paramètres d'évoluer temporellement. L'implantation réelle au sein d'un système industriel est discutée grâce à une étude de généricité puis d'applicabilité. L'hypothèse faite sur la nécessité de combiner les données de deux piles, au sein du projet SAPPHIRE, est validée grâce à des simulations : il est possible de reporter les résultats pour la variation paramétrique d'un stack sur un autre. Il reste cependant préférable d'obtenir les données de mesures, aussi minimales soient-elles. C'est ainsi que la quantité minimale de données est évaluée et rend les caractérisations réalisables sur un stack en cours de fonctionnement.

Ces travaux se sont donc concentrés sur deux volets : la réalisation d'une approche hybride basée sur un modèle comportemental pour le pronostic de PEMFC et l'étude de la faisabilité de cette approche pour sa mise en place au sein d'un système.

## PERSPECTIVES

Les travaux proposés répondent aux deux problématiques principales énoncées dans ce manuscrit : l'aspect scientifique se penchant sur le pronostic et l'aspect implantation se concentrant sur la mise en ligne de l'approche prédictive. Cependant ces dernières s'insèrent au sein d'une préoccupation plus grande : l'application du PHM à la PEMFC. Afin de travailler par étapes, les sujets abordés sont cadrés. Toutefois pour pouvoir aller plus loin dans l'application du PHM à la PEMFC, il est nécessaire de faire tomber les verrous mis en lumière au fur et à mesure des travaux.

## Aller au delà du cadre de l'étude

Jusqu'ici le problème considéré traite du pronostic d'un stack sur des profils de missions répétables et prévisibles. Pour cela nous avons proposé une approche hybride basée sur un modèle comportemental de pile. Cependant, ce problème, ainsi que cette solution, font apparaître certaines limites que nous listons ci-dessous et qu'il faudra, en temps voulu, considérer.

Dans un premier temps, il sera nécessaire de mettre en place l'approche proposée au sein du système industriel en réalisant et employant la mesure d'EIS adaptée. En effet, lors de la mise en place de l'algorithme développé nous avons composé avec le manque de données, or la réalisation de ces mesures est possible et réalisable grâce à la mise en place d'un convertisseur sur le système. Ainsi, il serait intéressant de réaliser une analyse des bruits de mesure induits, et d'identifier les fréquences pertinentes pour la réduction des EIS. Cela nous permettra de mettre en place l'approche complète dans le système stationnaire.

Il serait bon de pousser l'analyse en réalisant une quantification des incertitudes en étudiant plus finement la dispersion des paramètres estimés.

Le modèle utilisé dans ces travaux présente certaines limites qu'il faut étudier. La première évoquée ici, est la nécessité des données. Celle-ci est déjà très réduite grâce à l'étude traitée au chapitre 4. La seconde est l'hypothèse de l'homogénéité de la composition des cellules. Pour ce faire, si un pronostic par cellule est désiré, il sera possible de travailler sur la granularité et donc de mettre en place des mesures cellules et ainsi d'appliquer l'approche pour chacune d'elles.

Une hypothèse forte liée à l'utilisation de toute approche de pronostic de PEMFC repose sur la sollicitation. Le vieillissement d'un stack dépend de la sollicitation qu'il subit. Ainsi, si on utilise une période d'apprentissage pour réaliser une prédiction, on suppose que la sollicitation reste la même tout au long de l'utilisation du système. Il faudra réussir à s'affranchir de cette limite afin de pouvoir fournir une prédiction plus fiable. Pour cela, il faudra probablement faire dépendre le vieillissement de chaque paramètre en fonction du profil de mission.

Lors de ces travaux, nous avons pris en compte les dégradations dues au vieillissement d'un stack. Il sera nécessaire d'étendre l'application du pronostic au système entier, le stack ainsi que ses auxiliaires. Il pourrait également être intéressant d'ajouter la modélisation des dégradations réversibles de sorte à pouvoir prédire ses bienfaits, voire même les suggérer à la décision.

## Vers un modèle comportemental plus près de la physique

Afin d'améliorer l'approche de pronostic proposée, il est nécessaire d'accroître les connaissances sur les phénomènes de vieillissement d'une pile. En effet, pour se diriger vers une approche basée modèle, il faut se concentrer sur la modélisation des paramètres. L'estimation des paramètres est finalement basée sur les données et renferme la partie apprentissage de notre approche. Les valeurs obtenues lors des procédures de mises à jour paramétriques ne sont pas forcément les valeurs "réelles". La solution au problème d'optimisation peut être mathématique sans réel sens physique. Par extension, les valeurs estimées grâce à la modélisation temporelle des paramètres ne sont pas non plus forcément justes. Ainsi, avoir une modélisation temporelle qui s'éloigne des valeurs obtenues lors des procédures d'initialisation du modèle, comme c'est le cas dans le chapitre 4, n'est pas incohérent. Cependant, le sens physique qui devrait être renfermé par chaque paramètre

est perdu de vue. L'état des connaissances actuelles du vieillissement de la pile et des phénomènes auxquels il est dû n'est pas assez avancé dans l'immédiat pour pouvoir dès maintenant proposer une amélioration. C'est donc un point sur lequel il faut se concentrer, afin d'avoir des tendances, voir même des fonctions pour chaque paramètre. Il sera ainsi possible de contraindre les régressions avec des conditions réelles et non plus supposées de sorte à pouvoir prédire les valeurs réelles des paramètres.

### **Vers une communication à double sens avec le diagnostic au sein du PHM**

La réalisation d'un modèle basé physique repose sur la prédiction plus uniquement du comportement, mais prenant également en considération la valeur des paramètres. Dans ces conditions, les valeurs prédites pour les paramètres auront un réel sens physique. Ceci permettra de prédire l'état de tel ou tel phénomène. L'approche ne proposera plus simplement un pronostic, c'est à dire une estimation de la durée de vie résiduelle, ou une prédiction du comportement. Elle proposera aussi la prédiction du diagnostic pour le stack. Le diagnostic ayant les compétences pour analyser les valeurs de chaque paramètre, la communication avec le pronostic permettra, de prédire l'occurrence d'une défaillance et de découvrir le phénomène en cause.

### **Vers une communication à double sens avec la décision au sein du PHM**

Au sein du dernier chapitre, nous avons proposé une discussion traitant du pronostic. L'approche développée dans ces travaux permet de prédire le comportement, et, par extension, d'estimer la date de fin de vie. Cependant, le choix d'un seuil de fin de vie pour la pile à combustible n'est pas un tâche aisée au vu de la diversité des applications et de la dynamique du système. La communication entre le pronostic et les couches suivantes semble cruciale. Les couches permettant d'agir à la suite de l'analyse ont besoin des informations que cette dernière peut fournir. Ainsi, pourquoi ne pas cibler plus précisément ce qui est nécessaire et pour cela faire intervenir la décision afin qu'elle obtienne des informations précises. En effet, selon l'application, la demande mais aussi suivant de nombreux critères, le pronostic change. Or, c'est à priori la décision qui détient ces informations, et qui pourrait les communiquer à l'étape de pronostic afin de poser les question adaptées et d'en obtenir des réponses au plus juste. Ces dernières permettront de proposer des actions plus adéquates pour optimiser l'usage.

# BIBLIOGRAPHIE

- [1] D-code - dcdc converter-based diagnostics for pem systems ; <https://dcode.eifer.kit.edu/>.
- [2] Annex 1 - "description of work", sapphire : System automation of pemfcs with prognostics and health management for improved reliability and economy. Technical report, Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking (FCH JU), 2013.
- [3] K. S. Agbli. *Modélisation multiphysique des flux énergétiques d'un Couplage Photovoltaïque-Electrolyseur PEM-Pile à Combustible PEM en vue d'une application stationnaire*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2012.
- [4] K. Agbossou, R. Chahine, J. Hamelin, F. Laurencelle, A. Anouar, J.-M. St-Arnaud, and T. Bose. Renewable energy systems based on hydrogen for remote applications. *Journal of Power Sources*, 96(1) :168 – 172, 2001. Proceedings of the 22nd International Power Sources Symposium.
- [5] A. W. Al-Dabbagh, L. Lu, and A. Mazza. Modelling, simulation and control of a proton exchange membrane fuel cell (pemfc) power system. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 35 :5061 – 5069, 2009.
- [6] L. ANTONI. La pile à combustible un convertisseur d'énergie d'avenir. *Revue du Palais de la découverte*, 344-345 :80–94, 2007.
- [7] S. S. Asl, S. Rowshanzamir, and M. Eikani. Modelling and simulation of the steady-state and dynamic behaviour of a pem fuel cell. *Energy*, 35 :1633 – 1646, 2009.
- [8] F. Barbir. *PEM Fuel Cells : Theory and Practice*. Academic Press, second edition, 2012.
- [9] S. Begot, F. Harel, J.-M. Kauffmann, and M.-C. Péra. Freeze-thaw ageing effects on PEM fuel cells. In *Fundamentals and Developments of Fuel Cells Conference*, pages ISBN 978–2–7466–0413–1, Nancy, France, 2008.
- [10] D. Bezmalinovic, B. Simic, and F. Barbir. Characterization of {PEM} fuel cell degradation by polarization change curves. *Journal of Power Sources*, 294 :82 – 87, 2015.
- [11] A. Biyikoglu. Review of proton exchange membrane fuel cell models. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 30 :1181 – 1212, 2005.
- [12] F. Bogard, K. Debray, and Y. Guo. Determination of sensor positions for predictive maintenance of revolving machines. *International Journal of Solids and Structures*, 39(12) :3159 – 3173, 2002.
- [13] P. Boursin. Histoire de la voiture électrique ; <http://philippe.boursin.perso.sfr.fr/velec/1965.htm>.
- [14] M. Bressel, M. Hilairret, D. Hissel, and B. Ould-Bouamama. Dynamical modeling of proton exchange membrane fuel cell and parameters identification. In *6th International Conference on Fundamentals and Developments of Fuel Cells, FDFC'2015*, pages OPR2–8 (8 pages), feb 2015.

- [15] C. Brunetto, G. Tina, G. Squadrito, and A. Moschetto. Pemfc diagnostics and modelling by electrochemical impedance spectroscopy. In *Electrotechnical Conference, 2004. MELECON 2004. Proceedings of the 12th IEEE Mediterranean*, volume 3, pages 1045–1050 Vol.3, May 2004.
- [16] M. Buchholz, M. Eswein, and V. Krebs. Modelling pem fuel cell stacks for fdi using linear subspace identification. In *Control Applications, 2008. CCA 2008. IEEE International Conference on*, pages 341–346. IEEE, 2008.
- [17] C. Cadet, S. Jemeï, F. Druart, and D. Hissel. Diagnostic tools for pemfcs : from conception to implementation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(20) :10613 – 10626, 2014.
- [18] F. Camci and R. Chinnam. Health-state estimation and prognostics in machining processes. *Automation Science and Engineering, IEEE Transactions on*, 7(3) :581–597, July 2010.
- [19] D. Candusso, R. Glises, D. Hissel, J.-M. Kauffmann, and M. C. Péra. Piles à combustible pemfc et sofce description et gestion du système. *Techniques de l'ingénieur Chimie verte et nouvelle gestion de l'énergie*, 2007.
- [20] J. R. Celaya, C. Kulkarni, G. Biswas, S. Saha, and K. Goebel. A model-based prognostics methodology for electrolytic capacitors based on electrical overstress accelerated aging. In *Proceedings of Annual Conference of the PHM Society, September*, pages 25–29, 2011.
- [21] M. Ceraolo, C. Miulli, and A. Pozio. Modelling static and dynamic behaviour of proton exchange membrane fuel cell on the basis of electro-chemical description. *Journal of Power Sources*, 113(1) :131 – 144, 2003.
- [22] R. Chattot and S. Escribano. Ageing studies of a {PEM} fuel cell stack developed for reformat fuel operation in ?chp units : Development of an accelerated degradation procedure. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(15) :5367 – 5374, 2015.
- [23] S. Chevalier, D. Trichet, B. Auvity, J. Olivier, C. Josset, and M. Machmoum. Multiphysics dc and ac models of a pemfc for the detection of degraded cell parameters. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(26) :11609 – 11618, 2013.
- [24] S. Cleghorn, D. Mayfield, D. Moore, J. Moore, G. Rusch, T. Sherman, N. Sisofo, and U. Beuscher. A polymer electrolyte fuel cell life test : 3 years of continuous operation. *Journal of Power Sources*, 158(1) :446 – 454, 2006.
- [25] J. Coble and J. W. Hines. Applying the general path model to estimation of remaining useful life. *International Journal of Prognostics and Health Management Volume 2 (color)*, page 71, 2011.
- [26] A. Conn, N. Gould, and P. Toint. A globally convergent lagrangian barrier algorithm for optimization with general inequality constraints and simple bounds. *Mathematics of Computation of the American Mathematical Society*, 66(217) :261–288, 1997.
- [27] A. R. Conn, N. I. Gould, and P. Toint. A globally convergent augmented lagrangian algorithm for optimization with general constraints and simple bounds. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 28(2) :545–572, 1991.
- [28] M. Crowder and J. Lawless. On a scheme for predictive maintenance. *European Journal of Operational Research*, 176(3) :1713 – 1722, 2007.
- [29] M. J. Daigle and K. Goebel. A model-based prognostics approach applied to pneumatic valves. *International Journal of Prognostics and Health Management Volume 2 (color)*, page 84, 2011.

- [30] C. Damour, M. Benne, B. Grondin-Perez, J.-P. Chabriat, and B. G. Pollet. A novel non-linear model-based control strategy to improve {PEMFC} water management - the flatness-based approach. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(5) :2371 – 2376, 2015.
- [31] S. De Lira, V. Puig, and J. Quevedo. Robust lpv model-based sensor fault diagnosis and estimation for a pem fuel cell system. In *Control and Fault-Tolerant Systems (SysTol), 2010 Conference on*, pages 819–824. IEEE, 2010.
- [32] U. S. Department of Energy. The department of energy hydrogen and fuel cells program plan, 2011 ; [http://www.hydrogen.energy.gov/roadmaps\\_vision.html](http://www.hydrogen.energy.gov/roadmaps_vision.html).
- [33] A. Doucet. On sequential simulation-based methods for bayesian filtering. Technical report, University of Cambridge, CUED/F-INFENG/TR.310, 1998.
- [34] O. Eker, F. Camci, and I. Jennions. Major challenges in prognostics : Study on benchmarking prognostics datasets. *PHM Europe, 6th–8th July*, 2012.
- [35] O. Elena Dragomir, R. Gouriveau, F. Dragomir, E. Minca, and N. Zerhouni. Review of prognostic problem in condition-based maintenance. In *European Control Conference, ECC'09*, pages 1585–1592, Budapest, Hungary, Aug. 2009.
- [36] N. Fouquet, C. Doulet, C. Nouillant, G. Dauphin-Tanguy, and B. Ould-Bouamama. Model based pem fuel cell state-of-health monitoring via ac impedance measurement. *Journal of Power Sources*, 159(2) :905 – 913, 2006.
- [37] L. Franck-Lacaze, C. Bonnet, E. Choi, J. Moss, S. Pontvianne, H. Poirot, R. Datta, and F. Lopicque. Ageing of pemfc's due to operation at low current density : Investigation of oxidative degradation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 35(19) :10472 – 10481, 2010. Indo-French Workshop on Biohydrogen : from Basic Concepts to Technology.
- [38] H. P. Gavin. The levenberg-marquardt method for nonlinear least squares curve-fitting problems. Technical report, Department of Civil and Environmental Engineering, Duke University, 2015.
- [39] C. Gay. *Amélioration de l'efficacité énergétique des système de micro-cogénération : association pile à combustible SOFC / Moteur Stirling*. PhD thesis, Université de Franche Comté, 2012.
- [40] K. Goebel, B. Saha, A. Saxena, J. R. Celaya, and J. P. Christophersen. Prognostics in battery health management. *IEEE instrumentation & measurement magazine*, 11(4) :33, 2008.
- [41] R. Gouriveau, K. Medjaher, E. Ramasso, and N. Zerhouni. *Techniques de l'Ingénieur*, volume MT9570. Phm - prognostics and health management - de la surveillance au pronostic de défaillances de systèmes complexes edition, Avril 2013.
- [42] F. Harel, X. Francois, S. Jemeï, and S. Moratin. Conception et réalisation d'un banc d'essai pour piles á combustibles á membrane de faibles puissances. Technical Report LTE 0310, Rapport INRETS, Belfort, France, Mai 2003.
- [43] F. Harel, S. Jemeï, X. Francois, M.-C. Péra, D. Hissel, and J.-M. Kauffmann. Experimental investigations on pemfc : a test bench design. In *France-Deutschland Fuel Cell Conference*, October 2002.
- [44] M. Hedi Karray, B. Chebel-Morello, and N. Zerhouni. A trace based system for decision activities in cbm process. In *Information Control Problems in Manufacturing.*, pages 1–6, Bucharest, Roumanie, 2012.

- [45] A. Heng, S. Zhang, A. Tan, and J. Mathew. Rotating machinery prognostics : State of the art, challenges and opportunities. *Mechanical Systems and Signal Processing*, 23 :724 – 739, April 2008.
- [46] A. Hernandez, D. Hissel, and R. Outbib. Modeling and fault diagnosis of a polymer electrolyte fuel cell using electrical equivalent analysis. *Energy Conversion, IEEE Transactions on*, 25(1) :148–160, 2010.
- [47] N. Herr, J.-M. Nicod, C. Varnier, L. Jardin, A. Sorrentino, R. Gouriveau, D. Hissel, and M.-C. Péra. Decision process to manage useful life of multi-stacks fuel cell systems under service constraint. In *6th International Conference Fundamentals and Development of Fuel Cells, FDFC'15.*, Toulouse - France, feb 2015.
- [48] A. Hess, J. S. Stecki, and S. D. Rudov-Clark. The maintenance aware design environment : Development of an aerospace phm software tool. *Proc. PHM08*, 2008.
- [49] M. Hinaje, S. Raöel, P. Noiying, D. A. Nguyen, and B. Davat. An equivalent electrical circuit model of proton exchange membrane fuel cells based on mathematical modelling. *Energies*, 5(8) :2724–2744, 2012.
- [50] D. Hissel, D. Candusso, and F. Harel. Fuzzy-clustering durability diagnosis of polymer electrolyte fuel cells dedicated to transportation applications. *IEEE Transactions on Vehicular Technology*, 56(5) :2414 – 2420, 2007.
- [51] D. Hissel, M. Péra, D. Candusso, F. Harel, and S. Bégot. *Characterisation of Polymer Electrolyte Fuel Cell for embedded generators. Test bench design and methodology*, chapter Advances in fuel cells. Research Signpost, North Carolina State Univ., 2005.
- [52] D. Hissel, M. C. Péra, and D. Candusso. *Pile à combustible : aspect système*, chapter 7, Problématique du stockage d'énergie, pages 205 – 227. Hermes-Lavoisier, 2009.
- [53] A. V. Horenbeek and L. Pintelon. A dynamic predictive maintenance policy for complex multi-component systems. *Reliability Engineering & System Safety*, 120 :39 – 50, 2013.
- [54] Y. Hou, Z. Yang, and G. Wan. An improved dynamic voltage model of pem fuel cell stack. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 35(20) :11154 – 11160, 2010.
- [55] ISO. *Condition monitoring and diagnostics of machines, prognostics, Part1 : General guidelines*. International Standard, ISO13381-1, 2004.
- [56] A. K. Jardine, D. Lin, and D. Banjevic. A review on machinery diagnostics and prognostics implementing condition-based maintenance. *Mechanical Systems and Signal Processing*, 20 (7) :1483–1510, 2006.
- [57] M. Jouin, R. Gouriveau, D. Hissel, M.-C. Péra, and N. Zerhouni. Prognostics of pem fuel cell in a particle filtering framework. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(1) :481 – 494, 2014.
- [58] M. Jourdan, H. Mounir, and A. El Marjani. Compilation of factors affecting durability of proton exchange membrane fuel cell (pemfc). In *Renewable and Sustainable Energy Conference (IRSEC), 2014 International*, pages 542–547, Oct 2014.
- [59] S. Kadry. *Diagnostics and Prognostics of Engineering Systems : Methods and Techniques : Methods and Techniques*. IGI Global, 2012.
- [60] T. Kim, H. Kim, J. Ha, K. Kim, J. Youn, J. Jung, and B. Youn. A degenerated equivalent circuit model and hybrid prediction for state-of-health (soh) of pem fuel cell. In *Prognostics and Health Management (PHM), 2014 IEEE Conference on*, pages 1–7, June 2014.

- [61] J. Kimotho, T. Meyer, and W. Sextro. Pem fuel cell prognostics using particle filter with model parameter adaptation. In *Prognostics and Health Management (PHM), 2014 IEEE Conference on*, pages 1–6, June 2014.
- [62] S. D. Knights, K. M. Colbow, J. St-Pierre, and D. P. Wilkinson. Aging mechanisms and lifetime of pefc and dmfc. *Journal of Power Sources*, 127 :127–134, 2004.
- [63] E. Laffly, M.-C. Pera, and D. Hissel. Polymer electrolyte membrane fuel cell modeling and parameters estimation for ageing consideration. In *Industrial Electronics, 2007. ISIE 2007. IEEE International Symposium on*, pages 180–185, June 2007.
- [64] E. Laffly, M. C. Péra, and D. Hissel. Pem fuel cell modeling with static-dynamic decomposition and voltage rebuilding. In *Industrial Electronics, 2008. ISIE 2008. IEEE International Symposium on*, pages 1519–1524. IEEE, 2008.
- [65] J. Larminie and A. Dicks. *Fuel cell Systems Explained*. John Wiley & Sons, 2003.
- [66] A. Lasia. Electrochemical impedance spectroscopy and its applications. In *Modern aspects of electrochemistry*, pages 143–248. Springer, 2002.
- [67] S. Lazarou, E. Pyrgioti, and A. T. Alexandridis. A simple electric circuit model for proton exchange membrane fuel cells. *Journal of Power Sources*, 190 :380 – 386, 2009.
- [68] M. Lebold and M. Thurston. Open standards for condition-based maintenance and prognostic systems. In *5th Annual Maintenance and Reliability Conference*, 2001.
- [69] E. Lechartier. Modèle statique d’une pemfc en vue d’une application au pronostic. In *Journées des Jeunes Chercheurs en Génie Electrique, JCGE’2014.*, pages 1–8, june 2014.
- [70] E. Lechartier, R. Gouriveau, M.-C. Péra, D. Hissel, and N. Zerhouni. Static and dynamic modeling of a pemfc for prognostics purpose. In *Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC’14)*, pages IS1–4 (5 pages). IEEE, oct 2014.
- [71] E. Lechartier, R. Gouriveau, M.-c. Péra, D. Hissel, and N. Zerhouni. Towards an ageing model of a pemfc for prognostics purpose. In *International Discussion on Hydrogen Energy and Application, IDHEA’2014.*, pages 1–7, may 2014.
- [72] E. Lechartier, R. Gouriveau, M.-C. Péra, D. Hissel, and N. Zerhouni. Parametric sensitivity analysis of a pemfc physics-based model developed for prognostics. In *IEEE International Conference Prognostics & Health Management, PHM’15.*, pages 1–7, AUSTIN, TEXAS - USA, june 2015. IEEE Control System Society.
- [73] E. Lechartier, E. Laffly, M.-C. Péra, R. Gouriveau, D. Hissel, and N. Zerhouni. Proton exchange membrane fuel cell behavioral model suitable for prognostics. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(26) :8384 – 8397, 2015.
- [74] J. Lee, F. Wu, W. Zhao, M. Ghaffari, L. Liao, and D. Siegel. Prognostics and health management design for rotary machinery systems - reviews, methodology and applications. *Mechanical Systems and Signal Processing*, 42(1 - 2) :314 – 334, 2014.
- [75] J.-H. Lee, J.-H. Lee, W. Choi, K.-W. Park, H.-Y. Sun, and J.-H. Oh. Development of a method to estimate the lifespan of proton exchange membrane fuel cell using electrochemical impedance spectroscopy. *Journal of Power Sources*, 195 :6001–6007, 2010.
- [76] Q. Li and Z. B. Gao. A similarity-based prognostics approach for full cells state of health. In *Prognostics and System Health Management Conference (PHM-2014 Hunan), 2014*, pages 279–283, Aug 2014.

- [77] H. Liao, E. A. Elsayed, and L.-Y. Chan. Maintenance of continuously monitored degrading systems. *European Journal of Operational Research*, 175(2) :821 – 835, 2006.
- [78] J. R. Lile and S. Zhou. Theoretical modeling of the {PEMFC} catalyst layer : A review of atomistic methods. *Electrochimica Acta*, 177 :4 – 20, 2015. International Conference on Electrochemical Energy Science and Technology (EEST2014).
- [79] S. Luce. Choice criteria in conditional preventive maintenance. *Mechanical Systems and Signal Processing*, 13(1) :163 – 168, 1999.
- [80] D. W. Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the Society for Industrial & Applied Mathematics*, 11(2) :431–441, 1963.
- [81] L. Martins, J. Gardolinski, J. Vargas, J. Ordonez, S. Amico, and M. Forte. The experimental validation of a simplified pemfc simulation model for design and optimization purposes. *Applied Thermal Engineering*, 29 :3036–3048, 2009.
- [82] MathWorks. How globalsearch and multistart work ; <http://fr.mathworks.com/help/gads/how-globalsearch-and-multistart-work.html>.
- [83] MathWorks. How the genetic algorithm works ; <http://fr.mathworks.com/help/gads/how-the-genetic-algorithm-works.html>.
- [84] MathWorks. Least-squares (model fitting) algorithms ; <http://fr.mathworks.com/help/optim/ug/least-squares-model-fitting-algorithms.html>.
- [85] M. Mench, Q. Dong, and C. Wang. In situ water distribution measurements in a polymer electrolyte fuel cell. *Journal of Power Sources*, 2003.
- [86] P. Moçotéguy, B. Ludwig, and N. Steiner. Influence of ageing on the dynamic behaviour and the electrochemical characteristics of a 500 we pemfc stack. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(19) :10230 – 10244, 2014.
- [87] M. Mongeau. Optimisation globale, 2010.
- [88] S. Morando, S. Jemei, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel. Anova method applied to pemfc ageing forecasting using an echo state network. In *11th International Conference on Modeling and Simulation of Electric Machines, Converters and Systems (ElectrIMACS 2014)*, pages 652 – 657. Universitat Politècnica de València, may 2014.
- [89] S. Morando, S. Jemei, R. Gouriveau, N. Zerhouni, and D. Hissel. Fuel cells remaining useful lifetime forecasting using echo state network. In *Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC 2014)*, pages IS1–6 (pages). IEEE, oct 2014.
- [90] S. Morando, S. Jemei, D. Hissel, R. Gouriveau, and N. Zerhouni. {ANOVA} method applied to proton exchange membrane fuel cell ageing forecasting using an echo state network. *Mathematics and Computers in Simulation*, page In press, 2015.
- [91] J. J. Moré. The levenberg-marquardt algorithm : implementation and theory. *Lecture Notes in Mathematics*, 630 :105–116, 1977.
- [92] A. Narjiss, D. Depernet, D. Candusso, F. Gustin, and D. Hissel. On-line diagnosis of a pem fuel cell through the pwm converter. In *Fundamentals and Developments of Fuel Cells Conference 2008, FDFC2008*, pages 1 – 6, Dec 2008.
- [93] R. Onanena. *Diagnostic de piles à combustible PEMFC : sélection de descripteurs et suivi de point de fonctionnement*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2012.

- [94] R. Onanena, L. Oukhellou, D. Candusso, F. Harel, D. Hissel, and P. Aknin. Fuel cells static and dynamic characterizations as tools for the estimation of their ageing time. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 36 :1730 – 1739, 2011.
- [95] R. Onanena, L. Oukhellou, D. Candusso, A. Same, D. Hissel, and P. Aknin. Estimation of fuel cell operating time for predictive maintenance strategies. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 35 :8022 – 8029, 2010.
- [96] S.-K. Park and S.-Y. Choe. Dynamic modeling and analysis of a 20-cell pem fuel cell stack considering temperature and two-phase effects. *Journal of Power Sources*, 179 :660–672, 2008.
- [97] M. Pecht and R. Jaai. A prognostics and health management roadmap for information and electronics-rich systems. *Microelectronics Reliability*, 50(3) :317 – 323, 2010.
- [98] M. C. Péra, D. Candusso, and D. Hissel. Power generation by fuel cells. In *IEEE - Industrial Electronics Magazine*, volume 1, pages 28–37, 2007.
- [99] M.-C. Pera, D. Hissel, H. Gualous, and C. Turpin. *Electrochemical Components*. John Wiley & Sons, 2013.
- [100] M.-C. Péra, D. Hissel, H. Gualous, and C. Turpin. *Composants électrochimiques*. Lavoisier, 2014.
- [101] R. Petrone, D. Hissel, M. Péra, D. Chamagne, and R. Gouriveau. Accelerated stress test procedures for {PEM} fuel cells under actual load constraints : State-of-art and proposals. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40(36) :12489 – 12505, 2015.
- [102] R. Petrone, Z. Zheng, D. Hissel, M. Péra, C. Pianese, M. Sorrentino, M. Becherif, and N. Yousfi-Steiner. A review on model-based diagnosis methodologies for pemfcs. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(17) :7077 – 7091, 2013.
- [103] S. Philipps and C. Ziegler. Computationally efficient modeling of the dynamic behavior of a portable pem fuel cell stack. *Journal of Power Sources*, 180 :309 – 321, 2008.
- [104] Y. Rajput. Modeling distributed rc lines for the transient analysis of complex networks. *International Journal of electronics*, 36(5) :709 – 717, 1974.
- [105] U. Reggiani, L. Sandrolini, and G. G. Burbui. Modelling a pem fuel cell stack with a nonlinear equivalent circuit. *Journal of Power Sources*, 165 :224 – 231, 2007.
- [106] R. L. Riche, S. Mottelet, and E. Touboul. Optimisation locale et globale, 2010.
- [107] C. Robin, M. Gerard, A. A. Franco, and P. Schott. Multi-scale coupling between two dynamical models for pemfc aging prediction. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 38(11) :4675 – 4688, 2013.
- [108] C. Sankavaram, B. Pattipati, A. Kodali, K. Pattipati, M. Azam, S. Kumar, and M. Pecht. Model-based and data-driven prognosis of automotive and electronic systems. In *Automation Science and Engineering, 2009. CASE 2009. IEEE International Conference on*, 2009.
- [109] R. Satija, D. Jacobson, M. Arif, and S. Werner. In situ neutron imaging technique for evaluation of water management systems in operating pem fuel cells. *Journal of Power Sources*, 129(2) :238 – 245, 2003.
- [110] W. Schmittinger and A. Vahidi. A review of the main parameters influencing long-term performance and durability of {PEM} fuel cells. *Journal of Power Sources*, 180(1) :1 – 14, 2008.

- [111] J. Scholta. Stacks delivery. Deliverable of SAPPHERE 3.1, ZSW, 2014. Restricted to other programme participants.
- [112] Y. Shan and S.-Y. Choe. Modeling and simulation of a pem fuel cell stack considering temperature effects. *Journal of Power Sources*, 158(1) :274 – 286, 2006.
- [113] N. Siegel, M. Ellis, D. Nelson, and M. von Spakovsky. A two-dimensional computational model of a pemfc with liquid water transport. *Journal of Power Sources*, 128(2) :173 – 184, 2004.
- [114] J. Sikorska, M.Hodkiewicz, and L.Mac. Prognostic modelling options for remaining useful life estimation by industry. *Mechanical Systems and Signal Processing*, 25 :1803 – 1836, 2011.
- [115] R. Silva, R. Gouriveau, S. Jemeï, D. Hissel, L. Boulon, K. Agbossou, and N. Y. Steiner. Proton exchange membrane fuel cell degradation prediction based on adaptive neuro-fuzzy inference systems. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(21) :11128 – 11144, 2014.
- [116] N. Y. Steiner, D. Hissel, P. Moçotéguy, and D. Candusso. Diagnosis of polymer electrolyte fuel cells failure modes (flooding & drying out) by neural networks modeling. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 36 :3067 – 3075, 2011.
- [117] P. Stevens, F. Novel-Cattin, and A. Hammou. *Piles à combustibles*, volume D3 - D3340. Techniques de l'Ingénieur - Traité de Génie Electrique, 2000.
- [118] D. Stolten. *Hydrogen and fuel cells : fundamentals, technologies and applications*. John Wiley & Sons, 2010.
- [119] L. Tang, J. DeCastro, G. Kacprzyński, K. Goebel, and G. Vachtsevanos. Filtering and prediction techniques for model-based prognosis and uncertainty management. In *Prognostics and Health Management Conference, 2010. PHM'10*, pages 1 – 10. IEEE, 2010.
- [120] T. Tinga and R. Loendersloot. Aligning phm, shm and cbm by understanding the physical system failure behaviour. 5(033), 2014.
- [121] C. Turpin. Pile à combustible et composants électrochimiques de stockage : caractérisation, modélisation et mise en oeuvre dans des systèmes énergétiques, accreditation to supervise reasearch. Technical report, Institut National Polytechnique de Toulouse, January 2008.
- [122] S. Uckun, K. Goebel, and P. J. Lucas. "standardizing research methods for prognostics".
- [123] Z. Ugray, L. Lasdon, J. Plummer, F. Glover, J. Kelly, and R. Martí. Scatter search and local nlp solvers : A multistart framework for global optimization. *INFORMS Journal on Computing*, 19(3) :328–340, 2007.
- [124] W. Vianna, I. Paixao de Medeiros, B. Santos Aflalo, L. Ramos Rodrigues, and J. Pinheiro Malere. Proton exchange membrane fuel cells (pemfc) impedance estimation using regression analysis. In *Prognostics and Health Management (PHM), 2014 IEEE Conference on*, pages 1–8, June 2014.
- [125] S. Wasterlain, D. Candusso, F. Harel, X. François, and D. Hissel. Diagnosis of a fuel cell stack using electrochemical impedance spectroscopy and bayesian networks. In *Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC), 2010 IEEE*, pages 1–6. IEEE, 2010.
- [126] S. Wasterlain, D. Candusso, F. Harel, D. Hissel, and X. F. cois. Development of new test instruments and protocols for the diagnostic of fuel cell stacks. *Journal of Power Sources*, 196 :5332 – 5340, 2010.

- [127] T. Weise. Global optimization algorithms-theory and application, January 2008.
- [128] J. Wu, X. Z. Yuan, J. J. Martin, H. Wang, J. Zhang, J. Shen, S. Wu, and W. Merida. A review of pem fuel cell durability : Degradation mechanisms and mitigation strategies. *Journal of Power Sources*, 2008.
- [129] J. Wu, X. Z. Yuan, H. Wang, M. Blanco, J. J. Martin, and J. Zhang. Diagnostic tools in pem fuel cell research : Part i electrochemical techniques. *International Journal Of Hydrogen Energy*, 33(6) :1735 – 1746, 2008.
- [130] J. Wu, X. Z. Yuan, H. Wang, M. Blanco, J. J. Martin, and J. Zhang. Diagnostic tools in pem fuel cell research : Part ii physical/chemical methods. *International Journal of Hydrogen Energy*, 33(6) :1747 – 1757, 2008.
- [131] Q. Yang, A. Aitouche, and B. O. Bouamama. Fault detection and isolation of pem fuel cell system by analytical redundancy. In *Control & Automation (MED), 2010 18th Mediterranean Conference on*, pages 1371–1376. IEEE, 2010.
- [132] P. Ying, D. Ming, and Z. Ming Jian. Current status of machine prognostics in condition-based maintenance : a review. *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 50(1) :297 – 313, 2010.
- [133] N. Yousfi Steiner, D. Hissel, P. Moçotéguy, D. Candusso, D. Marra, C. Pianese, and M. Sorrentino. Application of fault tree analysis to fuel cell diagnosis. *Fuel Cells*, 12(2) :302–309, 2012.
- [134] N. Yousfi-Steiner, P. Moçotéguy, D. Candusso, and D. Hissel. A review on polymer electrolyte membrane fuel cell catalyst degradation and starvation issues : Causes, consequences and diagnostic for mitigation. *Journal of Power Sources*, 194 :130 – 145, 2009.
- [135] N. Yousfi-Steiner, P. Moçotéguy, D. Candussoc, D. Hissel, A. Hernandez, and A. Aslanides. A review on pem voltage degradation associated with water management : Impacts, influent factors and characterization. *Journal of Power Sources*, 183 :260 – 274, 2008.
- [136] A. Zeller, O. Rallieres, J. Regnier, and C. Turpin. Diagnosis of a hydrogen/air fuel cell by a statistical model-based method. In *Vehicle Power and Propulsion Conference (VPPC), 2010 IEEE*, pages 1–6. IEEE, 2010.
- [137] X. Zhang. *Prognostic and health Managment oriented Fuel cell Modeling and On Line Supervisory system development*. PhD thesis, Clemson University, USA, 2010.
- [138] X. Zhang and P. Pisu. An unscented kalman filter based approach for the health-monitoring and prognostics of a polymer electrolyte membrane fuel cell. In *Annual Conference of the Prognostics and Health Management Society 2012, PHM 2012*, pages 353–361. Prognostics and Health Management Society, 2012.
- [139] Z. Zheng, R. Petrone, M. Péra, D. Hissel, M. Becherif, C. Pianese, N. Y. Steiner, and M. Sorrentino. A review on non-model based diagnosis methodologies for pem fuel cell stacks and systems. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(21) :8914 – 8926, 2013.
- [140] Z.-D. Zhong, X.-J. Zhu, and G.-Y. Cao. Modeling a pemfc by a support vector machine. *Journal of Power Sources*, 160 :293–298, 2006.





## Résumé :

Les préoccupations environnementales actuelles nous amènent à envisager des solutions alternatives, telles que la pile à combustible. Cette dernière malgré ses avantages présente des faiblesses qui ralentissent sa diffusion au sein de l'industrie, entre autres, sa trop courte durée de vie. Face à cette considération, nous proposons d'appliquer le PHM à la PEMFC. Il faut donc développer le pronostic puis considérer son insertion au sein d'un système industriel. Nous choisissons de baser l'approche proposée sur un modèle de comportement, tout en proposant de combler le manque de connaissance concernant le vieillissement de la pile par les données, ce qui nous permet amène à développer une approche hybride. Dans ces travaux, le modèle comportemental est étudié sur des durées de plus en plus grandes pour enfin proposer une prédiction de l'ordre du millier d'heure. Afin de prendre en compte une implantation au sein d'un système réel, une étude sur la généricité et applicabilité de l'approche est réalisée. Ainsi, ces travaux proposent une approche de pronostic hybride basée sur un modèle de comportement et étudie son insertion au sein d'un système réel.

**Mots-clés :** PEMFC, PHM, Pronostic, Modèle semi-analytique, Hybride

## Abstract:

The current environmental concerns lead us to consider alternative solutions. The fuel cell can be one of them with numerous advantages, it presents however weaknesses, especially, its life duration which is too short. Face to this issue, we offer to apply the PHM to the PEMFC. For that, it is necessary to develop the prognostics for this application and the possibility of the on-line implementation on an industrial system. It was chosen to base the approach on a behavioral model in which the knowledge gaps are completed with the use of data. So, the approach proposed here, is hybrid. In this work, the behavioral model is studied on laps of time longer in order to finally introduce a prediction of a thousand of hours. Then, the online implementation on a real system is considered with a genericity and an applicability study. This work proposes a hybrid prognostics approach based on a behavioral model and study its implementation on an industrial system.

**Keywords:** PEMFC, PHM, Prognostics, Semi-analytic model, Hybrid

The logo for SPIM (École doctorale SPIM) features a stylized 'S' followed by the letters 'PIM' in a large, white, sans-serif font. A horizontal yellow bar is positioned to the left of the 'S'.

■ École doctorale SPIM 16 route de Gray F - 25030 Besançon cedex

■ tél. +33 (0)3 81 66 66 02 ■ [ed-spim@univ-fcomte.fr](mailto:ed-spim@univ-fcomte.fr) ■ [www.ed-spim.univ-fcomte.fr](http://www.ed-spim.univ-fcomte.fr)

The logo for the University of Franche-Comté (UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ) features a stylized 'U' and 'FC' in a large, black, sans-serif font. Below the 'U' and 'FC' are the words 'UNIVERSITÉ' and 'DE FRANCHE-COMTÉ' in a smaller, black, sans-serif font. A vertical yellow bar is positioned to the left of the 'U'.