

SOUTENANCE DE STAGE PFE

ÉTUDE DU VIEILLISSEMENT DES PILES À COMBUSTIBLE

Toulouse, 09.09.2021

Joël Roman KY, Étudiant ENSEEIHT HPC & Big Data

Jury composé de :

M. Olivier COTS

Mme Marie-Laure BOUCHERET

M. Axel CARLIER

Public

VITESCO TECHNOLOGIES



SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

4. MODÉLISATIONS ET RÉSULTATS

5. CONCLUSION

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

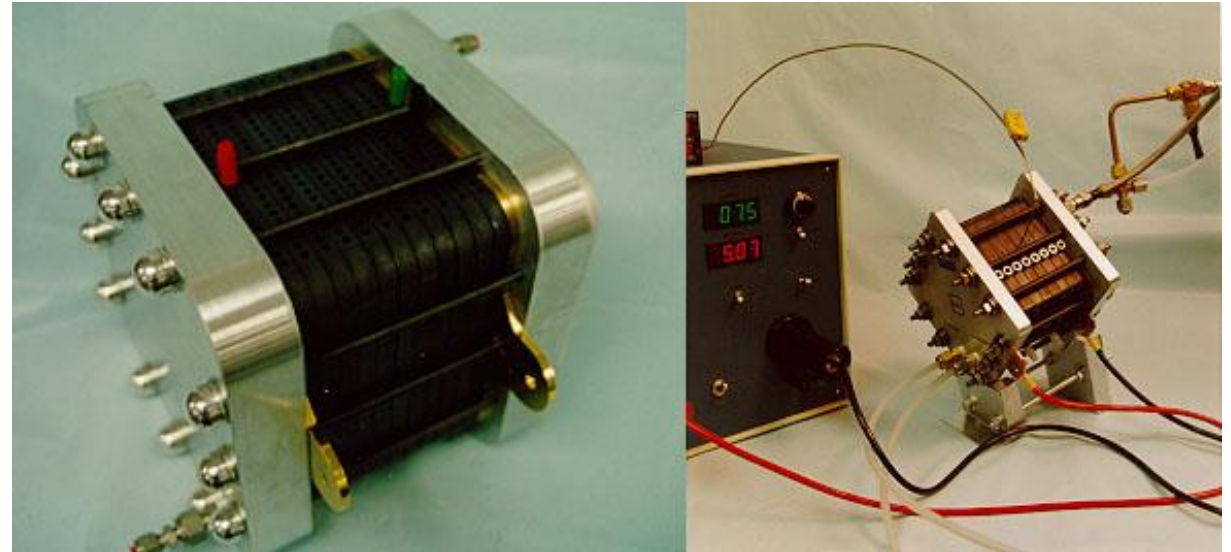
4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

5. CONCLUSION

1. INTRODUCTION

1-1. CONTEXTE DU PROJET

➤ **Piles à combustible** : Une technologie pour une mobilité plus écologique



Source: [High Efficiency Proton Exchange Membrane Fuel Cell \(nasa.gov\)](https://www.nasa.gov)



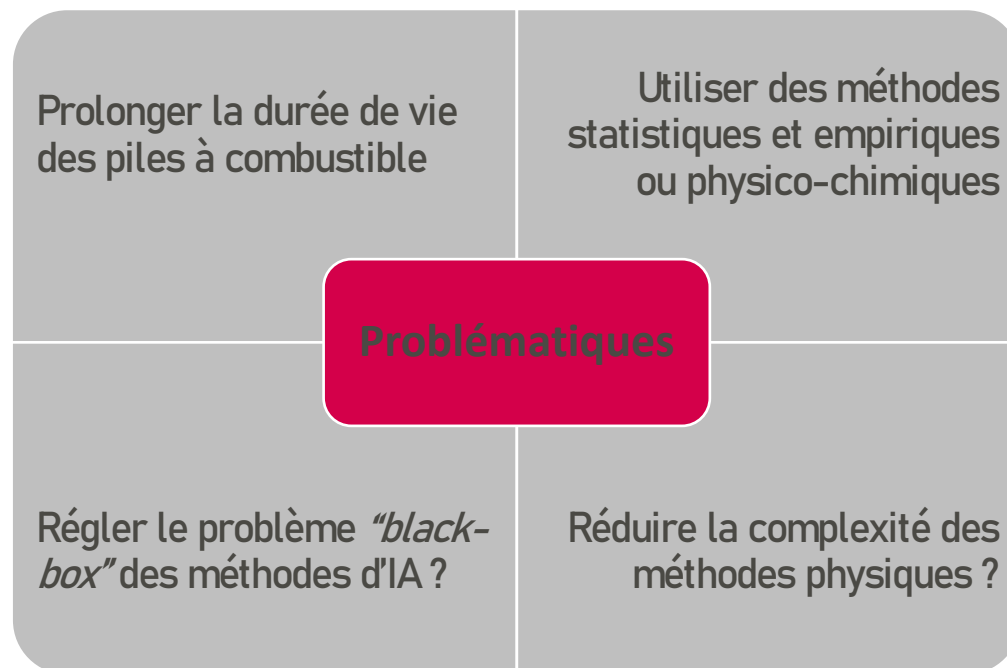
Production
du H₂

Coût

Durée de
vie limitée

1. INTRODUCTION

1-2. PROBLÉMATIQUES & OBJECTIFS DU STAGE



SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

5. CONCLUSION

2. ÉTAT DE L'ART

2-1. MÉCANISMES DE DÉGRADATION DE LA PILE

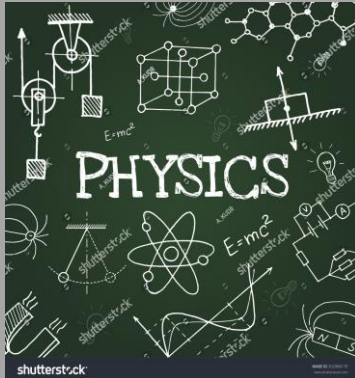
Composants	Dégradations	Causes	Conséquences	Gravité
Plaque bipolaire	Déformations/ Fêlures	Couple de serrage	Fuites des réactifs	Irréversible
	Obstruction canaux	- Gel - Accumulation d'eau	- Accès gaz réactifs - Surpression locale	Réversible Réversible
		Corrosion	Fragilisation	Irréversible
Joint d'étanchéité	Perte d'étanchéité	- Exposition à H_2 - Milieu corrosif	- Dissolution du joint - ↓ Conductivité membrane - Mélange H_2/O_2	Irréversible
Couche de diffusion	Corrosion carbone	- Radicaux libres	- ↑ Résistance électrique	Irréversible
	Dissolution PTFE	- Potentiel électrodes - Faible humidité relative	- ↓ - Conductivité membrane - Accumulation d'eau	
	Rupture des fibres	- Couple de serrage	- ↑ Résistance électrique	Irréversible
Couche active	Corrosion du carbone	- Potentiel électrodes	- ↓ Surface active	Irréversible
	- Dissolution - Agglomération du Pt	- Cyclage tension - Appauvrissement réactif	- ↑ Résistance électrique	
	Empoisonnement	Réactifs impurs	↓ Surface active	Dépend des espèces
Membrane	Assèchement	Mauvaise gestion eau	- ↑ Résistance électrique - Fragilisation membrane	Réversible
	Empoisonnement	Réactifs impurs	↓ Conductivité membrane	Irréversible
	Perforations	- Mélange H_2/O_2 - Imprégnation catalyseur	Rupture de la membrane	

Mécanismes de dégradation de la pile à combustible [Wasterlain 2010]

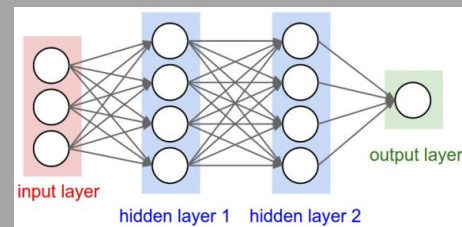
2. ÉTAT DE L'ART

2-2. MÉTHODES DE MODÉLISATION

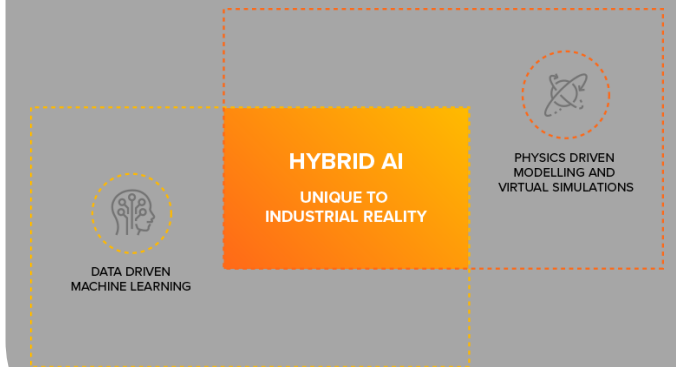
Méthodes de modélisation physique



Méthodes de d'apprentissage automatique



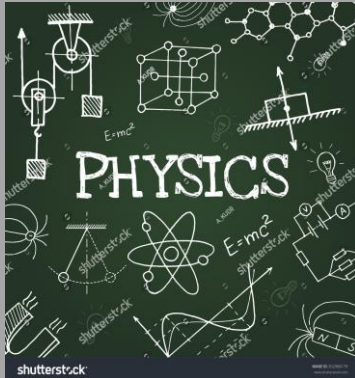
Méthodes hybrides



2. ÉTAT DE L'ART

2-2. MÉTHODES DE MODÉLISATION

Méthodes de modélisation physique



- Filtres particulaires [Jouin 2015, Zhang 2019]
- Équations de polarisation, surface active [Jouin 2015, Robin 2015]
- Jumeau numérique [Wang 2020]



- Besoin en données faible
- Généralisabilité

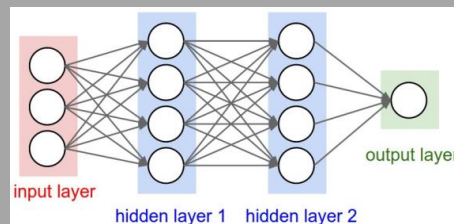


- Phénomènes physiques inconnus
- Complexité de calcul
- Hypothèses simplificatrices

2. ÉTAT DE L'ART

2-2. MÉTHODES DE MODÉLISATION

Méthodes de d'apprentissage automatique



- Réseaux de neurones (RNN, LSTM) [Liu 2018, Zuo 2021]
- Méthodes statistiques (SVM, bayésiennes, gaussiennes) [Xie 2020]



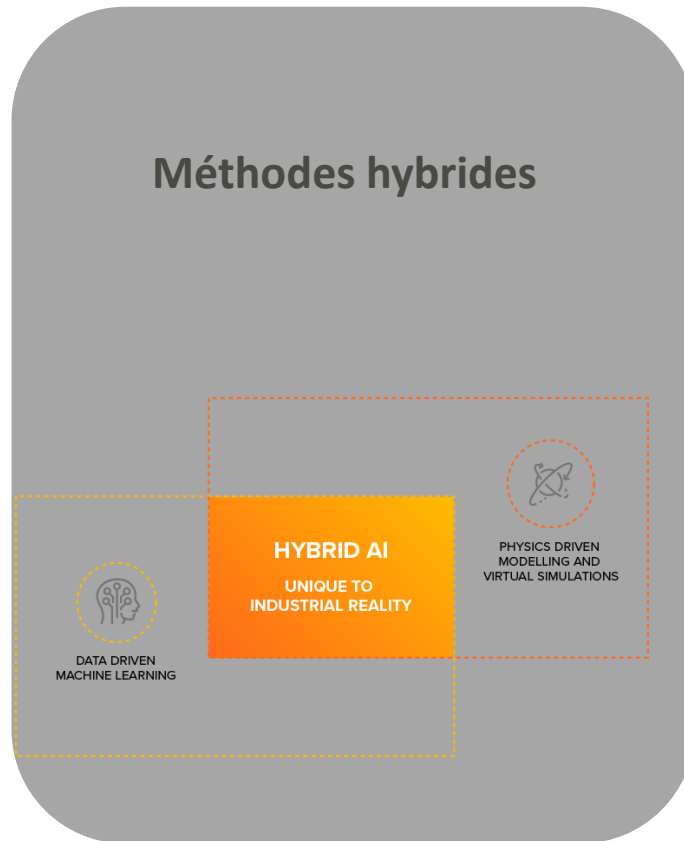
- Efficacité sur les non-linéarités
- Connaissance physique non nécessaire



- Grand besoin en données
- Problème des *black box*
- Généralisabilité difficile

2. ÉTAT DE L'ART

2-2. MÉTHODES DE MODÉLISATION



- Combinaisons des deux précédentes
- Filtres particuliers + (SVM, LSTM, RNN) [Cheng 2018, Xie 2020]



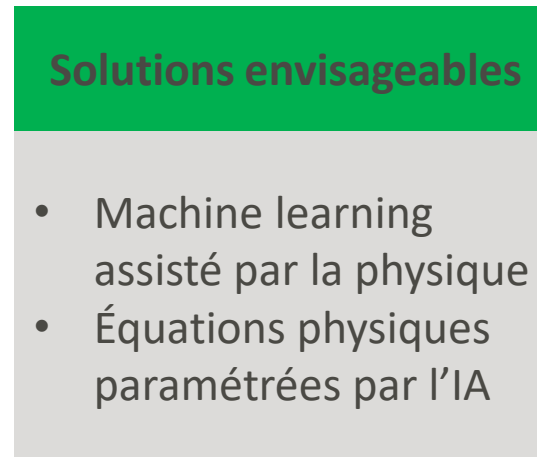
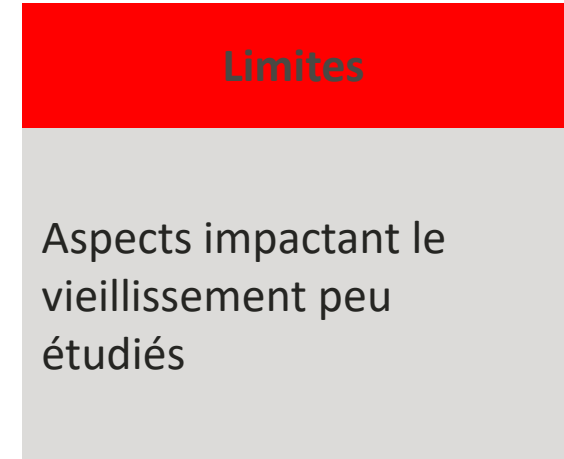
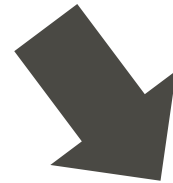
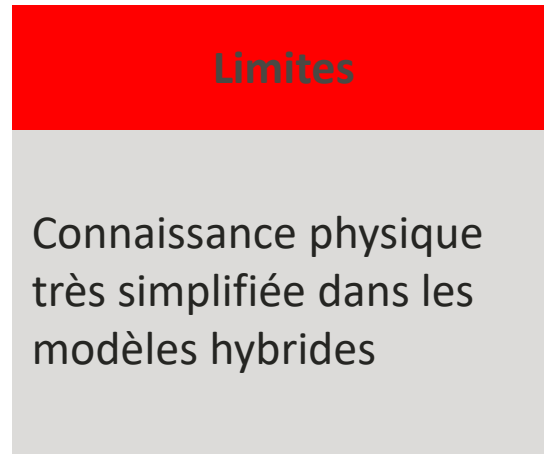
- Connaissance physique + Assimilation des non-linéarités
- Généralisabilité



- Complexité de calcul
- Grand besoin en données

2. ÉTAT DE L'ART

2-5. LIMITES DE L'ÉTAT DE L'ART



SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

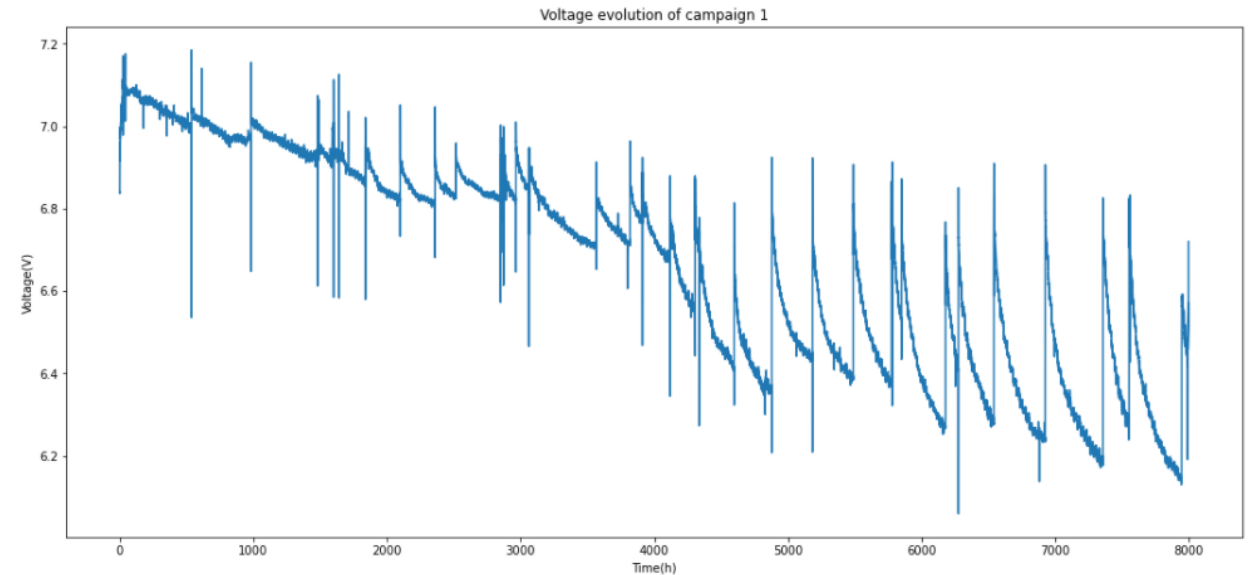
4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

5. CONCLUSION

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

3-1. PRÉSENTATION DE LA BASE DE DONNÉES HELION

- Base de données de campagne de vieillissement
- 4 campagnes allant de 1500 à 8000h (1an) de données sur la tension, la pression, les fuites, les températures



3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

3-2. ÉTUDES DES CORRÉLATIONS ENTRE LES DONNÉES

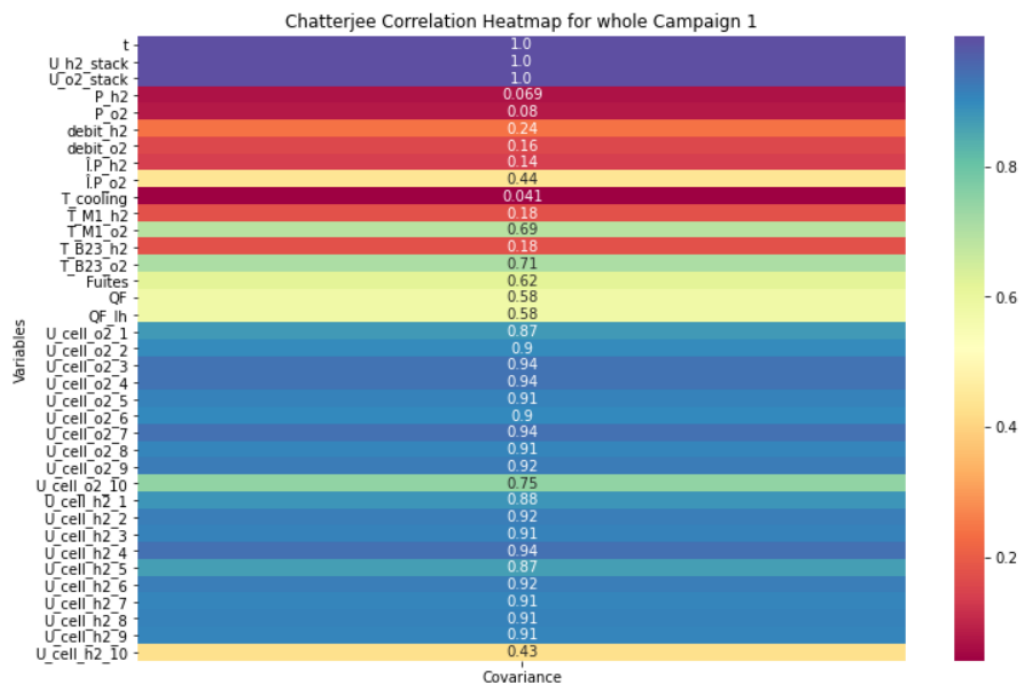
- Comment mesurer l'influence d'une grandeur ?
 - Mesure de **Chatterjee**
- Comment quantifier l'influence d'une grandeur ?
 - 0 si (X, Y) sont indépendants
 - 1 s'il existe une fonction telle que $f(X) = Y$
- Efficace sur les données **non-linéaires et bruitées**

$$\xi_n(X, Y) := 1 - \frac{3 \sum_{i=1}^{n-1} |r_{i+1} - r_i|}{n^2 - 1}.$$

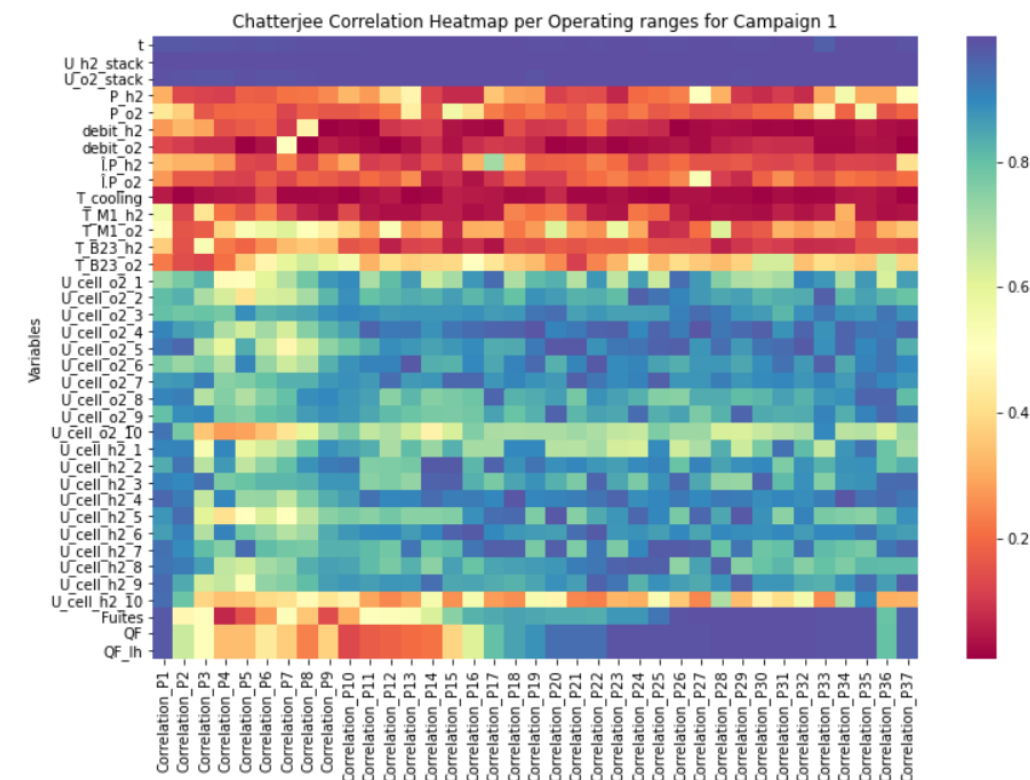
$$\xi(X, Y) := \frac{\int \text{Var}(\mathbb{E}(1_{\{Y \geq t\}} | X)) d\mu(t)}{\int \text{Var}(1_{\{Y \geq t\}}) d\mu(t)},$$

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

3-2. ÉTUDES DES CORRÉLATIONS ENTRE LES DONNÉES



Corrélations marquées entre tension du stack et températures, fuites et tensions des cellules



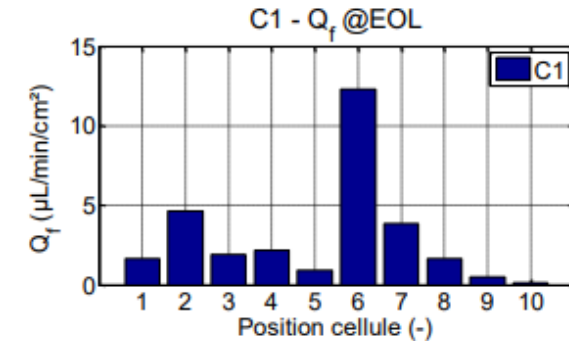
Corrélations moins marquées en fonction des plages de fonctionnement

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

3-2. ÉTUDES DES CORRÉLATIONS ENTRE LES DONNÉES

Analyse des corrélations :

- Fuites dans la pile réparties dans les cellules (6, 2, 7)
- Corrélations non significatives entre les tensions des cellules et les débits de fuites



Répartition des fuites dans les cellules [Tognan 2018]

- Peu de variables explicatives dans la base de données
- Besoin d'informations supplémentaires :
 - Informations sur la surface active, les membranes, les résistances.
 - Nouvelles opérations de mesure (EIS, courbes de polarisations, etc.)
- Seule donnée utilisable : **la tension de la pile**

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

5. CONCLUSION

4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

4-1. MODÈLE PHYSIQUE

Équation de polarisation

$$V_{Cell}(J, t) = E_{rev}(P, T) - \frac{RT}{\alpha n F} \ln \left(\frac{J + J_n}{J_0(t_0) * \tau_{degr}(t)} \right) - \left(\frac{R_{diff}^A(t_0)}{\tau_{degr}(t)} + R_{diff}^B(t_0) \right)^* (J + J_n) - R_{ohm}(t) * (J + J_n)$$

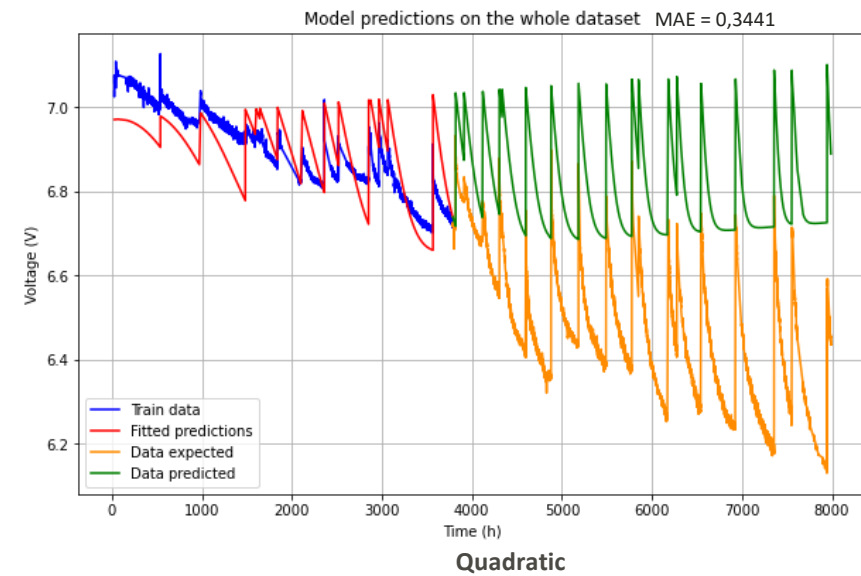
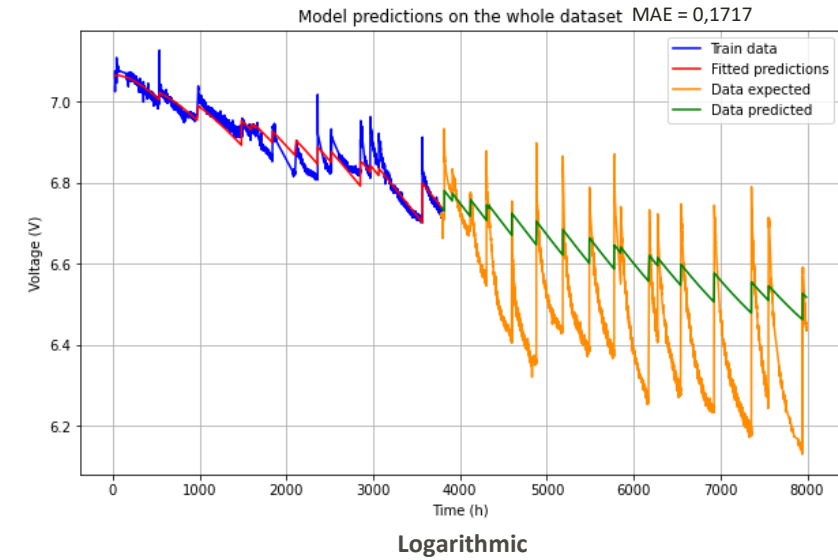
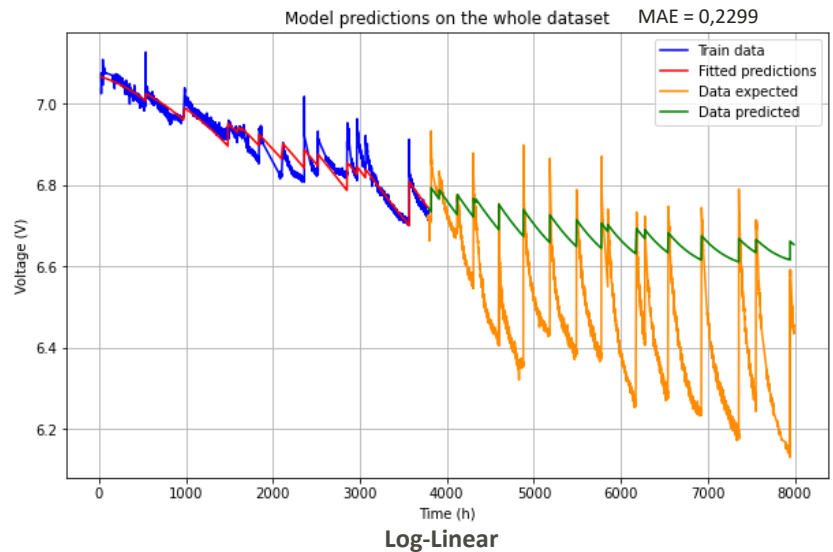
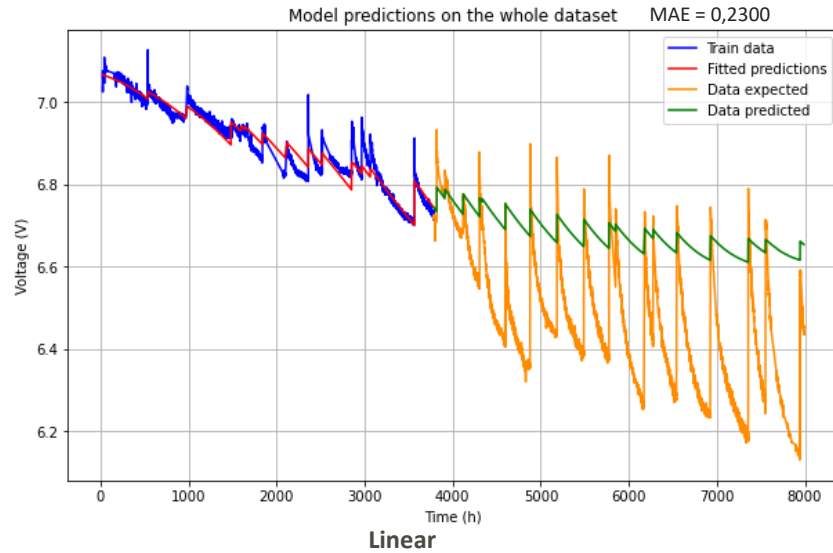
[Robin 2015], [Jouin 2015], [Jomori 2012],
[Kneer 2019]

$$\tau_{degr}(t) = s_{min} + (1 - s_{min}) * e^{-(k_{irrev} * t + k_{rev} * \Delta t)}$$

- Linear
- Log-linear
- Logarithmic
- Quadratic

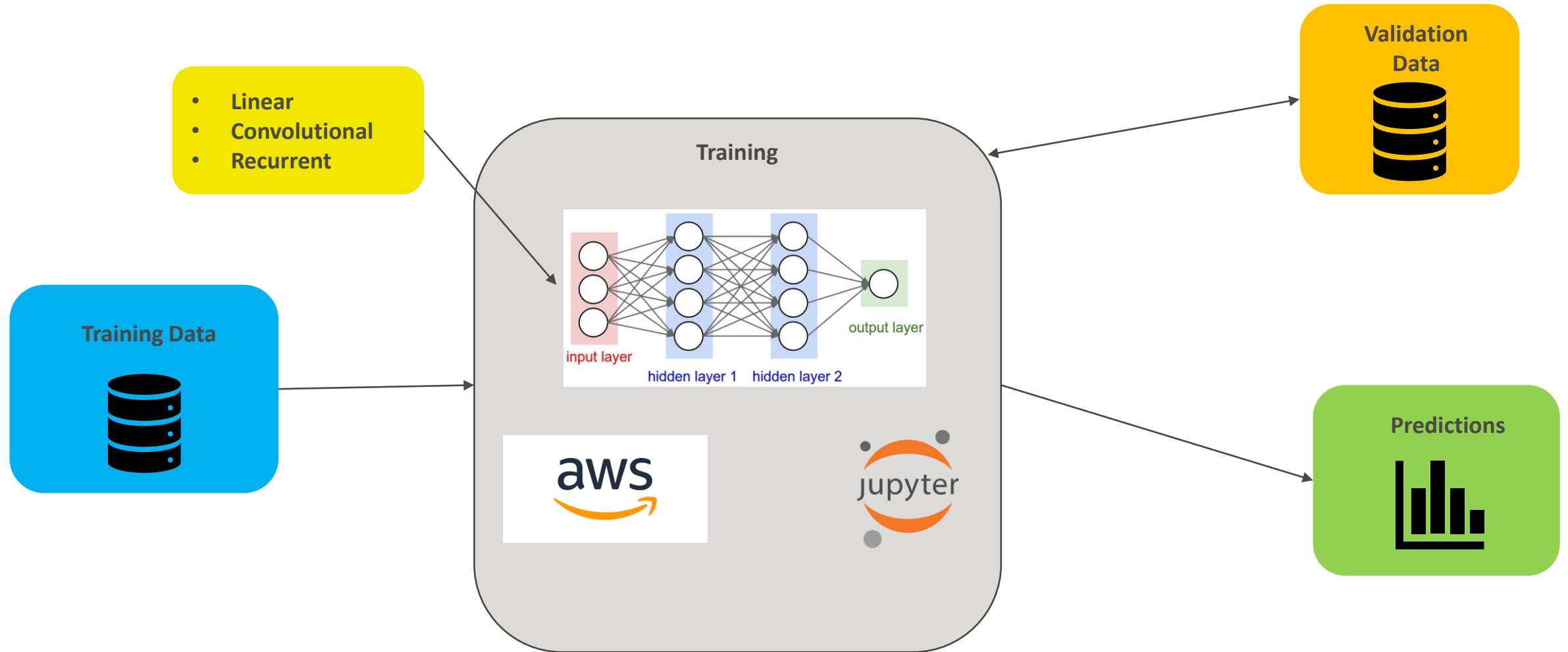
4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

4-1. MODÈLE PHYSIQUE



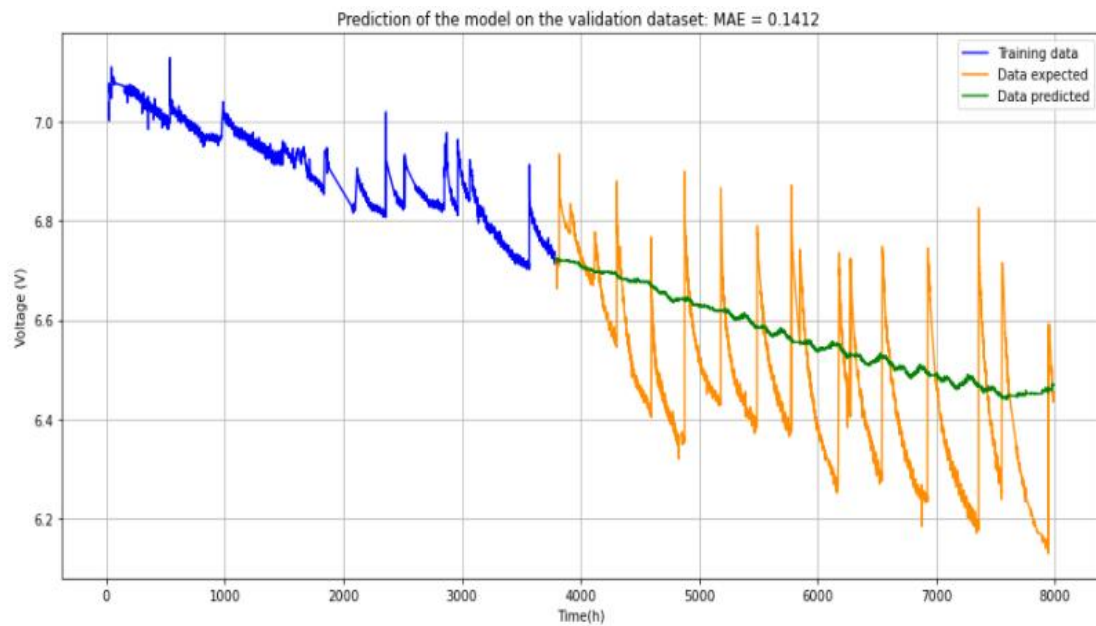
4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

4-2. MODÈLE D'APPRENTISSAGE AUTOMATIQUE

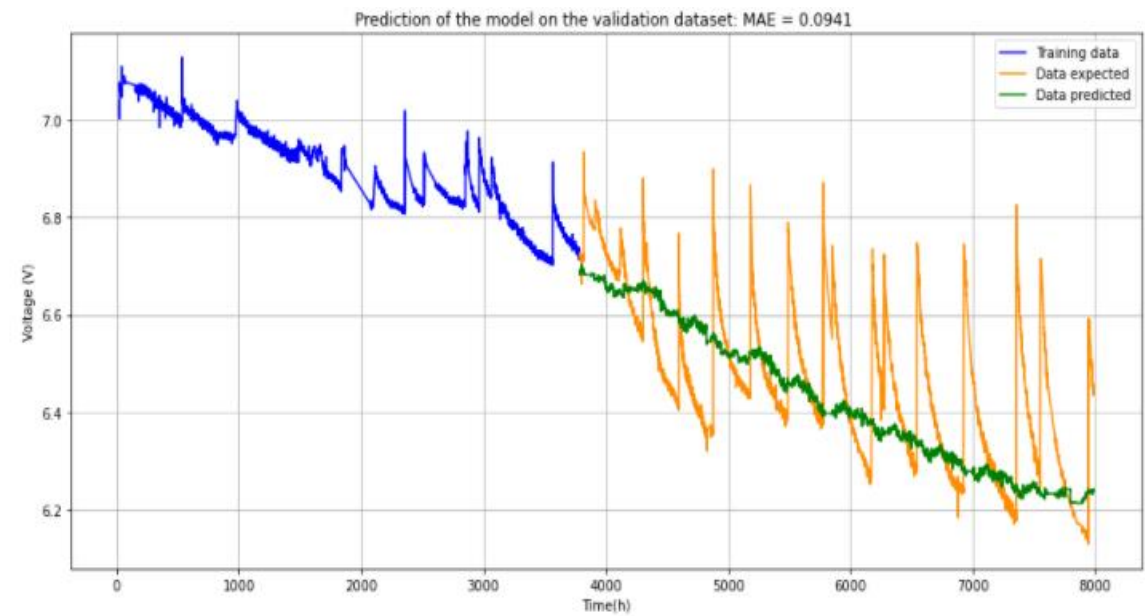


4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

4-2. MODÈLE D'APPRENTISSAGE AUTOMATIQUE



Linear



Convolutional

4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

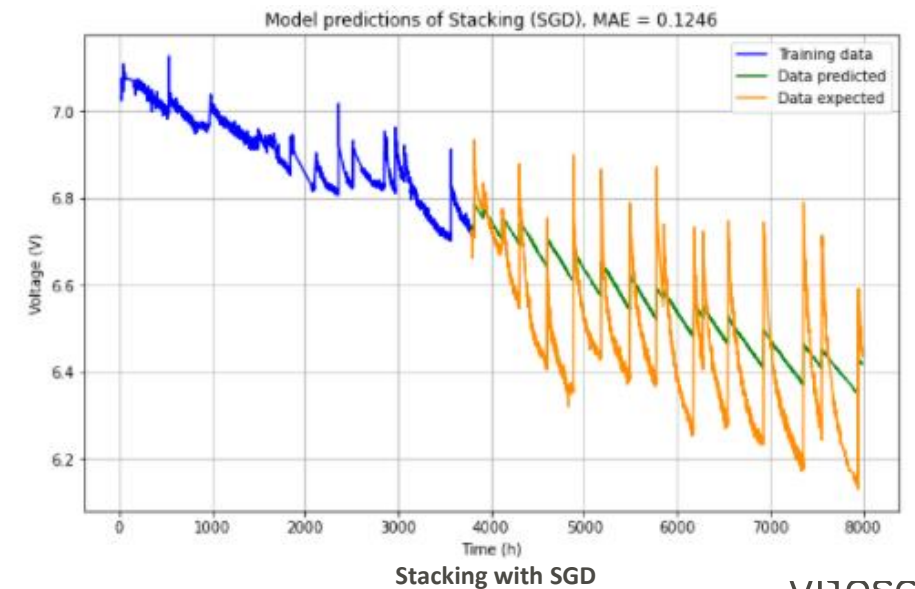
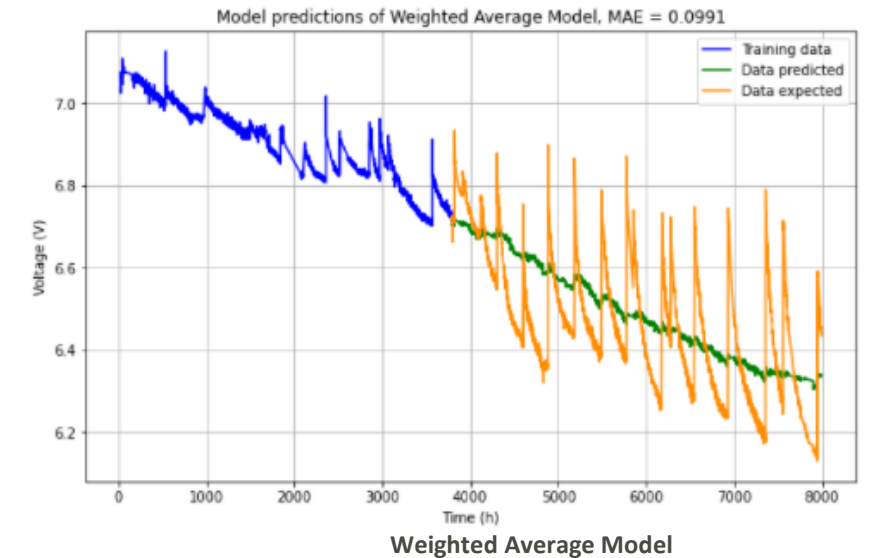
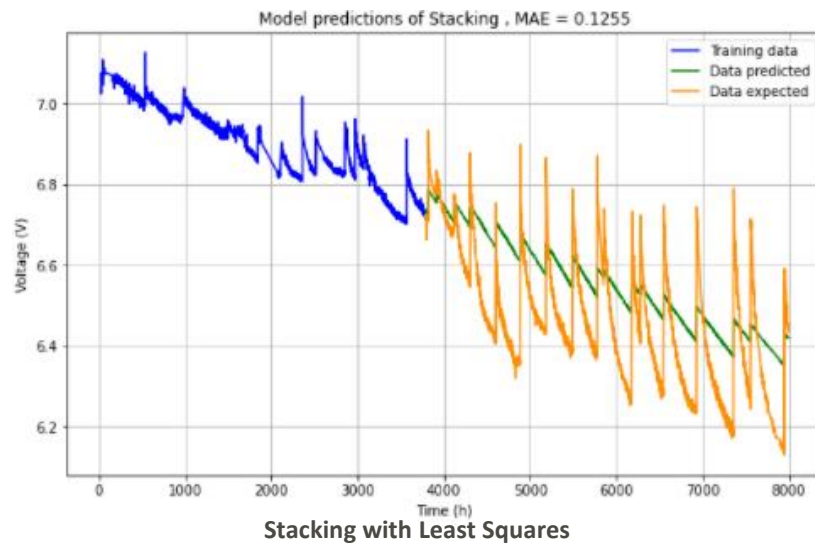
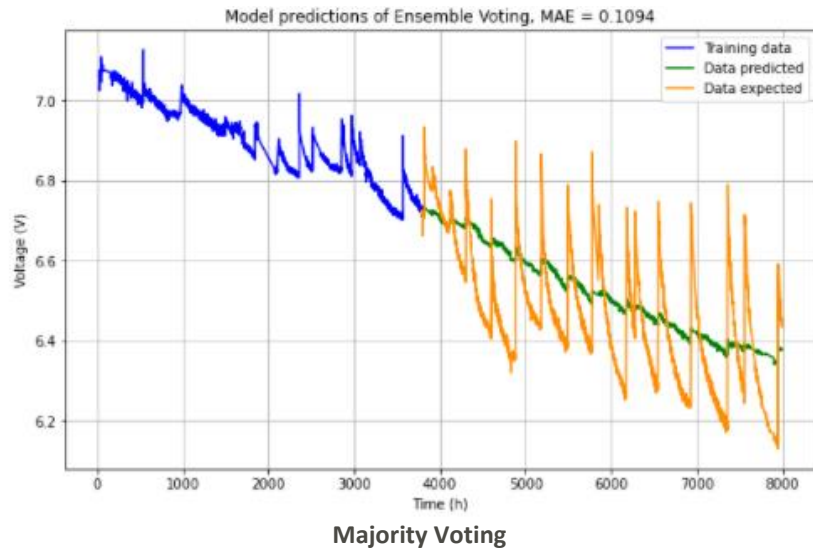
4-3. MODÈLE HYBRIDE



- **Majority Voting**
- **Weighted Average Model**
- **Stacking**

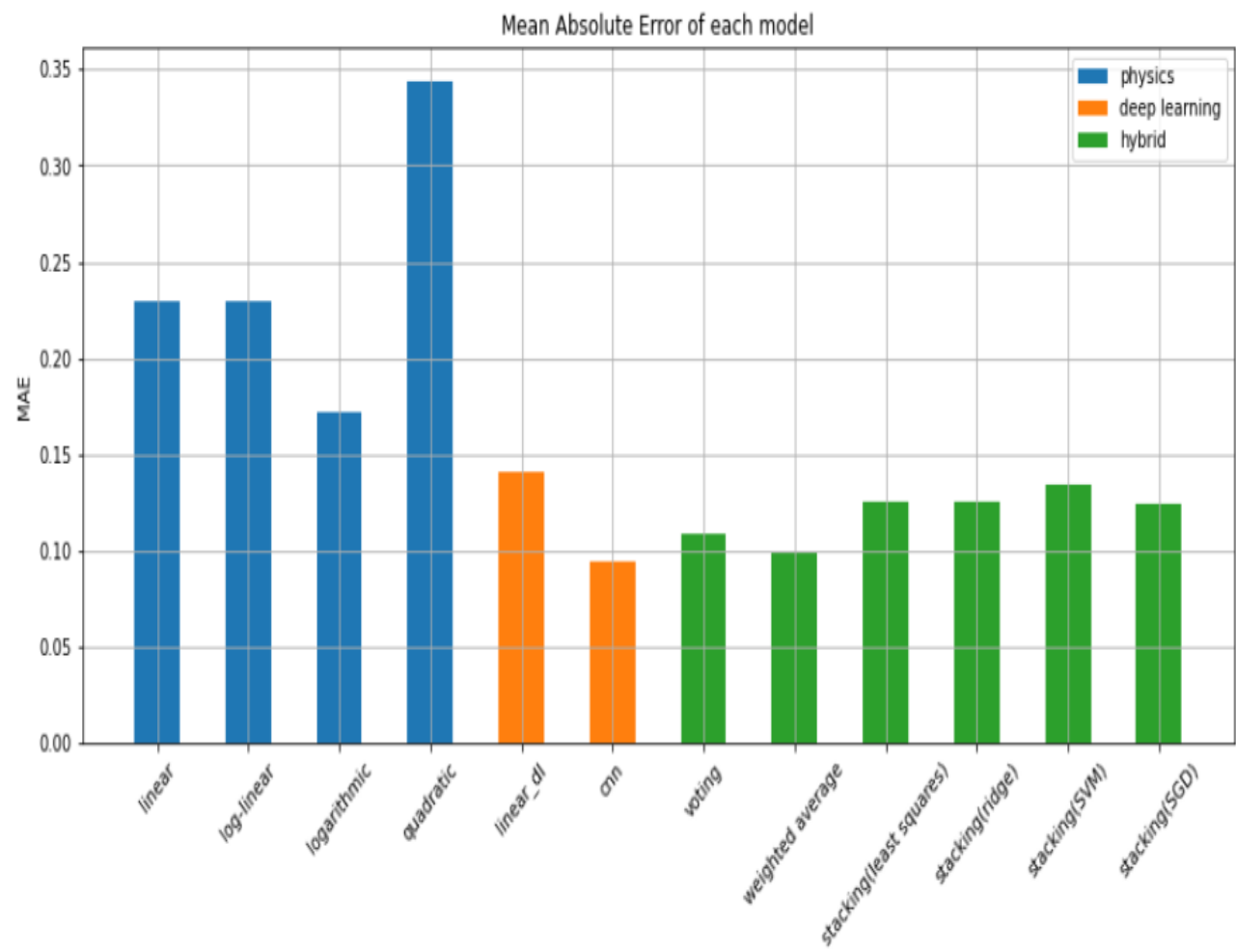
4. EXPÉRIMENTATIONS & RÉSULTATS

4-3. MODÈLE HYBRIDE



4. MODÉLISATIONS & RÉSULTATS

4-3. COMPARAISON DES MÉTHODES



Temps & Erreurs des modèles

Modèles	Physique	Apprentissage automatique
Temps	10s- 50s	1h – 6h
MAE	0.1717	0.0941

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION

2. ÉTAT DE L'ART

3. IDENTIFICATION DES FACTEURS PRINCIPAUX DU VIEILLISSEMENT

4. EXPÉRIMENTATIONS & RÉSULTATS

5. CONCLUSION

4. CONCLUSION

BILAN & PERSPECTIVES DU STAGE

Bilan

- Hybridation fournit un bon compromis mais:
 - Modèle physique limité
 - Modèle d'apprentissage pas adapté sur les dégradations réversibles

Perspectives

- Obtenir des informations explicatives
- Améliorer les modélisations
- Améliorer l'explicabilité des modèles
- Chercher de nouvelles métriques

Apport Personnel

- Prise d'autonomie sur des sujets complexes
- Connaissances sur l'IA hybride et explicable
- Immersion dans le monde de la recherche

RÉFÉRENCES

- [Tognan 2018] : Malik Tognan. Etude de dégradations des performances de Piles à Combustible PEM BT alimentées en H₂/O₂ lors de campagnes d'endurance : du suivi de l'état de santé en opération à la modélisation du vieillissement. PhD thesis, 2018. Thèse de doctorat dirigée par Turpin, Christophe GénieÉlectrique Toulouse, INPT 2018
- [Wasterlain 2010] : Sébastien Wasterlain. Approches expérimentales et analyse probabiliste pour le diagnostic de piles à combustible de type PEM. Theses, Université de Franche-Comté, February 2010.
- [Robin 2015] : Christophe Robin. Développement d'un modèle prédictif de durée de vie d'une pile PEMFC pour une application aéronautique : étude des interactions entre le cœur de pile et les conditions d'opération du système. Theses, Université Grenoble Alpes, November 2015
- [Jouin 2015] : Marine Jouin. Contribution au pronostic d'une pile à combustible de type PEMFC : approche par filtrage particulière. PhD thesis, 2015. Thèse de doctorat dirigée par Zerhouni, Noureddine Hissel, Daniel Péra, Marie-Cécile et Gouriveau, Rafael Automatique Besançon 2015.
- [Jomori 2012] : Shinji Jomori, Nobuaki Nonoyama, and Toshihiko Yoshida. Analysis and modeling of pemfc degradation : Effect on oxygen transport. Journal of Power Sources, 215 :18–27, 2012
- [Kneer 2019] : Alexander Kneer and Nadja Wagner. A semi-empirical catalyst degradation model based on voltage cycling under automotive operating conditions in PEM fuel cells. Journal of The Electrochemical Society, 166(2) :F120–F127, 2019
- [Zhang 2019] : D. Zhang, P. Baraldi, C. Cadet, N. Yousfi-Steiner, C. Bérenguer, and E. Zio. An ensemble of models for integrating dependent sources of information for the prognosis of the remaining useful life of proton exchange membrane fuel cells. Mechanical Systems and Signal Processing, 124 :479–501, 2019.

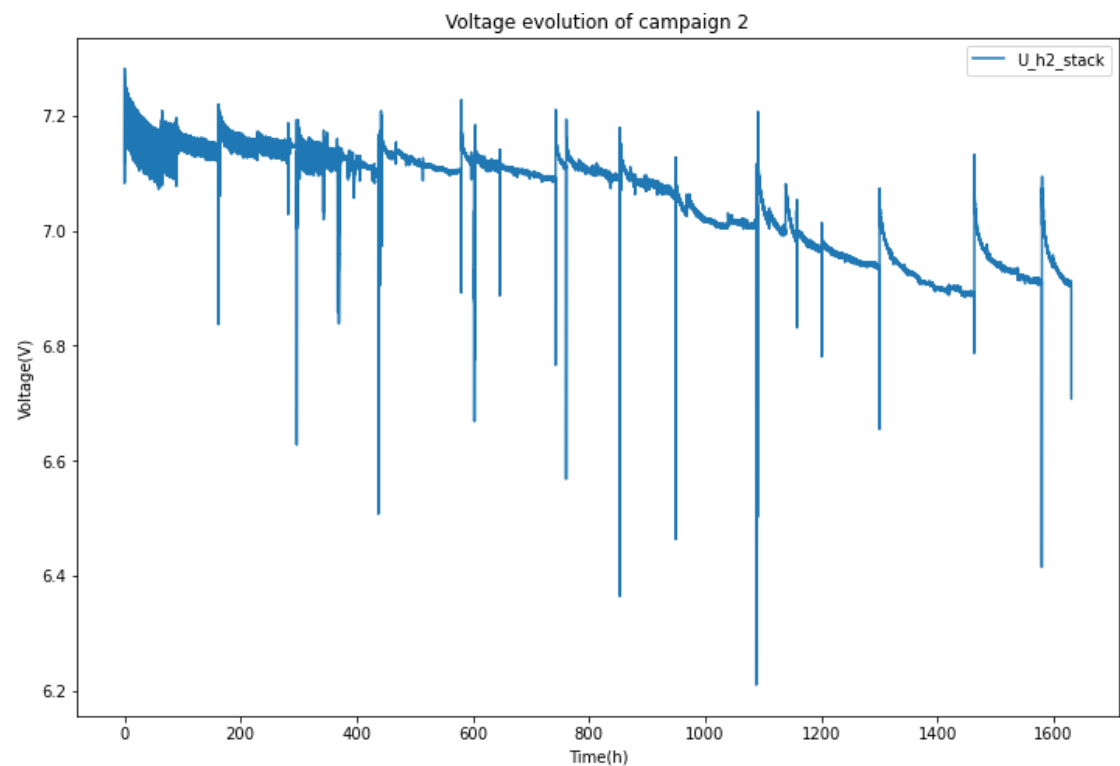
RÉFÉRENCES

- [Wang 2020] : Bowen Wang, Guobin Zhang, Huizhi Wang, Jin Xuan, Kui Jiao, Multi-physics-resolved digital twin of proton exchange membrane fuel cells with a data-driven surrogate model, Energy and AI, Volume 1, 2020
- [Liu 2018] : Jiawei Liu, Qi Li, Weirong Chen, Yu Yan, Yibin Qiu, and Taiqiang Cao. Remaining useful life prediction of pemfc based on long short-term memory recurrent neural networks. International Journal of Hydrogen Energy, 44, 10 2018
- [Zuo 2021] : Jian Zuo, Hong Lv, Daming Zhou, Qiong Xue, Liming Jin, Wei Zhou, Daijun Yang, and Cunman Zhang. Deep learning based prognostic framework towards proton exchange membrane fuel cell for automotive application. Applied Energy, 281 :115937, 2021
- [Xie 2020] : Yucen Xie, Jianxiao Zou, Chao Peng, Yun Zhu, and Fei Gao. A novel pem fuel cell remaining useful life prediction method based on singular spectrum analysis and deep gaussian processes. International Journal of Hydrogen Energy, 45(55) :30942–30956, 2020
- [Cheng 2018] : Yujie Cheng, Nouredine Zerhouni, and Chen Lu. A hybrid remaining useful life prognostic method for proton exchange membrane fuel cell. International Journal of Hydrogen Energy, 43(27) :12314– 12327, 2018
- [Xie 2020] : Renyou Xie, Rui Ma, Sicheng Pu, Liangcai Xu, Dongdong Zhao, and Yigeng Huangfu. Prognostic for fuel cell based on particle filter and recurrent neural network fusion structure. Energy and AI, 2 :100017, 07 2020

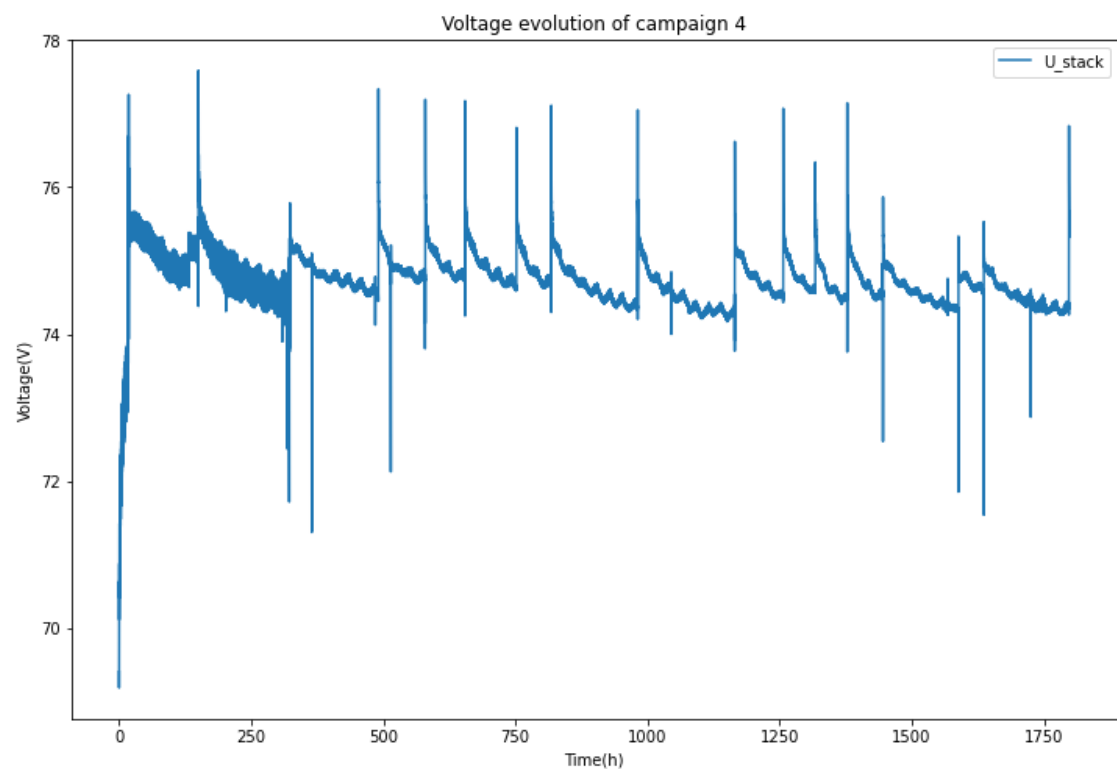
**MERCI DE VOTRE
ATTENTION**

ANNEXES

TENSION DES CAMPAGNES 2 ET 4



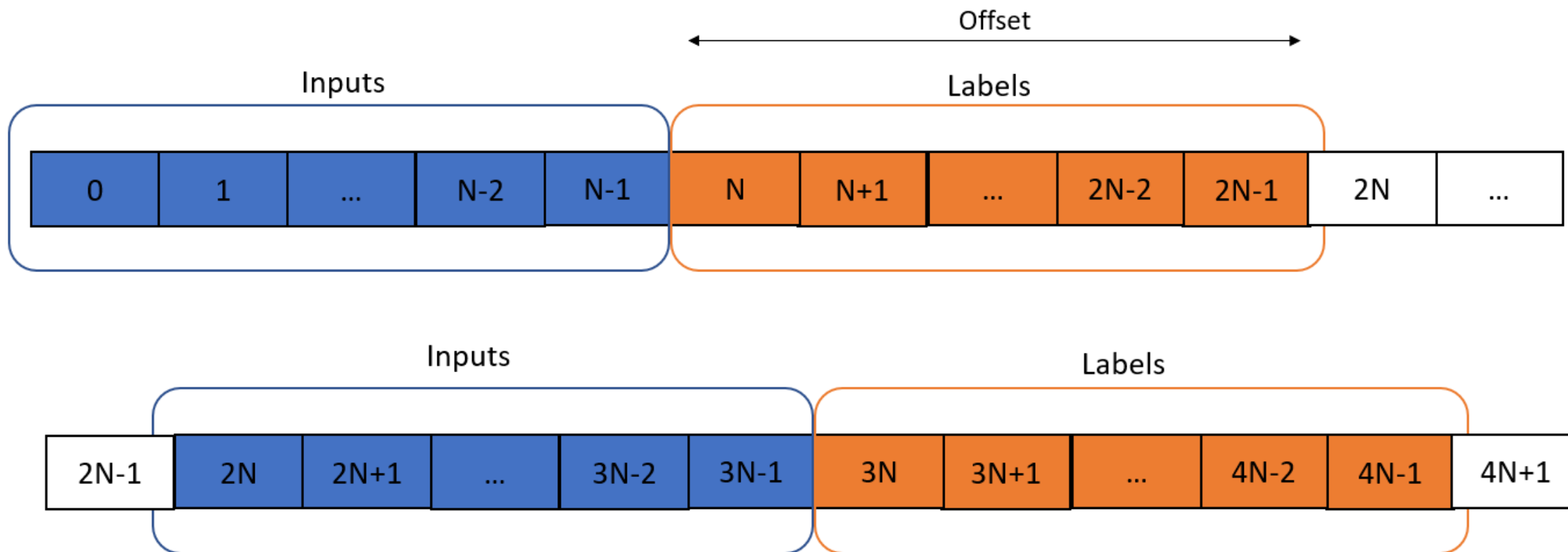
Tension de la campagne 2



Tension de la campagne 4

ANNEXES

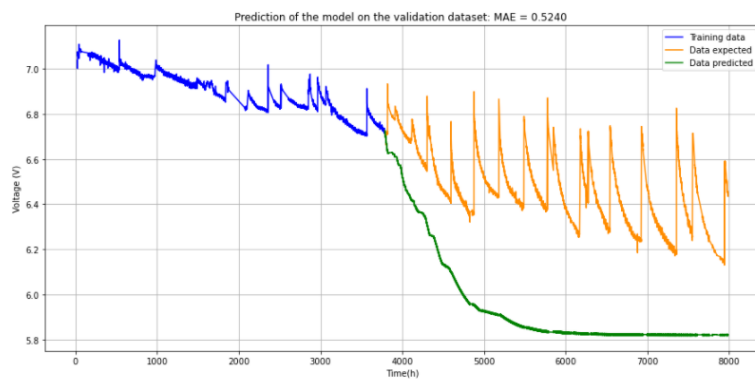
MÉTHODE DE LA FENÊTRE GLISSANTE



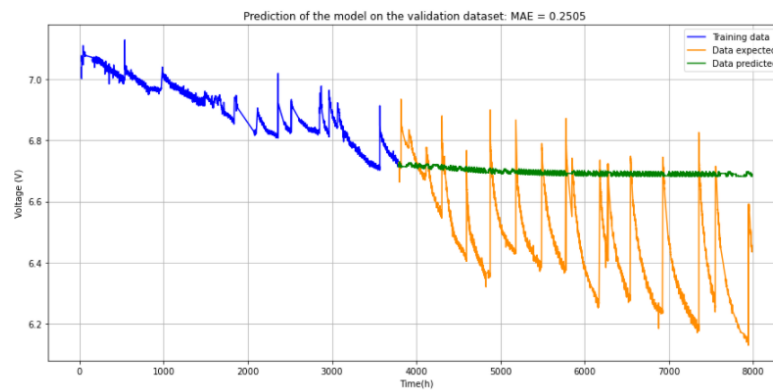
Méthode de la fenêtre glissante

ANNEXES

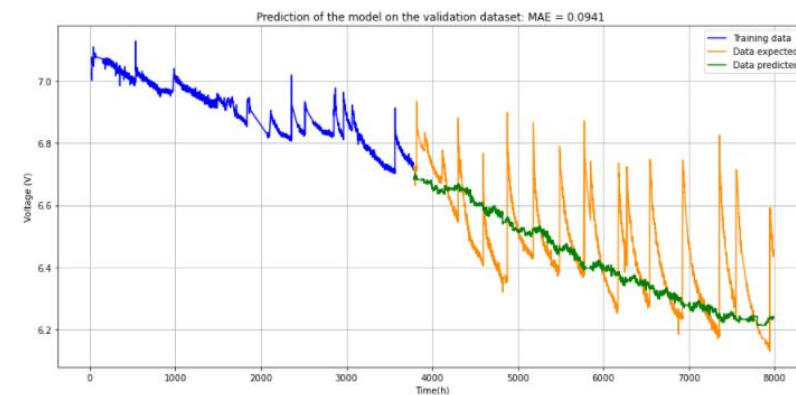
PERFORMANCES EN FONCTION DE LA TAILLE DE LA FENÊTRE



N = 1000



N = 10000

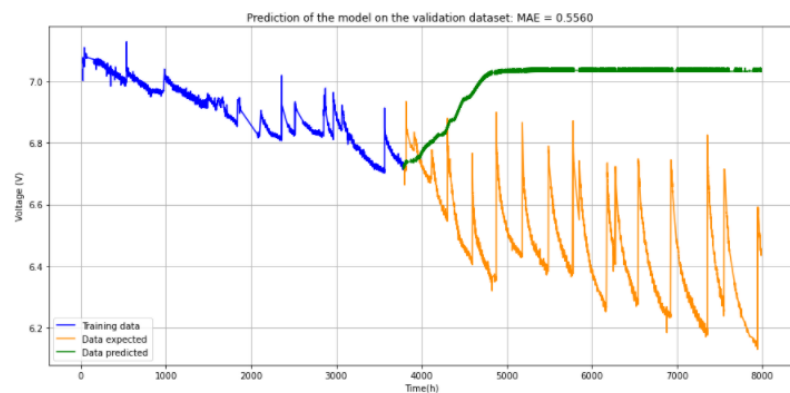


N = 100000

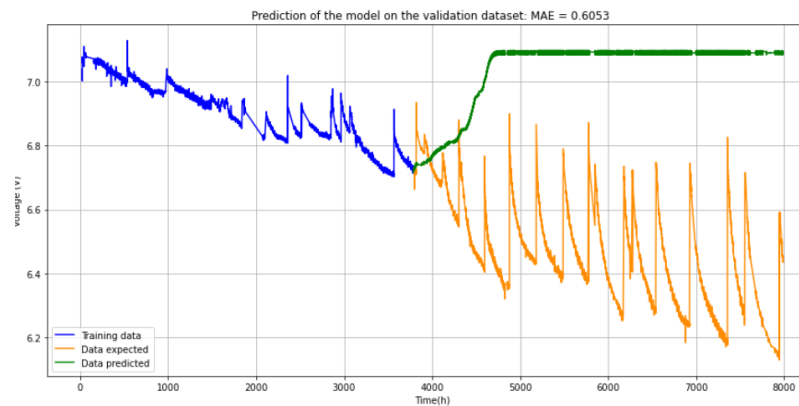
**Performances du réseau de neurones
convolutif**

ANNEXES

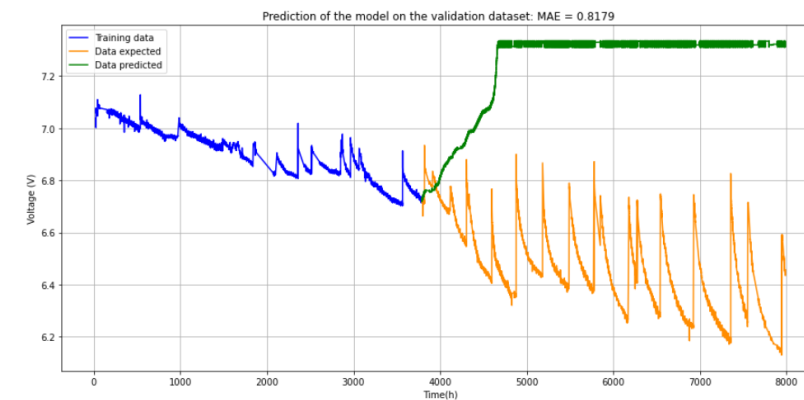
RÉSULTATS DES APPROACHES DES RESEAUX DE NEURONES RÉCURRENTES



LSTM



RNN

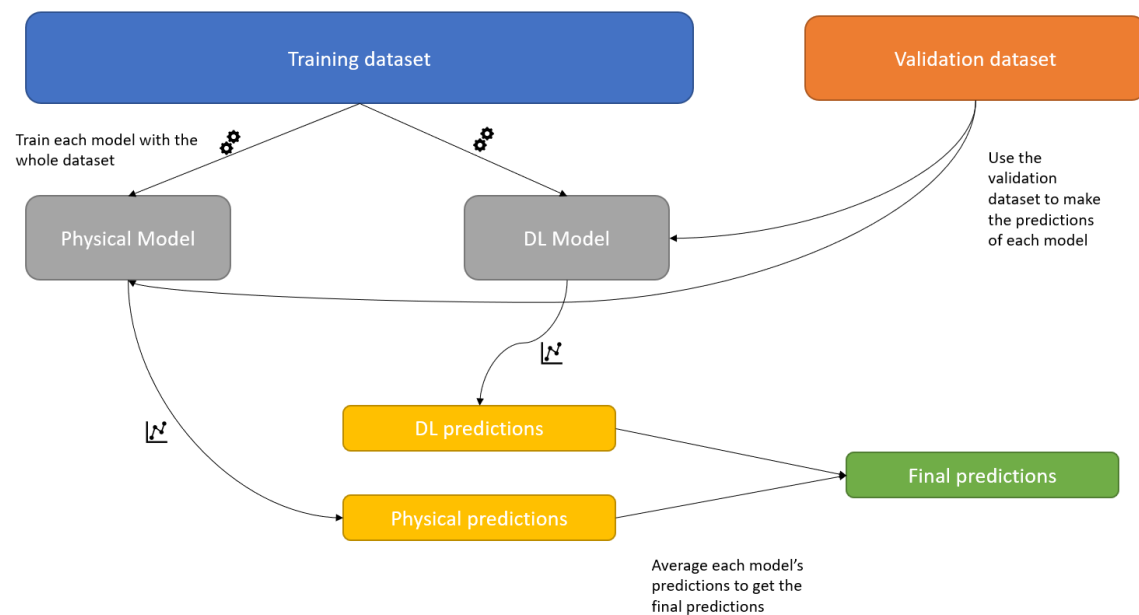


GRU

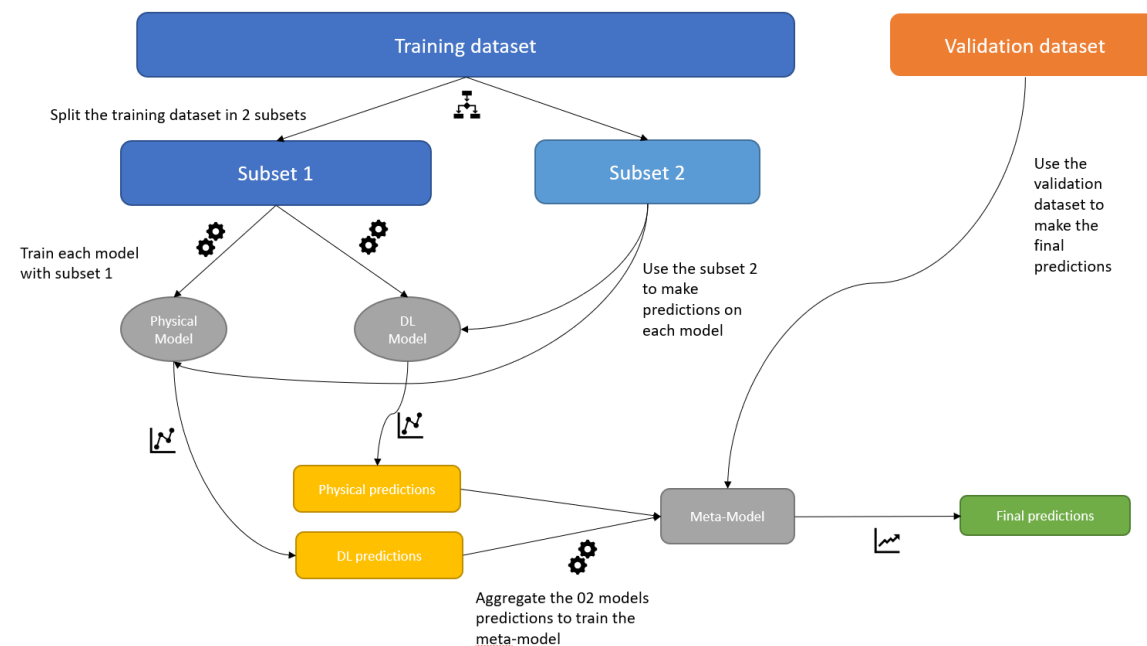
Performances des réseaux de neurones
récurrentes

ANNEXES

MÉTHODES D'ENSEMBLE



Ensemble Voting



Stacking